



HAL
open science

Étude du comportement dynamique sous choc des verres métalliques massifs

Benjamin Jodar

► **To cite this version:**

Benjamin Jodar. Étude du comportement dynamique sous choc des verres métalliques massifs. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. Université de Rennes, 2018. Français. NNT : 2018REN1S081 . tel-02110616

HAL Id: tel-02110616

<https://theses.hal.science/tel-02110616>

Submitted on 25 Apr 2019

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE DE DOCTORAT DE

L'UNIVERSITE DE RENNES 1
COMUE UNIVERSITE BRETAGNE LOIRE

ECOLE DOCTORALE N° 596
Matière Molécules et Matériaux
Spécialité : Sciences des Matériaux

Par

Benjamin JODAR

Etude du comportement dynamique sous choc des verres métalliques massifs

Thèse présentée et soutenue à Rennes, le 22.11.2018
Unité de recherche : UMR 6251

Rapporteurs avant soutenance :

Anne TANGUY Professeur des Universités – INSA Lyon.
Rémy FABBRO Directeur de Recherche Émérite – CNRS,
ENSAM ParisTech.

Invités :

Thibaut de RÉSSEGUIER
Directeur de Recherche – CNRS, Université de Poitiers.
Christian DURIN
Ingénieur de Recherche – CNES.
Laurent SOULARD
Directeur de Recherche – CEA, DAM, DIF.
François BARTHELEMY
Ingénieur de Recherche – DGA

Composition du Jury :

Anne TANGUY
Professeur des Universités – INSA Lyon.
Rémy FABBRO
Directeur de Recherche Émérite – CNRS, ENSAM
ParisTech.
Alessandra BENUZZI-MOUNAIX
Directeur de Recherche – CNRS, École Polytechnique.
Jean-Jacques BLANDIN
Directeur de Recherche – CNRS, INP Grenoble.
David HEBERT
Ingénieur de Recherche – CEA, DAM, CESTA
Jean-Christophe SANGLEBOEUF
Professeur des Universités – Université de Rennes 1.
Laurent BERTHE
Directeur de Recherche – CNRS, ENSAM ParisTech
Didier LOISON
Maître de Conférences – Université de Rennes 1, IPR.

Remerciements

« La thèse, qu'est-ce que c'est ? ». Voilà une question, en apparence simple, qui cache une réalité bien moins triviale. À mon sens, il n'existe pas de réponse universelle pour décrire la richesse d'une telle expérience de vie. Les mots en viendraient à ne plus suffire pour résumer simplement ce qui se révélerait être comme un enchevêtrement d'événements, de phénomènes, d'observations, d'excitations, de frustrations, de rencontres ou de collaborations. À noter que la nature même de cette réponse est étroitement liée au sujet de l'étude, son niveau d'avancement, du seuil de désespoir du doctorant, de son taux de caféine dans le sang, de la quantité de résultats à corrélérer ou bien encore à son degré d'insomnie. Malgré tout, il est un point sur lequel bon nombre de docteurs tendent à s'accorder, celui décrivant une thèse comme avant tout une expérience humaine. Maintenant que j'y songe, l'écriture des remerciements n'aurait-elle pas pour autre vocation que de nous rappeler - indépendamment du domaine de l'étude, qu'il soit traité avec une approche expérimentale, numérique, théorique ou empirique -, que la Recherche est avant tout une cause à embrasser ayant pour ultime dessein d'unir les individus entre eux ? Je vous laisse le soin d'y songer ! Pour ma part, j'ai suffisamment disserté durant la rédaction de ce manuscrit pour me lancer de nouveau dans d'intenses digressions philosophiques, rappelant au grand dam de mes collègues, les (très) nombreuses et insolubles discussions s'étant déroulées en salle de pause au cours de ces trois dernières années ! Vous l'aurez compris, je m'attarderai dans les prochaines lignes à exprimer toute ma gratitude aux différentes rencontres et personnalités que j'ai pu côtoyer durant ma thèse, et qui ont toutes contribué à ce manuscrit ^{1 2}.

Tout d'abord, telle que le veut la tradition, je tiens à remercier les membres du jury ayant accepté de relire et évaluer ces travaux. En particulier, merci aux rapporteurs Anne TANGUY et Rémy FABBRO pour leur lecture approfondie de ce manuscrit. Bien que certains aspects de ces travaux s'éloignent de leurs problématiques scientifiques respectives, leurs pertinentes remarques ont donné lieu à d'enrichissants et d'intenses échanges ouvrant la voie vers de nouvelles pistes d'exploration futures. À ne pas en oublier, nos échanges au cours de la soutenance resteront un des moments les plus marquants de cette fin de thèse.

1. Autrement dit, je me décharge de toute responsabilité ! Ce que vous lirez par la suite n'est autre que le résultat des méfaits collectifs et prémédités des personnes remerciées ci-après !

2. Certains vous diront qu'une certaine forme de solennité se doit de pouvoir être respectée jusque dans la rédaction même des remerciements. À ces gens-ci, je leur répondrai « J'entends bien ! ».

Merci aussi aux autres membres du jury, Jean-Jacques BLANDIN, Laurent SOULARD, François BARTHELEMY, Thibaut de RESSEGUIER, Christian DURIN et David HEBERT qui ont manifesté un intérêt certain pour mes travaux de thèse, et qui ont pu se rendre disponibles pour une soutenance en pays breton. De plus, je souhaiterais remercier tout particulièrement Alessandra BENUZZI-MOUNAIX de m'avoir fait l'honneur de présider mon jury de thèse. Mon seul regret sera de ne pas avoir pu évoquer le postulat du flan lors de nos échanges³.

Avant d'entamer une série de remerciements se voulant la plus exhaustive possible, je tiens à exprimer ma gratitude à la région Bretagne et à la Direction Générale de l'Armement à l'origine du financement de cette thèse, pour la confiance qu'ils ont attribué au projet initial et sans qui ces travaux n'auraient pu voir le jour.

Comme évoqué précédemment, la thèse est avant tout une expérience humaine, peuplée de rencontres forgeant tout docteur en devenir. Parmi les personnes primordiales à remercier se retrouvent mon encadrant et mes directeurs de thèse, ç savoir Didier LOISON, Laurent BERTHE et Jean-Christophe SANGLEBOEUF.

Didier, je tiens à te remercier pour la disponibilité, la patience et la pédagogie dont tu as su faire preuve à mon égard quasi-quotidiennement, et ce, en dépit d'un sujet jeune scientifiquement où tout était à faire! Tu étais littéralement en première ligne, à devoir gérer mes phases d'intenses exaltation et frustration, non seulement au laboratoire, mais aussi au cours de nos nombreuses campagnes expérimentales! Plus qu'un encadrant, tu as été un réel partenaire sur lequel il m'était toujours possible de compter quelle que soit la situation, et avec qui il était toujours facile de refaire le monde : autour d'une tarte au maroilles, au Flunch après les manips, en allant au sport ou encore durant l'incontournable pause-café matinale; tous synonymes de foisonnement d'idées scientifiques.

Tels les spationautes, il arrive parfois que les personnes extraordinaires disposent d'un pseudonyme officiel entre leur prénom et nom de famille. Concernant un de mes directeurs de thèse, il serait plus qu'approprié d'entamer mes remerciements à son égard en m'y référant sous la forme de « Super Lolo ». En plus d'avoir un pseudo évoquant les super-héros, Laurent « Super Lolo » BERTHE, dispose d'une capacité spéciale lui permettant de prendre soin de tous ses doctorants, à n'importe quelle heure du jour et de la nuit, depuis n'importe où sur le globe afin de régler à distance tout problème d'ordre scientifique, technique ou même agricole... Euh pardon! Psychologique. Outre son expertise scientifique et ses conseils avisés, c'est très clairement sa joie, son optimisme, sa passion pour la science et son caractère d'expérimentateur qui m'ont décidé à me lancer à l'aventure à ses côtés! Tous ces traits de caractère, qui te sont si particuliers Laurent, auront été, et resteront une source intarissable d'inspiration. C'est sans aucun doute ta rencontre aux journées VH de 2016 au PIMM qui a conditionné ma volonté de réaliser une thèse sur les chocs au sein du GDR ACO-CHOCOLAS.

3. Postulat théorisé à Roscoff lors d'une école thématique de 2016 sur les chocs.

J'en arrive donc naturellement à mon deuxième directeur de thèse Jean-Christophe SANGLEBOEUF, qui m'a entre autre appris la formulation magique - accessoirement drôlement péremptoire - qu'un « truc » c'est un autre « truc » qui s'ignore. En appliquant à la lettre ce qui ressemble à un début d'adage, on pourrait dire que suivre une « suite logique » dans le déroulement des remerciements, n'est rien d'autre qu'un « désordre » qui s'ignore. Par conséquent, tu auras le droit à ton paragraphe de remerciements plus tard !

Parmi les collègues avec lesquels j'ai le plus échangé au quotidien se trouvent Mariette NIVARD, Jean-Pierre GUIN et Corentin DEREURE, qui en plus de Didier et Jean-Christophe forment l'équipe Dynamique Choc Impact de l'Institut de Physique de Rennes. C'est en leur compagnie que j'ai vécu les moments les plus inoubliables de ma thèse, que cela soit au laboratoire, en afterwork embuscade à la cave à Flo, en campagnes d'essais, à chasser la Paulette tout en luttant contre le sommeil, ou encore lors d'hasardeuses rencontres ici et là de truinaards, lanards ou escarpins sauvages ! Je vais m'arrêter là, autrement il me faudrait rajouter un chapitre uniquement dédié à nos aventures, chose qui n'aiderait pas tellement à la lecture de ce manuscrit... Quoi qu'il en soit, merci à vous pour tous ces moments.

Dans le même temps, j'aimerais exprimer ma gratitude à tous les membres de l'Institut de Physique de Rennes avec lesquels j'ai pu échanger aussi bien sur le plan scientifique, administratif, institutionnel ou pédagogique. En particulier, merci aux collègues du Département Mécanique et Verre - Yann GUEGUEN, Fabrice CELARIE, Hervé ORAIN, Eric ROBIN, Patrick HOUIZOT, Mickaël LE FUR, Vincent BURGAUD, Antoine BRIENT, Romain LANIEL, Mathieu MIROIR et Benoît ROSA - pour la bonne ambiance qu'ils ont su faire régner au laboratoire et avec qui il était toujours facile de parler recherche et société. un grand merci aussi à l'équipe administrative et de gestion financière dont la bonne humeur permanente et la disponibilité me fut d'une aide précieuse à de multiples reprises pour préparer mes campagnes expérimentales et mes participations à des conférences. J'en profite pour adresser deux mentions particulières à Jérémy GARDAIS de la cellule informatique et Céline THEBAULT de la cellule communication et valorisation. Merci à Jérémy d'avoir fait preuve de patience auprès du noob que je suis ainsi que pour ses délicieux cookies au matcha ! Merci à Céline avec qui j'ai beaucoup collaboré et dont les compétences se sont révélées cruciales dans la mise en place et l'organisation d'événements de vulgarisation et communication non scientifique. Puisqu'on parle d'événements, je saisis l'opportunité de remercier le groupe des Non-Permanents pour tous les bons moments passés ensemble au cours des nombreux séminaires NP, Ph-Day, sorties Bowling ou Laser-Game.

Depuis maintenant quelques lignes, je ne cesse de faire référence au caractère expérimental des travaux qui vous seront présentés une fois ces interminables remerciements arrivés à leur fin. par conséquent, il m'incombe de remercier chaleureusement toutes les personnes avec lesquelles j'ai eu la chance de pouvoir entreprendre des collaborations au cours des nombreuses campagnes expérimentales s'étant déroulées ces

trois années passées.

En premier lieu, je tiens à remercier le groupe de recherche ACO-CHOCOLAS pour l'entraide manifeste dont les membres font constamment part. Grâce à cette communauté proactive, il m'a été possible d'initier, de développer et/ou de réaliser des campagnes laser de diverses sortes - dont certaines se révélaient assez audacieuses et qui pour certaines ont fini sous l'eau - avec des collaborateurs toujours soucieux de transmettre leurs connaissances aux nouvelles générations, dans une atmosphère détendue et chaleureuse malgré de très sérieux enjeux scientifiques. Cette approche s'est notamment retrouvée illustrée à plusieurs reprises au cours de ma thèse sous la forme d'une école thématique à Roscoff, de workshops ou encore de journées VH. Je tenais à souligner l'état d'esprit de cette communauté, qui à ne pas en douter, a joué un rôle indéniable dans la bonne conduite de ces travaux de thèse.

Ensuite, je souhaite remercier plus particulièrement les équiés de personnes avec lesquelles j'ai collaboré sur les manips. Les premiers sur la liste sont les membres de LULI : Emilie, Matthieu, Fabien, Doïna, Johanna, Tomaso et Edouard - dit le « stagiaire ⁴ ». Merci beaucoup de votre implication constante, en dépit des « caprices » des lasers et des expérimentateurs.

Bien évidemment, je n'oublie pas Erik BRAMBRINK avec qui j'ai beaucoup échangé sur la conception, la réalisation et l'exploitation de la campagne LULI2000, mais aussi sur les méthodes d'imagerie X. Sans sa clairvoyance ainsi que l'audace de Laurent, nous ne nous serions certainement pas lancés dans l'aventure des rampes de compression ! Une aventure, qui pour l'anecdote, s'est déroulée au cours d'une campagne regroupant trois sujets de thèses.

À cette liste viennent s'ajouter les collègues du CEA de la DIF et du CESTA : Laurent VIDEAU, Patrick MERCIER, Gabriel PRUDHOMME, Arnaud SOLLIER, Jean-Marc CHEVALIER, Jean-Eloi FRANZKOWIAK, Bertrand AUBERT, Pierre PRADEL et David HEBERT. ce fut un réel plaisir de travailler en équipe avec vous et d'apprendre autant à vos côtés. Je souhaite apporter une attention particulière à Emilien LESCOUTE, avec qui j'ai réalisé la plupart de mes campagnes, et qui de fait est en grande partie responsable de mes (in-)compétences expérimentales en laser jusqu'à lors.

Un grand merci aussi à Alexander RACK, Margie OLBINADO, Sakura PASCARELLI et Raffaella TORCHIO avec qui j'ai eu l'opportunité de découvrir la magie des diagnostics X. La campagne laser sur ID19 restera un des forts moments de ma thèse en compagnie de Laurent, Maxime, Pierre, Thibaut, Didier, Joerg, Margie et Alexander. Merci (encore !) à Sakura, Raffaella et Jerzy ANTONOWICZ pour la confiance qu'ils ont attribué à mon projet et leur investissement personnel dans la conception d'une campagne EXAFS sous choc laser sur ID24.

4. Qui, habituellement est affecté sur à ELFIE, a pour ses premiers pas sur l'installation LULI2000 carburé du tonnerre !

Je remercie également l'équipe SCANMAT, notamment Loïc JOANNY et Francis GOUTTEFANGAS, avec qui j'ai réalisé de nombreuses observations et analyses post-mortem de mes échantillons, pour leur professionnalisme, leur disponibilité et leur bonne humeur constante.

J'en arrive à mes codétenus doctorants et amis de l'IPR, du PIMM et du CEA avec qui j'ai vécu d'intenses moments de joie, de doute, voire même de grâce! Un grand merci donc à la Team APS composée de Simon BARDY, Jean-Eloi FRANZKOWIAK, Bertrand AUBERT, Pierre PRADEL et Maxime SAGNARD pour les moments inoubliables vécus ensemble à Saint-Louis, Roscoff, à l'ESRF ou à l'ILP. Vu qu'on parle de ce forum à Oléron, je tiens à remercier Romain ECAULT avec qui il est toujours enrichissant d'échanger, excepté quand il vous entraîne dans ses plans de chorégraphie improvisée à la YMCA! Merci aussi à la tribu de thésards du Département Mécanique et Verre pour nos multiples discussions, fou-rires et autres délires scientifiques : Marion DUBERNET, Marion SPECHT, Gildas LANGEVIN, Rodrigo LEITE-PINTO, Theany TO, Guillaume CORVEC, Raveth HIN et Pierre MEZEIX.

En complément de toutes les personnes précédemment citées, certaines n'ont pas encore reçu des remerciements à la hauteur du rôle qu'ils ont tenu au cours de ces dernières années. Pour commencer, je souhaite remercier chaleureusement Thibaut de RESSEGUIER avec qui j'ai toujours eu un grand plaisir à travailler. Au cours de diverses campagnes laser, plus ou moins couronnées de succès⁵, ou de conférences, tu t'es toujours montré d'un grand conseil et bourré d'anecdotes plus fascinantes les unes que les autres. Un grand merci donc pour tous ces bons moments partagés en ta compagnie.

Ensuite, je souhaite exprimer toute ma gratitude à une des personnes les plus fascinantes qu'il m'ait été donné de rencontrer, et qui finalement, est l'instigateur originel de cette histoire. un très grand merci à David HEBERT, qui m'a offert la chance de découvrir le monde des chocs au cours d'un sujet de master recherche orienté numérique, en compagnie de Gabriel SEISSON⁶, avant de me faire rencontrer l'équipe rennais avec laquelle j'allais pouvoir exprimer mes penchants d'expérimentateur. Le hasard a fait que nous nous soyons retrouvés en dernière année de thèse sur la campagne LULI2000, puis que nous travaillions ensemble sur l'équation d'état des verres métalliques étudiés dans ce manuscrit. Pour tous tes précieux conseils, tes connaissances en physique et ta légendaire pédagogie, merci!

J'enchaîne pour remercier ceux avec lesquels j'ai le plus débattu, ri, philosophé, désespéré ; qui m'ont le plus soutenu et supporté lors des moments difficiles ; ces amis qui sont toujours là dès lors que la marée est basse ; ceux avec qui j'ai eu la joie de découvrir ce pays breton ; ceux qui m'ont fondamentalement aidé à m'épanouir et me trouver... Autrement dit : ceux qui représentaient mon foyer rennais. Tanguy, Corentin MaMa et

5. Cf. laser submersible.

6. Un autre joyeux luron envers lequel je suis aussi très reconnaissant.

ma tendre Louise, les mots ne suffisent plus à vous témoigner ma gratitude.

Je ne peux achever mes remerciements sans évoquer ni mes très chers et fidèles amis, ni ma famille. Depuis le temps, je ne compte plus les occasions où j'ai pu vous témoigner tout mon amour et ma gratitude. d'une certaine façon, j'espère que ces quelques mots feront honneur à l'importance qui est la vôtre : Claude et Louise, Jean, Elise et Davy, Philippe et Corine, Patrick et Michelle, Florian, Damien et Nathalie, Bastien, Max, Cassie, Maud, Pascal et Emmanuelle, Nathan, Marine, Martin, Loukaseu, Servannouh, Guigui, Nico et Mout. Viennent enfin ma très chère soeur Ninon, mes parents Pascal, Jacqueline, mon Père Thierry et ma mère Delphine, à qui je dois mon parcours jusque-là.

Dorénavant, il ne me reste plus qu'à traiter le cas de mon autre directeur de thèse. Jean-Christophe : expérimentateur dans l'âme, fervent défenseur de la devise « le gras et le sucre c'est la vie, les graines c'est pour la guerre et les fruits ça ballonne ! », fin palais et adorateur des céréales fermentées sous forme de boissons gazeuses ou mûries en fûts, pratiquant la zoologie, adepte de la mécanique (automobile) classique déterministe, amoureux des lettres réputé pour ses tirades péremptives devenues mythiques... Tels sont les premiers mots me venant à l'esprit pour effleurer en surface la personnalité d'un tel phénomène. « Nonobstant » ses accaparentes fonctions de directeur d'unité, je ne puis me remémorer les innombrables occasions à partager au détour d'un couloir, d'une séance de qualifications des 24h du Mans, autour d'un café, d'un riz au lait ou bien lors de nos légendaires « chasses nocturnes à l'ours noir » en compagnie de nos fidèles compères. Il a de tout temps fait montre d'un soutien indefectible. De par la confiance qu'il m'a attribué, il s'est révélé être bien plus qu'un guide scientifique. « Les petites victoires », voilà à quoi se résume la devise d'une des personnes les plus généreuses et altruistes jamais rencontrées. Par-delà mon admiration, je lui dois surtout mon éveil. Merci de ton amitié.

Nous voici enfin arrivés au terme de ces remerciements ! Pour en finir, je souhaite remercier un certain moustachu du XIXème siècle, ayant vécu dans des contrées éloignées à l'Est, dont la vision du monde m'offre la possibilité de clôturer ainsi : si c'était à refaire, pour rien au monde je ne changerais le moindre détail.

« Odi panem, quid meliora - ça veut strictement rien dire, mais je trouve que ça boucle bien ⁷. »

7. Kaamelott, Livre V, tome 1

Je dédie cet ouvrage à la mémoire de Ginette, ma grand-mère, cet astre bienveillant
qui ne cessa de veiller sur moi.

Table des matières

Remerciements	i
Dédicace	vii
Table des matières	xii
Introduction générale	1
1 Nove sed non nova⁸	9
1.1 L'état vitreux	10
1.2 Les verres métalliques massifs	12
1.3 Structure des verres métalliques	13
1.4 Comportement mécanique sous sollicitations statiques et quasi-statiques des verres métalliques	15
1.4.1 Modes de déformation	16
1.4.2 Modèles de déformation	18
1.4.2.1 Modèle de Spaepen	18
1.4.2.2 Modèle d'Argon	20
1.4.3 Elasticité, anélasticité et relaxation structurelle	20
1.4.4 Plasticité	22
1.4.4.1 Dépendance à la pression	22
1.4.4.2 Effets de la température et des vitesses de déformation	22
1.4.4.3 Effets de tailles sur la plasticité	24
1.4.5 Rupture	24
1.4.5.1 Seuil de rupture et phénoménologie de la rupture	26
1.4.5.2 Bande de cisaillement	29
1.5 Comportement dynamique sous choc des verres métalliques	32
1.5.1 Comportement élasto-plastique dynamique des verres métalliques	32
1.5.2 Endommagement et rupture dynamique des verres métalliques	33
1.6 Synthèse	35

8. « La manière est nouvelle, mais non la matière ». Il est d'usage de débiter tous travaux de thèse par une revue bibliographique, selon une démarche reflétant la problématique initiale.

2	Choc laser, Hugoniot et Verre Métallique	37
2.1	Les compressions induites par laser	38
2.1.1	Les Lasers du LULI	38
2.1.2	L'interaction laser matière	38
2.1.3	Caractérisation du chargement induit par laser	40
2.1.3.1	Relations empiriques d'interaction laser-matière	41
2.1.3.2	Simulations d'interaction laser-matière	42
2.2	Théorie des ondes de compression dynamiques	45
2.2.1	Propagation d'onde dans un matériau condensé	45
2.2.2	De la détente à l'amortissement hydrodynamique	48
2.2.3	Transmission et réflexion	49
2.2.4	Approximation de l'adiabatique unique	50
2.2.5	Vitesse de surface libre : approximation et mesure	52
2.3	Équation d'état des verres métalliques	53
2.4	Synthèse	56
3	Moyens expérimentaux	59
3.1	Diagnostics in-situ	59
3.1.1	Vélocimétrie	60
3.1.1.1	VISAR	60
3.1.1.2	VISAR ligne	64
3.1.1.3	Vélocimétrie Hétérodyne	66
3.1.2	Visualisation Transverse	70
3.2	Campagnes laser	71
3.2.1	Équation d'état - LULI2000	72
3.2.2	Endommagement - ELFIE & LULI2000	75
3.3	Caractérisation post-mortem	77
3.3.1	Microscope optique	77
3.3.2	Microscope électronique à balayage	77
3.3.3	Profilomètre optique	78
3.4	Mise en forme des échantillons	78
3.5	Synthèse	80
4	Équation d'état des verres métalliques : résultats expérimentaux	83
4.1	Approche du comportement sous choc des solides	84
4.2	Polaires de choc des verres métalliques ZrCuAl	85
4.2.1	Méthode de construction des polaires	86
4.2.2	Polaire D-u	88
4.2.3	Polaire P-u	89
4.2.4	Origines et natures des régimes de vitesses	90
4.2.5	Validité du chargement	94
4.3	Compression quasi-isentropique	96
4.3.1	Analyse des caractéristiques	97
4.3.2	Chargement laser	100
4.3.3	Analyse des signaux de vitesses	101

4.3.4	Exploitation et discussion	103
4.4	Synthèse	107
5	Équation d'état des verres métalliques : ébauches de modélisation	109
5.1	Équation d'état de Mie-Grüneisen	109
5.2	Mie-Grüneisen référencée à une isotherme	112
5.2.1	Identification des paramètres de construction	112
5.2.2	Construction des potentiels thermodynamiques	116
5.2.3	Étude paramétrique sur K_0 , K'_0 et Γ_0	120
5.2.4	Synthèse sur l'approche de Mie-Grüneisen référencé à une isotherme	124
5.3	Mie-Grüneisen référencée à l'Hugoniot	125
5.4	Synthèse et limitations	130
6	Endommagement et rupture dynamique des verres métalliques	133
6.1	L'écaillage	134
6.2	À l'échelle macroscopique	137
6.2.1	Impulsions brèves : 350 fs	138
6.2.1.1	Effet de la composition	139
6.2.1.2	Effet de l'amortissement hydrodynamique	140
6.2.1.3	Discussion	142
6.2.2	Impulsions modérées à longues	144
6.2.3	Synthèse	149
6.2.4	Intérêt du verre métallique comme élément de blindage	150
6.3	Analyse post-mortem des faciès de rupture	152
6.3.1	Évolution des coupelles et des cônes	154
6.3.1.1	Influence de la composition	155
6.3.1.2	Influence du taux de déformation	160
6.3.1.3	Discussion	167
6.3.2	Formation des cônes et coupelles	168
6.3.3	Morphologie des cônes et coupelles	173
6.4	À l'échelle microscopique	175
6.5	Synthèse	179
7	Perspectives	181
7.1	Une structure à passer au crible	181
7.1.1	Une ardente modélisation	181
7.1.2	La rédemption par les X	184
7.2	Les origines de la rupture : hypothèses et investigations	188
7.3	Les verres métalliques : vers une application défense	188
	Conclusion	191
A	La courbe d'Abbott-Firestone	193
B	Algorithme de détection	195

Bibliographie

199

Introduction

Depuis l'avènement de la conquête spatiale, bon nombre de structures façonnées par l'Homme se sont retrouvées disséminées sur diverses orbites terrestres. Au cours des cinq dernières décennies, la succession et multiplication des programmes spatiaux ont eu pour conséquence l'envoi toujours plus grandissant de nouvelles structures. Dans un environnement des plus hostiles générant des agressions de diverses natures, provoquant de simples érosions, voire des impacts à très grandes vitesses, le nombre de débris en orbite est en croissance continue (cf. Fig. 1). Au cours de ces impacts les gros fragments se brisent et forment un nombre important de débris plus petits, tout aussi dangereux.

Pour faire face à ce problème d'importance, des stratégies sont étudiées et mises en place par les différentes agences spatiales gouvernementales afin de s'en prémunir. L'une d'entre elle concerne les débris ou météorites de petites tailles ($< cm$), qui de par leurs tailles réduites, ne peuvent être, dans la majeure partie des cas, ni recensés ou déviés avant impact. Pour cette raison, des blindages ont été développés dans le but de dissiper l'énergie cinétique des débris tout en limitant la génération de nouveaux débris en orbite.

Parmi les études menées sur la protection des véhicules spatiaux, les boucliers de type « Whipple » multi-couches (cf. Fig. 2) ont démontré une nette amélioration des performances balistiques des structures protectrices par rapport aux boucliers simples [23, 29]. Pour améliorer l'efficacité de ce dispositif, des études prospectives ont été menées sur de nombreux matériaux, tels les métaux, les verres ou encore les matériaux composites. Dans cette quête continue de la performance, l'Agence Spatiale Nationale Américaine – NASA – a récemment initié des études exploratoires sur des alliages métalliques amorphes.

Découverts depuis seulement un demi-siècle, ces métaux amorphes – ou verres métalliques – ont été le centre d'attention d'un grand nombre de recherches, que cela soit au niveau de leur synthèse, de leur mise en forme ou bien de leurs propriétés. En particulier, des études menées sur leur comportement mécanique ont révélé leur haute limite à la rupture, haute ténacité et haute limite élastique dans le cadre de sollicitations quasi-statiques, bien supérieures aux alliages métalliques conventionnels. Ces propriétés ont alors attiré l'attention de plusieurs secteurs d'activités tels que la défense et l'aérospatial.

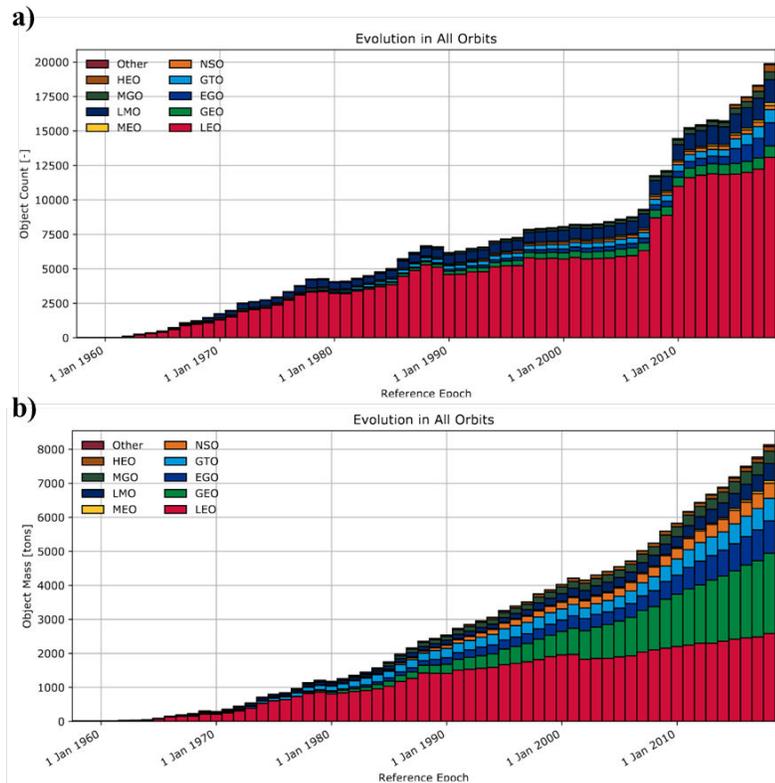


FIGURE 1 – Évolution chronologique du nombre de débris (a) et de leur masse (b) en fonction de l'orbite associée. GEO : Geostationary Orbit; LEO : Low Earth Orbit; EGO : Extended Geostationary Orbit; GTO : GEO Transfer Orbit; NSO : Navigation Satellites Orbit; MEO : Medium Earth Orbit; LMO : LEO-MEO Crossing Orbits; MGO : MEO-GEO Crossing Orbits; HEO : Highly Eccentric Earth Orbit [40].

Afin d'évaluer la performance de ces métaux amorphes, Hamill et al [57] et Hofmann et al [63] ont réalisé des tirs d'impacts hypervéloces sur plusieurs versions du bouclier Whipple, dont certaines constituées d'alliages métalliques amorphes. En projetant une bille d'aluminium à plusieurs kilomètres par seconde ($\approx 7 \text{ km.s}^{-1}$), Hofmann et al [63] ont tenté de reconstituer des conditions expérimentales proches des impacts très grandes vitesses de débris spatiaux ayant lieu en orbite ($> 10 \text{ km.s}^{-1}$). Pour évaluer l'efficacité des boucliers Whipple constitués de panneaux en verres métalliques, ils ont mené des expériences similaires sur la configuration actuellement en place sur la Station Spatiale Internationale – ISS (cf. Fig. 2 et 3). Cette configuration est constituée de trois panneaux : un pare-chocs en aluminium, une couche intermédiaire en Nextel et Kevlar, et enfin une dernière couche en aluminium. Afin de collecter d'éventuels débris suite à la perforation de cette dernière couche, une plaque témoin est disposée derrière celle-ci.

Les deux premières couches ont pour but de dissiper une grande part de l'énergie liée à l'impact. Plus précisément, l'usage de Nextel et Kevlar en couche intermédiaire a démontré la capacité de ces matériaux à multi-fragmenter le projectile sous la forme

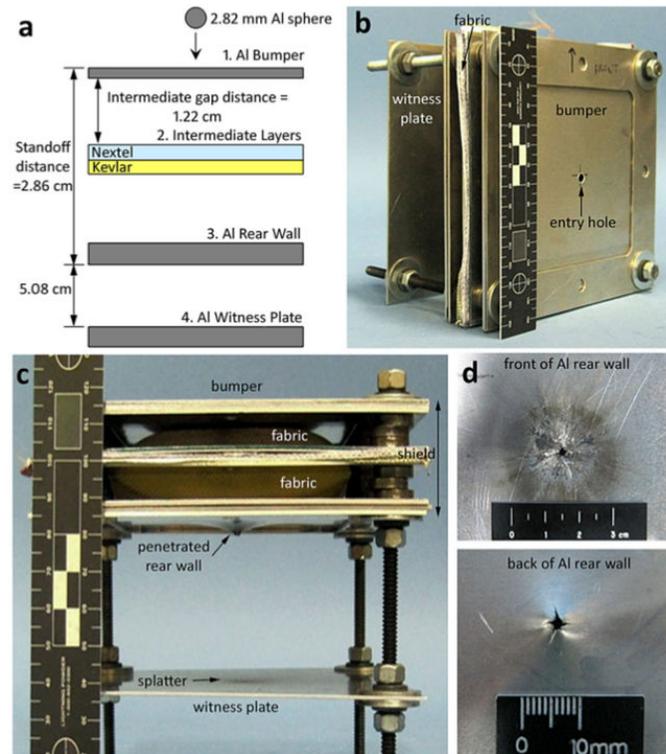


FIGURE 2 – (a) Schématisation d'une cible utilisant la configuration actuelle du bouclier Whipple à l'échelle $\frac{1}{4}$ par rapport à la structure réelle. (b) Vue avant de la cible après pénétration par un projectile d'aluminium se déplaçant à $6,97 \text{ km.s}^{-1}$. (c) Vue de côté de la cible illustrant la perforation de la troisième couche d'aluminium et des éclats présents sur la plaque témoin. (d) Vues avant et arrière de la troisième couche d'aluminium perforée [63].

d'un nuage de débris disposant d'un plus faible pouvoir de pénétration. La dernière couche quant à elle est censée pouvoir arrêter les débris ayant perforé les deux premières couches. D'après la figure 2, le tir réalisé à $6,97 \text{ km.s}^{-1}$ sur la version actuelle du bouclier Whipple à l'échelle $\frac{1}{4}$ s'est soldée par la perforation de la troisième couche du bouclier. En parallèle, la version utilisant une couche intermédiaire composée de plusieurs feuilles de verre métallique (cf. Fig. 3) a engendré la formation d'un nuage de débris causant une déformation de la troisième couche en aluminium. Il est ressorti de cette étude que l'emploi de verre métallique comme couche intermédiaire pourrait accroître les performances futures du bouclier Whipple et ainsi mieux prémunir les structures spatiales d'impacts hyper-véloces.

Outre l'emploi potentiel des verres métalliques comme élément de blindage, Conner et al se sont penchés sur l'étude de leurs propriétés en tant que perforant [26, 27]. Plus précisément, ils ont investigué le comportement statique et dynamique de projectiles composites constitué de fibres de tungstène pures et d'une matrice en verre métallique, afin de déterminer si ceux-ci possédaient un pouvoir pénétrant équivalent ou supérieur à celui des projectiles composés d'uranium appauvri.

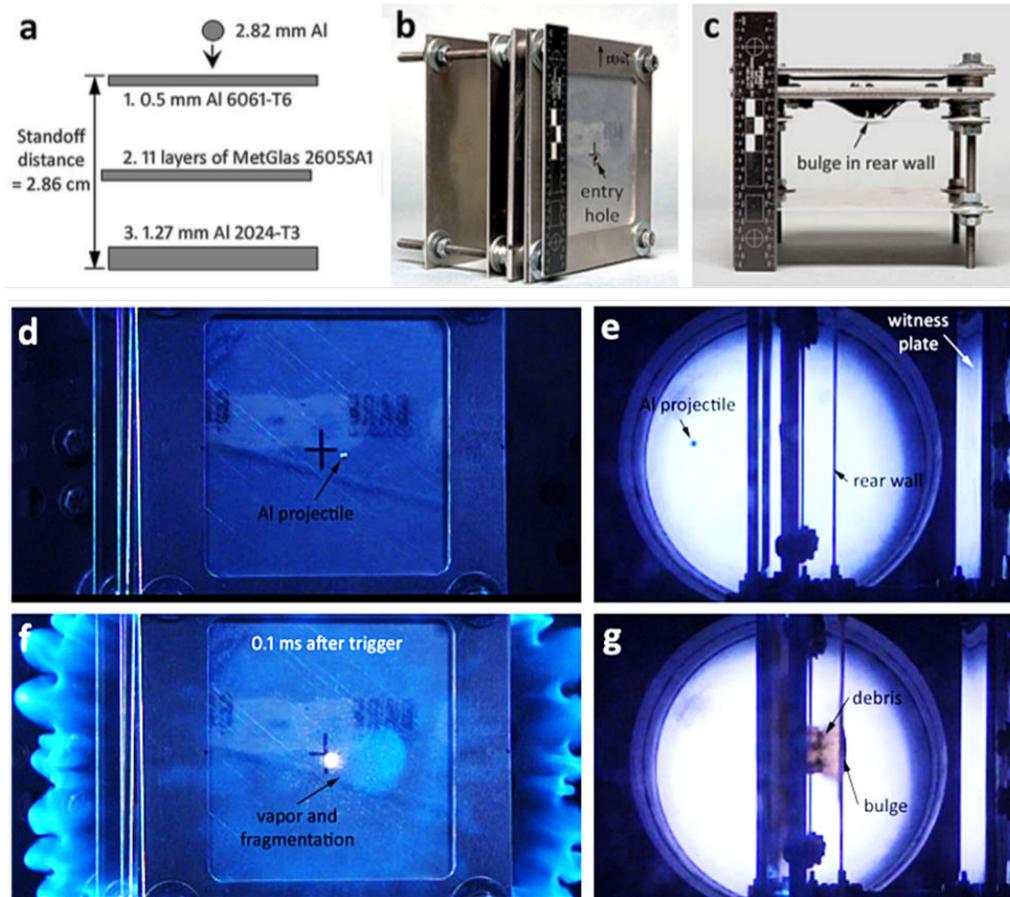


FIGURE 3 – (a) Schématisation d'une cible utilisant un empilement de onze feuilles de verre métallique à la place de Nextel et Kevlar comme couche intermédiaire du bouclier Whipple à l'échelle $\frac{1}{4}$ par rapport à la structure réelle. (b) Face avant de la cible illustrant le trou d'entrée du projectile d'aluminium se déplaçant à $6,97 \text{ km.s}^{-1}$. (c) Vue de côté de la cible mettant en évidence une déformation de la troisième couche d'aluminium. (d) Image prise à $81 \mu\text{m}$ après l'envol de la bille. (e) Vue de côté de la cible juste avant l'impact. (f) Vue de côté à $106 \mu\text{m}$ après l'envol de la bille et approximativement $15 \mu\text{m}$ après l'impact, montrant de la vaporisation et fragmentation. (g) Vue de côté montrant la formation d'un nuage de débris aboutissant à la déformation de la dernière couche du bouclier [63].

Les munitions généralement utilisées pour perforer les blindages actuels de véhicules terrestres se divisent en deux catégories : les flèches et les charges creuses. Les vitesses de ces deux types de munitions sont comprises entre 1600 m.s^{-1} et 9000 m.s^{-1} . Lors de l'impact, les pénétrateurs en alliage de tungstène subiront à l'intérieur de la cible des déformations plastiques intenses. En s'écoulant vers l'extérieur du projectile, ces déformations seront associées à un phénomène de rhéodurcissement, donnant naissance à un champignon (cf. Fig. 4 (a)) [26]. Ce dernier aura pour conséquences : une dissipation de l'énergie du projectile plus importante, la création d'une cavité plus large et une profondeur de pénétration moindre.

Sous certaines conditions, les déformations plastiques dans les verres métalliques se localisent sous la forme de bandes de cisaillement adiabatiques. L'implication de

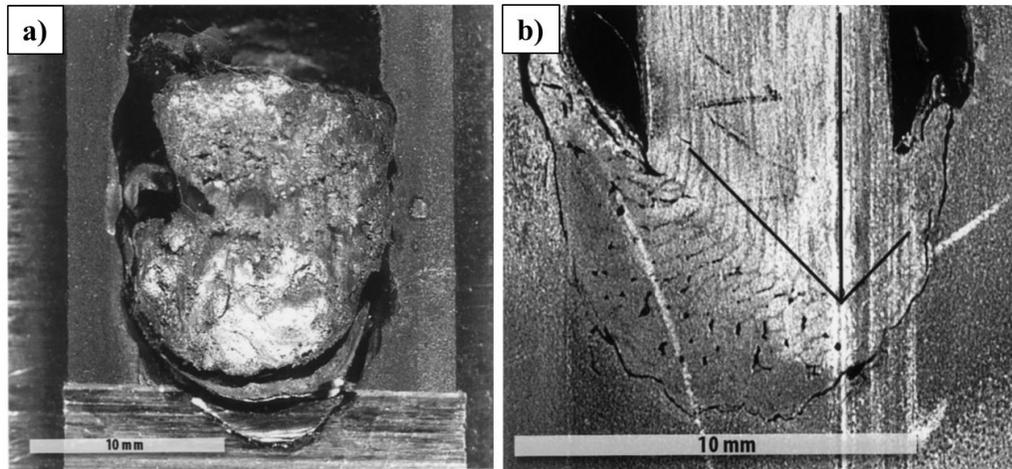


FIGURE 4 – (a) Vue en coupes de projectiles (a) en alliage de tungstène (WHA) et (b) composés de fibres de tungstène et d'une matrice en verre métallique récupérés après impacts sur un acier 4130. Les projectiles en alliage de tungstène et composite tungstène/verre métallique ont respectivement été propulsés à $0,932 \text{ km.s}^{-1}$ et $0,950 \text{ km.s}^{-1}$. Le projectile en alliage de tungstène illustre le phénomène de formation d'un champignon. Le projectile composite illustre le phénomène d'auto-affûtage recherché.

telles bandes dans les processus de déformations plastiques sous chargement quasi-statique laisse présager la possibilité d'apparition du phénomène d'auto-affûtage en dynamique. C'est la raison pour laquelle Conner et al ont dans un premier temps investigué le mode de rupture en fonction de la fraction volumique des fibres de tungstènes dans la matrice en verre métallique. Des essais quasi-statique ont permis de mettre en évidence que l'augmentation de la fraction volumique permettait de passer d'une rupture à caractère fragile liée à la création de bandes de cisaillement avec peu de déformations plastiques, à un délaminage longitudinal des fibres avec des déformations plastiques plus importantes. En dynamique, les essais par barres d'Hopkinson ont montré que l'augmentation des vitesses de déformation favorisait la rupture en cisaillement quelle que soit la fraction volumique en fibre de tungstène.

Dans un second temps, des tirs d'impacts à hautes vitesses ont été réalisés sur des cibles d'aluminium 6061 et d'acier 4130. Les projectiles ont été réalisés à partir d'un composite fibres de tungstène/matrice en verre métallique avec une fraction volumique de 85 %, et deux alliages de tungstène lourd – $W_{90,73}Ni_{4,55}Fe_{1,97}Co_{2,75}$ sur cible acier et $W_{93}Fe_{5,6}Ni_{1,4}$ sur cible aluminium. Leurs résultats ont démontré que le composite tungstène/verre métallique était sujet à une rupture par bandes de cisaillement adiabatiques, donnant lieu au phénomène d'auto-affûtage (cf. Fig. 4 (b)). Au final, la profondeur de pénétration fut améliorée de 10 % par rapport aux alliages de tungstène, égalant ainsi les performances des projectiles en uranium appauvri.

Par ce type d'essais, les études menées par Conner et al [27], Hamill et al [57] et Hofmann et al [63] ont permis de révéler qualitativement le potentiel des verres métalliques comme élément constitutif de perforant et de blindages spatiaux. Malheureusement, les origines précises de ces performances restent actuellement mal connues.

En effet, il n'existe que peu de travaux menés sur leur comportement dynamique, et encore moins dans des conditions de chargement proches des impacts hyper-véloces. Les difficultés d'accès et de mise en œuvre d'essais de cette envergure, couplés au coût relativement élevé de ce type de matériaux, ne sont pas pour simplifier la caractérisation de son comportement dynamique. C'est finalement dans ce cadre expérimental délicat que se positionnent ces travaux de thèse.

À la genèse de ce projet, il fut question de pouvoir envisager une approche expérimentale prolifique conciliant plusieurs contraintes relatives à :

- l'accès à des installations permettant de générer des ondes de choc,
- la représentativité des chargements générés afin de pouvoir tracer un parallèle avec les impacts hyper-véloces,
- la mise en forme des matériaux et des cibles,
- la récupération des échantillons de sorte à mener des études post-mortem.

Actuellement, les conditions extrêmes de chargement atteintes lors d'impacts hyper-véloces – vitesse d'impact supérieure au $km.s^{-1}$, pression induite allant du gigapascal au millier de gigapascals, taux de déformation supérieur à $10^5 s^{-1}$ – ne peuvent être reproduites à l'identique en laboratoire. Néanmoins, il existe quelques dispositifs expérimentaux à même d'approcher les régimes de sollicitation souhaités en termes de pression et taux de déformation. Pour soumettre des cibles à de telles conditions, deux approches se distinguent : les chocs générés par impact et les chocs générés par dépôt d'énergie.

Les lanceurs comptent parmi les dispositifs les plus adaptés à l'étude de comportement sous choc des matériaux. Qu'il s'agisse de chocs plans relativement soutenus ou de tirs de pénétration, ils conduisent à l'étude de la propagation des ondes et à l'endommagement sous choc. L'instrumentation de ces tirs est bien maîtrisée et l'usage de différents gaz et types d'explosif offre une grande variabilité dans les niveaux de pressions et de vitesses de déformations atteintes. Malheureusement, les cibles sont, dans la majeure partie des cas, détruites. De plus, ces instruments très difficilement accessibles requièrent des échantillons de taille centimétrique et n'offrent pas une grande cadence de tirs. Par ailleurs, les chargements mécaniques les plus intenses que l'on puisse générer sur Terre ne correspondent qu'aux niveaux les plus faibles des impacts hyper-véloces spatiaux. Pour ces diverses raisons, nous nous sommes orientés vers les instruments permettant d'induire des chocs par dépôt d'énergie.

Contrairement aux impacts, les compressions dynamique issues de dépôts d'énergie peuvent être le résultat soit d'une attaque directe – où le matériau cible est directement en contact avec le dépôt – soit d'une attaque indirecte. Dans ce dernier cas, un matériau est disposé en amont de la cible, faisant office de couche sacrificielle, afin de donner naissance à une onde de choc dans le matériau cible. Dans cette situation, des faisceaux d'électrons, des sources X ou bien encore des lasers de puissance peuvent

être utilisés⁹. Pour ce qui est des lasers, ils offrent une flexibilité et des cadences de tirs supérieures aux lanceurs pour un coût de mise en œuvre inférieur.

Les récents développements des oscillateurs donnent accès à la mise en forme de multiples profils de chargement dont la précision spatiale et temporelle surpasse celles des lanceurs. Les lasers étant moins destructeurs pour l'environnement proche de la cible, il est par exemple possible de travailler de manière répétée pour étudier l'influence de tirs multiples, de cibler des volumes plus restreints – tels des méso-constituants de matériaux composites – ou encore effectuer des observations post-mortem sur les cibles récupérées après tir. De même, chaque tir est très bien instrumenté, réduisant ainsi considérablement la dimension des cibles. De par leur structure amorphe, les verres possèdent un volume représentatif de leur comportement macroscopique inférieur à celui des matériaux cristallins. Compte tenu des difficultés relatives à leur mise en forme et à leur coût, l'utilisation des lasers s'avère donc d'autant plus adéquate pour caractériser le comportement dynamique des verres métalliques sur de petits volumes, tout en offrant la possibilité de récupérer les échantillons après essais. Hélas, il n'est point de bonheur sans nuage : le chargement mécanique équivalent est lié à l'interaction laser matière qui n'est pas encore totalement maîtrisée. Malgré cette limitation, il existe une proximité entre les profils de chargement en pression induits par laser et impacts hyper-véloces¹⁰. En modifiant la forme de l'impulsion et en caractérisant le chargement laser, il devient en principe possible d'étudier le comportement sous choc des matériaux dans des conditions de pression et de taux de déformation outrepassant les limitations actuelles des lanceurs, et ainsi tendre vers des conditions plus proches de la réalité.

C'est finalement dans cette optique que s'inscrivent ces travaux de thèse. Pour identifier les origines des performances accrues sous impacts des verres métalliques, nous avons entrepris d'étudier et de caractériser expérimentalement leur comportement et leur endommagement sous choc laser. L'approche expérimentale suivie s'est orientée autour de différents axes visant à :

- L'étude du comportement sous choc grâce à la construction d'une équation d'état permettant de décrire la propagation des ondes de choc et de détente dans un verre métallique ternaire $ZrCuAl$.
- La compréhension phénoménologique des processus d'endommagement et de rupture sous choc à partir de considérations théoriques et d'observations expérimentales.
- L'effet de la composition sur les propriétés mécaniques pertinentes pour l'application des verres métalliques comme blindage.
- Une discussion des limites expérimentales rencontrées et des ouvertures envisageables à ces travaux.

9. César – CEA CESTA, Z-machine – SANDIA, LMJ – CEA CESTA, NIF – LLNL, LULI2000 et ELFIE – LULI.

10. L'étude de cette proximité constitue les travaux de thèse de B. Aubert.

Ainsi, ce manuscrit s'articule autour de sept chapitres. Le premier est une revue bibliographique sur la structure, le comportement et les propriétés mécaniques des verres métalliques. Il a pour but de sensibiliser le lecteur aux diverses problématiques auxquelles nous serons confrontés tout au long de ce manuscrit.

Le deuxième chapitre introduit les éléments théoriques relatifs à la compréhension et l'étude expérimentale des ondes de choc induits par laser dans les matériaux. Il fournit aussi une vue d'ensemble des études menées sur la propagation d'ondes de choc dans les verres métalliques.

Le troisième chapitre présente l'approche expérimentale suivie et les moyens expérimentaux : installations laser, instruments de mesure et procédés de mise en forme des échantillons.

Au cours du chapitre quatre, nous présentons les résultats expérimentaux d'une campagne laser visant à caractériser la propagation des ondes de choc dans les verres métalliques *ZrCuAl*. Ce chapitre a pour but de fournir des données expérimentales sur lesquelles l'équation d'état de nos matériaux pourra être établie.

Le chapitre cinq s'inscrit dans la continuité du chapitre précédent, en traitant de la modélisation de la propagation des ondes de choc dans les verres métalliques *ZrCuAl* par deux approches « classiques ».

Dans le chapitre six, nous changeons de registre et portons notre attention sur l'endommagement et la rupture dynamique des verres métalliques. Il sera question d'étudier et d'identifier, par le biais de plusieurs campagnes laser, les processus et mécanismes à différentes échelles menant à la ruine de nos matériaux.

Enfin, nous achevons cette étude en identifiant et proposant des pistes de recherche futures se basant sur les résultats présentés au cours des différents chapitres.

Avant de débiter, il convient de souligner que ces travaux ont été réalisés au sein de l'Institut de Physique de Rennes de l'Université de Rennes 1. Leur direction et encadrement ont été assurés à la fois au sein du département Mécanique et Verres de l'Institut de Physique de Rennes et du laboratoire des Procédés et Ingénierie en Mécanique et Matériaux de l'École Nationale Supérieure des Arts et Métiers. Les résultats rassemblés sont le fruit d'une étroite collaboration entre ces deux instituts, mais aussi grâce au support financier de la Direction Générale de l'Armement et de la région Bretagne.

Chapitre 1

Nove sed non nova¹

« Connais ton ennemi et connais-toi toi-même, eussiez-vous cent guerres à soutenir,
cent fois vous serez victorieux. »

| Sun Tzu (VIe siècle av. J.-C. - Ve siècle av. J.-C.), *L'Art de la guerre*.

Sommaire

1.1 L'état vitreux	10
1.2 Les verres métalliques massifs	12
1.3 Structure des verres métalliques	13
1.4 Comportement mécanique sous sollicitations statiques et quasi-statiques des verres métalliques	15
1.4.1 Modes de déformation	16
1.4.2 Modèles de déformation	18
1.4.3 Elasticité, anélasticité et relaxation structurelle	20
1.4.4 Plasticité	22
1.4.5 Rupture	24
1.5 Comportement dynamique sous choc des verres métalliques	32
1.5.1 Comportement élasto-plastique dynamique des verres métalliques	32
1.5.2 Endommagement et rupture dynamique des verres métalliques	33
1.6 Synthèse	35

L'ouverture de cette thèse aura pour objectif de préciser les connaissances requises à l'étude du comportement des verres métalliques et plus précisément en dynamique. Au cours de ce premier chapitre, nous définirons dans un premier temps l'état vitreux et la notion de « verre métallique ». Ensuite, nous passerons en revue leurs modes de déformations connus sous sollicitation quasi-statique. En particulier, nous nous attarderons sur certains éléments à l'origine de leurs changements de comportement avant d'aborder leur rupture. Enfin, nous tracerons l'horizon de leur comportement et leur rupture en dynamique à l'aide de récentes publications.

1. « La manière est nouvelle, mais non la matière ». Il est d'usage de débiter tous travaux de thèse par une revue bibliographique, selon une démarche reflétant la problématique initiale.

1.1 L'état vitreux

L'état vitreux fait référence à un état de la matière que l'on retrouve chez certains matériaux amorphes comme les verres, – i.e. ne possédant pas d'organisation atomique à longue distance se répétant dans toutes les directions de l'espace – présentant le phénomène de transition vitreuse [173]. Cet état est obtenu par le refroidissement brutal d'un liquide en dessous de la température de fusion. Le liquide se retrouve alors dans un état métastable – dit de « liquide surfondu »– avant de se solidifier dès lors que la température passe en dessous de la température de transition vitreuse. Il est alors courant de se représenter l'état vitreux comme un « liquide figé », dont leur structure atomique à l'état solide n'est pas immuable. La variation de la température engendrera des modifications structurales à l'échelle atomique. En faisant varier la vitesse de trempe, il est alors possible d'obtenir divers états vitreux. À l'opposé, un chauffage de la structure amorphe après trempe engendra une relaxation de la structure pouvant aboutir à la cristallisation. Ainsi, les verres disposent aussi d'une température de cristallisation.

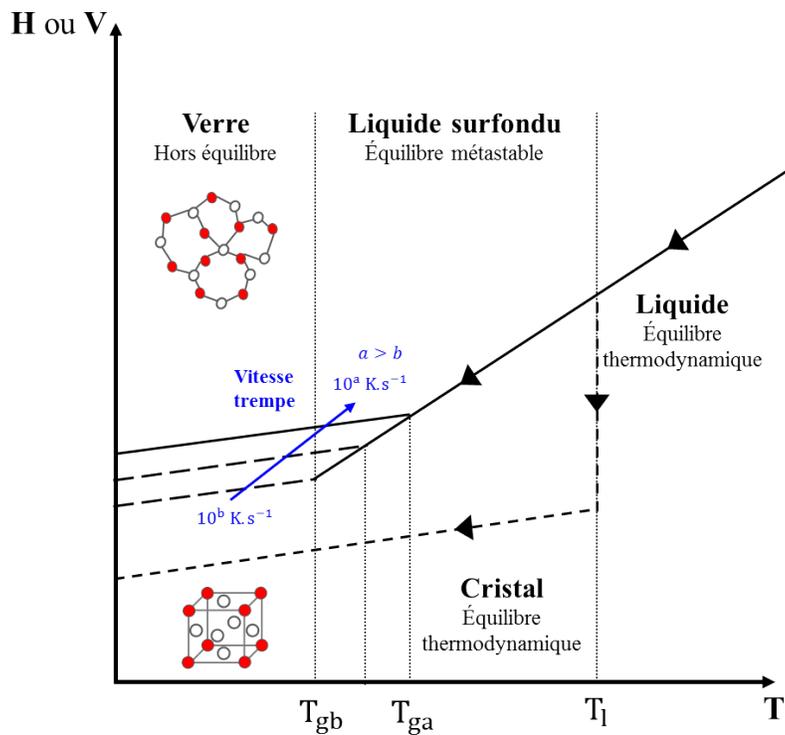


FIGURE 1.1 – Évolution de l'enthalpie H ou du volume V en fonction de la température au cours d'un refroidissement depuis l'état liquide. T_g et T_l représentent respectivement la température de transition vitreuse et la température de fusion.

Pour appréhender plus en détails les caractéristiques de l'état vitreux, il est nécessaire de se référer à la structure atomique des verres. Les états de la matière solide – cristallin –, liquide ou gazeux se distinguent les uns des autres par leur degré d'organisation. Cette organisation peut être de nature chimique ou bien liée à la position des

atomes dans l'espace, et se manifeste à différentes échelles de la matière. Si on se limite à une échelle proche de celle des distances interatomiques, on parlera d'ordre à courte distance. À plus grande échelle, on parlera de l'ordre à longue distance. De ce fait, l'ordre à courte distance est présent à la fois à l'état liquide et solide, tandis que l'ordre à longue distance est généralement observable uniquement à l'état solide cristallin. Par conséquent, la dénomination des verres comme étant des « liquides figés » rend à la fois compte de leur état thermodynamique et de leur degré d'organisation, i.e. un solide ne disposant pas d'ordre à longue distance.

Le refroidissement d'un liquide en dessous de sa température de fusion entraîne indubitablement sa transformation à l'état de solide plus ou moins rapidement. La plupart du temps, ce changement de phase de premier ordre est associé à un saut de volume et d'enthalpie. Lors de la solidification, les atomes se réorganisent en formant une structure minimisant l'énergie du système (équilibre thermodynamique) (cf. Fig. 1.1 - courbe en pointillés). En général, les liquides – disposant d'un temps de refroidissement suffisant, spécifique des espèces en présence – ont une propension à cristalliser en se refroidissant par un processus de nucléation/croissance de grains. L'apparition d'une structure cristalline se traduit par une organisation atomique dense sous forme d'une maille se répétant à l'identique dans toutes les directions de l'espace. La connaissance de la nature d'une maille – i.e. des atomes la constituant et leur disposition – associée à un vecteur de translation, renseigne sur l'ordre à longue distance. Cependant, il est possible d'éviter cette cristallisation en augmentant la vitesse de refroidissement. La viscosité du mélange vitrifiable empêche les atomes de se réorganiser. Le voisinage atomique se retrouve piégé dans une configuration proche de celle du liquide, appelé liquide surfondu, mais dans un état énergétique « métastable » supérieur à celui du solide cristallin. En poursuivant le refroidissement, les atomes tendent à se réorganiser afin de se maintenir dans cet état métastable, jusqu'à atteindre une température critique en dessous de laquelle la structure se retrouvera figée. Cette température est appelée température de transition vitreuse T_g . Le verre ainsi formé se retrouve dans un niveau d'énergie supérieur à celui de l'équilibre thermodynamique. Notamment, il se traduit par une optimisation moindre du volume occupé entraînant un surplus de volume par rapport à la forme cristalline. Cet excès de volume – appelé volume libre – correspond à la différence de masse volumique entre un verre trempé et un verre parfaitement relaxé. Selon la vitesse de refroidissement initiale, ce volume libre est plus ou moins important.

Finalement, l'état vitreux peut se définir comme un état apparaissant à partir d'une température spécifique, lors du refroidissement, faisant passer le liquide surfondu à celui de solide amorphe, hors équilibre thermodynamique. Son niveau d'énergie se retrouve alors supérieur à celui d'un solide cristallin.

1.2 Les verres métalliques massifs

En se basant sur les éléments précédemment évoqués, les verres métalliques peuvent donc se définir comme des alliages de structures atomiques désordonnées, uniquement constituées d'atomes métalliques et métalloïdes.

L'éclosion des premiers alliages métalliques amorphes façonnés par l'homme remonte au début des années 1960. Cette apparition tardive – comparativement aux verres d'oxydes datant pour les plus anciens de l'Égypte antique (6000 av. J.-C.) – est à attribuer à la grande propension des métaux à cristalliser. Ce n'est donc que récemment dans l'histoire du verre, que Duwez et Klement ont réussi à synthétiser le premier verre métallique à partir d'un alliage Au-Si. Les premiers échantillons furent obtenus par projection de l'alliage liquide sur une roue en cuivre en rotation à grande vitesse, permettant ainsi d'effectuer une hypertrempe d'environ 10^6 K.s^{-1} [87]. Ces verres se présentaient sous la forme de rubans dont les épaisseurs pouvaient atteindre la centaine de micromètres selon la composition de l'alliage. Deux décennies passèrent avant l'avènement des verres métalliques dits « massifs », pouvant être produits à des vitesses de trempe plus réduites – environ 10^3 K.s^{-1} –, dans des dimensions centimétriques et à partir de nombreux systèmes différents. Parmi ceux-ci, il est possible de citer les bases Mg [74], les bases Zr [76, 123], les bases Fe [73] ou encore les bases Pd [75]. Ces dernières offrent par ailleurs des vitesses de refroidissement très basses de l'ordre de $0,1 \text{ K.s}^{-1}$, dont les échantillons peuvent atteindre des dimensions d'environ 75 cm.

Ce soudain essor fut le fruit d'intenses recherches menées sur les domaines d'amorphisation de différents systèmes ayant conduit à l'établissement de règles empiriques d'élaboration [71] se résumant ainsi :

1. Le système doit comporter au moins deux éléments afin de réduire les probabilités de cristallisation.
2. Une différence de taille atomique de 12 % entre les principaux constituants doit être observée pour ainsi augmenter le désordre et limiter les réarrangements à l'ordre long.
3. L'enthalpie de mélange entre les principaux éléments doit être négative.
4. Les eutectiques doivent être profonds de sorte à freiner les mouvements atomiques.

Plus précisément, cette dernière règle implique que le mélange métallique doit pouvoir se comporter comme un corps pur lors du passage de la fusion. Ainsi, lors du refroidissement le mélange se solidifiera de manière homogène en empêchant l'éventuelle formation de précipités.

En suivant ces règles, la stabilité thermique des verres peut s'en retrouver améliorée. En particulier, la zone située entre la température de transition vitreuse et la température de cristallisation peut être élargie. Dans le cadre de cette étude, nous étudierons le comportement de verres métalliques ternaires *ZrCuAl* synthétisés par Y. Yokoyama de

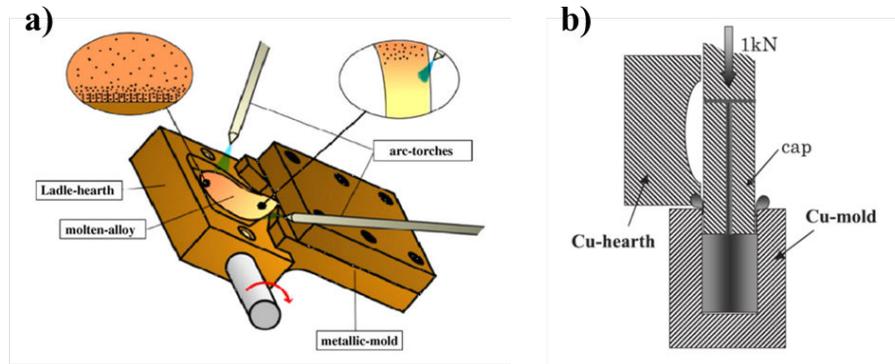


FIGURE 1.2 – (a) Illustration de la fusion par arc par la méthode incline avec les deux étapes de fusion permettant d’homogénéiser le mélange. (b) Illustration de la technique de trempe en moule à chapeau [170].

l’*Institute of Material Research* de l’Université de Tohoku au Japon. Les barreaux maîtres sont issus d’un procédé de fabrication appelé « trempe en moule à chapeau » (cf. Fig. 1.2) – ou *cap-cast technique* en anglais – [168]. Dans un premier temps, des poudres ou barreaux d’aluminium, de cuivre et de zirconium de hautes puretés (> 99,99 %) sont pesés, afin d’éviter toutes forme de cristallisation avec les atomes d’oxygène – appelées dendrites. Pour minimiser la contamination par l’oxygène, le zirconium est hautement purifié par un procédé de purification par iodure, dit de Van-Arkel-de-Boer. S’en suit une fusion préliminaire du cuivre et de l’aluminium visant à obtenir un alliage dénué d’hydrogène. Une fois les métaux purifiés, l’ensemble des composés est fondu par arc sous atmosphère argon une première fois. L’arc électrique est généré par un courant sinusoïdal dont les oscillations accentuent l’effet de mélange, rendant l’alliage maître plus homogène. Le mélange est alors une nouvelle fois fondu par arc durant son coulage dans un moule en cuivre réfrigéré. Lorsque l’intégralité du mélange se retrouve dans ce moule, un chapeau en cuivre vient appliquer une pression de 1 kN sur le mélange. Au final, pour attester du niveau d’amorphisation des barreaux des mesures de diffractions X et de microscope électronique en transmission ont été réalisées. Dans notre cas, aucun pic de Bragg ne fut détecté pour nos barreaux de composition $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$, $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$, $Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$, nous assurant une absence de cristallisation.

1.3 Structure des verres métalliques

La représentation atomistique de leur structure est loin d’être une évidence. La compréhension de leur structure atomique est un domaine de recherche en pleine effervescence. Les études extensives sur le sujet se situent au cœur de l’attention de la communauté scientifique compte tenu des enjeux visant à relier leurs propriétés macroscopiques à l’arrangement atomique local. Deux récentes revues de Cheng et al [20] et Ma et al [101] ont abordé la question en dessinant un horizon exhaustif des avancées

majeures sur le sujet.

Dans cette section, il sera question d'exposer les éléments nécessaires à la compréhension des principales propriétés des verres métalliques. L'objectif sera aussi de sensibiliser le lecteur aux éventuelles influences que leurs structures engendrent sur les résultats présentés dans les chapitres suivants.

Contrairement à bon nombre de verres, les alliages métalliques amorphes possèdent une masse volumique très proche de celle de leurs homologues cristallins (> 98 %) [37, 70]. Cette proximité suggère l'existence d'un arrangement atomique particulier à l'origine de ce taux de compacité élevée. Ne disposant pas de liaisons orientées, le grand nombre de liens métalliques possibles induit un haut degré d'interconnexion se traduisant par un arrangement atomique très condensé. Originellement rapporté par Bernal et al [82], leurs études numériques et expérimentales par diffractions de neutrons et de rayons X ont apporté la preuve que l'arrangement local atomique n'est pas aussi aléatoire qu'il n'y paraît. À la suite de leurs études, un premier modèle d'architecture à l'ordre court constitué d'un empilement de tétraèdres de sphères dures fut proposé. Ce dernier suppose que chaque atome est commun à plusieurs tétraèdres, permettant ainsi d'obtenir une structure très compacte. Néanmoins, des cavités dites de « Bernal » peuvent se former au sein de cet empilement puisqu'il n'est pas possible de remplir géométriquement l'espace uniquement avec des tétraèdres. Ce constat entraîna Polk [126] à proposer une alternative au modèle de Bernal en y incluant la présence d'atomes de petites tailles s'insérant dans ces cavités. En ce sens, le rôle de la nature chimique des liaisons fut révélé plus tard par Hayes et al [59] par spectroscopie d'absorption des rayons X étendues, puis par résonance magnétique nucléaire par Panissod et al [122] ou encore par diffraction des rayons X par Matsubara et al [106]. En tenant compte de ces différents éléments, Miracle et al [114] proposèrent des règles d'optimisation de l'ordre atomique pour maximiser la compacité des clusters de l'ordre court jusqu'à l'ordre moyen. Elles se traduisent par la formation des polyèdres de Frank-Kasper [47, 119, 20, 111, 112, 101, 17, 21, 165] – polyèdres à 12 sommets composés de 20 faces où chaque atome possède cinq atomes voisins – centrés autour d'un soluté qui partage des liaisons particulières avec trois autres atomes adjacents de manière à former des tétraèdres (icosaèdre cf. Fig. 1.3). Dans ces formations de symétrie d'ordre cinq il n'existe aucune orientation privilégiée, si bien qu'un réarrangement périodique ne peut avoir lieu. En pratique, ces organisations particulières ne sont pas très courantes bien que leur nombre semble impacter les propriétés des alliages métalliques amorphes.

En effet, des simulations de dynamique moléculaire sur des systèmes binaires *Cu-Zr* [34, 22, 21] ont montré que le nombre d'icosaèdres Cu-centrés augmentait lors du refroidissement entre la température du liquidus et celle de transition vitreuse. Cette croissance fut corrélée avec la chute de mobilité observée lors du refroidissement. Par ailleurs, l'ajout d'atomes d'aluminium dans ce système *Cu-Zr* accroît drastiquement le développement des icosaèdres au cours du refroidissement en réduisant d'autant plus la mobilité atomique [21]. Sur le plan mécanique, les zones contenant un grand

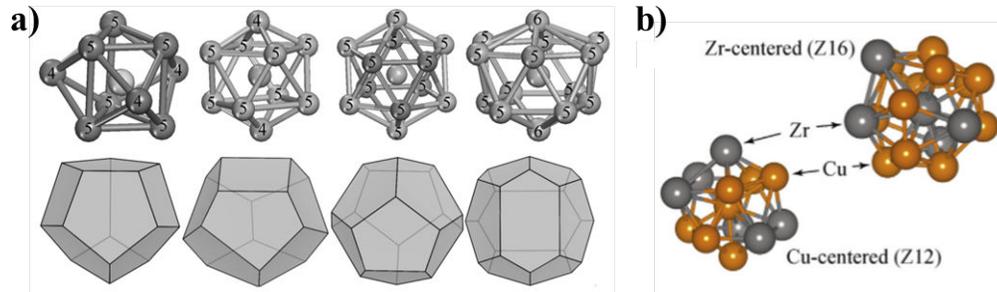


FIGURE 1.3 – (a) Différentes topologies icosaédriques [165]. (b) Exemple de clusters atomiques Cu-centré et Zr-centré dans un verre métallique binaire $Cu_{64}Zr_{36}$ [21].

nombre d'icosaèdres semblent démontrer une rigidité supérieure ainsi qu'une plus grande limite élastique [22, 34]. Au contraire, les zones pauvres en icosaèdres seront bien moins rigides et auront une plus grande sensibilité au cisaillement.

Le modèle d'agencement atomique polytétraédrique fournit une description de l'ordre à courte distance communément acceptée dans la communauté. Toutefois au-delà de cette ordre, l'agencement proposé ne procure pas une visualisation suffisante de l'ordre à moyenne distance, rendant compte du haut niveau de compacité des verres métalliques. Seul le modèle développé par Miracle et al [111] suggère une organisation atomique depuis l'ordre court jusqu'à l'ordre moyen cohérente avec des mesures expérimentales [113].

Une approche alternative à celle introduite au début de cette section consisterait non plus à voir les verres métalliques comme des matériaux à structure purement aléatoire, mais plutôt comme des matériaux dont les fortes hétérogénéités locales reflètent et conditionnent très probablement leur comportement mécanique.

1.4 Comportement mécanique sous sollicitations statiques et quasi-statiques des verres métalliques

Dans cette section, l'objectif est de passer en revue les différents modes de déformation, les sensibilités connues² et les modes de rupture des verres métalliques. Bien entendu, les éléments exposés ne se veulent pas exhaustifs sur les problématiques liées à leur comportement quasi-statique. Cet aperçu a pour but d'avertir le lecteur sur les paramètres physiques pouvant être pris en considération lors de l'analyse du comportement dynamique des verres métalliques. Les points suivants sont extraits pour la plupart de différentes revues sur le sujet, regroupant l'ensemble des recherches menées durant les deux dernières décennies.

2. À la température, à la pression, aux vitesses de déformation et aux effets d'échelles

1.4.1 Modes de déformation

Les déformations dans les verres métalliques à l'échelle macroscopique résultent essentiellement de l'accumulation de déformations s'opérant très localement. Selon la température, le taux de déformation imposé et la nature du verre, ces événements locaux peuvent être distribués de manière homogène ou hétérogène en temps et en espace.

Originellement proposée par Spaepen [136], une première carte de déformation fut établie à partir du modèle de déformation basé sur la théorie des volumes libres – modèle éponyme que nous verrons dans la section 1.4.2 – avant d'être reprise et enrichie par Schuh et al [130] trente ans plus tard. La figure 1.4 illustre la version proposée par Schuh et al. Sur celle-ci sont représentées deux versions complémentaires mettant en avant l'apparition des domaines de déformation homogène et hétérogène en fonction de la température normalisée (T/T_g), de la contrainte normale en cisaillement (τ/μ) et du taux de déformation lié au cisaillement. Le régime de déformation homogène apparaît à hautes températures ($T/T_g > 0,9$) et dans l'état de liquide surfondu pour de faibles contraintes et vitesses de déformation. Le régime hétérogène se manifeste pour sa part à faibles températures ($T/T_g < 0,9$) dans l'état vitreux pour des contraintes ou vitesses de déformation élevées.

Au regard des températures auxquelles apparaissent ces régimes, il est coutume de discuter de ces déformations en terme de viscosité η , dont son évolution caractérise le type d'écoulement du matériau. La viscosité peut se définir comme le rapport de la contrainte axiale σ sur trois fois le taux de déformation $\dot{\epsilon}$:

$$\eta = \frac{\sigma}{3\dot{\epsilon}} \quad (1.1)$$

Au sein du régime homogène, la totalité des volumes élémentaires est impliquée dans le processus de déformation, où trois sous-régions sont recensées. La première concerne un domaine de déformation Newtonien où la viscosité est indépendante de la vitesse de déformation (cf. Fig. 1.4 iso-lignes noires en pointillés – haute température, faible contrainte faible vitesse de déformation). La deuxième se réfère au régime Non-Newtonien atteignable pour des contraintes plus élevées, où la viscosité du matériau n'est plus constante et où des effets de vitesses de déformation apparaissent. Le dernier régime, appelé élastique, peut être atteint pour des températures normalisées (T/T_g) inférieures à 0,8 et pour des vitesses de déformation en dessous de 10^{-12} s^{-1} . En effet, étant donné que cet écoulement homogène est thermiquement activé, il est possible de négliger l'écoulement homogène en dessous de ce taux de déformation et ainsi définir le régime élastique. Par ailleurs, il convient de souligner qu'il est tout de même possible d'observer des écoulements Non-Newtonien et de la localisation à haute température dans l'état de liquide surfondu dès lors que le taux de déformation est suffisamment élevé. Enfin, ce régime homogène se révèle d'un intérêt particulier pour les opérations de mise en forme de pièces complexes. En plus de ne pas entraîner de réduction conséquente du volume des pièces – lié à l'absence de transition de phase

– les capacités de déformations augmentent considérablement dans ce régime, comme par exemple pour les bases palladium pouvant atteindre plus de 1000 % d'élongation dans le régime Newtonien.

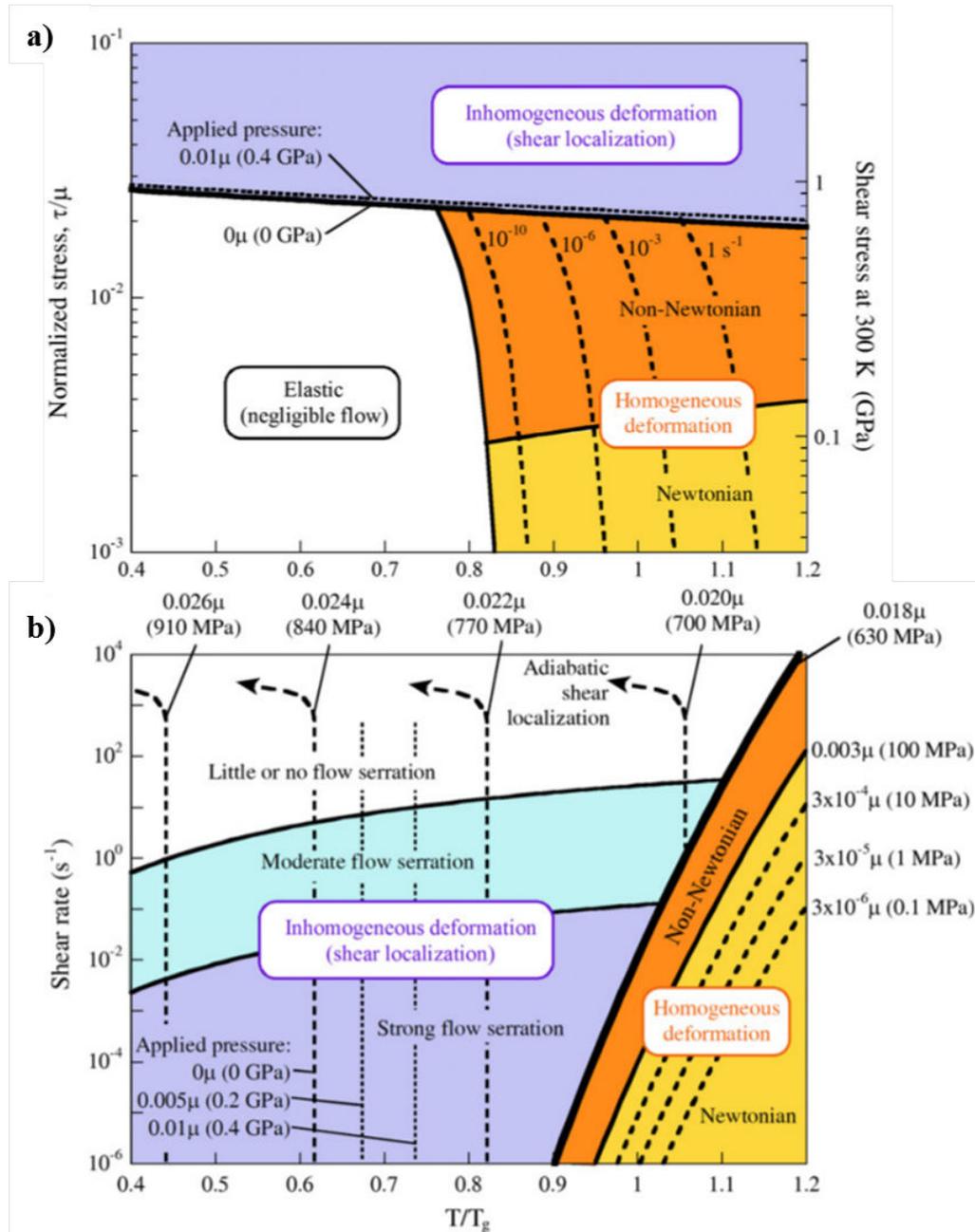


FIGURE 1.4 – Cartes de déformations de verres métalliques base *Zr* explicitées dans les plans (a) contrainte-température et (b) taux de déformation-température. Les régimes d'écoulement homogène et inhomogène sont indiqués ainsi que les sous-régimes d'écoulement Newtonien, Non-Newtonien et élastique. Les valeurs de contraintes indiquées correspondent aux données recueillies sur un verre de composition $Zr_{41,2}Ti_{13,8}Cu_{12,5}Ni_{10}Be_{22,5}$ [130].

Le régime hétérogène se caractérise par des phénomènes de localisation sous la forme de bandes de cisaillement. La disparition d'un écoulement Newtonien entraîne une chute de la sensibilité à la vitesse de déformation, occasionnant une perte de stabilité lors de l'écoulement (cf. Fig. 1.4 (b)). De tels événements sont supposés être associés à un changement d'état très localisé, se traduisant par l'augmentation des volumes libres ou bien d'une évolution structurale de l'ordre local. De cette génération de bandes de cisaillement en découle une rupture macroscopique considérée comme fragile. Les scénarios de formation et de propagation de ces bandes de cisaillement seront présentés ultérieurement en section 1.4.5.2. Ce régime hétérogène, à l'instar du régime homogène, dispose aussi de plusieurs sous-domaines d'écoulement mais dont les différenciations sont moins marquées. Nonobstant la présence permanente de localisation, de récents travaux de Klaumünzer et al [85], Dalla Torre et al [31], Maaß et al [102, 103] ont montré qu'il existait des seuils de température pour lesquels la vitesse des bandes de cisaillement variait. En contrôlant la formation et la propagation de ces bandes, il devient possible de piloter la plasticité dans ce régime, et donc de limiter au mieux l'apparition catastrophique de la rupture.

Il reste à souligner que ces cartes de déformation fournissent un aperçu simplifié de la dépendance à la température, au niveau de contrainte et au taux de déformation des mécanismes d'écoulement généralement rencontrés dans les verres métalliques. En ce sens, les seuils d'apparition des différents régimes sont de caractère purement qualitatif et n'incluent aucune information au sujet de l'évolution de la structure au cours de la déformation ou de la rupture. De plus, elles se basent sur la théorie des volumes libres, théorie qui encore aujourd'hui alimente les débats. Pour ces diverses raisons, elles doivent donc être rationalisées en fonction des compositions étudiées.

1.4.2 Modèles de déformation

Depuis la découverte des verres métalliques, plusieurs modèles atomiques ont vu le jour dans le but d'expliquer les origines de leur comportement mécanique. Parmi les plus répandus, on retrouve les modèles de Spaepen [136] et d'Argon [6]. Le premier propose une approche à même de rendre compte des rhéologies à températures élevées – i.e. de la viscoélasticité des verres métalliques –, alors que le deuxième présente une théorie de déformation à la fois viscoélastique et viscoplastique des verres métalliques.

1.4.2.1 Modèle de Spaepen

Ce modèle est basé sur la théorie des volumes libres et considère ces espaces comme des lacunes atomiques dans lesquelles un atome peut « sauter » [136]. Inspiré du modèle de diffusion dans les liquides [24], il décrit la déformation macroscopique comme étant le résultat de sauts atomiques successifs dans les lacunes précédemment créées.

Le mécanisme élémentaire aboutissant à la déformation est illustré en figure 1.5. Pour transiter de sa position originelle à la lacune, un atome doit franchir une barrière

énergétique d'intensité ΔG^m , soit via un apport thermique ou par un effort extérieur. Dans le premier cas, le nombre de sauts est le même dans toutes les directions de l'espace et se rapporte donc au mécanisme microscopique de base de la diffusion. Dans le second cas, une contrainte de cisaillement τ exerce une force τS , où s est l'aire projetée de l'atome sur le plan de cisaillement. Les sauts se produisent cette fois-ci majoritairement dans le sens de l'application de la contrainte, engendrant ainsi un flux d'atome dans une même direction.

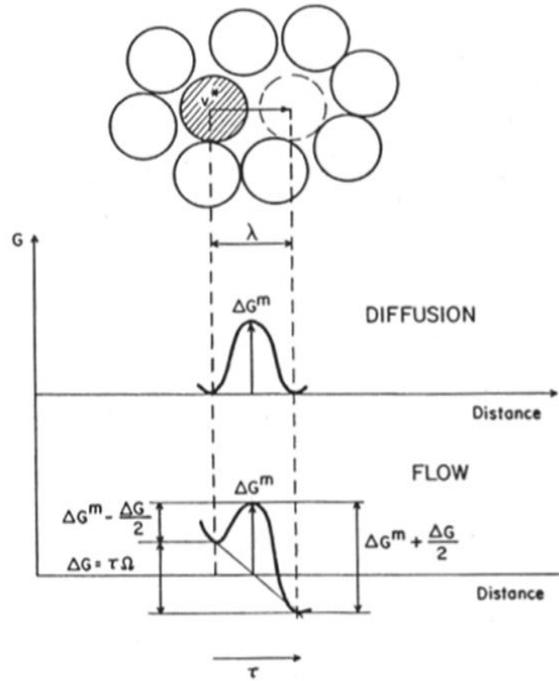


FIGURE 1.5 – Illustration du modèle de Spaepen de saut atomique individuel [136].

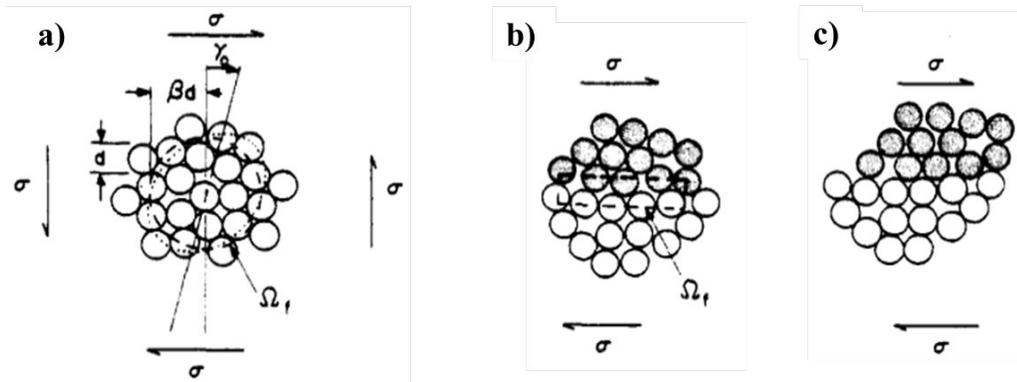


FIGURE 1.6 – Illustration des deux modes de déformation à haute (a) et basse température (b) et (c) postulés par Argon [6].

1.4.2.2 Modèle d'Argon

Ce modèle, connu sous le nom de « Shear Transformation Zone » (STZ), propose deux modes de transformations, tous deux induits par cisaillement thermiquement activé [6]. Il est supposé que ces modes se produisent dans des régions du matériau de densités réduites, autrement dit dans des zones comportant une quantité élevée de volumes libres. Sous l'effet d'une contrainte extérieure, le cisaillement résultant engendrera une réorganisation coopérative du groupe d'atomes, qui se traduira par une déformation inélastique en cisaillement γ_0 (cf. Fig. 1.6 (a)). Pour s'opérer, ce changement est conditionné – De manière similaire au modèle de Spaepen – par une barrière énergétique à franchir, faisant passer d'une configuration initiale à une configuration activée, d'énergie et de volume plus élevés.

À hautes températures, ce réarrangement aura un caractère diffusif de par l'augmentation de la mobilité atomique induite par l'élévation de la température. Le cisaillement autour des volumes libres sera alors d'autant plus facilité, bien que relativement faible, et s'appliquera localement autour d'une région sphérique. Cependant, la relaxation des contraintes sur la structure est favorisée par la température. Si l'arrangement atomique retrouve sa configuration initiale, alors la déformation sera viscoélastique. Au contraire, la chute de température limitera la relaxation des contraintes en cisaillement. On parlera alors de déformation viscoplastique dans le cas où le réarrangement atomique ne retrouve pas sa configuration initiale après déchargement. Par conséquent, à basses températures le réarrangement se produira dans une zone très étroite autour du volume libre sous la forme d'un disque (cf. Fig. 1.6 (b) et (c)). La déformation s'en retrouvera alors bien plus intense.

Ces zones privilégiées de réorganisation sont relativement réduites – pouvant aller jusqu'à la centaine d'atomes d'après les résultats de simulations – et sont tout sauf un défaut structurel, comme peuvent être par exemple les dislocations pour les matériaux cristallins. Au contraire, une STZ est de nature transitoire et ne serait observable que durant le passage d'une configuration d'équilibre à une autre [19].

1.4.3 Elasticité, anélasticité et relaxation structurelle

La structure atomique initiale des verres métalliques pilote directement ses propriétés élastiques. En effet, malgré les possibles hétérogénéités très localisées liées à la fabrication (cf. dendrites) ou bien à leur structure (cf. section 1.2), il est admis que les verres métalliques se comportent à température ambiante en quasi-statique comme des matériaux élastiques isotropes. Le module d'Young E et le coefficient de Poisson ν sont deux paramètres généralement utilisés pour caractériser leur comportement élastique. À titre d'information, les modules d'Young des verres métalliques se situent aux alentours de 85 *GPa* pour les bases *Zr*, de 195 *GPa* pour les bases *Fe* et 65 *GPa* pour les bases *Ti* [156, 19]. À la limite d'élasticité, les déformations atteintes avoisinent les 2 %.

Les propriétés élastiques des verres métalliques peuvent être aussi discutées à l'aide des paramètres G et K , correspondant respectivement aux modules de cisaillement et de compressibilité. Contrairement aux micro-structures polycristallines correspondantes, le module de compressibilité est généralement inférieur d'environ 6 % pour les micro-structures amorphes. Cette différence s'explique notamment par le fait que pour les amorphes leur masse volumique est comprise entre 99,5 % et 98 % de celle cristalline, qui dispose de modules d'Young E et de cisaillement G environ 30 % plus élevés que les amorphes [88, 19]. Selon Schuh et al [130], cette divergence ne peut s'expliquer sur le seul postulat d'une variation d'espacement interatomique entre amorphe et polycristallin.

Dans les matériaux cristallins, les déformations macroscopiques engendrent des déplacements se répercutant sur tous les atomes. Dans les verres métalliques non relaxés³, de multiples sites moins denses pourront très localement s'accommoder à la contrainte en autorisant des déplacements atomiques différents de ceux de la matrice environnante. À l'échelle d'une STZ, certains atomes peuvent se retrouver dans une topologie locale instable. La réponse de ces zones au cisaillement pourra alors se traduire par à la fois des déplacements atomiques mais aussi par une réorganisation anélastique des atomes voisins. Malgré le faible nombre de ces zones, le cumul de ces déformations anélastiques est suffisant pour expliquer la forte réduction des modules d'Young et de cisaillement.

Comme évoqué précédemment, la température joue un rôle sur la relaxation des contraintes au sein des STZ. Plus précisément, l'augmentation et le maintien d'une température proche de la transition vitreuse accroît la mobilité atomique, ce qui peut dans certains cas provoquer un changement de structure – i.e. réorganisation sans cristallisation. Ce phénomène appelé relaxation structurale peut s'expliquer par une approche énergétique. L'état vitreux étant hors équilibre thermodynamique, il dispose d'un niveau d'énergie – énergie interne ou enthalpie – supérieur à celui de l'état d'équilibre (cf. section 1.1). En effectuant un recuit proche de la T_g , il devient possible de « stabiliser » le verre et ainsi réduire son niveau d'enthalpie. Ce niveau d'énergie est lié à la vitesse de refroidissement du verre lors de sa synthèse. Un verre refroidi plus rapidement aura un niveau de désordre et un volume spécifique plus important qu'un verre refroidi plus lentement et par conséquent une énergie interne supérieure (la variation d'énergie interne étant lié à la variation d'entropie et de volume). La conséquence directe de la relaxation structurale est une augmentation de la masse volumique [128] et une diminution de la taille des volumes libres [142]. Autrement dit, la relaxation structurale aura tendance à réduire la mobilité atomique et faire tendre le matériau vers un nouvel état métastable plus proche de l'état d'équilibre thermodynamique pour la pression et température correspondantes.

3. i.e. qui disposent encore de volumes libres

1.4.4 Plasticité

Précédemment, nous rapportons l'existence de deux modes de déformations. L'un homogène observable à hautes températures, faibles contraintes et taux de déformation ; l'autre hétérogène macroscopiquement à faibles températures mais pour des contraintes et vitesses de déformation plus élevées.

1.4.4.1 Dépendance à la pression

L'effet de la pression sur la déformation est mis en évidence par la formation de bandes de cisaillement macroscopiques lors d'essais de compression et traction uniaxiales. Zhang et al [175] et Lund et al [100] ont compilé l'ensemble des angles de ruptures mesurés sur les éprouvettes en verre métallique récupérées après essais. Il en ressort que la rupture en traction suit un angle de 55° – par rapport à la direction d'application de la contrainte – alors qu'en compression la rupture s'opère selon un angle de 42° .

En regroupant les limites à la rupture issues de plusieurs études expérimentales [36, 97, 94, 46, 98] en fonction de la triaxialité des contraintes – i.e. la contrainte de cisaillement équivalente en traction au sens de Von Mises – Schuh et al [130] ont démontré que le seuil de rupture en compression est supérieur au seuil en traction (cf. Fig. 1.7). En sus de l'absence de réseaux cristallins et de leur fragilité, cette sensibilité à la pression a renforcé l'inadéquation des critères de Von Mises et Tresca pour décrire la plasticité des verres métalliques [19]. À l'opposé, leur entrée en plasticité peut être décrite par des critères de type Mohr-Coulomb ou de Drucker-Prager. Contrairement aux critères de Von-Mises et Tresca, les critères de Mohr-Coulomb et Drucker-Prager permettent d'inclure la contribution de la composante hydrostatique au cisaillement et par extension au déclenchement de la plasticité. Ils se révèlent particulièrement adaptés à la modélisation des matériaux présentant des limites élastiques différentes en traction et compression.

1.4.4.2 Effets de la température et des vitesses de déformation

Lorsque la température augmente jusqu'à atteindre la T_g , on assiste à une diminution continue de la viscosité Newtonienne. Au-delà de la T_g , son évolution en fonction de la température peut se décrire dans le cadre des verres métalliques par une loi d'Arrhénius. Comme vu précédemment en figure 1.4, à ce niveau de température deux régimes d'écoulement peuvent être distingués. Lorsque les vitesses de déformation sont suffisamment faibles, l'écoulement est indépendant du taux de déformation et le régime est Newtonien. En augmentant les vitesses de déformation, la viscosité augmente alors et un régime Non-Newtonien apparaît [84]. Bien que ce dernier apparaisse principalement autour de la T_g , Schuh et al [130] suggèrent néanmoins qu'un écoulement Non-Newtonien puisse se produire pour des températures bien supérieures.

Pour ce qui est du régime hétérogène, des bandes de cisaillement se forment majoritairement à basses températures. D'après Schuh et al [131], la formation de bandes

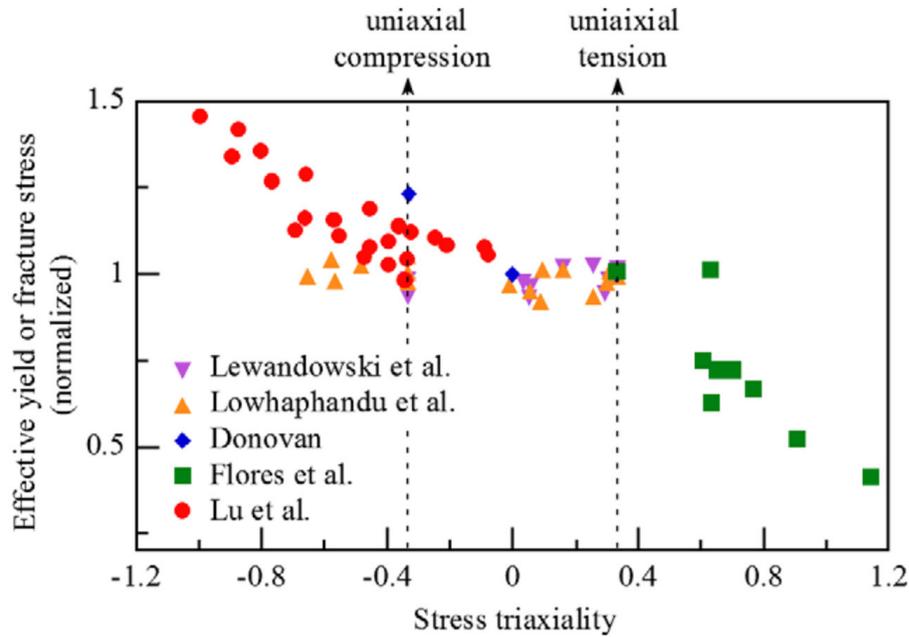


FIGURE 1.7 – Données expérimentales illustrant la dépendance à la pression sur la plasticité. Les contraintes effectives ou de Von Mises sont normalisées et exprimées en fonction de la triaxialité des contraintes (i.e. au rapport du tiers du premier invariant sur la contrainte équivalente de Von Mises) [130].

de cisaillement devient plus complexe à hautes température. En effet, leurs formations semblent reliées à un déséquilibre en déformation entre la zone expérimentant la localisation et la matrice environnante. L'élévation de température aurait alors tendance à réduire ce déséquilibre en offrant plus de mobilité atomique. De ce fait, la formation des bandes de cisaillement à hautes températures requiert l'augmentation du taux de déformation afin de réinstaurer ce déséquilibre en déformation entre la matrice et la zone où se déroule la localisation. La formation de ces bandes de cisaillement résulterait donc d'une compétition entre l'élévation de température et le taux de déformation, où :

- De larges bandes espacées seraient observées à hautes températures et faibles vitesses de déformations.
- Des bandes de dimensions plus réduites seraient générées en plus grand nombre, avec une distance inter-bande plus faible, dans le cas de température plus faible et de vitesses de déformation élevées.

Pour l'heure, il n'existe pas de preuves expérimentales attestant de ces différentes morphologies. Cependant, les travaux de Mukai et al [116] et Sergueeva et al [132] ont montré qu'une seule bande de cisaillement se formait à basses vitesses de déformation, alors qu'un plus grand nombre de bandes apparaissaient simultanément à plus hautes vitesses de déformation.

1.4.4.3 Effets de tailles sur la plasticité

De par le manque d'ordre à longue distance, le volume représentatif des verres métalliques est supposé être de dimension atomique. Dans la majeure partie des cas, les essais mécaniques effectués sont de dimensions bien supérieures à ce volume caractéristique. Un effet de taille sur les mécanismes de déformation n'est donc à priori pas attendu. Or nous avons vu que leurs mécanismes de déformation pouvaient s'associer à la formation de bandes de cisaillement dont le nombre, la taille caractéristique et l'espacement pouvaient notamment varier. L'étude de Conner et al [28] a révélé une dépendance de l'espacement de ces bandes en fonction de la dimension caractéristique des échantillons (cf. Fig. 1.8), où ceux de tailles réduites présentaient un espacement inter-bandes moindre que pour des échantillons de tailles supérieures.

Cet effet de taille fut corroboré par des essais de compression uni-axiale sur des éprouvettes de facteurs de forme inférieurs à 1 (cf. Fig. 1.9) montrant une déformation plastique à l'ambiante bien supérieure à celle généralement observée [11, 19]. Ce changement de comportement à petite échelle a été étudié pour des dimensions d'échantillon sub-micrométriques à la fois numériquement par dynamique moléculaire [134, 17], et expérimentalement [153, 53, 50]. Bien qu'une compréhension complète des origines de ces effets de tailles soit encore sujette à discussion, il ressort que la réduction de la taille des échantillons peut entraîner une augmentation de la déformation plastique avant rupture de par une transition du régime hétérogène vers le régime homogène (cf. Fig 1.10).

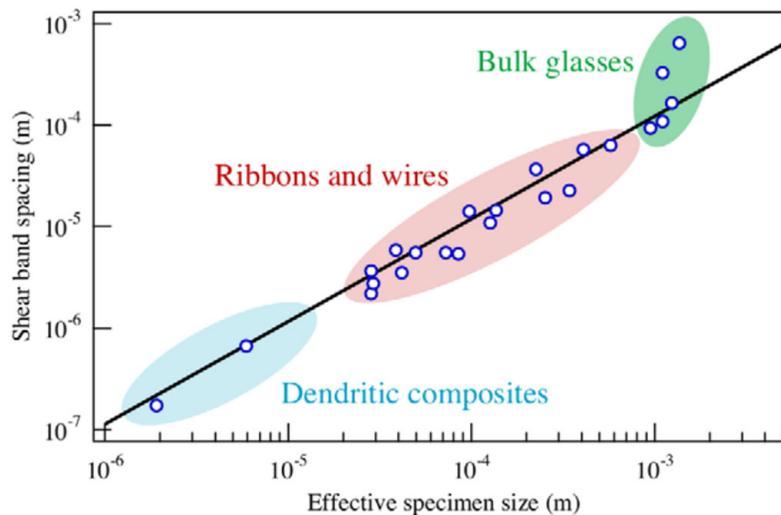


FIGURE 1.8 – Espacement moyen inter-bandes de cisaillement en fonction de la dimension caractéristique des échantillons de verres métalliques [28].

1.4.5 Rupture

En mécanique de la rupture, les matériaux sont classés en deux catégories. La première, appelée fragile, est très souvent liée à une plasticité « nulle ». La deuxième, dite

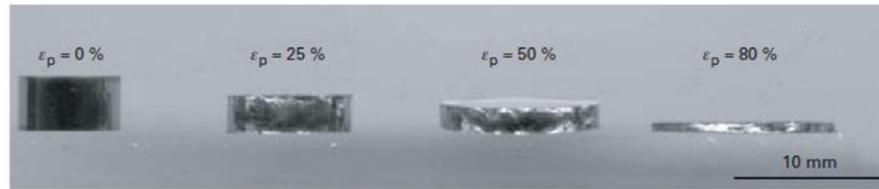


FIGURE 1.9 – Déformations plastiques d'un cylindre de verres métalliques base *Zr* en compression et à température ambiante pour un facteur de forme initial de 0,5 [11].

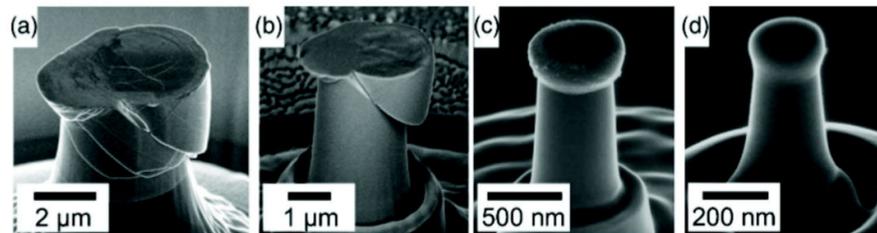


FIGURE 1.10 – Images MEB de piliers de diamètres (a) $3,61 \mu m$, (b) $1,84 \mu m$, (c) 440 nm et (d) 140 nm déformés par nano- indenteur, mettant en avant le passage d'un mode de déformation inhomogène avec bandes de cisaillement à un mode de déformation homogène [153].

ductile, concerne bon nombre de matériaux métalliques polycristallins démontrant une déformation plastique avant rupture. Ces deux natures se distinguent l'une de l'autre par leurs mécanismes macroscopiques et par l'énergie qu'elles consomment.

Un matériau sera donc considéré comme ductile si sa structure – et possiblement son évolution durant la rupture – entrave ou ralentit substantiellement la propagation d'une fissure. Une rupture ductile se caractérise alors par une création de surface conséquente, visible sur les faciès de rupture, synonyme d'un chemin de fissure plus ou moins complexe (cf. Fig. 1.11 (b)). Au contraire, les surfaces de ruptures associées à une rupture fragile seront beaucoup moins accidentées et donc synonymes d'une faible création de surfaces lors de la fissuration (cf. Fig. 1.11 (a)). Pour identifier le comportement à la rupture des matériaux et ainsi les classer, on a souvent recours à la notion de ténacité, qui se rapporte dans ses grandes lignes à la capacité d'un matériau à s'opposer à la propagation d'une fissure.

Qu'en est-il alors des verres métalliques? La réponse est loin d'être triviale. Bien qu'ils soient considérés comme des matériaux fragiles macroscopiquement à température ambiante, ils sont toutefois en mesure de dissiper de l'énergie par déformations plastiques via la localisation et la formation de bandes de cisaillement (cf. sections 1.4.2 et 1.4.4). Cette plasticité les distingue donc nettement des verres d'oxydes, mais aussi des métaux polycristallins étant donné qu'ils ne disposent pas de suffisamment d'autres types de barrières énergétiques – telles que l'écroutissage ou la présence de joints de grains – pour s'opposer à l'avancée d'une fissure. Par ailleurs, ils sont pour la plupart dotés de ténacités bien supérieures aux verres d'oxydes. En somme, les verres métalliques se situent entre les deux et sont considérés par la communauté comme

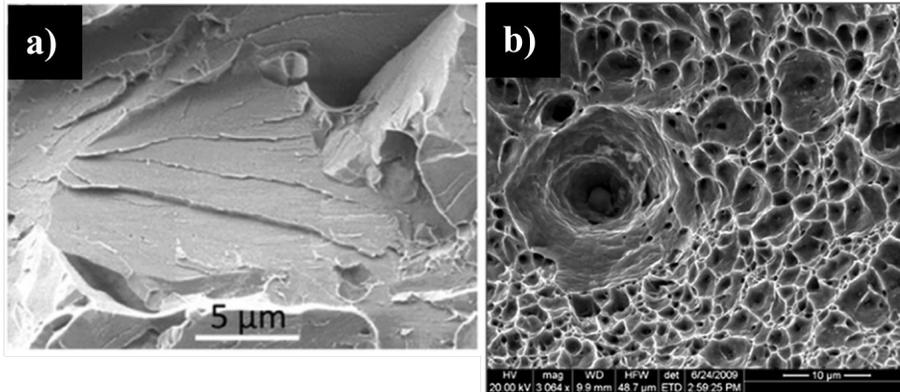


FIGURE 1.11 – Faciès de rupture dans des aciers : a) rupture fragile par clivage, b) rupture ductile révélant la présence de cupules [125].

quasi-fragiles. Dans ce qui suit, nous passerons en revue les propriétés et mécanismes liés à la rupture permettant d'aboutir à une telle conclusion.

1.4.5.1 Seuil de rupture et phénoménologie de la rupture

En conditions de traction uni-axiale à l'ambiante, la majorité des verres métalliques se fractureront de manière catastrophique sans démontrer de plasticité macroscopique, telle que l'illustre la figure 1.12 (b). En compression, le constat est différent (cf. Fig. 1.12 (a)) où un domaine de plasticité réduit peut être observé, laissant présager une rupture de nature moins fragile. Cette différence pour les verres métalliques peut être une démonstration d'une sensibilité à la pression hydrostatique [176, 55] (cf. section 1.4.4.1).

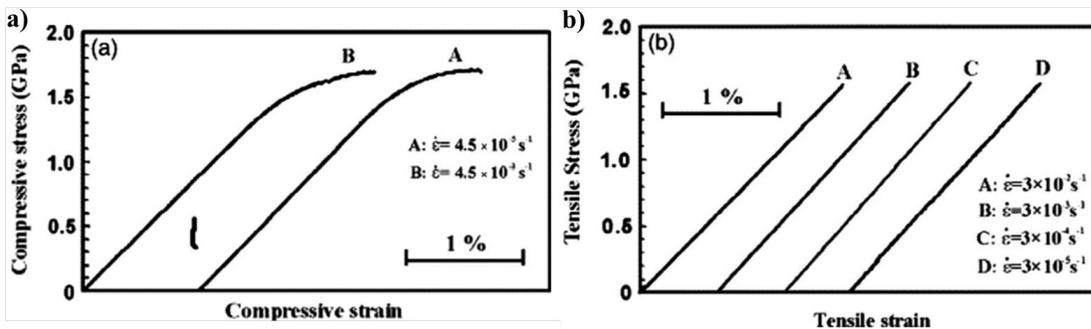


FIGURE 1.12 – Courbes de contrainte-déformation d'un verre métallique base $Zr_{59}Cu_{20}Al_{10}Ni_8Ti_3$ généralement observées sous (a) compression et (b) traction, pour différents taux de déformation [176].

Pour classer la fragilité des verres métalliques, Lewandowski et al [95] ont proposé un critère basé sur le ratio du module de cisaillement G sur le module de compressibilité K . D'après la figure 1.13 (a), il existe un seuil autour de 0,41-0,43 à partir duquel l'énergie de fissuration chute drastiquement, laissant apparaître une transition fragile-ductile. Ce niveau d'énergie fut ensuite rapproché des coefficients de Poisson des compositions testés. Une corrélation a alors pu être établie entre une valeur de coefficient

de Poisson supérieure à 0,3 et l'apparition d'une rupture ductile (cf. Fig. 1.13 (b)).

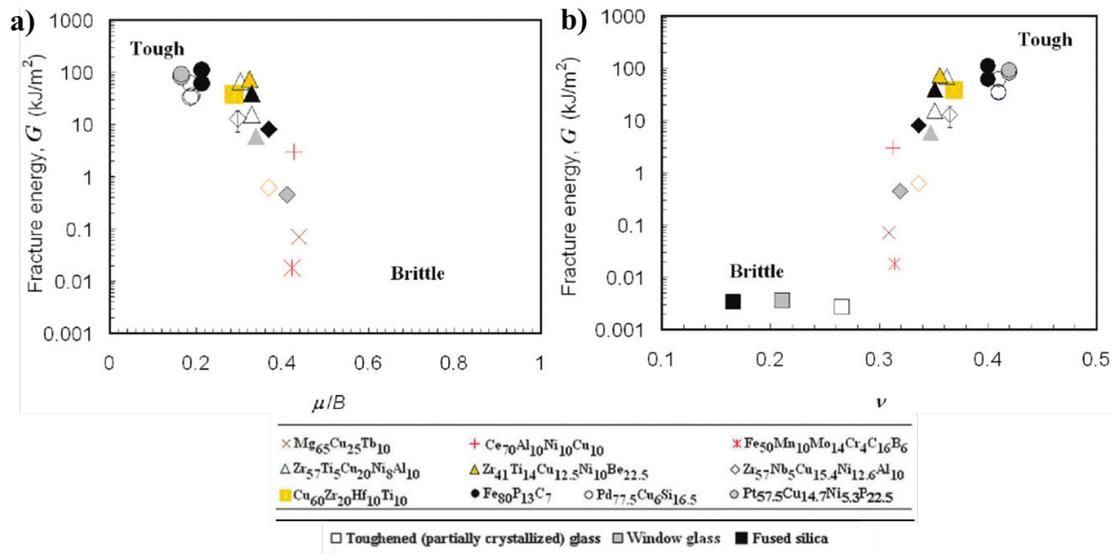


FIGURE 1.13 – (a) Corrélation entre l'énergie de rupture avec le ratio μ/B du module de cisaillement sur le module de compressibilité pour différentes composition de verres métalliques. (b) Corrélation de cette même énergie de rupture avec le coefficient de Poisson ν de chacune des compositions [95].

Si cette approche peut sembler grossière, il faut souligner qu'elle permet de s'affranchir des problèmes liés à la mesure de la ténacité, qui pour les verres métalliques se révèle ardue. Précédemment, nous avons vu qu'il existait des effets de tailles dans les verres métalliques, pouvant modifier significativement leur plasticité et par extension leur ductilité. Or la ténacité s'évalue généralement par l'initiation et la propagation d'une fissure en pointe d'entaille suite à une sollicitation en mode I, correspondant à un essai de traction perpendiculaire au plan de l'entaille. Pour mesurer la ténacité intrinsèque des verres métalliques, plusieurs études ont montré l'importance des conditions expérimentales sur son évaluation [92, 48, 60, 143, 58] soulevant ainsi la question de l'influence des paramètres extrinsèques sur son évaluation. En proposant leur critère, Lewandowski et al [95] ont donc permis de capturer en un sens la nature de la rupture de plusieurs verres métalliques.

Ceci étant, les origines même de la rupture ainsi que la succession d'événements y conduisant restent pour l'heure mal compris. Pour certains [148, 143], la rupture à l'ambiante dans les verres métalliques est indissociable de la formation des bandes de cisaillement. La sensibilité à la pression vue précédemment serait un indicateur de l'importance des bandes de cisaillement dans les processus de fracturation. La dépendance de l'angle et de la limite à la rupture à la sollicitation pourrait alors s'expliquer par la formation de ces bandes qui est exacerbée en compression. Sans rentrer dans les détails pour l'instant (cf. section 1.4.5.2), il a été démontré expérimentalement que l'extrême localisation des déformations sous forme de bandes de cisaillement entraînait une augmentation de la température [93]. Suite à un dépôt d'étain à la surface

d'échantillons en verre métallique, Lewandowski et Greer ont pu observer la présence de gouttelettes après déformation de leurs échantillons montrant une augmentation considérable de la température au delà de température de fusion de l'étain (505 K).

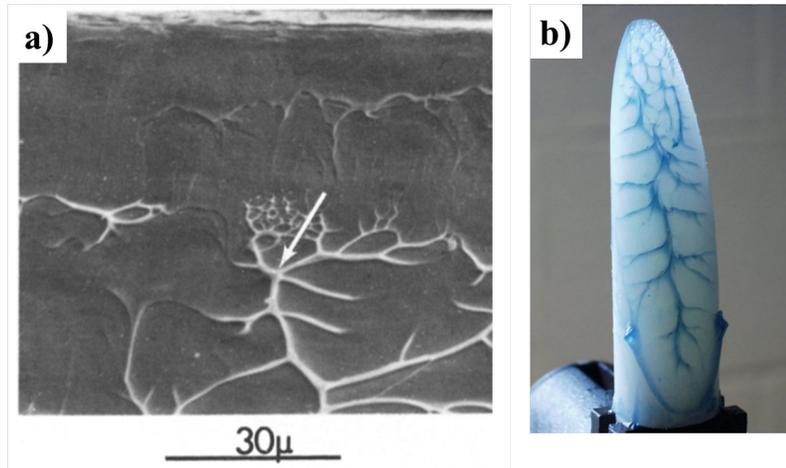


FIGURE 1.14 – (a) Motif à veines observé sur le faciès de rupture d'une éprouvette de composition $Pd_{82}Si_{18}$ récupérée après rupture en traction [91]. (b) Motif à veine reproduit par Deibler et al [33] à partir de fluides visqueux, illustrant l'effet de viscosité sur la taille et le nombre de veines obtenues après rupture en traction.

Bien que la quantification et l'origine de l'élévation de la température fasse encore débat entre expérimentateurs et numériciens, il apparaît indéniable que celle-ci est nécessairement associée à la formation de ces bandes de cisaillement. De ce fait, une augmentation de la température aurait pour conséquence d'induire une chute de la viscosité au sein de la bande, se traduisant par la formation d'une couche pseudo-liquide moins visqueuse que la matrice environnante. L'observation post-mortem des faciès de rupture a permis de mettre en évidence la présence d'une telle couche. En effet, un motif sous forme de veines est dans la plus part des cas présent (cf. Fig. 1.14 (a)) et plus particulièrement pour les compositions dites tenaces. Ce motif caractéristique peut se visualiser comme étant le résultat d'instabilités au sein de cette couche pseudo-liquide au cours du glissement et de la séparation des deux parties de l'échantillon [155]. D'ailleurs, les travaux expérimentaux de Deibler et al [33] menés sur différents substrats séparés par des fluides de viscosités distinctes, ont révélé que la géométrie et les dimensions de ces motifs variaient avec la viscosité (cf. Fig. 1.14 (b)).

À noter que ce motif ne couvre pas la totalité de la surface de rupture. Comme l'illustre la figure 1.15, une zone lisse dénuée de veines est présente sur les éprouvettes au début de la rupture avant de laisser place à une zone comportant ce motif à veines [91]. La formation de ces veines caractéristiques des verres métalliques peut se modéliser par une approche de Taylor de l'instabilité du ménisque en pointe de fissure. La première description appliquée aux verres métalliques remonte à l'article d'Argon et al [7], et a récemment été reprise par Wang et al [155] pour les bases Mg et par Tandaiya et al [145] pour les bases Zr .

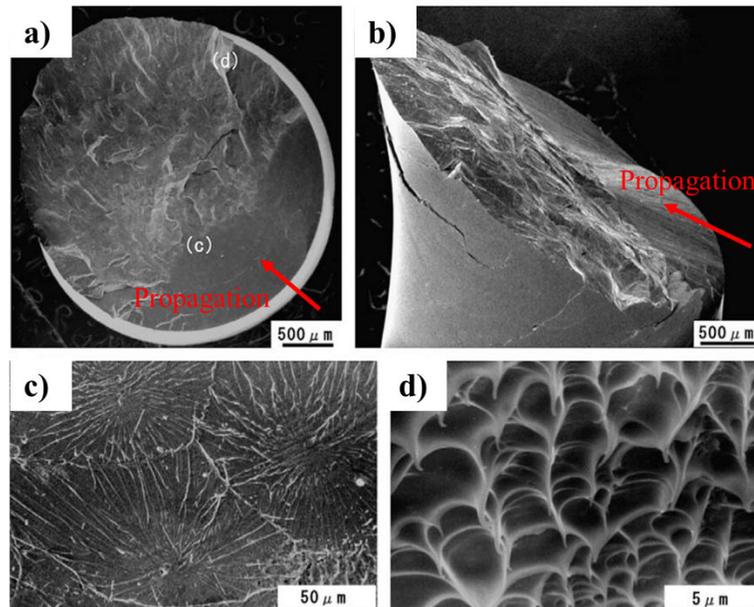


FIGURE 1.15 – (a)-(d) Faciès de rupture d’une éprouvette de verre métalliques $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ soumise à un essai de traction uni-axiale. À l’initiation, une zone lisse est observée avant de laisser place à un motif en veines [171].

Finalement, en synthétisant plusieurs études menées sur différents systèmes amorphes, Sun et al [143] ont proposé un diagramme explicitant les corrélations existantes entre la morphologie de la rupture, sa taille caractéristique et la ténacité associée (cf. Fig. 1.16). D’après celui-ci, la ténacité - i.e. en traction mesurée dans le cas d’une ouverture en mode I - augmente avec la réduction de la taille caractéristique des motifs, qui est à corrélérer avec l’apparition de cavitation en amont de la pointe de fissure pour les verres métalliques fragiles et à un régime hétérogène pour les verres métalliques plus ductile comme les bases Zr . Il est nécessaire de souligner que pour les matériaux métalliques polycristallins, la déformation plastique en pointe de fissure est supposée homogène, ce qui les distingue une fois de plus de leurs versions amorphes.

Pour achever cette partie sur la rupture, au regard du rôle prédominant des bandes de cisaillement dans les processus de fissuration en quasi-statique, il est nécessaire d’évoquer les différentes théories formulées quant à l’initiation et la propagation de celles-ci.

1.4.5.2 Bande de cisaillement

Nous avons évoqué à plusieurs reprises les situations propices à la formation de bandes de cisaillement, sans vraiment expliciter leurs origines. Et pour cause, elles n’ont toujours pas été élucidées. Il est fréquemment admis – d’après le modèle d’Argon (cf. section 1.4.2.2) – que les STZ représentent des sites privilégiés à partir desquels

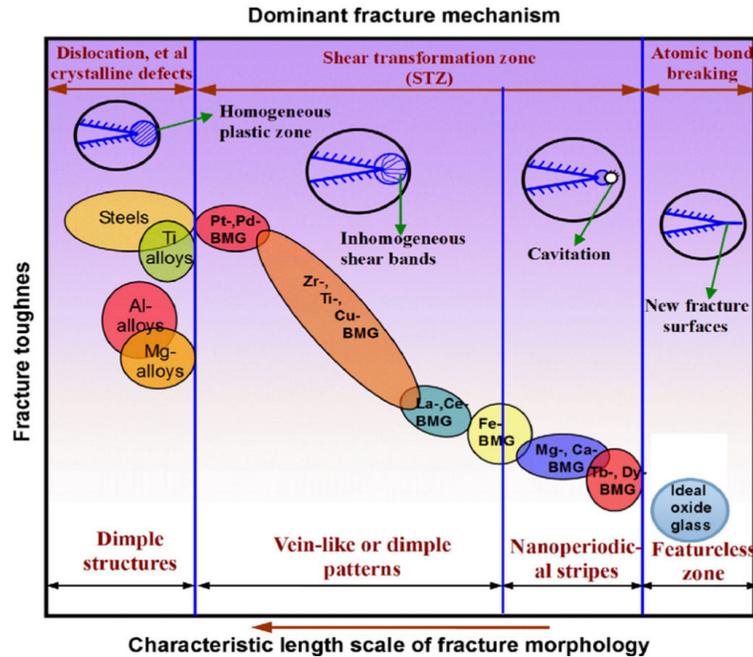


FIGURE 1.16 – Représentation schématique de l'évolution de la morphologie des faciès de rupture des verres métalliques en fonction de leur ténacité et de leur composition [143].

des bandes de cisaillement peuvent s'initier. Ces régions trouvent leurs sources dans l'hétérogénéité rencontrée à l'échelle microscopique. Pour rappel, il a été démontré par Cheng et al [22, 21] que les zones disposant d'un nombre important de structures icosaédriques révélait une rigidité locale plus élevée et que les transformations en cisaillement avaient tendance à s'initier dans des régions d'organisation atomique, i.e. de stabilité atomique, plus faibles. Dès lors, trois scénarios émis par Greer et al [52] ont vu le jour afin d'apporter des pistes de réflexions quant à l'initiation des bandes de cisaillement à partir de ces STZ.

Dans le premier scénario, la formation d'une bande de cisaillement résulterait de la percolation de plusieurs STZ activées de manière « uniforme ». Si les différentes STZ, isolées les unes des autres, ne sont pas suffisamment nombreuses pour dépasser le seuil limite de percolation, alors ces transformations seraient réversibles après déchargement. Si au contraire elles sont en nombre suffisant pour dépasser cette limite de percolation, alors une bande de cisaillement se formerait. Plus précisément, ces STZ percoleraient le long du plan de cisaillement maximum, entraînant un adoucissement localisé du voisinage atomique suivi d'une dilatation, ayant pour conséquence d'engendrer une concentration des déformations en cisaillement à l'origine de la formation d'une très fine bande.

Le second scénario, plus proche des problématiques liées à la synthèse d'échantillons, considère la présence de défauts et imperfections s'apparentant à des micro- ou nano-vides ou encore à des défauts de surfaces, pouvant faire office de zones de

concentration de contraintes. La déformation élastique des verres métalliques contenant de tels défauts a été étudiée numériquement par Shimizu et al [134]. Ils ont démontré que les STZ se formaient à partir de ces sites, où des bandes de cisaillement se propageaient dès lors qu’une taille critique embryonnaire était atteinte, permettant ainsi le développement d’une bande de cisaillement plus importante. La dimension approximative déterminée par Shimizu et al avoisine les 100 nm de longueur. Les contraintes de cisaillement appliquées sur ces sites engendreraient une zone de réjuvenation suivie par une région ramollie dite « aliénée » à cause de la dilatation des STZs (cf. Fig. 1.17). Enfin, une zone liquide se formerait derrière cette région aliénée de par l’extrême localisation et la rupture de liaisons atomiques, se traduisant par une élévation de la température permettant d’atteindre cet état liquide. Au cours de son initiation et propagation, Cao et al [17] ont montré que la percolation des STZs causerait la dégradation des structures icosaédriques (cf. Fig. 1.18), transformant ainsi les ordres court et moyen en une configuration atomique hautement instable.

Le dernier scénario décrit la formation des bandes de cisaillement comme étant un mécanisme à deux étapes [52], similaire à celui de Klaumünzer et al [86]. La première étape consiste en la création d’une bande de cisaillement viable par réjuvenation structurale. Celle-ci correspond à l’activation d’une STZ le long d’une bande où la structure atomique se retrouve perturbée et dont le ramollissement accroît la mobilité atomique. Le processus de réjuvenation est similaire au deuxième scénario dans le sens où il est activé de manière hétérogène à partir des sites de concentration de contrainte. Cependant, la différence se trouve dans le fait que les déformations en cisaillement sont faibles et la température au sein de cette bande de désordre atomique augmente peu. Après la création d’un chemin privilégié, la deuxième étape est activée simultanément par le glissement le long du plan de réjuvenation. Lorsque le cisaillement augmente, la matière impliquée dans la formation d’une bande de cisaillement subit alors d’importantes déformations plastiques et un échauffement local significatif. La bande de cisaillement s’en retrouve alors élargie. Ce scénario à deux étapes est soutenu par les simulations de Cao et al [17]. D’ailleurs, durant la formation des bandes de cisaillement, l’ordre des structures icosaédriques diminue [22, 21, 20].

D’après ces trois scénarios, il apparaît que la composition – et donc l’ordre local –, la présence de défauts hétérogènes et l’histoire thermique du matériau constituent des facteurs déterminants pour appréhender la formation des bandes de cisaillement. Une

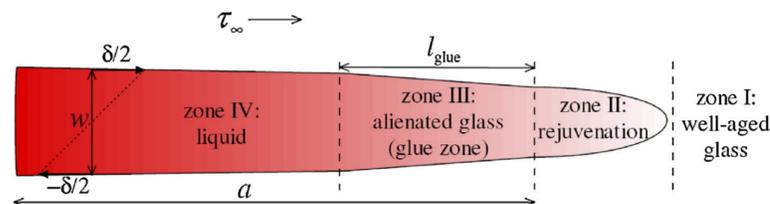


FIGURE 1.17 – Propagation du front d’une bande de cisaillement d’après le modèle de Shimizu et al [134].

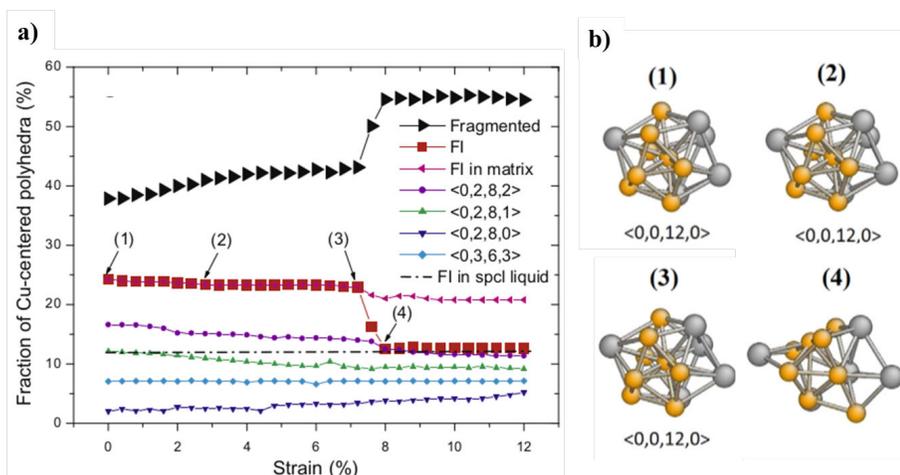


FIGURE 1.18 – Suivi de la topologie des polyèdres Cu -centrés d'un binaire $Cu_{64}Zr_{36}$ au cours d'une compression uni-axiale simulée par dynamique moléculaire. La proportion d'icosaèdres complets (Full Icosahedron) décroît drastiquement autour des 7 % de déformation [17].

bonne connaissance initiale de chacun d'entre eux se révèle donc primordiale dès lors que l'on étudie les propriétés mécaniques des verres métalliques dans le régime hétérogène.

1.5 Comportement dynamique sous choc des verres métalliques

1.5.1 Comportement élasto-plastique dynamique des verres métalliques

Très peu d'études portent sur le comportement dynamique élasto-plastique des verres métalliques. Turneure et al [150, 151] comptent parmi les premiers à déduire de mesures de vélocimétrie, la limite élastique dynamique de verres métalliques massifs de nuance $Zr_{56,7}Cu_{15,3}Ni_{12,5}Nb_{5,0}Al_{10,0}Y_{0,5}$. Pour cette composition, le seuil de transition d'apparition de la plasticité se situe à 7,1 GPa pour une déformation élastique approximative de 4,5 %. Ces deux valeurs se sont montrées bien supérieures aux valeurs statiques, où une limite élastique de 2 GPa pour 2 % de déformation est généralement constatée. Par ailleurs, ces auteurs ont identifié un phénomène transitoire opérant peu avant l'arrivée de la composante plastique de l'onde de choc. Turneure et al ont justifié ce phénomène par l'adoucissement généralement associé à l'activation de la plasticité dans les verres métalliques en statique, ainsi qu'à une potentielle influence des vitesses de déformation. D'autres auteurs ont rapporté des résultats similaires pour la limite élastique (5-7 GPa) et d'adoucissement sur d'autres compositions de verres métalliques base Zr [105, 147, 135].

Pour rendre compte de ce phénomène transitoire, Turneure et al [151] ont réalisé plusieurs simulations en modélisant leur verre métallique par une loi de comportement élastique-plastique, à partir du critère de von Mises. À cela est incorporé un critère de dépendance temporelle de la contrainte à partir d'un modèle de contrainte excessive [172]. À l'aide de cette dépendance, ils ont été en mesure de reproduire de manière satisfaisante leurs signaux expérimentaux. Ils en ont déduit qu'un temps de relaxation de quelques nanosecondes était observé au-dessus de la limite élastique.

Plus particulièrement, cette transition élasto-plastique fut étudiée en détails par Arman et al [8] via des simulations de dynamique moléculaire. D'après leurs résultats, le mécanisme de STZ est responsable en dynamique comme en statique des déformations plastiques. De l'écroutissage et de l'adoucissement furent aussi observés et associés à une évolution dynamique des différentes STZ. Leurs origines ont été étudiées à l'échelle atomique et reliées à des changements de réseaux icosaédriques, créant des reconfigurations structurales générant des déformations en cisaillement.

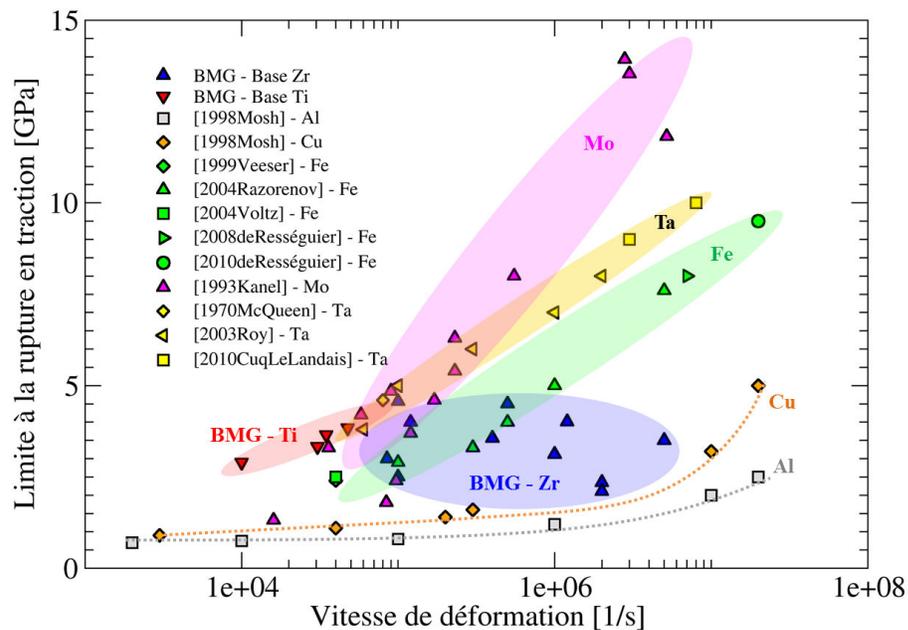


FIGURE 1.19 – Compilation des seuils de rupture en tension dynamique en fonction du taux de déformation pour plusieurs métaux.

1.5.2 Endommagement et rupture dynamique des verres métalliques

Pour l'heure, plusieurs études ont visé à obtenir la limite à la rupture en tension dynamique des verres métalliques base zirconium. Parmi celles-ci, l'étude de Zhuang et al [178] compte dans les premières où une tension seuil de $2,35 \text{ GPa}$ a été obtenu par impact de plaques sur un verre métallique commercial (Vitreloy 1) de composition $Zr_{41,2}Ti_{13,8}Cu_{12,5}Ni_{10}Be_{22,5}$ pour un taux de déformation estimé à $2,0 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$. S'en est

suivi une étude de Turneure et al [149], toujours par impact de plaques, sur des échantillons de nuance $Zr_{56,7}Cu_{15,3}Ni_{12,5}Nb_{5,0}Al_{10,0}Y_{0,5}$. Ils ont alors relevé des valeurs de limite à la rupture comprise entre 3,5 et 4,0 GPa pour des vitesses de déformation allant de $4.10^5 s^{-1}$ à $1,2.10^6 s^{-1}$. Les différentes valeurs de limite à la rupture rapportées dans la littérature ont été synthétisées en figure 1.19 en fonction du taux de déformation. A noter que cette synthèse se veut la plus exhaustive possible sur le sujet et ne porte que sur les compositions à base zirconium. Dans toutes les études, des lanceurs ont été employés pour générer des chocs, et aucune étude par choc laser n'a encore été rapportée. La diversité des verres métalliques base zirconium explique la dispersion des limites à la rupture mesurées. Cette dispersion empêche de mettre en évidence une éventuelle dépendance de la limite à la rupture au taux de déformation, ainsi que toute comparaison avec les données existantes pour les matériaux métalliques purs.

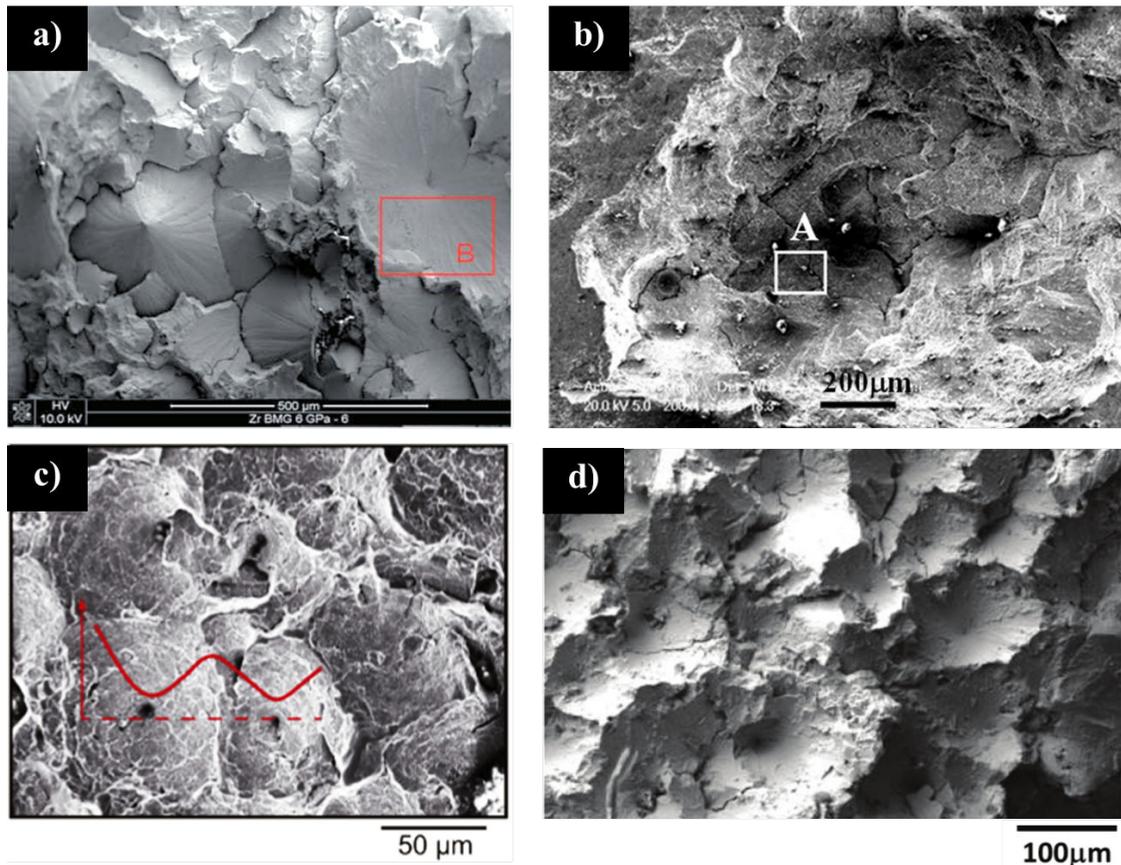


FIGURE 1.20 – Faciès de rupture après impacts de plaques de verres métalliques de compositions (a) $Zr_{56,7}Cu_{15,3}Ni_{12,5}Nb_{5,0}Al_{10,0}Y_{0,5}$ [42], (b) $Zr_{41,2}Ti_{13,8}Cu_{12,5}Ni_{10}Be_{22,5}$ [68], (c) $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ [99] et (d) $Zr_{46}Cu_{38}Ag_8Al_8$ [41]. Dans chaque situation, la surface de rupture présente des cavités connues sous le nom de « cup and cone ».

Concernant les faciès de rupture, des motifs à veines similaires à ceux observés en statique ont aussi été rapporté en dynamique par plusieurs auteurs [163, 147, 172, 42, 68, 177, 144, 41, 99]. Dans certains cas, des motifs – dénommés « cup and cone » – s'apparentant à des cavités coniques ont pu être distingués [42, 68, 99] (cf. Fig. 1.20). Pour expliquer leur formation, plusieurs modèles ont été proposés, tous se basant sur la théorie des volumes libres et la nucléation de vides durant la propagation du choc. Sur ces sites se concentreraient des zones d'intenses contraintes en cisaillement à partir desquelles des bandes de cisaillement se formeraient. Nous l'avons vu précédemment, la rupture dans les verres métalliques est étroitement liée à l'initiation et la propagation de ces bandes de cisaillement. Comme nous le verrons dans le chapitre 6, l'étude approfondie de ces motifs permettra de faire le lien entre l'initiation des bandes de cisaillement sous choc et la formation de ces motifs.

Des simulations de dynamique moléculaire ont été entreprises par Arman et al [8] et Huang et al [67] afin d'étudier le processus d'écaillage dans deux verres métalliques binaire *ZrCu*. Arman et al ont déduit de leurs résultats que la nucléation de vides était favorisée dans les zones de fortes déformations en cisaillement et qu'ils résultaient de l'activation de STZs. De leur côté, Huang et al ont affirmé qu'une transition ductile à fragile dans les processus d'écaillage s'opérait lorsque la vitesse d'impact augmentait. Selon leur étude, la nature des déformations plastiques au cours du processus d'écaillage résulterait d'une compétition à l'échelle atomique entre cisaillement (Shear Transformation Zone) et tension (Tensile Transformation Zone). Avec l'augmentation de la vitesse d'impact, les zones de transformation en tension domineraient les STZ dans le processus d'écaillage, auxquelles seraient associées une température et un désordre atomique plus élevés, se traduisant en une nucléation de vides plus importante. Le seul inconvénient de ces conclusions réside en la formation des motifs coniques rapportés expérimentalement, qui ne peuvent par conséquent pas s'expliquer par la domination des zones de transformation en tension dans le processus d'écaillage.

1.6 Synthèse

À travers ce chapitre, nous avons précisé la structure et les propriétés caractérisant les verres métalliques, à la fois dans le cas de sollicitations quasi-statique et dynamique. La présence d'une architecture atomique particulière pouvant inclure des complexes icosaédriques s'est révélée étroitement liée aux mécanismes de déformation et de rupture répertoriés jusqu'à lors.

En particulier, nous avons pu constater l'existence de plusieurs modes de déformations qui sous certaines conditions de pression et température pouvaient se manifester sous la forme de bandes de cisaillement. Ces caractéristiques intrinsèques aux verres métalliques ne se montreront pas sans conséquences pour notre étude. Notamment, leurs sensibilités à la pression, à la température et aux vitesses de déformations sont autant d'éléments susceptibles d'influencer leur comportement et leur rupture en dynamique auxquels nous apporterons une attention particulière par la suite.

TABLE 1.1 – Tableau récapitulatif des propriétés des verres métalliques étudiés dans ces travaux. Les symboles ρ_0 , c_L , c_T , E , ν et G représentent respectivement la masse volumique initiale, la célérité des ondes longitudinales, la célérité des ondes transversales, le module d'Young, le coefficient de Poisson et le module de cisaillement, tous déterminés par des mesures d'échographie ultrasonore. Les températures de transition vitreuse T_g , de cristallisation T_x et de fusion sont issues T_l de la littérature. Enfin les valeurs de limite à la rupture en statique σ_{RStat} et dynamique σ_{RDyn} sont indiquées en fonction du taux de déformation.

	$Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$	$Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$	$Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$
ρ_0 [$g.cm^{-3}$]	$6,941 \pm 0,006$	$6,809 \pm 0,006$	$6,700 \pm 0,006$	$6,581 \pm 0,006$
c_L [$km.s^{-1}$]	$4,774 \pm 60$	$4,808 \pm 40$	$4,781 \pm 45$	$4,762 \pm 40$
c_T [$km.s^{-1}$]	$2,272 \pm 10$	$2,188 \pm 15$	$2,172 \pm 10$	$2,126 \pm 15$
E [GPa]	$97,0 \pm 2$	$89,3 \pm 2$	$86,7 \pm 2$	$81,9 \pm 2$
ν [-]	$0,354 \pm 0,002$	$0,365 \pm 0,002$	$0,370 \pm 0,002$	$0,375 \pm 0,002$
G [GPa]	$35,8 \pm 2$	$32,7 \pm 2$	$31,6 \pm 2$	$29,8 \pm 2$
T_g [K]	730 [170]	706 [167]	688 [167]	671 [167]
T_x [K]	780 [170]	792 [167]	767 [167]	748 [167]
T_l [K]	1124 [170]	1092 [167]	1144 [167]	1151 [167]
σ_{RStat} [GPa] / $\dot{\epsilon}$ [s^{-1}]		$2 / 7.10^{-5}$ [171]		
σ_{RDyn} [GPa] / $\dot{\epsilon}$ [s^{-1}]		$4 - 5 / 4,5.10^5$ [99]		

Pour clore cet aperçu des propriétés des verres métalliques, nous avons résumé dans le tableau 1.1 différentes propriétés relatives aux nuances étudiées dans ce manuscrit. Ces données issues de la littérature [170, 171, 167, 99] et de mesures effectuées par échographie ultrasonore au laboratoire, nous serviront de base de réflexion à la fois pour l'analyse de nos résultats et la modélisation de leur comportement. Le lecteur sera donc invité à s'y référer en cas de nécessité.

Chapitre 2

Choc laser, Hugoniot et Verre Métallique

« La plupart des erreurs consistent en cela seul que nous ne donnons pas correctement leurs noms aux choses. »

| Baruch Spinoza (1677), *L'Éthique*.

Sommaire

2.1 Les compressions induites par laser	38
2.1.1 Les Lasers du LULI	38
2.1.2 L'interaction laser matière	38
2.1.3 Caractérisation du chargement induit par laser	40
2.2 Théorie des ondes de compression dynamiques	45
2.2.1 Propagation d'onde dans un matériau condensé	45
2.2.2 De la détente à l'amortissement hydrodynamique	48
2.2.3 Transmission et réflexion	49
2.2.4 Approximation de l'adiabatique unique	50
2.2.5 Vitesse de surface libre : approximation et mesure	52
2.3 Équation d'état des verres métalliques	53
2.4 Synthèse	56

L'étude du comportement sous choc des matériaux requiert de s'intéresser à la génération et la propagation des ondes de choc. Comme explicité au cours de l'introduction de ce manuscrit, nous avons décidé d'avoir recours aux lasers de puissance comme générateur d'ondes de choc. Ainsi, ce chapitre est dédié à la théorie de l'interaction laser-matière et celle des ondes de compression dynamique. Tout d'abord, nous traiterons des processus d'interaction laser-matière menant à l'ablation. Cette section sera aussi l'occasion d'évoquer les différentes approches existantes pour caractériser un chargement laser. Ensuite, nous présenterons les éléments théoriques nécessaires à la compréhension phénoménologique des événements survenant au cours d'expériences de choc laser. Enfin, nous ferons état des travaux présents dans la littérature visant à étudier la propagation des ondes de choc dans les verres métalliques.

2.1 Les compressions induites par laser

2.1.1 Les Lasers du LULI

Les expériences rapportées dans ces travaux de thèse ont été réalisées au sein du Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses de l'École Polytechnique – UMR 7605, Palaiseau, France sur deux chaînes laser différentes : LULI2000 et ELFIE. Sans rentrer dans les détails des configurations expérimentales (cf. chapitre 3 – Moyens expérimentaux section 3.2), il faut retenir que ces deux chaînes laser permettent de générer de larges plages d'impulsions laser entre la centaine de femtosecondes à plusieurs nanosecondes. L'installation LULI2000 est composée de deux chaînes laser. L'installation permet d'atteindre des énergies allant jusqu'à 800 J par chaîne. Les deux chaînes peuvent être utilisées successivement ou simultanément pour augmenter le niveau d'énergie sur cible. L'installation ELFIE pour sa part délivre des énergies plus modérées de l'ordre de 60 J , pour des durées d'impulsion de 600 ps . Cette dernière peut être réduite via un compresseur permettant d'obtenir une impulsion de quelques joules pendant une durée de 350 fs .

Grâce à la grande variabilité des niveaux d'énergie et durées de chargement laser, nous pûmes aussi bien étudier le comportement dynamique de nos verres métalliques que leur processus d'endommagement et de fragmentation sous choc. Pour étudier leur comportement dynamique sur une plage de pression la plus large possible, nous avons privilégié l'installation LULI2000. Au contraire, l'investigation de l'endommagement dynamique ne requiert pas nécessairement d'avoir accès aux hautes énergies, de ce fait les études de l'endommagement ont été principalement réalisées sur l'installation ELFIE.

2.1.2 L'interaction laser matière

Depuis ces dernières années, les efforts de développement des oscillateurs permettent aujourd'hui de sculpter le profil temporel de l'impulsion laser de sorte à créer deux importants types de chargements en pression : des rampes de compression supposées quasi-isentropique ou des ondes de chocs de temps de maintien réglable (cf. Fig. 2.1 et chapitre 3).

L'interaction de la matière et d'une onde électromagnétique dépend à la fois de la longueur d'onde, de l'énergie et des distributions spatiale et temporelle de cette dernière, mais aussi de la nature des atomes composant la matière. Le principe consiste en la transformation et la communication rapide de l'énergie transportée par les photons en un plasma chaud et de haute pression. Celui-ci induit dans la matière une contrainte mécaniques et un échauffement dans une faible épaisseur de matière. Dans le cas présent, toutes les expériences ont été menées à l'aide de lasers dont les longueurs d'onde se situent dans l'infrarouge. En fonction de l'énergie laser E_L (exprimée en J), la durée de l'impulsion à mi-hauteur τ_L (s) et de la surface irradiée par le laser S_L (cm^2), il est

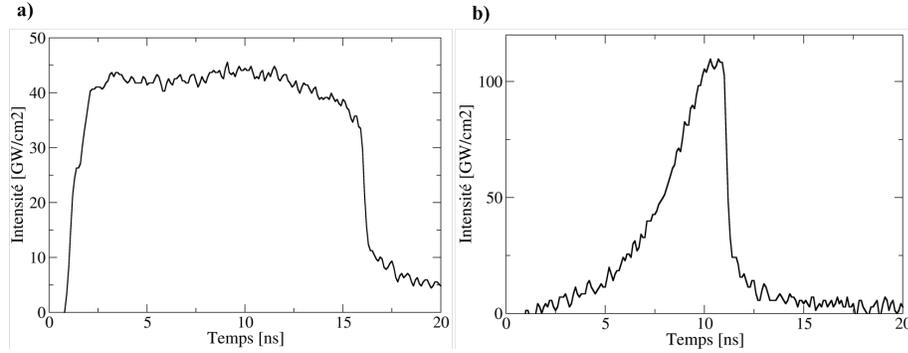


FIGURE 2.1 – Exemples de profils temporels utilisés pour générer un choc (a) et une rampe de compression (b).

possible de définir l'intensité laser I_L ($W.cm^{-2}$) :

$$I_L = \frac{E_L}{\tau_L S_L} \quad (2.1)$$

Dans notre cas, les intensités considérées sont de l'ordre de 10^{11} et $10^{15} W.cm^{-2}$, impliquant ainsi la transformation d'une partie de notre cible solide en plasma durant chaque tir. Lors de l'irradiation laser, l'énergie laser est absorbée par les électrons libres proches de la surface dans l'épaisseur de peau. Par collision ($I_L < 10^{14} W.cm^{-2}$), les électrons communiquent l'énergie absorbée aux ions constituant la cible. Pour les impulsions courtes, les deux étapes sont découplées tandis que pour les impulsions plus longues les deux étapes ne sont pas distinguées.

Dans le cas de durées d'impulsion inférieures à la picoseconde, les ions ne sont pas chauffés directement pendant la durée d'irradiation laser. L'absorption de l'énergie s'opère via les électrons de la bande de valence dans l'épaisseur de peau, d'une centaine de nanomètre maximum. L'énergie des électrons excités est ensuite transmise progressivement aux atomes par vibration. La pression induite dans la cible résulte alors d'un gradient de température dans l'épaisseur de peau.

Pour des durées de dépôt supérieures à la picoseconde, on peut considérer que l'énergie est directement transmise aux ions et le chauffage de la cible aura lieu pendant l'irradiation. La matière ainsi chauffée s'ionisera alors très rapidement sur des temps de l'ordre de la picoseconde, formant ainsi un plasma. Ce dernier interagira directement avec le rayonnement incident. S'en suit un processus d'interaction pouvant être décomposé en trois étapes (cf. Fig. 2.2) : (1) absorption de l'énergie laser dans le plasma, (2) transport de l'énergie par diffusion thermique et (3) ablation de la matière à l'origine de la formation d'une compression.

Absorption de l'énergie laser dans le plasma

Elle s'opère dans les zones de densité électronique faibles du plasma, c'est-à-dire les zones les plus éloignées de la surface. L'énergie y est déposée jusqu'à un certain seuil de densité, appelée densité critique, délimitant ainsi la zone d'absorption de la zone

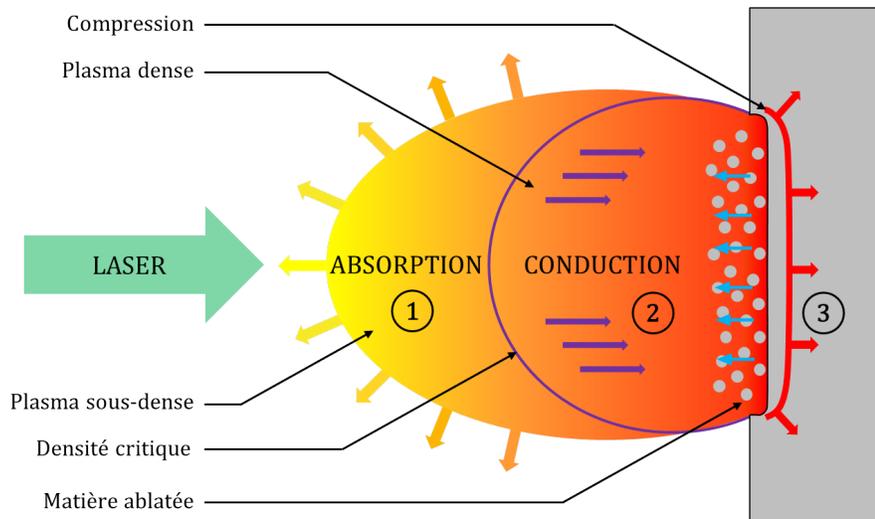


FIGURE 2.2 – Schématisation du processus de formation d'une onde de choc suite à une irradiation laser de quelques nanosecondes.

de conduction. Compte tenu des niveaux d'intensité laser considérés, l'agitation thermique des électrons est prédominante face à leur énergie d'oscillation. L'absorption de l'énergie se fait par collision et non par résonance [49, 90].

Transport de l'énergie laser

Selon les éléments constituant la matière, deux processus de transport de l'énergie dans la zone de conduction peuvent être envisagés. Pour un matériau de Z inférieur à 10, le transport s'effectue par conduction thermique. Dans notre cas, l'aluminium, le cuivre et le zirconium possèdent respectivement des numéros atomiques Z de 13, 29 et 40. Selon l'intensité incidente, le transport opérant peut être alors lié à des processus radiatifs, i.e. l'émission et l'absorption de rayons X, que nous ne développerons volontairement pas ici.

Ablation

Finalement une fois l'énergie acheminée, la matière est chauffée puis ablatée. S'en suit une détente violente de la partie ablatée qui produira par réaction une poussée en surface de la cible encore à l'état solide. La caractérisation de cette poussée a été, et fait encore l'objet, de recherches intensives présentées dans la partie suivante.

2.1.3 Caractérisation du chargement induit par laser

Il a été montré que la pression générée était directement liée à l'intensité laser incidente. Dans le cas des impulsions longues, plusieurs modèles empiriques ont été développés afin de pouvoir estimer la pression d'ablation en fonction de l'intensité. Parmi les plus connus, nous pouvons citer les modèles de Phipps et al [124], Fabbro et al [44] ou encore Grun [54]. Dans ce qui suit, nous passons en revue les apports et limites de ces différents modèles avant de les comparer à des simulations d'interaction laser-

matière.

2.1.3.1 Relations empiriques d'interaction laser-matière

Lors de l'ablation de la matière, la pression maximale résultante peut être déterminée par la relation de Phipps et al [124]. Ce modèle prend en compte la durée et la longueur d'onde de l'impulsion laser, la nature de la cible et suppose que le dépôt d'énergie se fait par absorption collisionnelle, restreignant ainsi sa validité au régime nanoseconde. Le modèle de Phipps s'exprime tel que :

$$P_{abl} = 0,622 \cdot 10^{11} \frac{A^{7/16}}{Z^{9/16}} \frac{I_A^{3/4}}{(\lambda\sqrt{\tau})^{1/4}} \quad (2.2)$$

Où P_{abl} est en Pa , A et Z sont respectivement la masse atomique et le numéro atomique, λ la longueur d'onde en μm , τ la durée d'impulsion en ns et I_A l'intensité absorbée en $TW.cm^{-2}$. L'intensité laser absorbée est calculée à partir de l'intensité incidente moyennant un coefficient dépendant du matériau. Pour l'aluminium, ce coefficient est estimé à 0,479 pour le modèle de Phipps.

À ce modèle se sont ajoutés des relations empiriques directement issues d'expériences de choc laser. En particulier, les relations (2.3) et (2.4) décrivent l'évolution de la pression d'ablation maximale sur aluminium après irradiation par un laser de longueur d'onde de 1053 nm . Ces lois proposées par Fabbro et al [44] et Grun et al [54] se résument respectivement à :

$$P_{abl} = 12 \left(\frac{I_L}{10^2} \right)^{2/3} \quad (2.3)$$

$$P_{abl} = 1440 \left(\frac{I_L}{10^5} \right)^{0,8} \quad (2.4)$$

Où P_{abl} est la pression d'ablation exprimée en GPa et I_L l'intensité laser incidente en $GW.cm^{-2}$. Le diagramme pression-intensité de la figure 2.3 illustre l'évolution de ces deux lois. Il en ressort de fortes divergences quant à l'estimation de la pression d'ablation. A celles-ci s'ajoute le fait que nos matériaux ne sont que très faiblement alliés en aluminium. Si l'on suppose que la pression d'ablation résultant de l'interaction laser-matière est fortement dépendante de la nature de la matière irradiée, alors il est raisonnable d'émettre des doutes quant à la validité de ces relations pour nos tirs. Certes, elles nous fourniront un premier ordre de grandeur des niveaux de chargement. Toutefois, il est peu probable qu'elles soient représentatives de nos conditions expérimentales. Pour traiter cette question plus en profondeur, des simulations d'interaction laser-matière ont été réalisées en collaboration avec le CEA.

L'inconvénient majeur de ces différents modèles est qu'ils ne permettent d'exprimer que la valeur maximale de pression d'ablation et non son profil temporel. Cela s'avère donc problématique lorsque l'on souhaite caractériser le chargement mécanique réel induit par l'expansion du plasma. Pour cette raison, la simulation numérique

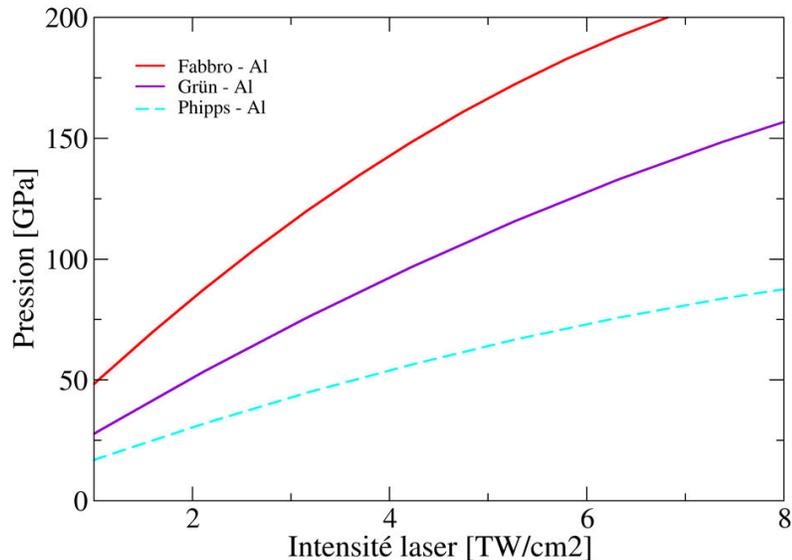


FIGURE 2.3 – Différentes méthodes de calcul de la pression de chargement sur aluminium. Les résultats issus des relations de Fabbro et al (courbe rouge), Grun et al (courbe violette) et Phipps et al (courbe bleue clair discontinu) ont été calculés pour une impulsion nanosecondes et une longueur d'onde de 1053 nm.

de l'interaction laser-matière est primordiale.

2.1.3.2 Simulations d'interaction laser-matière

Le code ESTHER¹ développé par le CEA [25] est un code lagrangien monodimensionnel offrant la possibilité d'étudier l'interaction rayonnement-matière. Il permet d'étudier diverses transformations de la matière, depuis l'état solide jusqu'à l'état de plasma, soumis à des impulsions de rayonnements intenses de natures différentes. Ce code comprend entre autre l'évolution hydrodynamique des matériaux fluides ou solides, le dépôt d'énergie, la conduction thermique ou encore le transfert radiatif.

Grâce aux travaux de Bertrand Aubert, une loi Pression-Intensité spécifique à la campagne LULI2000 a été mise au point à partir des tirs de calibration sur aluminium et des simulations associées. Cette loi a été obtenue grâce à une méthodologie numérique complexe permettant de déterminer la pression de choc connaissant l'énergie, le profil temporel et la tache focale d'un tir². La première étape consiste à extraire un profil radial de l'image de tache focale. En intégrant ce profil de manière axisymétrique, il est possible de remonter à la valeur de la fluence au centre de la tache. Cette fluence et le profil temporel de l'impulsion sont ensuite utilisés comme conditions d'entrée d'une simulation ESTHER permettant de calculer le profil temporel 1D de pression d'abla-

1. EffetS Thermo-mécaniques et Hydrodynamiques Engendrés

2. Le sujet de thèse de B. Aubert porte notamment sur la caractérisation du chargement induit par laser. La méthodologie numérique à laquelle nous faisons référence fait partie de ses travaux de thèse. Pour plus de détails sur celle-ci, merci de vous référer à son manuscrit.

tion. Ce profil est alors extrapolé radialement en utilisant le profil radial de l'énergie ainsi que la loi de Grun et al (2.4). Le champ de pression ainsi obtenu est utilisé comme donnée d'entrée d'une simulation 2D axisymétrique de propagation d'onde de choc dans un code d'hydrodynamique. En confrontant les résultats de ces simulations aux mesures expérimentales, il s'est avéré que les simulations surestimaient les vitesses de surface libre. B. Aubert a donc ajusté la valeur de l'énergie d'entrée de sorte à obtenir les bons niveaux de vitesse de surface libre. Il en a déduit que les énergies arrivant sur cible pour CN et CS correspondaient respectivement à 90 % et 80 % des énergies mesurées par le calorimètre. Connaissant alors la pression d'ablation de chaque tir, il ne reste plus qu'à déterminer précisément l'intensité au centre de la tache. Pour cela, B. Aubert a tenu compte de l'énergie présente dans les ailes de tache et dans la queue de l'impulsion temporelle qui ne contribue pas à cette intensité. Il en a alors déduit des lois Pression-Intensité pour CN et CS qu'il a approché par une loi de puissance, de la forme :

$$P_{abl} = 0,063(I_L)^{2/3} \quad (2.5)$$

Avec I_L l'intensité laser incidente en $GW.cm^{-2}$. Cette loi ayant été obtenue sur aluminium, il a fallu la transposer aux verres métalliques. En comparant sa loi aux relations de Fabbro et Grun précédentes, des écarts sont une nouvelle fois observable (cf. Fig. 2.4). Certes, la forme développée par Grun se situe quasiment à la limite supérieure du domaine d'incertitude. Malgré tout, l'évolution décrite par la loi Aubert se trouve bien en dessous des valeurs prédites par les relations empiriques.

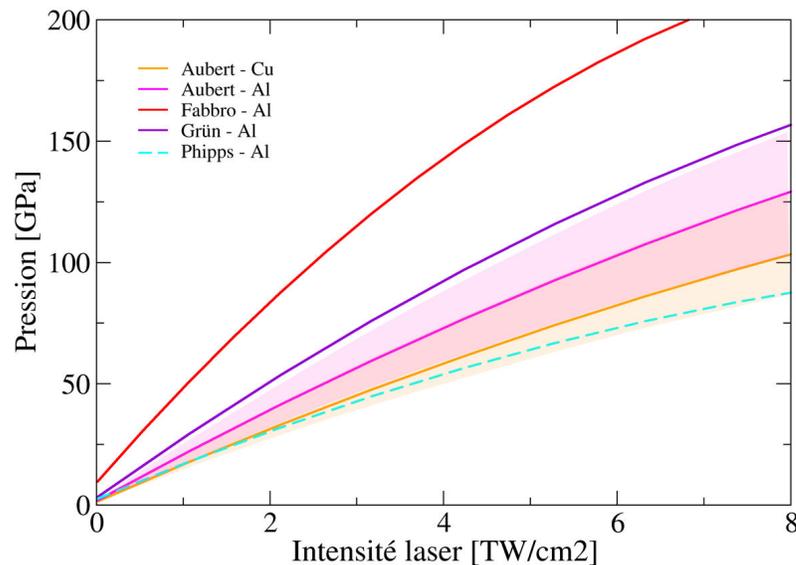


FIGURE 2.4 – Confrontation des relations sur aluminium de Fabbro et al (2.3), Grun et al 2.4 et Phipps et al (2.2) aux côtés des lois empiriques développées par B. Aubert sur aluminium (2.5) et appliquée au cuivre.

Afin de pousser un peu plus loin l'étude et tendre vers une meilleure représentativité du chargement, B. Aubert a réalisé plusieurs simulations ESTHER pour comparer

l'interaction sur aluminium à celle sur cuivre, ce dernier étant un constituant important des verres étudiés. Il en est ressorti que les pressions d'ablation sur cuivre sont systématiquement 20 % plus faibles que celles sur aluminium. Comme l'illustre la figure 2.5, le profil de pression d'ablation du cuivre issu des simulations ESTHER diffère de celui sur aluminium. En comparant les seuils maximum de pression (cf. Fig. 2.5), il apparaît que les pressions sur cuivre soient moindres que celles sur aluminium. Pour expliquer ce constat, une analogie peut être formulée à partir de la relation de Phipps (2.2), où le rapport $A^{7/16}/Z^{9/16}$ exprime le rapport du nombre de masses sur le nombre de protons de l'atome considéré. Ainsi, lorsque la masse de l'atome augmente, la pression d'ablation diminue. En suivant ce raisonnement, il serait donc à supposer que les pressions d'ablation calculées pour le zirconium soient en-deçà de celles calculées pour le cuivre et l'aluminium. Malheureusement, nous n'avons pas pu réaliser de telles simulations sur le zirconium faute de modèle disponible dans ESTHER.

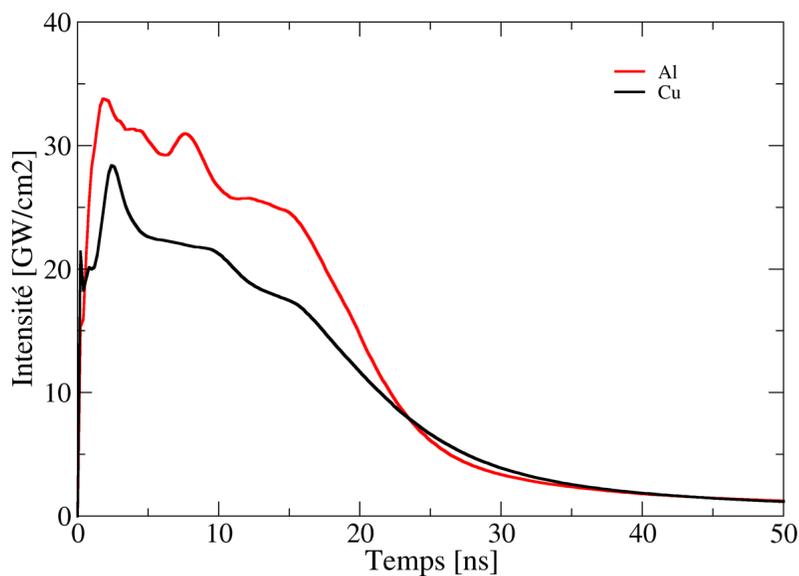


FIGURE 2.5 – Profils de chargement issus de simulations ESTHER : (a) sur aluminium, (b) sur cuivre. Le profil de chargement correspond à un tir effectué à 753 J avec une durée d'impulsion de 14,35 ns et une tache focale de diamètre 1,7 mm.

Finalement, il ressort de ce court aperçu sur l'interaction laser-matière que la caractérisation du chargement mécanique induit par laser sur des matériaux « écoles » suscite encore beaucoup d'interrogations. Les origines des divergences observées entre les différentes approches sont multiples. Elles peuvent aussi bien être dues à la méthodologie expérimentale, à la nature des matériaux ou encore à la modélisation. Pour ces raisons, la réalisation de tirs de calibration découlant sur le développement d'une loi pression-intensité adaptée à l'aluminium pour une campagne laser donnée est primordiale afin de pouvoir nous assurer de la pertinence des simulations. Nonobstant une méconnaissance des processus complets d'interaction laser-verre métallique, les pressions calculées sur aluminium et cuivre (l'écart maximum est de 10-15 GPa) nous fournissent dorénavant des ordres de grandeurs des pressions attendues. Comme

nous le verrons dans ce qui suit, ces pressions d'ablation seront comparées aux niveaux de pression déterminées par les relations de Rankine-Hugoniot. À l'aide de ces équations il sera possible de déduire, à partir d'un signal de vitesse de surface libre, la pression induite par le passage d'un choc. C'est de la confrontation de ces deux approches que résultera la caractérisation du chargement sur lequel nous appuierons notre interprétation des résultats.

2.2 Théorie des ondes de compression dynamiques

Après avoir introduit succinctement les processus physiques à l'origine de la formation d'ondes de compression à la suite d'un dépôt laser, nous nous intéresserons dans ce qui suit à la formation et la propagation des ondes de choc. Dans cette section, il sera question d'introduire les éléments théoriques essentiels à la compréhension de la démarche et à l'interprétation des résultats expérimentaux. Toutefois, le lecteur devra garder à l'esprit que cette théorie repose sur de fortes hypothèses, ignorant par exemple l'absence de changement de phase induites par le choc.

2.2.1 Propagation d'onde dans un matériau condensé

Avant d'initier notre voyage, il nous incombe de définir la notion d'onde de choc. Le cinéma de science-fiction dispose d'un large éventail de situations illustrant de près ou de loin ce phénomène. Parmi les passages les plus anthologiques, nous pourrions citer la scène du film *Matrix* illustrant le crash d'un hélicoptère sur un building, la scène de *Jurassic Park* dans la voiture autonome où les ondes de choc annonçant l'arrivée du terrible T-Rex sont illustrées par des ondulations dans un verre d'eau posé sur le tableau de bord, ou encore la spectaculaire destruction d'Alderaan par l'étoile de la mort dans *Star Wars* épisode IV – Un nouvel Espoir³. Il n'est pas toujours évident de décrire et se représenter l'enchaînement des événements se produisant lors du passage d'une onde de choc dans des milieux condensés.

Pour définir le plus simplement un choc, considérons un cas unidirectionnel de propagation d'une onde acoustique dans un milieu assimilable à un fluide compressible parfait – approche hydrodynamique. Le passage de l'onde entraîne un saut élémentaire des paramètres cinématique (vitesse matérielle) et thermodynamique (pression, température, masse volumique, énergie interne,...etc) longitudinalement au sens de sa propagation.

Pour résoudre la propagation de cette onde et relier ces perturbations entre elles, il est possible d'utiliser les équations de conservation en formulation eulérienne pour un écoulement uni-directionnel :

3. Si à l'époque on m'avait annoncé que je me lancerai corps et âme dans une thèse visant à la compréhension du phénomène aboutissant à la destruction d'une planète suite à une irradiation laser, j'aurais signé de suite!

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial \rho u}{\partial x} = 0 \quad (2.6)$$

$$\frac{\partial \rho u}{\partial t} + \frac{\partial (P + \rho u^2)}{\partial x} = 0 \quad (2.7)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \left[\rho \left(\frac{1}{2} u^2 + e \right) \right] + \frac{\partial}{\partial x} \left[\rho u \left(\frac{1}{2} u^2 + e \right) + Pu \right] = 0 \quad (2.8)$$

Où la gravité est négligée, ρ est la masse volumique (avec $\rho = 1/\nu$, ν étant le volume spécifique), u la vitesse matérielle, P la pression et e l'énergie interne massique. Dans le cas de la propagation de perturbations de faibles amplitudes, nous serons alors en présence d'ondes acoustiques, considérées comme des phénomènes isentropiques. La célérité relative de cette onde acoustique est alors donnée par la relation :

$$c_s = \sqrt{\left(\frac{\partial P}{\partial \rho} \right)_s} \quad (2.9)$$

De cette expression, il apparaît clairement que la variation de pression induite par une première onde influence la célérité du son du milieu derrière cette première et par conséquent la célérité relative d'une seconde onde qui poursuivrait la première. Ainsi, dans le cas d'un train d'ondes successives de compression (cf. Fig. 2.6 (a) – ligne rouge), chaque onde émise précédemment induira une variation de pression sur l'onde suivante. En pratique, la majorité des matériaux voient leur célérité du son croître avec la pression. De ce fait, chacune des ondes successives rattrapera l'onde précédente (cf. Fig. 2.6 (b) ligne rouge), un train d'ondes aura tendance à se raidir. Il se formera alors un seul et unique front d'onde : une onde de choc est née ! Au contraire, si nous considérons dorénavant un train d'ondes dites de « détentes » (cf. Fig. 2.6 (a) – ligne bleue), c'est-à-dire d'ondes induisant une diminution de pression, ce train aura propension à s'étaler au cours de sa propagation dans le temps et dans l'espace (cf Fig. 2.6 (b) ligne bleue).

Finalement, l'onde de choc est une discontinuité des paramètres thermodynamiques se propageant à la célérité D_{01} . La célérité relative du choc est comprise entre la célérité du son du matériau dans son état de départ et la célérité du son du milieu sous choc : $c(P_0) < D_{01} < c(P_1)$. Alors que les équations de conservation d'Euler nous rendaient accessible la résolution d'ondes continues isentropiques, il en est tout autre pour les discontinuités. En effet, les ondes de chocs peuvent toujours être considérées comme adiabatiques mais non-réversibles, i.e. non isentropiques. Le passage d'ondes de choc peut s'accompagner de phénomènes dissipatifs – changement de phase, viscosité – entraînant ainsi une augmentation d'entropie. De par leur construction et définition, les équations de la mécanique des milieux continus ne permettent pas de prédire l'évolution de la matière suite à la propagation d'une discontinuité. De ce fait, d'autres relations ont dû être développées afin de rendre compte des perturbations engendrées par les ondes de choc. Les bilans de quantité de masse, de quantité de mouvement et d'énergie sont établis entre un état initial avant choc (0) et un état final (1) après choc. Pour relier ces états entre eux, on effectue des bilans de conservation de la masse, de

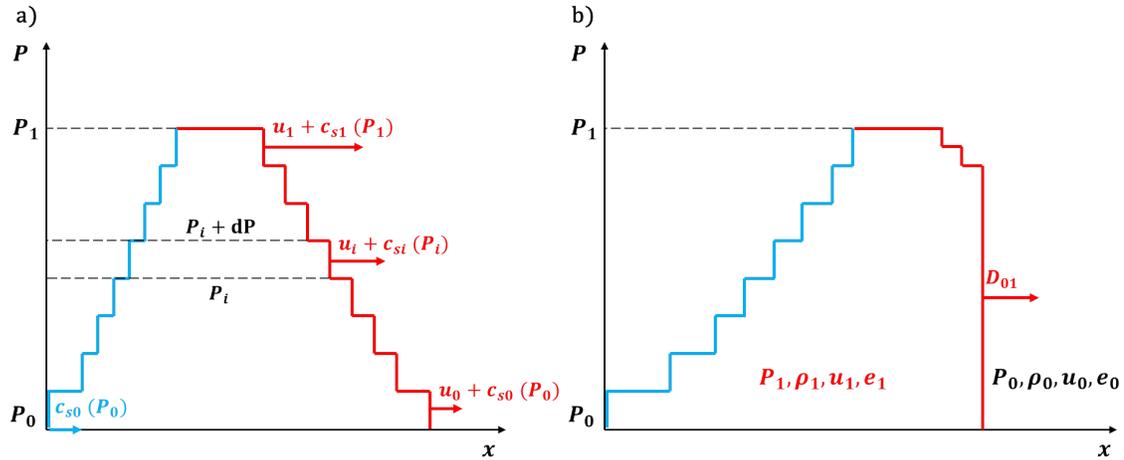


FIGURE 2.6 – (a) Succession d'ondes de compression (en rouge) suivie d'un train d'ondes de détente (en bleu); (b) Formation d'une onde de choc à partir du train d'onde de compression (en rouge) et étalement du faisceau d'ondes de détente (en bleu).

la quantité de mouvement et de l'énergie. Ainsi, les relations de Rankine-Hugoniot expriment ces bilans sous la forme d'équations de conservation définies dans le cas de la propagation unidirectionnelle d'une onde de choc dans un fluide parfait – approche hydrodynamique – telles que :

$$\frac{1}{v_0} (D_{01} - u_0) = \frac{1}{v_1} (D_{01} - u_1) \quad (2.10)$$

$$P_1 - P_0 = \frac{1}{v_0} (D_{01} - u_0) (u_1 - u_0) \quad (2.11)$$

$$e_1 - e_0 = \frac{1}{2} (P_1 + P_0) (v_0 - v_1) \quad (2.12)$$

Où D_{01} est la célérité absolue du choc liée au passage de l'état (0) à (1). Dans la situation actuelle, le système comporte trois équations à cinq inconnues. Afin de déterminer les états thermodynamiques accessibles sous choc, l'équation d'état du matériau peut être utilisée. Rarement sous forme analytique mais plutôt sous forme tabulée (SESAME, BLF), celles-ci permettent de relier les paramètres thermodynamiques (P, v, e). Toutefois, elles sont difficiles à obtenir et complexes à manipuler sur le papier. Il est alors usuel d'utiliser une relation semi-empirique simple, dite relation d'état, liant la célérité des ondes de choc D à la vitesse matérielle u :

$$D_{01} = c_0 + s u_1 \quad (2.13)$$

Avec c_0 et s qui sont des paramètres empiriques permettant de restituer les données expérimentales. Maintenant que le système se retrouve fermé, récapitulons la démarche à suivre pour résoudre la propagation des ondes de choc.

Pour obtenir la courbe d'Hugoniot, correspondant aux états accessibles sous choc depuis un état initial (P_0, v_0, u_0 et e_0), il suffit de mesurer pour différents chocs, la célérité du choc D et la vitesse matérielle u derrière ce choc. Il devient alors possible de

construire la relation $D(u)$ que l'on utilise dans les équations de conservation pour déterminer P , v et e après le passage du choc. En projetant le système dans le plan $P-v$, la courbe d'Hugoniot – ou adiabatique dynamique – peut être établie. Elle rassemble tous les états accessibles sous choc à partir d'un état initial. De façon similaire, la polaire de choc du matériau considéré peut être obtenue en projetant cette fois-ci le système dans le plan $P-u$. Ces deux courbes sont respectivement illustrées en figures 2.7 (a) et 2.7 (b) aux côtés de la droite de Rayleigh et de l'isentrope. A noter que la droite de Rayleigh joint l'état initial à l'état final – correspondant au trajet thermodynamique du choc –, tandis que l'isentrope représente le chemin thermodynamique suivi par la matière en détente. Nous reviendrons sur ce dernier point dans une section dédiée.

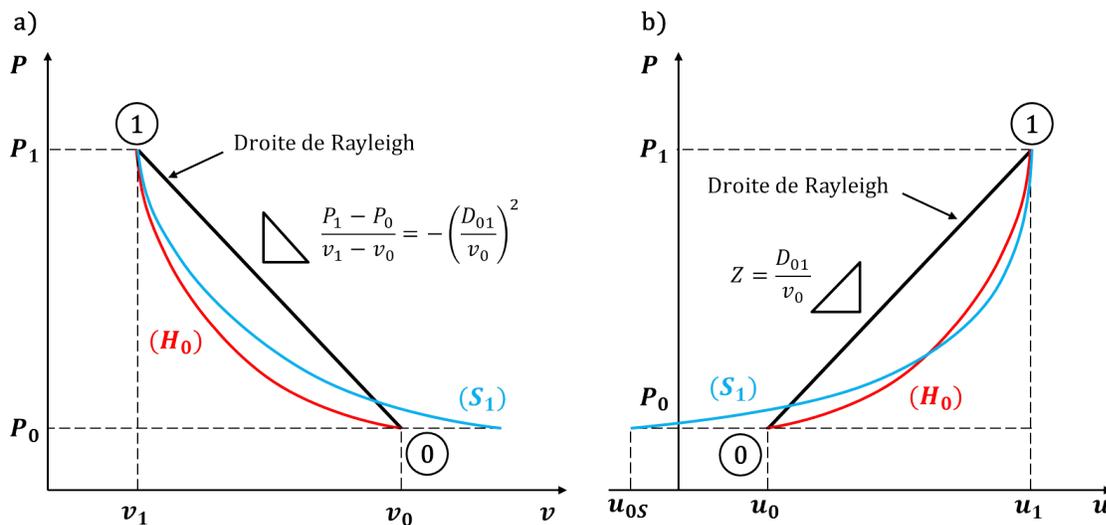


FIGURE 2.7 – Evolution de la pression en fonction du volume spécifique (a) et de la vitesse matérielle (b). La courbe de l'Hugoniot est tracée en rouge dans les deux plans, l'isentrope en bleue et la droite de Rayleigh en noire.

2.2.2 De la détente à l'amortissement hydrodynamique

Du fait du temps de maintien de la pression limité par la détente du plasma, la surface irradiée sous choc est progressivement détendue. Une détente du matériau depuis la surface irradiée se traduit par la formation d'un faisceau de détente qui se lance à la poursuite du choc. Ce faisceau est délimité par une première onde – appelée tête de détente – qui se propage dans le milieu choqué à la célérité du son correspondant à cet état et se termine par une dernière onde – queue de détente – se propageant à la célérité du milieu détendu. Par essence, une onde de choc est une discontinuité en pression dans le temps et l'espace. Or les conditions expérimentales rendent difficile un maintien constant de cet état de pression. Ainsi, l'onde de choc comprimant la matière sera nécessairement suivie par un faisceau d'ondes de détentes qui relaxeront à leur tour le milieu. Ce faisceau est composé d'un ensemble de plusieurs ondes de détentes (cf. Fig. 2.8), dont les vitesses sont comprises entre la vitesse de l'onde de tête et celle de queue.

La tête de détente se propage dans le milieu sous choc avec une célérité supérieure à celle de l'onde de choc tandis que la vitesse de queue de détente reste inférieure à celle du choc (1). La tête de faisceau rattrape le front de choc. Le temps de maintien diminue alors progressivement jusqu'à former un chargement de profil triangulaire – onde de Taylor (2). La détente incidente diminue alors l'amplitude du choc qui poursuit sa propagation (3). Ce phénomène dit d'« amortissement hydrodynamique » est primordial puisqu'il joue un rôle conséquent dans le dimensionnement d'expériences.

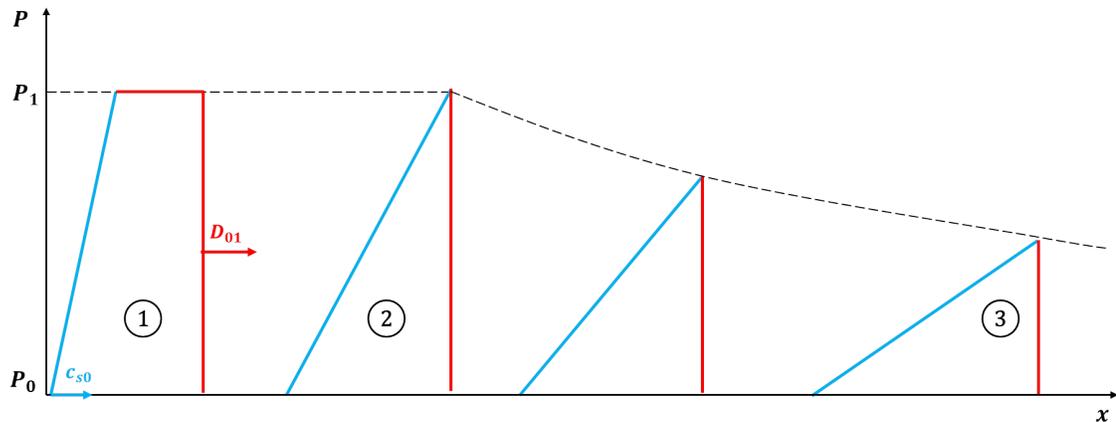


FIGURE 2.8 – Évolution de la pression au cours de la propagation de l'onde dans un milieu dense, illustrant le phénomène d'amortissement hydrodynamique, i.e. la décroissance de la pression suite au rattrapage du front de choc par le faisceau d'ondes de détentes.

En ce qui concerne le chemin des états suivis par la matière durant la détente, il se révèle progressif – contrairement au choc – de sorte que l'on suppose généralement la transformation comme isentropique. Le choc et la détente sont donc deux transformations thermodynamiques différentes mais sont considérées comme adiabatiques. Après le passage d'un choc et d'une détente, l'état final ne correspond donc pas à l'état initial.

2.2.3 Transmission et réflexion

À l'arrivée d'une onde de choc à une interface entre deux milieux, on assiste à des phénomènes de transmission et de réflexion d'onde. Pour se représenter les processus mis en jeu, considérons deux milieux A et B en contact l'un de l'autre (cf. Fig. 2.9 (a)). Initialement au repos, les deux milieux disposent des mêmes conditions de pression et de vitesse matérielle telles que :

$$P_A = P_B = 0 ; u_A = u_B = 0 \quad (2.14)$$

Lorsque l'onde de choc traverse l'interface, l'équilibre mécanique doit être conservé – pressions et vitesses matérielles identiques de part et d'autre de l'interface –. Pour assurer l'égalité de ces conditions, une partie de l'onde de choc se voit transmise dans le milieu B tandis que l'autre partie se retrouve réfléchi dans le milieu A. L'ensemble des ondes vérifie le système d'équations suivant :

$$\begin{aligned} P_t &= P_r \\ u_t &= u_r \end{aligned} \quad (2.15)$$

Où

$$\begin{aligned} P_i &= Z_A u_i \\ P_r &= P_i + Z_A (u_i - u_r) \\ P_t &= Z_B u_t \end{aligned} \quad (2.16)$$

Avec les indices i , r et t faisant respectivement référence à l'onde incidente, réfléchie et transmise. En fonction de l'impédance $Z = \rho D$ du milieu, l'onde réfléchie sera soit une onde de choc, soit un faisceau d'ondes de détente. Pour le déterminer, il est possible d'exprimer les pressions des ondes transmise et réfléchie par le système suivant :

$$P_t = \frac{2Z_B}{Z_A + Z_B} P_i \quad (2.17)$$

Dans le cas où $Z_B > Z_A$, l'onde de choc incidente est réfléchie sous la forme d'un choc $P_r > P_i$. En effet, d'après la figure 2.9 (b), la polaire de choc du milieu B est plus raide que celle du milieu A, ce qui entraîne une variation positive de pression au passage de l'onde réfléchie dans le milieu A.

Dans le cas contraire où $Z_B < Z_A$, l'onde de choc incidente est réfléchie en un faisceau d'ondes de détente (cf. Fig. 2.9 (c)). Cette fois-ci la polaire de choc du milieu B se trouve en dessous de celle du milieu A. Ainsi, la variation de pression au passage de l'onde réfléchie dans le milieu A est négative, ce qui permet au milieu A de se relaxer.

2.2.4 Approximation de l'adiabatique unique

Dans le cas de chocs modérés – c'est-à-dire dont les niveaux de pression n'excèdent pas plusieurs $Mbar$ – l'augmentation d'entropie dans le front de choc peut être conséquente. Néanmoins, une approximation dite « approximation isentropique » consiste à supposer que l'influence du gain en entropie dans le plan $P - u$ est négligeable. Par conséquent, il est possible de supposer que pour des pressions modérées, Hugoniot et isentrope sont confondues.

Une autre approximation envisageable dans le plan $P-u$ se réfère à l'« approximation de la polaire unique ». Comme illustré en figure 2.10, deux chocs successifs (0) \rightarrow (1) et (1) \rightarrow (2) ont été représentés à la fois dans des diagrammes $P - v$ et $P - u$. En comparant les états d'arrivée dans le cas de deux chocs successifs (2) à pression P_2 , et le cas d'un choc simple (2') pour une même pression P_2 , il apparaît qu'une différence notable s'opère au niveau des volumes v_2 et v'_2 finaux dans le plan $P - v$. Toutefois, cette différence est beaucoup moins marquée dans le plan $P - u$ où les vitesses matérielles finales sont très proches l'une de l'autre. Ainsi, il est possible de supposer que dans le

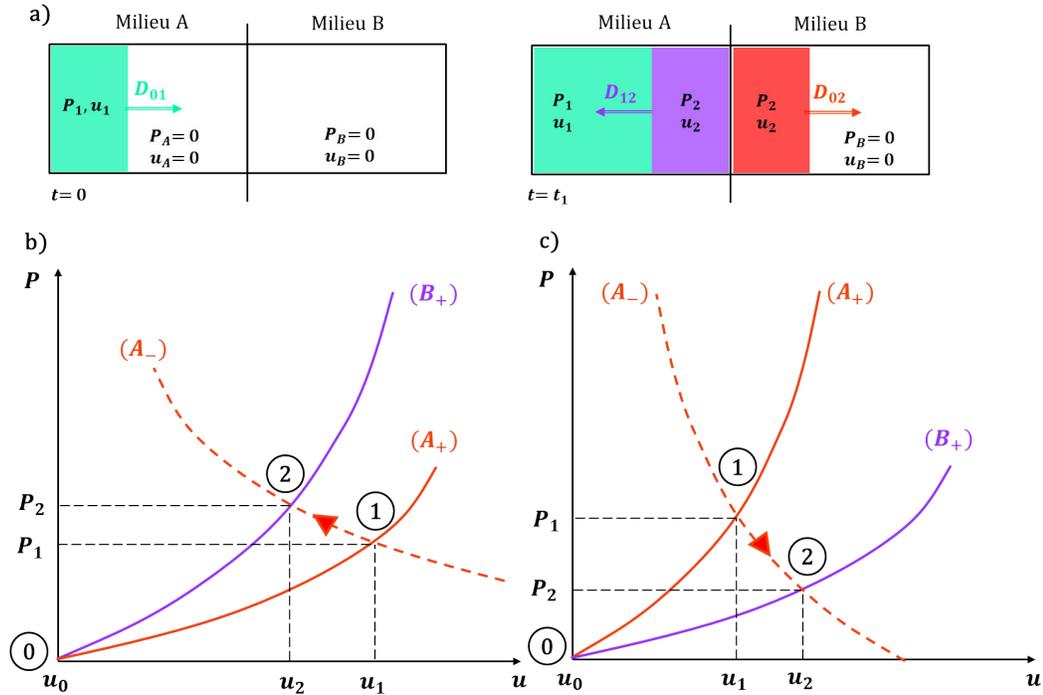


FIGURE 2.9 – (a) Principe de la transmission et de la réflexion d'une onde de choc entre deux milieux A et B. (b) Diagramme $P - u$ illustrant la réflexion sous forme d'un choc et la transmission d'un choc. (c) Diagramme $P - u$ illustrant la réflexion sous forme d'un faisceau de détente et la transmission d'un choc.

plan $P - u$ il existe une seule et unique polaire de choc qui décrit l'ensemble des niveaux accessibles par la matière sous choc. La démonstration de cette différence se fait en comparant les variations d'énergie interne pour ces deux configurations en utilisant la conservation de l'énergie d'après Rankine-Hugoniot :

$$e_1 - e_0 = \frac{1}{2} (p_1 + p_0) (v_0 - v_1) \quad (2.18)$$

$$e_2 - e_1 = \frac{1}{2} (p_2 + p_1) (v_1 - v_2) \quad (2.19)$$

$$(2.18) + (2.19) \Leftrightarrow e_2 - e_0 = \frac{1}{2} [(p_2 + p_1) (v_1 - v_2) + (p_1 + p_0) (v_0 - v_1)] \neq \frac{1}{2} (p_2 + p_0) (v_0 - v_2) \quad (2.20)$$

À l'aide de ces deux approximations, nous allons pouvoir admettre que dans le cas de « chocs modérés » les différents états sous chocs pourront être représentés par une polaire de choc dite « adiabatique unique » dans le plan $P - u$. En outre, les états sous choc et en détente seront retranscrits par cette unique polaire, toujours dans le plan $P - u$.

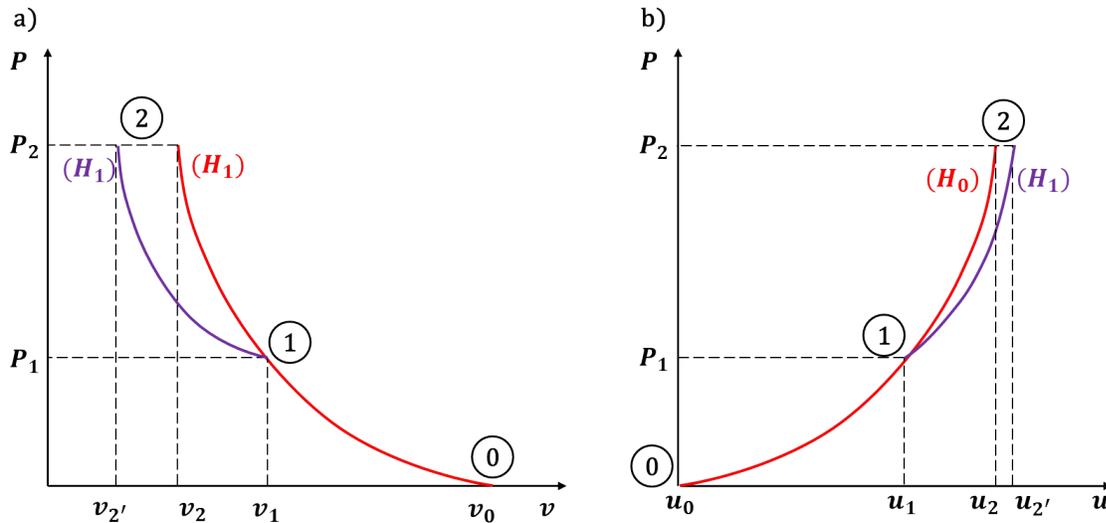


FIGURE 2.10 – Illustration de deux chocs successifs à la fois dans le plan pression-volume spécifique (a) et pression-vitesse matérielle (b). Dans ce dernier plan, les deux courbes de l'Hugoniot sont très proches l'une de l'autre, permettant ainsi de supposer qu'elles sont confondues dans ce plan.

2.2.5 Vitesse de surface libre : approximation et mesure

Expérimentalement, la surface opposée à la surface irradiée est souvent libre – i.e. en contact avec l'air ou le vide. Du fait de l'approximation de l'adiabatique unique, lorsque l'onde de choc a traversé la cible et se réfléchit sur cette interface, la surface accélère. La vitesse dite de surface libre est environ égale à deux fois celle de la vitesse matérielle induite dans l'échantillon par le choc lors de sa traversée, soit $u_{SL} = 2u$. Cette relation est construite à partir du diagramme P - u en y reportant la courbe d'Hugoniot et l'isentrope de détente qui sont symétriques avec l'approximation de l'adiabatique unique. L'air ou le vide ne confine pas la pression dans l'échantillon, la surface arrière est constamment à pression nulle si bien que l'onde de choc qui débouche se réfléchit en détente afin que la pression reste à 0 (cf. Fig. 2.11).

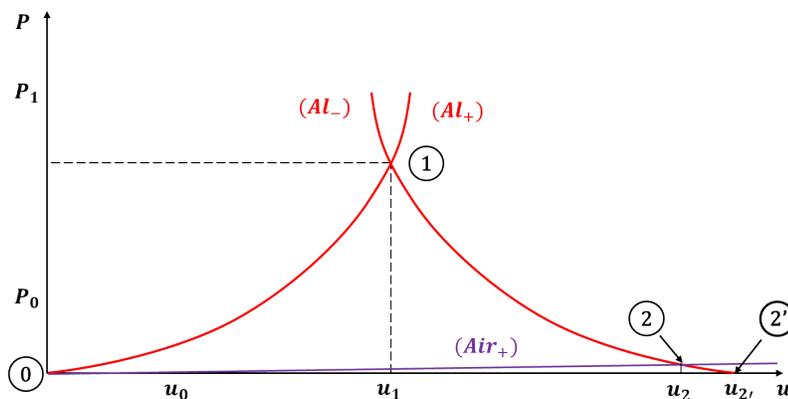


FIGURE 2.11 – Schématisation de l'approximation de la vitesse de surface libre appliqué à de l'aluminium. La courbe de l'Hugoniot (AL_+) et l'isentrope de détente (AL_-) sont tracées en rouge. L'Hugoniot de l'air (Air_+) est tracée en violet.

Prenons le cas simple d'une cible d'aluminium soumise à une onde de choc, en contact avec l'air à sa surface arrière. Après choc, l'aluminium se retrouve dans un premier temps dans l'état (1). Lorsque l'onde de choc atteint l'interface aluminium-air, une partie de l'onde est transmise dans l'air et une autre partie est réfléchiée dans l'aluminium sous la forme d'un faisceau de détente (cf. section 2.2.3). En se détendant, l'énergie interne est transférée en énergie cinétique, occasionnant une chute de pression et une augmentation de la vitesse matérielle de la surface. Le chemin thermodynamique suivi par l'aluminium est alors celui de l'isentrope de détente (Al_-). Par continuité à l'interface aluminium-air, le nouvel état (2) créé correspond à l'intersection de la polaire directe de l'air (Air_+) et de l'isentrope de détente de l'aluminium (Al_-). L'air étant très peu dense, sa polaire est très proche de l'axe des abscisses. L'état (2) se trouve par conséquent très proche de l'axe des abscisses. Les vitesses (u_2) et (u'_2), correspondant respectivement à la vitesse matérielle à l'interface aluminium-air et à la vitesse à l'intersection de l'isentrope (Al_-) et l'axe des abscisses, sont très proches l'une de l'autre. Par conséquent, en considérant l'approximation de l'adiabatique unique, la vitesse matérielle (u_2) à l'interface aluminium-air est environ égale à deux fois (u_1).

Voilà donc une deuxième hypothèse essentielle pour déduire de nos mesures la vitesse matérielle effective u . A noter que dans le cas d'ondes de compressions isentropiques, cette hypothèse mais aussi celle de l'adiabatique unique restent d'autant plus valides.

2.3 Équation d'état des verres métalliques

Précédemment, nous avons évoqué le système d'équation permettant de résoudre la propagation des ondes de choc. En particulier, aux équations de conservation de Rankine-Hugoniot vient s'ajouter une relation d'état semi-empirique, nous permettant ainsi de remonter aux états de la matière accessibles sous choc. Cependant, la présence d'ondes de détente en aval du front de choc engendre d'autres transformations de la matière bien différentes de celles induites par les ondes de choc. En conséquence, une description la plus complète possible du comportement hydrodynamique d'un matériau doit pouvoir tenir compte des autres transformations thermodynamiques s'opérant après le passage du front de choc. De ce fait, des équations d'états sont généralement établies de manière à regrouper tous les états thermodynamiques de la matière et en particuliers ceux atteints sous choc.

Concernant les équations d'état sur les verres métalliques disponibles dans la littérature, elles sont au nombre de trois à notre connaissance. Parmi celles-ci, une première étude de Togo et al [147] fut entreprise pour obtenir la courbe d'Hugoniot d'un $Zr_{55}Cu_{30}Ni_5Al_{10}$ à partir d'impacts de plaques ayant permis d'atteindre une plage de pressions inférieures 45 GPa. La même année, Martin et al [105] réalisèrent une étude similaire par impact de plaques sur un $Zr_{57}Nb_5Cu_{15,4}Ni_{12,6}Al_{10}$, mais pour des pressions allant jusqu'à 126 GPa. Malgré des compositions initiales diverses, les polaires de choc et équations d'états rapportées furent très similaires (cf. Fig. 2.12 et 2.13).

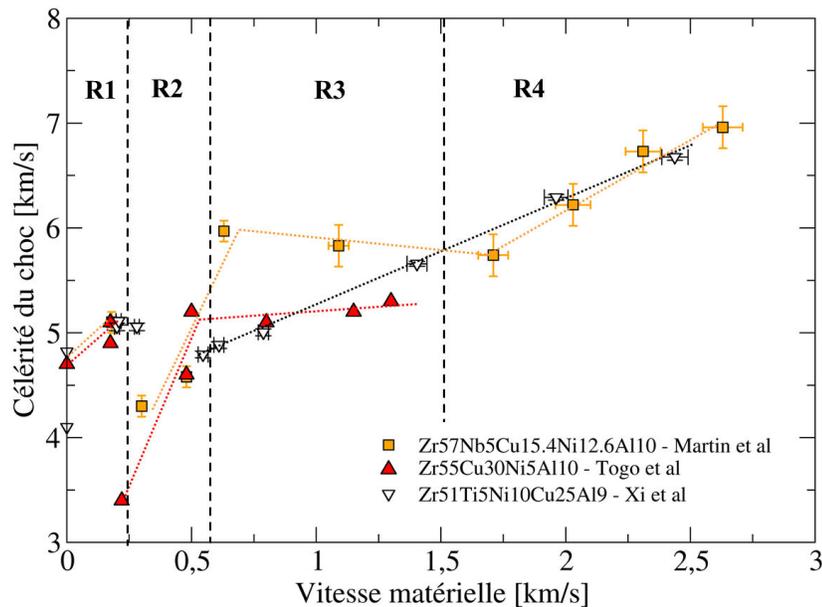


FIGURE 2.12 – Évolution de la célérité de l’onde de choc en fonction de la vitesse matérielle dans plusieurs nuances de verres métalliques. Ces trois études ont été menées par impact de plaque sur du $Zr_{57}Nb_5Cu_{15,4}Ni_{12,6}Al_{10}$ par Martin et al [105], sur du $Zr_{55}Cu_{30}Ni_5Al_{10}$ par Togo et al [147] et sur du $Zr_{51}Ti_5Ni_{10}Cu_{25}Al_9$ par Xi et al [159]. Les allures des différents régimes de vitesses sont suggérées par des lignes discontinues d’après les interprétations de leurs auteurs.

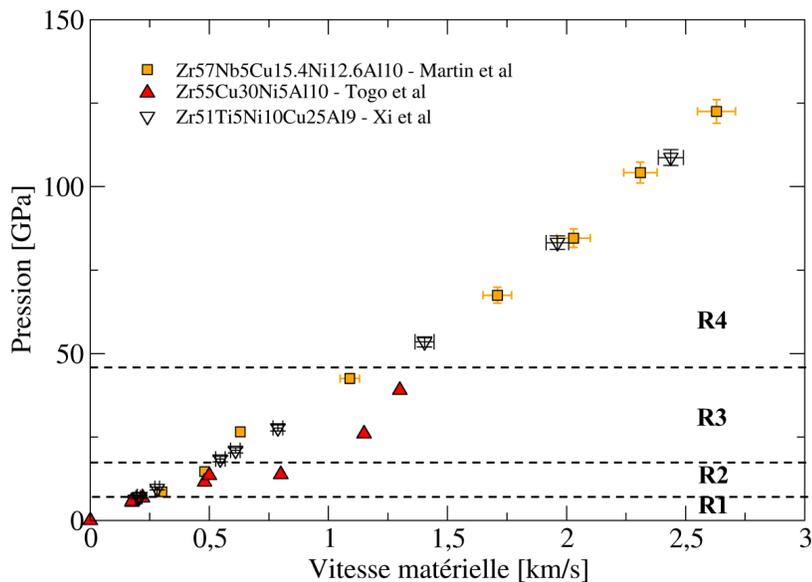


FIGURE 2.13 – Évolution de la pression de choc en fonction de la vitesse matérielle dans plusieurs nuances de verres métalliques. Ces trois études ont été menées par impact de plaque sur du $Zr_{57}Nb_5Cu_{15,4}Ni_{12,6}Al_{10}$ par Martin et al [105], sur du $Zr_{55}Cu_{30}Ni_5Al_{10}$ par Togo et al [147] et sur du $Zr_{51}Ti_5Ni_{10}Cu_{25}Al_9$ par Xi et al [159].

Dans les deux situations, plusieurs régimes de célérités de choc en fonction de la vitesse induite (ou pression) par le choc furent observés :

- Un premier lié au comportement élastique s'étalant jusqu'à 5-7 *GPa*.
- Un deuxième lié à l'apparition de la plasticité comprise entre 7-14 *GPa* pour l'étude de Togo et al [147] et 7-26 *GPa* pour l'étude de Martin et al [105].
- Un troisième prenant la forme d'un plateau, attribué par ces deux auteurs à un changement de phase.
- Un dernier, mise en évidence par Martin et al au-delà de 70 *GPa*.

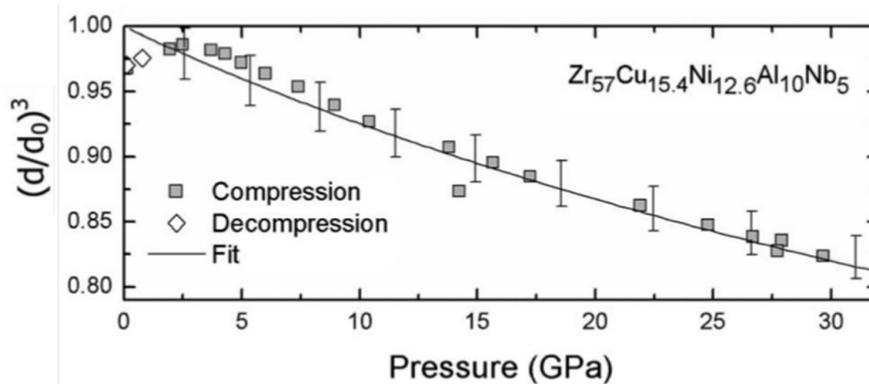


FIGURE 2.14 – Evolution de la masse volumique en fonction de la pression dans un $Zr_{57}Nb_5Cu_{15,4}Ni_{12,6}Al_{10}$ sous enclume diamant [138].

Plus tard, une série de tirs par impacts de plaques furent entrepris par Xi et al [159] afin d'obtenir la courbe d'Hugoniot d'un $Zr_{51}Ti_5Ni_{10}Cu_{25}Al_9$ pour des pressions comprises entre 18 et 110 *GPa*. De manière similaire à Togo et al [147] et Martin et al [105], ils observèrent la transition élasto-plastique de leur composition. Cependant, leur étude ne permit pas de révéler l'existence de quelconques régimes. Pour expliquer la présence de ces différents régimes, Togo et al [147] et Martin et al [105] ont supposé que les ruptures de pentes correspondaient à la signature de changements de phases s'opérant sous compression dynamique. Pour discriminer le rôle de la température sur les changements de phases observés en compression dynamique, Stemhorn et al [138, 139] ont réalisé des essais de compression par enclume diamant jusqu'à 30 *GPa* (cf. Fig. 2.14). Leurs résultats n'ont révélé la présence d'aucune transition de phase, les laissant supposer que les transitions observées en dynamique correspondaient à une séparation de phase à haute température.

Depuis, aucune étude n'a été publiée sur le sujet, laissant la question en suspens. En complément des divergences de résultats entre les études de Togo et al, Martin et al et Xi et al, nous sommes en droit de nous interroger sur l'interprétation de leurs résultats. En effet, en analysant les conditions expérimentales des études de Togo et al [147] et Martin et al [105], il est apparu que les polaires de choc de leurs matériaux avaient été construites à l'aide des approximations de l'adiabatique unique et de la vitesse de

surface libre ($u_{SL} \approx 2u$).

Seulement, nous avons vu que ces deux approximations reposaient sur deux principales hypothèses :

- La polaire de choc est unique dans le plan $P-u$, c'est-à-dire que deux chocs successifs sont équivalents à un seul tant que les pressions finales sont identiques.
- Les courbes d'Hugoniot et de l'isentrope peuvent être confondues dans le plan $P-u$, i.e. la variation d'entropie engendrée par le choc est faible.

Dans le cas de figure où la courbe d'Hugoniot ne peut plus être confondue avec l'isentrope de compression – à cause des variations d'entropie liées aux transitions de phase – les vitesses matérielles engendrées par le passage du choc ne peuvent plus être déduites des vitesses de surface libre, empêchant la construction des polaires de choc. Toutefois, ayant affaire à un matériau amorphe des plus atypiques – pas de saut d'entropie lors de la solidification – (cf. chapitre 1 - section 1.3), il n'est cependant pas impossible que le gain en entropie lors du passage du choc soit faible compte tenu du désordre préexistant au repos. Un tel cas de figure nous faciliterait grandement l'analyse des résultats. Quoi qu'il en soit, il faudra se montrer alerte dans ce qui suit sur l'éventuelle présence de changements de régimes, tout en restant précautionneux quant à notre interprétation sur leur nature.

Le nombre de travaux sur le sujet faisant très clairement défaut, l'obtention d'une courbe d'Hugoniot fiable en vue d'établir une équation d'état de nos matériaux représentera donc un point crucial de l'étude de son comportement en dynamique. Bien que les lasers ne se révèlent pas être les meilleurs outils à disposition pour obtenir la courbe d'Hugoniot, nous verrons dans le chapitre 4 que des alternatives existent afin de s'assurer de la validité de nos résultats et ainsi obtenir une première équation d'état.

2.4 Synthèse

Ce chapitre a été l'occasion d'introduire les notions nécessaires à l'étude du comportement sous choc des matériaux. En partant de l'interaction laser-matière, nous avons pu aborder les processus de formation d'ondes de compression résultant du phénomène d'ablation. Nous avons vu que la modification de l'impulsion laser permettait de générer plusieurs profils de chargement menant soit à la formation d'ondes de compression isentropiques ou bien d'ondes de choc. Afin de pouvoir caractériser le chargement mécanique issu de ce phénomène, nous avons passé en revue les approches empiriques et numériques existantes. De plus, nous avons souligné l'importance de la nature de la matière irradiée dans l'approche visant à estimer le chargement mécanique résultant de l'interaction laser-matière.

Par la suite, nous avons introduit les éléments théoriques liés à la propagation des ondes de choc. En se basant sur les équations de conservation de Rankine-Hugoniot, nous avons défini les différents outils et formulé plusieurs hypothèses à l'aide desquels

nous étudierons phénoménologiquement la propagation des ondes de choc dans nos verres métalliques.

À ce propos, nous avons profité de ce chapitre pour faire état des études existantes dans la littérature sur le sujet. En examinant les travaux menés sur les équations d'état de plusieurs verres métalliques base Zr , nous avons pu constater l'existence de plusieurs régimes dont les origines restent encore inconnues. Ces résultats sont très importants dans le sens où ils ont conditionné le développement de nos campagnes expérimentales. Par ailleurs, ils nous serviront de base de référence pour l'analyse de nos résultats expérimentaux lors du chapitre consacré à l'équation d'état de nos verres ternaires.

Chapitre 3

Moyens expérimentaux

« Elle est où la Paulette ? Elle est bien cachée ?! »

| Équipe Dynamique-Choc-Impact (2016), *Campagne ELFIE*.

Sommaire

3.1 Diagnostics in-situ	59
3.1.1 Vélométrie	60
3.1.2 Visualisation Transverse	70
3.2 Campagnes laser	71
3.2.1 Équation d'état - LULI2000	72
3.2.2 Endommagement - ELFIE & LULI2000	75
3.3 Caractérisation post-mortem	77
3.3.1 Microscope optique	77
3.3.2 Microscope électronique à balayage	77
3.3.3 Profilomètre optique	78
3.4 Mise en forme des échantillons	78
3.5 Synthèse	80

Dans ce troisième chapitre, nous détaillons les moyens expérimentaux et les méthodologies mises en oeuvre lors de nos travaux. Tout d'abord, nous présenterons les instruments de mesure in-situ employés au cours de nos campagnes laser, en insistant sur leurs apports et lacunes quant à la compréhension des phénomènes étudiés. Par la suite, nous nous intéresserons aux campagnes laser effectuées, en précisant leurs objectifs. Une fois les configurations expérimentales précisées, nous enchaînerons avec les outils d'analyse post-mortem auxquels nous avons eu recours pour caractériser les échantillons récupérés après essais. Enfin, nous exposerons les méthodologies de mise en forme des cibles développées pour chaque type de campagne d'essais.

3.1 Diagnostics in-situ

Dans cette section sont résumés les dispositifs in-situ de mesure de vitesse et de visualisation employés au cours de nos expériences. Une attention particulière est portée

sur les systèmes de vélocimétrie, aussi bien sur le principe théorique de mesure que sur le type d'information en découlant.

3.1.1 Vélocimétrie

Pour accéder à l'historique des événements survenus lors du passage d'une onde de choc, des méthodes expérimentales de mesures par jauges de déformation ou vélocimétrie sont généralement employées. Depuis maintenant plusieurs décennies, les diagnostics de vélocimétrie se sont imposés comme une référence en la matière, en raison de leur caractère non intrusif et de leur grande précision. Ces diagnostics sont basés sur la mesure de mise en vitesse de la surface arrière d'un matériau cible, renseignant de manière directe ou indirecte sur la vitesse matérielle induite par le choc et sur les propriétés du matériau sous choc.

Dans le premier cas, une mesure directe est rendue possible par l'utilisation d'un matériau « fenêtre » – i.e. un matériau transparent à la longueur d'onde du laser de mesure – disposé sur la face arrière de la cible. Cependant, cette technique suppose que cible et fenêtre possèdent une impédance identique afin de s'affranchir au mieux des perturbations liées à la transmission et réflexion des ondes. Par ailleurs, d'éventuels changements d'indice de réfraction de la fenêtre peuvent se produire sous pression. Ne disposant pas de suffisamment d'éléments concernant notre matériau d'étude, nous avons préféré délaisser l'approche directe en faveur de l'approche indirecte.

Dans le deuxième cas, la mesure s'effectue directement sur la surface arrière de la cible en contact direct avec l'air ou le vide. La vitesse matérielle induite par le choc alors déduite à partir de l'approximation de la vitesse de surface libre (cf. chapitre 2, section 2.2.5). Son seul inconvénient réside donc dans la validité des postulats obligatoires à formuler pour utiliser cette approximation.

Dans cette partie nous tacherons de présenter trois techniques de mesures. Les deux premières sont basées sur le principe de l'effet Doppler, faisant d'eux des interféromètres en fréquence. Le troisième quant à lui est un interféromètre de déplacement.

3.1.1.1 VISAR

Le VISAR [10] – ou Velocity Interferometer System for Any Reflector – est un interféromètre optique en fréquence utilisant un interféromètre de Michelson. La mesure consiste à éclairer la surface libre de l'échantillon à l'aide d'un laser monomode de longueur d'onde λ_0 focalisé en un point et de collecter la lumière réfléchi. La vitesse de la surface induite par l'arrivée du choc puis de la détente entraîne par effet Doppler une modification de la longueur d'onde du signal réfléchi. La lumière réfléchi est envoyée dans un interféromètre de Michelson afin de créer des interférences. À partir de celles-ci, une fréquence renseignant sur la vitesse de surface pourra en être extraite.

Au cours de nos essais, un VISAR a été intégré aux dispositifs expérimentaux par voies aériennes. Le résumé du trajet optique de la mesure est présenté en figure 3.1. Le laser sonde utilisé dispose d'une longueur d'onde initiale $\lambda_0 = 532 \text{ nm}$ (Verdi, 5W). Le faisceau sonde est acheminé à la cible par le biais d'un miroir percé avant d'être focalisé en un point via une lentille achromatique. La lumière réfléchie par la cible est ensuite collectée et injectée dans l'interféromètre de Michelson, où le faisceau se retrouve divisé en deux puis redistribué dans deux trajets optiques différents. Une branche sert de référence, tandis que l'autre permet d'introduire un retard τ_{e0} par le biais d'étalons en verre de longueur L_e et d'indice optique de réfraction n_{e0} (type BK7) et d'entretoise du type :

$$\tau_{e0} = \frac{2L_e}{c} \left(n_{e0} - \frac{1}{n_{e0}} \right) \quad (3.1)$$

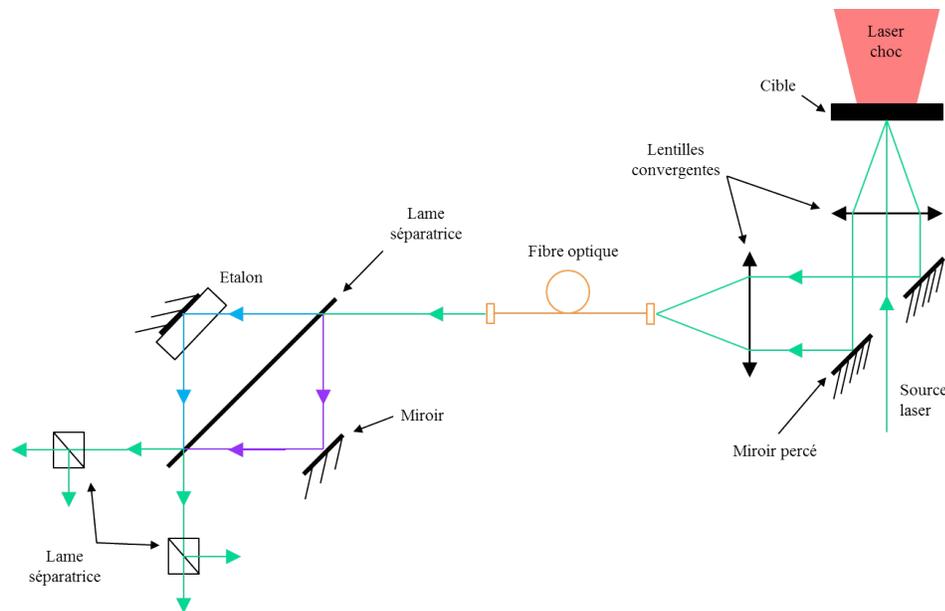


FIGURE 3.1 – Schéma optique simplifié d'une mesure VISAR.

De la superposition des signaux issus des branches de référence et de retard sont produites des interférences. Le signal est ensuite séparé une nouvelle fois afin d'être acheminés vers divers capteurs (photomultiplicateurs, caméra Streak). Dans le cas où la surface de l'échantillon est immobile, la figure d'interférence est constante dans le temps et le déphasage $\phi(t_0)$ peut s'exprimer tel que :

$$\phi(t_0) = \frac{2\pi}{\lambda_0} \left(n_{e0} - \frac{1}{n_{e0}} \right) 2L_e \quad (3.2)$$

Dans ce cas de figure, si la lame séparatrice combinant les signaux issus des deux bras est inclinée d'un angle α , alors la distance interfrange est égale à $\lambda / \sin(\alpha)$. À partir de l'instant où la surface réfléchissante est mise en mouvement à la vitesse $u_{SL}(t)$ – i.e. la face arrière de la cible – alors l'effet Doppler entraînera un double décalage de la longueur d'onde pouvant s'exprimer par :

$$\lambda(t) = \lambda_0 \left(1 - \frac{2u_{SL}(t)}{c} \right) \quad (3.3)$$

Où c est la célérité de la lumière. Dans nos expériences, la mise en vitesse de la face arrière ne dépasse pas les 5 km.s^{-1} , si bien que les changements de longueur d'onde induite par l'effet Doppler sont relativement faibles ($\approx 10^{-2}$). Par conséquent, l'indice de réfraction $n(\lambda)$ de l'étalon varie linéairement avec la longueur d'onde tel que :

$$n(t) = n_{e0} + \left(\frac{dn}{d\lambda} \right) (\lambda(t) - \lambda_0) \quad (3.4)$$

Ainsi, il est possible d'exprimer le retard $\tau(t)$ en fonction de la variation de l'indice de réfraction suivant :

$$\tau(t) = \frac{2L_e}{c} \left(n(t) - \frac{1}{n_{e0}} \right) \quad (3.5)$$

Alors, en remplaçant $n(t)$ dans l'équation (3.5) par son expression donnée par la relation (3.4), on aboutit à :

$$\tau(t) = \frac{2L_e}{c} \left[n_{e0} - \frac{1}{n_{e0}} + \left(\frac{dn}{d\lambda} \right) (\lambda(t) - \lambda_0) \right] \quad (3.6)$$

Combiner cette dernière forme à l'expression (3.3) mène à [9] :

$$\tau(t) = \tau_{e0} \left(1 + \frac{2u_{SL}(t)}{c} \delta \right) \quad (3.7)$$

Avec

$$\delta = \frac{n_{e0}}{n_{e0} - 1} \left(\frac{dn}{d\lambda} \right) \quad (3.8)$$

Où δ est la correction due à la dispersion dans l'étalon. Les étalons utilisés durant nos campagnes expérimentales possèdent une correction de 0,0315 à 532 nm. Finalement, le déphasage induit par la mise en vitesse se résume à :

$$\phi(t) = \frac{2\pi}{\lambda_0} u_{SL}(t) 2\tau_{e0} (1 + \delta) + \phi(t_0) \quad (3.9)$$

Le calcul de mise en vitesse de la surface arrière aboutit à la différence de phase entre l'état au repos et celui sous choc :

$$u_{SL}(t) = \frac{\phi(t) - \phi(t_0)}{2\pi} \frac{\lambda_0}{2\tau_{e0}} \frac{1}{1 + \delta} \quad (3.10)$$

Il est alors courant de définir le facteur de frange $K = \frac{\lambda_0}{2\tau_{e0}}$. Ce dernier est intrinsèque à chaque étalon et permettra de renseigner sur les plages de vitesses mesurables. À partir de cette dernière expression, il est possible de définir la sensibilité S du VISAR exprimée en $\text{km.s}^{-1} \cdot \text{frange}^{-1}$ définie par :

$$S = \frac{\lambda_0}{2\tau_{e0}} \frac{1}{1 + \delta} \quad (3.11)$$

En pratique, le déplacement des franges est d'autant plus rapide que ce facteur est faible. Malheureusement, il existe une ambiguïté liée à la mesure de la phase de la figure d'interférence à 2π près (cf. équation (3.9)). Pour lever cette ambiguïté, il est courant d'avoir recours à deux systèmes VISAR de sensibilités et de facteurs de franges différents. L'un est équipé d'un étalon d'une faible sensibilité et d'un facteur de frange bas, tandis que le deuxième dispose d'une sensibilité plus élevée et d'un facteur de frange plus élevé. Par cette technique, il est possible de lever l'incertitude liée au nombre de sauts de franges sur l'étalon de faible facteur de franges et ainsi déterminer la mesure de vitesse avec une faible incertitude. D'ailleurs celle-ci peut être évaluée par la relation suivante :

$$u_{SL}(t) = S \frac{F}{i} \quad (3.12)$$

Avec i l'interfrange exprimé en pixel et F le décalage des franges aussi exprimé en pixel. Ce dernier est défini par :

$$F \simeq \frac{2\tau_{e0} u_{SL}(t)(1 + \delta)}{\lambda_0} \quad (3.13)$$

En considérant la sensibilité dépendante du VISAR et connue, nous pouvons différencier l'équation (3.13) et ainsi connaître l'incertitude de mesure en vitesse :

$$\Delta u_{SL} = S \frac{i\Delta F - F\Delta i}{i^2} \Rightarrow \frac{\Delta u_{SL}}{u_{SL}} = \left| \frac{\Delta F}{F} \right| + \left| \frac{\Delta i}{i} \right| \quad (3.14)$$

L'erreur systématique sur le décalage des franges est d'environ 0,05 franges [18], tout en restant dépendant de la qualité de la frange. Pour estimer entièrement la résolution temporelle du système, il est nécessaire de prendre en compte la résolution temporelle des capteurs dans notre calcul. Dans le cas de photomultiplicateurs, la résolution temporelle est limitée par leur temps de réponse mais aussi de la bande passante de l'oscilloscope employé. La résolution temporelle généralement atteinte dans cette configuration est de l'ordre de la nanoseconde. En revanche, l'utilisation de caméra streak permet d'atteindre des résolutions temporelles de l'ordre de la dizaine de picosecondes. En fonction de la durée du chargement, il incombe donc de sélectionner le type de capteur le plus adapté. Nous détaillerons dans la prochaine section la configuration retenue pour nos essais et les incertitudes associées.

À ces incertitudes temporelles viennent s'ajouter des limitations relatives à la réflectivité de la cible. Avant chaque tir, une image d'interférence de référence est acquise afin de pouvoir analyser l'image obtenue lors du débouché du choc. De ce fait, l'état de surface de la cible doit pouvoir permettre la réflexion d'une quantité suffisante du signal incident. Bien que la surface de mesure ne représente que quelques micromètres carrés, la rugosité de la cible pourra dans certains cas rendre la mesure inexploitable. De plus, sous certaines conditions de chargement des processus de fragmentation peuvent avoir lieu, ayant pour conséquence l'envol de matière depuis la surface libre de la cible. Dans ce type de situation, le signal VISAR se retrouve alors vite égaré, limitant dans le

même temps l'analyse des phénomènes d'endommagement.

En dépit de ces limitations, le VISAR reste le diagnostic le plus adapté à l'étude des phénomènes opérant lors du débouché de l'onde de choc. Doté d'une très grande précision temporelle, il se révèle indispensable pour l'obtention d'équation d'état, mettre en évidence des changements de comportement – e.g. la transition élasto-plastique –, étudier le comportement en détente ou encore estimer des limites à la rupture dynamique.

3.1.1.2 VISAR ligne

Afin de construire la polaire de choc d'un matériau, il est nécessaire de construire une relation d'état complétant les équations de conservation (cf. chapitre 2). Outre la vitesse matérielle, les équations de Rankine-Hugoniot sont définies en fonction de la pression, de l'énergie interne, de la masse volumique et de la célérité du choc. Les variations de pression, d'énergie interne et de masse volumique ne pouvant être estimées pour l'heure in-situ, leur obtention requiert donc la connaissance de la célérité du choc et de la vitesse matérielle induite par le passage du front de choc.

Pour déterminer la célérité du choc D , il suffit de mesurer le temps de parcours de cette onde entre deux positions. En effet, ces points de mesure sont mis en mouvement lors du passage de l'onde. Une technique courante consiste à réaliser des échantillons à marches calibrées, i.e. des échantillons munis d'encoches de dimensions contrôlées en face arrière. Comme évoqué dans la section précédente, le système VISAR dans sa version classique permet de capter des variations de vitesse en un « point ». Pour déterminer D , il suffirait alors d'employer deux systèmes VISAR pointant chacun sur une marche (cf. Fig. 3.2). Le calcul de célérité résulte alors de la différence de hauteur entre les marches et des temps de débouché de l'onde sur chacune d'elle :

$$D = \frac{x_2 - x_1}{t_2 - t_1} \quad (3.15)$$

Avec x_1, x_2 les positions en abscisse des deux marches, et t_1, t_2 les temps de débouché de l'onde sur chacune des marches.

L'inconvénient de cette technique basée sur l'utilisation de deux VISAR est d'ordre dimensionnel. Au regard du diamètre de tache focale ($\approx 10^2 \mu m$ à $10^0 mm$), de l'amortissement hydrodynamique et des effets 2D, ces deux points de mesures doivent être relativement proches l'un de l'autre ($\approx 10^2 \mu m$) pour éviter toute altération par ces phénomènes. Seulement, le VISAR requiert le positionnement d'une lentille achromatique normalement à la face arrière pour pouvoir récupérer le rayonnement réfléchi par la cible. En positionner deux, l'une à côté de l'autre, avec un angle le plus faible possible par rapport à la direction de propagation, dans des conditions d'encombrement fixées par les dimensions de l'installation, se révèle des plus complexes. De ce fait, nous avons opté pour une variante du VISAR classique : le VISAR ligne. À l'aide de ce dispositif, l'éclairage de la cible ne se fait donc plus sur une surface réduite assimi-

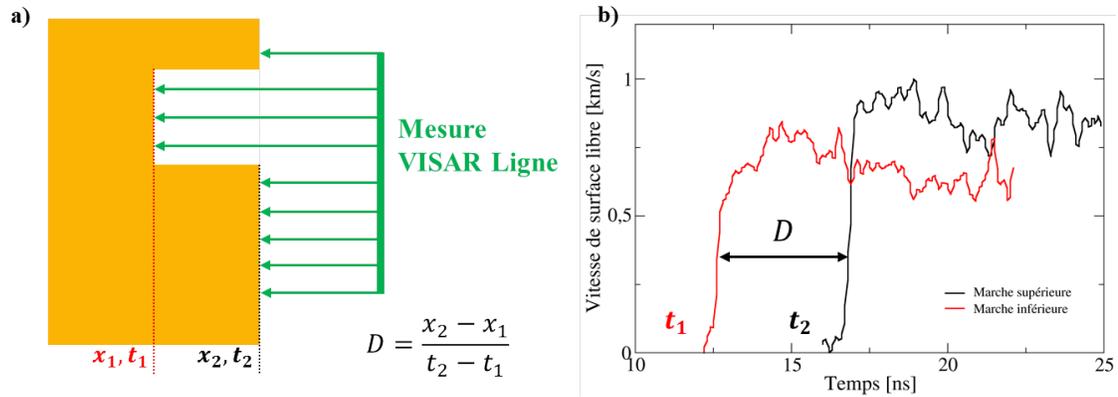


FIGURE 3.2 – (a) Illustration d'une mesure VISAR sur un échantillon à marches permettant de calculer la célérité de l'onde de choc D ; (b) Signaux de vitesse de surfaces libres obtenus à deux instants et positions différents.

lable à un point, mais au contraire sur une ligne, ce qui le rend particulièrement adapté aux échantillons à marches. Durant nos expérimentations, nous avons été amenés à utiliser le VISAR ligne développé au sein du LULI. Nous détaillons ci-après le fonctionnement et les caractéristiques de la version utilisée.

La source de lumière d'entrée est procurée par un laser YAG Quanta-Ray émettant deux rayonnements pulsés d'environ 10 ns à deux longueurs d'ondes de 1064 nm et 532 nm . Ces faisceaux sondes sont ensuite injectés par fibres optiques dans le diagnostic VISAR en aval de la cible. Ceux-ci, après avoir subi un premier grossissement en sortie de fibre sont réfléchis par plusieurs miroirs, avant de traverser un nouvel achromat disposé derrière la cible. Par ce système de lentilles, il est possible de modifier la longueur de la zone de mesure de vitesse, qui est estimée en disposant dans l'enceinte une mire graduée à la place de la cible. Ainsi, une modification du grossissement entraîne une variation de la résolution spatiale de la mesure.

Une fois la lumière réfléchie (cf. Fig. 3.3), le signal de retour parcourt le chemin inverse jusqu'à la lame séparatrice LS2, où le faisceau est envoyé dans deux branches optiques menant à deux interféromètres dédiés à chacune des longueurs d'ondes. Des étalons de référence $1,65$ et $6,23 \text{ km.s}^{-1}.\text{frange}^{-1}$, permettant d'obtenir des figures d'interférence, sont respectivement placés sur les montures de micro-contrôle des interféromètres à ω et 2ω . L'utilisation de deux interféromètres VISAR équipés de deux étalons distincts permet d'éviter toute ambiguïté quant à la détermination du déphasage. Une fois interférés, les signaux sont envoyés vers deux caméras à balayage de fente – ou caméra Streak – Hamamatsu C 7700 desquelles seront construites les images d'interférence. Ces dernières transforment une variation temporelle de lumière en un profil spatial sur détecteur. Après leur passage au travers d'une fente, les photons de lumière rentrent en collision avec une photocathode, de laquelle sont émis des électrons. Ces électrons sont ensuite accélérés dans un tube cathodique, puis déviés par un champ électrique. La variation de ce champ électrique permet d'induire une variation tem-

porielle de la déviation des électrons, qui termineront leur course sur un capteur au phosphore.

Dans notre cas, les fluctuations mesurées dans les zones de vitesse nulles nous donnent un flou de position de 2 pixels pour des franges de 20 pixels de large. Le déplacement en franges maximal quant à lui ne dépasse pas deux sauts de franges, ce qui correspond finalement à une erreur relative de 5 % sur le décalage des franges. L'erreur relative de l'interfrange est quant à elle déterminée à 4 % près. À cela viennent se coupler des erreurs liées à la précision des étalons utilisés et le déplacement du miroir. Les étalons utilisés au cours de nos expériences correspondent à un grand déplacement du miroir. De ce fait, l'erreur relative associée est inférieure à 1 %. Au final, l'incertitude relative sur la mesure de la vitesse de surface libre est estimée à 10 %.

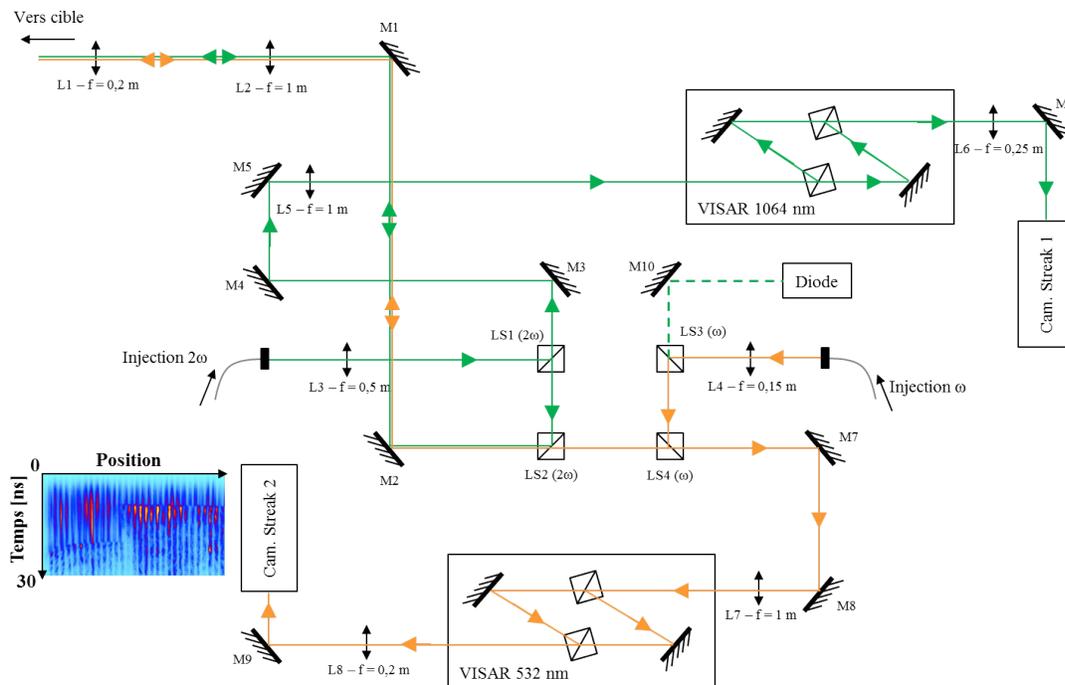


FIGURE 3.3 – Schéma optique du VISAR ligne présent sur l'installation LULI2000.

3.1.1.3 Vélométrie Hétérodyne

La Vélométrie Hétérodyne (VH) – aussi appelée Photonic Doppler Velocimetry – est une technique de mesure, non plus en vitesse comme le VISAR, mais en déplacement [109, 141, 35]. De manière similaire au VISAR, un laser continu est utilisé pour éclairer la face arrière de la cible. Seulement, le faisceau source est divisé en deux dès le départ (cf. Fig. 3.4). Une partie sert de signal de référence alors que l'autre partie est acheminée par fibre avant d'être focalisée sur la cible. Les figures d'interférences sont alors obtenues à partir de ces deux signaux et non plus uniquement du signal réfléchi,

comme dans le cas du VISAR. Il est alors courant de distinguer ces deux systèmes par les qualificatifs hétérodyne et homodyne pour différencier respectivement VH et VISAR. Cette technique d'interférométrie génère des signaux bruts, dont le post-traitement par transformée de Fourier permet de remonter à l'information en vitesse. C'est notamment la raison pour laquelle ce système est à même de fournir des informations multi-vitesse, qui ne sont pas possibles en configuration homodyne.

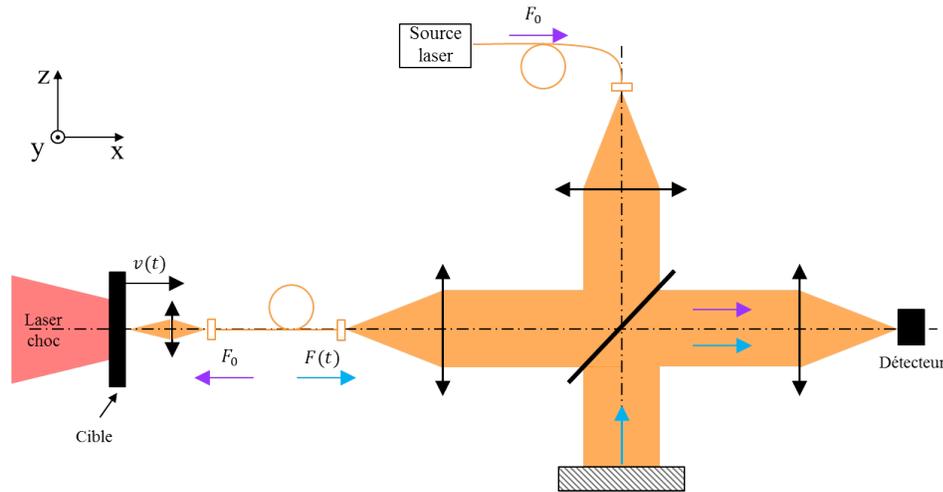


FIGURE 3.4 – Schéma optique simplifié du fonctionnement de la vélocimétrie hétérodyne.

Pour en comprendre l'origine, partons du cas d'un détecteur positionné à équidistance d'une source laser et d'une cible statique. Pour faciliter la démonstration, nous choisissons de considérer que la lumière se propage dans le vide. Le principe de la mesure est illustré en figure 3.5. À l'instant t , un faisceau laser monochromatique – que nous appellerons faisceau sonde – de longueur d'onde $\lambda_0 = 1550 \text{ nm}$ est émis en direction de la cible. La phase de ce signal s'exprime telle que :

$$\phi(t) = \omega_0 t - kX + \xi_0 \quad (3.16)$$

Avec $\omega_0 = 2\pi F_0$ et $k = \frac{2\pi}{\lambda_0}$, où ω_0 , F_0 , k , X et ξ_0 correspondant respectivement à la pulsation, la fréquence, le vecteur d'onde, la position de l'onde à l'instant t et la phase initiale.

Pour faciliter la compréhension, nous postulons que $X = 0$ et $\xi_0 = 0$. Ainsi, la phase et l'amplitude du faisceau se résument à :

$$\phi(t) = \omega_0 t \quad (3.17)$$

$$z(t) = z_0 \cos(\phi(t)) \quad (3.18)$$

Le faisceau se propageant dans le vide, le vecteur d'onde k peut aussi s'écrire en fonction de la célérité de la lumière telle que $k = \frac{\omega_0}{c}$. De ce fait, il est possible de considérer que la vitesse de l'onde au cours du temps $\frac{\Delta X}{\Delta t}$ est égale à la célérité de la lumière c . En exprimant maintenant la variation de la phase du signal se propageant vers la cible

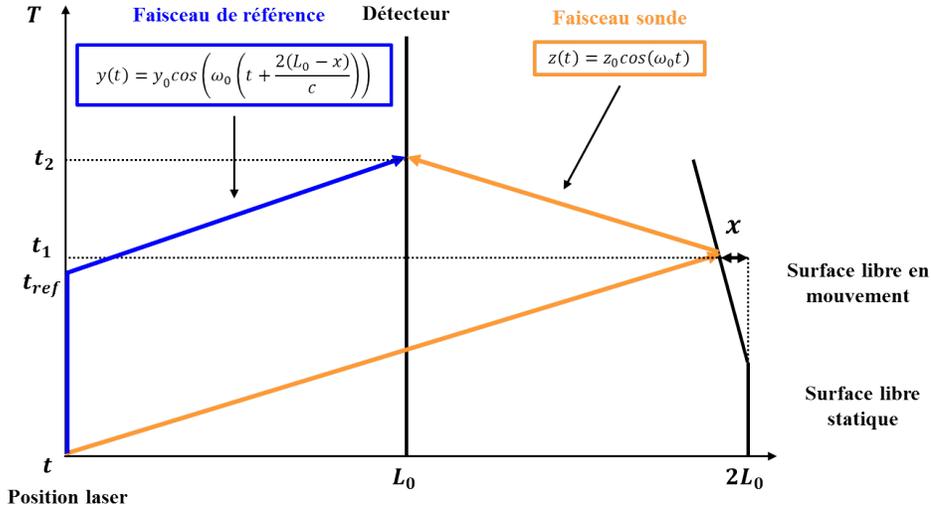


FIGURE 3.5 – Principe de la mesure VH.

puis le réflecteur, il devient possible de démontrer que celle-ci reste constante au cours du temps :

$$\phi(t + \Delta t) = \omega_0(t + \Delta t) - k(0 + \Delta X) = \omega_0(t) + \omega_0(\Delta t) - k\Delta X = \omega_0(t) = \phi(t) \quad (3.19)$$

Avant d'en finir avec le faisceau sonde, calculons son temps d'arrivée t_1 sur la cible située à une distance $2L_0$ de la source lumineuse :

$$t_1 = t + \frac{2L_0}{c} \quad (3.20)$$

Lors de la mise en mouvement de la cible, correspondant à un déplacement x , l'équation (3.20) devient :

$$t_1 = t + \frac{2L_0 - x}{c} = \frac{2L_0 - x}{c} \quad (3.21)$$

De manière homologue, le temps d'arrivée t_2 sur le détecteur se déduit par :

$$t_2 = t + \frac{2L_0 - x}{c} + \frac{L_0 - x}{c} = t + \frac{3L_0 - 2x}{c} \quad (3.22)$$

Dans le même temps, la partie du faisceau servant de référence évolue temporellement (le long de l'axe des abscisses) jusqu'à l'instant t_{ref} où il sera envoyé vers le détecteur pour rencontrer le faisceau sonde à l'instant t_2 :

$$t_{ref} = t_2 - \frac{L_0 - x}{c} = t + \frac{2(L_0 - x)}{c} \quad (3.23)$$

À cet instant t_{ref} , la phase et l'amplitude du faisceau de référence s'expriment par :

$$\Phi(t_{ref}) = \omega_0(t_{ref}) \quad (3.24)$$

$$y(t_{ref}) = y_0 \cos(\Phi(t_{ref})) \quad (3.25)$$

Pour finir, les deux faisceaux arrivant au détecteur se retrouvent sous la forme :

$$z(t_2) = z_0 \cos(0) \quad (3.26)$$

$$y(t_2) = y_0 \cos\left(\omega_0 \left(\frac{2(L_0 - x)}{c}\right)\right) \quad (3.27)$$

Dans la condition expérimentale où la longueur L_0 ne représente que quelques mètres, alors il est possible de négliger les temps de transport de la lumière et ainsi remplacer les temps t_1 et t_2 par t et pour simplifier les expressions. En ce qui concerne l'intensité lumineuse $I(t)$ reçue par le détecteur, celle-ci s'exprimera comme la somme des amplitudes des faisceaux sonde et référence au carré :

$$I(t) = (z(t) + y(t))^2 \quad (3.28)$$

L'acquisition de l'intensité n'étant pas instantanée, elle se retrouvera intégrée dans le temps sur un intervalle de temps d'une dizaine de picosecondes, relative aux déplacements des électrons du photodétecteur. La pulsation ω_0 étant deux ordres de grandeur inférieurs à la durée d'intégration du signal, il est alors possible d'aboutir à une forme de l'intensité telle que :

$$I(t) = \frac{z_0^2}{2} + \frac{y_0^2}{2} + y_0 z_0 \cos\left(\frac{4\pi(L_0 - x)}{\lambda_0}\right) \quad (3.29)$$

Le terme $\frac{4\pi L_0}{\lambda_0}$ peut se substituer comme un multiple de 2π , ce qui aboutit à :

$$I(t) = \frac{z_0^2}{2} + \frac{y_0^2}{2} + y_0 z_0 \cos\left(\frac{4\pi x}{\lambda_0}\right) \quad (3.30)$$

À partir de cette dernière forme de l'intensité, la variation de phase liée au déplacement $x(t)$ de la surface de l'échantillon engendre une variation de la fréquence. À noter que le formalisme de dépouillement ne repose pas sur cet effet. Malgré tout, il est possible de se rendre compte que l'évolution de la position de la cible entraînera une variation de l'intensité. Connaissant la relation reliant position et vitesse, l'intensité peut aussi s'exprimer en fonction de la vitesse constante u_0 que nous cherchons à obtenir telle que :

$$I(t) = \frac{z_0^2}{2} + \frac{y_0^2}{2} + y_0 z_0 \cos\left(\frac{4\pi u_0 t}{\lambda_0}\right) \quad (3.31)$$

En extrayant la fréquence de ce signal, il devient possible de déterminer la vitesse u_0 par la relation la reliant à la fréquence :

$$2\pi F_0 = \frac{4\pi u_0}{\lambda_0} \Leftrightarrow u_0 = F_0 \frac{\lambda_0}{2} \quad (3.32)$$

Si l'on considère maintenant la situation où un nombre N de particules sont éjectées de la face arrière de la cible, chacune d'entre elle renverra une partie du faisceau sonde. C'est donc de l'extraction des fréquences caractéristiques à chaque particule modulant le signal d'intensité qu'il est possible de remonter à l'information en vitesse. Actuellement, cette analyse en fréquence est effectuée par transformée de Fourier glissante. Cette dernière consiste à faire se déplacer une fenêtre temporelle le long du signal d'intensité, dans laquelle une analyse en fréquence est exécutée. Cette méthode de dépouillement requiert donc le choix de la largeur de la fenêtre temporelle mais aussi du pas de glissement de la fenêtre. Selon le signal obtenu et les informations ciblées, un compromis devra être trouvé entre résolution temporelle et résolution en vitesse. Pour cette raison, la VH se trouve bien moins adaptée à la résolution du débouché du choc que le VISAR.

À l'opposé, elle requiert bien moins de puissance dans le signal de retour que le VISAR, ce qui offre la possibilité de la positionner obliquement par rapport à la direction de propagation de l'onde. Autre conséquence directe, elle permet l'observation des phénomènes engendrant de larges déformations des cibles, le tout sur des temps bien plus longs ! Elle se révèle donc être un atout majeur à l'étude des processus d'endommagement et de fragmentation.

Dernier point sur le sujet, la plage de mesure des vitesses est limitée par la bande passante des oscilloscopes utilisés pour la mesure en fréquence. Pour cette raison des oscilloscopes à large bande passante ($\approx 12 \text{ GHz}$) et fréquence d'échantillonnage (30 GS.s^{-1}) sont généralement utilisés. Au cours de nos différentes campagnes d'essais, nous avons pu avoir accès à des baies VH du CEA. Toutefois, pour résoudre la limitation en bande passante imposée par l'oscilloscope, il est possible d'avoir recours à un deuxième laser servant de référence en remplacement du laser de mesure, afin de détecter des vitesses plus élevées. En décalant légèrement la fréquence de ce deuxième laser, de sorte que l'écart fréquentiel soit inférieur à la bande passante de l'oscilloscope, la gamme de vitesses mesurables se voit alors décalée. Par cette méthode, de larges gammes de vitesses de débris se retrouveront accessibles simultanément, levant le voile sur l'existence de processus de multi-fragmentation inaccessibles par mesure VISAR.

3.1.2 Visualisation Transverse

Pour observer plus globalement l'éjection de matière, un diagnostic d'imagerie complémentaire fut positionné transversalement à cet axe, proche de la face arrière de la cible. La visualisation transverse permet de capturer à plusieurs instants la morphologie des débris éjectés en face arrière. Son principe de fonctionnement repose sur l'éclairage par un faisceau collimaté produit par un laser continu suivant un axe transverse à l'axe normal de la face arrière (cf. Fig. 3.6). En opposition à cette source lumineuse est placée une ou plusieurs caméras. Un système optique afocal permet de faire un agrandissement de la zone étudiée. Lors de l'éjection de matière, les débris traversent le faisceau lumineux, une ombre correspondant au fragment est alors projetée sur les

capteurs des caméras.

En enregistrant à plusieurs instants l'avancée des débris, il est possible de calculer approximativement leur vitesse d'envol en faisant la différence de distance parcourue entre deux acquisitions. Cependant, les résolutions spatiales et temporelles des images sont limitées par les caractéristiques intrinsèques des caméras employées. En fonction de la vitesse des débris étudiés, un flou de bougé lié au temps d'exposition apparaîtra, ce qui occasionne des incertitudes sur la mesure de vitesse.

Ce diagnostic permet d'étudier la morphologie des fragments éjectés et de rendre compte des différents mécanismes de fragmentation pouvant se produire : écaillage, multi-écaillage, micro-jetting, micro-écaillage... etc.

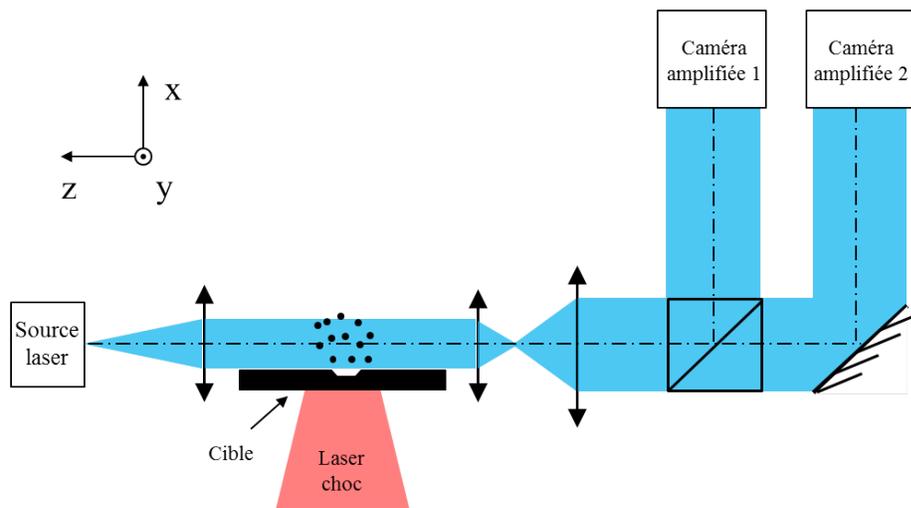


FIGURE 3.6 – Schéma expérimental de la visualisation transverse.

3.2 Campagnes laser

Nous évoquons au début du chapitre précédent que nous avons eu l'opportunité de réaliser l'intégralité de nos campagnes expérimentales sur les installations du LULLI. Le nombre de campagnes relatives à ces travaux sont au nombre de quatre. Trois furent conduites avec pour objectif l'étude des processus d'endommagement. La dernière quant à elle était centrée sur l'obtention de données sur lesquelles appuyer la construction de l'équation d'état de nos matériaux. Dans cette section, nous nous attacherons à présenter les configurations expérimentales retenues pour l'étude de ces deux grands axes.

3.2.1 Équation d'état - LULI2000

Une fois n'est pas coutume, commençons par présenter la campagne laser la plus récente. Du 6 au 17 novembre 2017, nous entamâmes pour la première fois des essais de caractérisation expérimentale de l'équation d'état de verres métalliques $ZrCuAl$ par chargements dynamiques induits par laser – 17-NS-F-01. L'intérêt principal de cette installation pour notre étude repose sur les niveaux de pression accessibles ($> 100 \text{ GPa}$) et les possibilités de mise en forme des impulsions temporelles pour générer des compressions progressives – isentropiques. Ainsi, les données expérimentales recueillies concernent aussi bien des points de la courbe d'Hugoniot que des points de l'isentropie de compression.

La configuration expérimentale simplifiée de l'installation laser est donnée en figure 3.7. Cet instrument de forte puissance délivre des énergies supérieures à 1 kJ à la fréquence ω ($\lambda = 1053 \text{ nm}$). Il est composé de deux chaînes amplificatrices – Nord et Sud – indépendantes, raccordées à une même source laser. L'énergie délivrée à 1053 nm par chacune d'entre elle peut atteindre 800 J . Le temps de refroidissement d'une chaîne d'amplification étant de 90 minutes, il est possible d'utiliser, en fonction de la cadence et du niveau d'énergie souhaité, alternativement ou simultanément les deux chaînes. Durant cette campagne, des tirs de chocs laser et de rampes de compression quasi-isentropiques ont été réalisés.

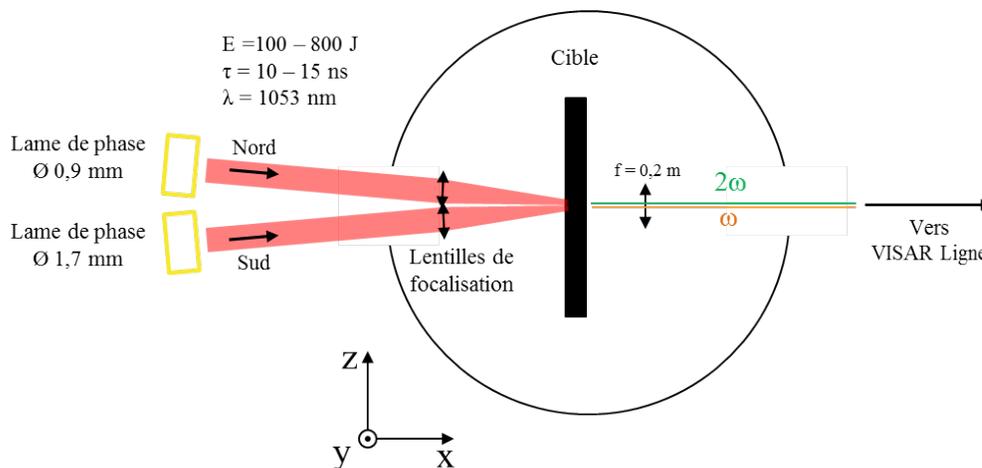


FIGURE 3.7 – Schématisation simplifiée de la configuration expérimentale de la campagne laser LULI2000 sur verre métallique. Le diagnostic utilisé fut le VISAR ligne composé de deux systèmes VISAR et deux caméras Streak.

Pour la configuration choc, les impulsions générées s'apparentent à des créneaux de durée 15 ns (cf. Fig. 3.8 (a)). Concernant les rampes, la durée de leurs profils temporels est de 10 ns et leurs formes résultent d'une optimisation via des tirs sur fer (cf. Fig. 3.8 (b)). L'objectif étant d'éviter le plus possible la formation d'un choc, la forme de l'impulsion doit être ajustée afin de propager uniquement un train d'ondes de compression. Les cibles sont positionnées au centre de la chambre d'expérience, mise au

vide secondaire avoisinant les 10^{-3} Pa, afin d'éviter tout claquage avec l'air. Les faisceaux sont focalisés derrière la cible. De ce fait, la face avant de la cible intercepte donc le cône de focalisation avec un angle de 5,5 degrés avec l'axe normal.

En amont de la focalisation sont disposées des lames de phase (cf. Fig. 3.7). Celles-ci assurent une répartition spatiale plus homogène de l'énergie contenue dans les faisceaux, rendant le chargement axisymétrique (cf. Fig. 3.9 (a)) sous la forme d'un « top-hat » (cf. Fig. 3.8 (a)). L'utilisation de lames de phases facilite la caractérisation du chargement, mais engendre en contrepartie quelques désagréments. Une partie de l'énergie est absorbée par la lame de phase elle-même et une partie non négligeable de l'énergie – ici de 15 % – peut être contenue dans les ailes de tache focale et ce sur de grands rayons (cf. 3.9 (b)). À chaque tir, le profil temporel de l'énergie est mesurée à la fois en sortie d'amplification et avant l'arrivée sur cible. Les profils spatiaux quant à eux sont très stables et ont été contrôlés régulièrement par des caméras CCD. Afin de couvrir une plage de pressions la plus étendue possible, des taches focales de tailles différentes ont été réalisées sur les chaînes Nord (CN – \varnothing 0,9 mm) et Sud (CS – \varnothing 1,7 mm).

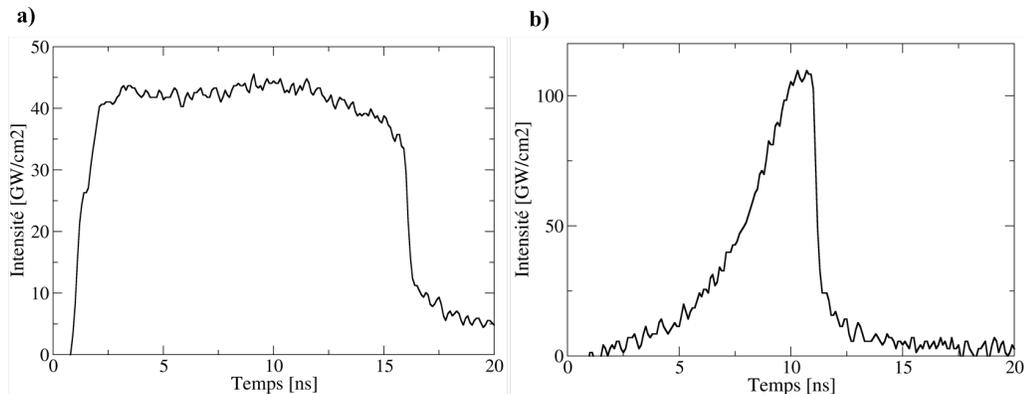


FIGURE 3.8 – Exemples de profils temporels utilisés pour générer un choc (a) et une rampe de compression (b).

Concernant les diagnostics utilisés, le VISAR ligne présenté en section 3.1.1.2 est le seul instrument ayant servi à notre étude sur l'équation d'état de nos matériaux. Un grossissement a été réalisé par le biais d'un achromat de distance focale $f = 0,2$ m, nous fournissant ainsi des images d'interférence dont la résolution spatiale est égale à $1 \mu\text{m}/\text{pixel}$. Pour ce qui est de la résolution temporelle des signaux, celle-ci varie en fonction de la durée de balayage. Pour une durée de 20 ns, la résolution temporelle d'un pixel est de 20 ps, tandis que pour un balayage de 50 ns elle est de 50 ps. À cela s'ajoute une fenêtre temporelle d'acquisition limitée à 30 ns venant limiter l'enregistrement des signaux. Pour synchroniser le déclenchement de l'enregistrement avec le débouché de l'onde, une photodiode fut disposée en face avant à l'extérieur de l'enceinte. En approximant le temps de transport de l'onde par celui d'ondes acoustiques, différents retards ont été introduits avant chaque tir. Une fois les signaux acquis, le dépouillement s'est fait via le logiciel Neutrino développé au sein du LULI.

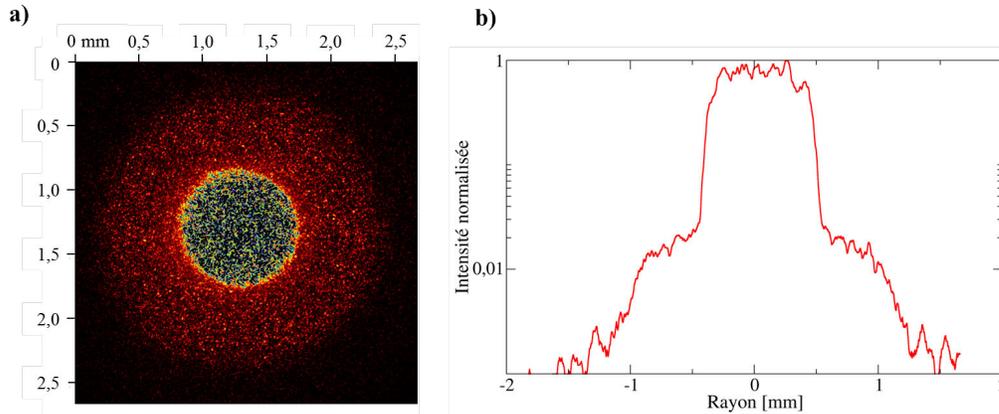


FIGURE 3.9 – (a) Répartition spatiale de l'énergie dans le plan de la face avant de la cible et (b) distribution sur un profil passant par le centre de la tache.

Cette campagne a été l'occasion de préparer deux types d'échantillons en verres métallique de compositions $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$: des échantillons avec et sans marches. Ces deux variantes ont été envisagées à cause des potentielles incertitudes de mesure liées à l'état de surface en fond d'encoches réalisées par meule diamantée. Le protocole de mise en forme est détaillé en section 3.4. Illustrée en figure 3.10 (b), la rugosité dans l'entaille est non négligeable comparativement à la hauteur de marche, si bien que les signaux VISAR recueillis en ces zones sont très bruités (cf. Fig. 3.11). À cela s'ajoute une incertitude en position liée à la détermination de la position du plan moyen auquel correspond la mesure. La rugosité moyenne de nos échantillons à marches est de $2,5 \mu m$ pour une hauteur de marche d'environ $10 - 20 \mu m$, ce qui induit une incertitude pouvant aller jusqu'à 25 % sur la position de la première marche. À cette incertitude spatiale s'additionne l'incertitude temporelle du système VISAR-Streak. On se retrouve alors très vite avec des incertitudes supérieures à 30 %, qui se propageront et s'accroîtront dans les calculs de pressions et de masses volumiques sous choc. Souhaitant disposer de mesures les plus précises possibles, nous avons donc privilégié les échantillons plans.

Les épaisseurs de ceux-ci devaient être inférieures à $72 \mu m$, de sorte que l'onde de choc débouche au plus tard à la fin de durée du chargement laser. Cette épaisseur limite e_{lim} a été déterminée à partir de la vitesse des ondes longitudinales au repos c_L dans le verre métallique de nuance $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ au repos, pour une durée d'impulsion laser τ_L :

$$e_{lim} = c_L \tau_L = 4,8 [km.s^{-1}] \cdot 15 [ns] = 72 \mu m \quad (3.33)$$

Avec un tel dimensionnement, la vitesse de surface libre n'est « en principe » pas sujette au phénomène d'amortissement hydrodynamique, nous permettant ainsi de construire sereinement les polaires de chocs de nos verres métalliques.

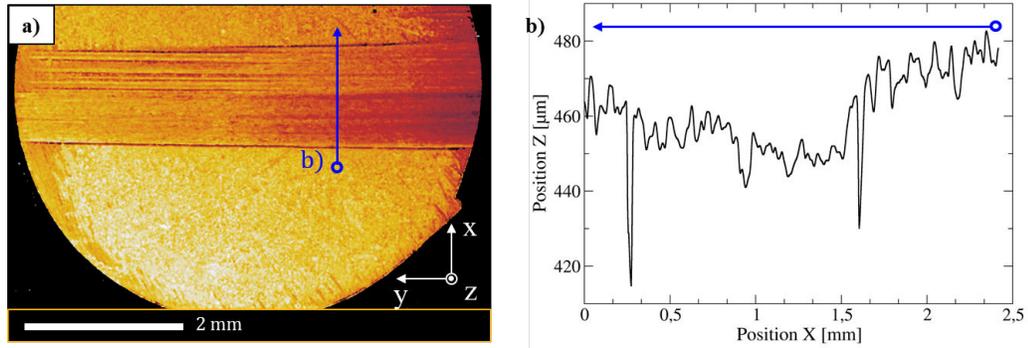


FIGURE 3.10 – (a) Vue arrière d'un échantillon de verre métallique $ZrCuAl$ disposant d'une encoche faisant office de marche. (b) Profil de rugosité de la surface en fond d'encoche.

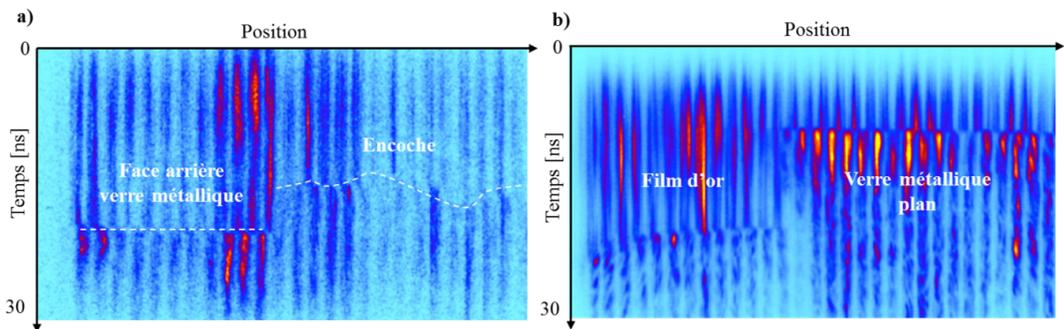


FIGURE 3.11 – Figures d'interférences obtenues par dépouillement des signaux du VISAR ligne sur des échantillons de verre métallique disposant d'une encoche (a), et d'un film d'or (b). L'état de surface des deux échantillons influence grandement le rapport signal sur bruit et par conséquent la qualité des franges d'interférence.

3.2.2 Endommagement - ELFIE & LULI2000

Pour étudier à la fois les mécanismes d'endommagement aboutissant à la rupture et leur sensibilité à la vitesse de déformation, des tirs laser de diverses impulsions ont été réalisés sur les chaînes ELFIE et LULI2000. Ainsi, trois régimes d'impulsion ont été investigués : 350 fs , 600 ps et $4,5\text{ ns}$.

Contrairement à l'installation LULI2000, la chaîne ELFIE ne dispose que d'une seule chaîne d'amplification. Celle-ci délivre un faisceau laser de durée 600 ps à une longueur d'onde de 1057 nm , dont l'énergie avoisine les 100 J . Par le biais d'un compresseur placé après la chaîne d'amplification, la durée de l'impulsion laser peut le cas échéant se retrouver abaissée à 350 fs . Les énergies maximales alors atteintes sont de l'ordre de la dizaine de joules. En conséquence, les intensités laser sur cible en configuration femtosecondes sont de l'ordre du $PW.cm^{-2}$ alors qu'elles sont de l'ordre du $TW.cm^{-2}$ en configuration picosecondes. Il en va de même pour les intensités atteintes avec la chaîne LULI2000.

Une autre différence notable avec cette dernière concerne le temps de refroidisse-

ment de la chaîne laser. Sur l'installation ELFIE, celle-ci est de 20 minutes après un tir à pleine puissance. Ce temps de refroidissement plus court offre une plus grande cadence qui peut se révéler propice à des travaux exploratoires.

En ce qui concerne les conditions de chargement, aucune lame de phase n'a été employée lors de ces différentes campagnes. Bien que les lames de phase permettent de mieux contrôler le chargement laser, elles représentent un investissement conséquent et limitent dans le même temps la taille des taches focales. Ne disposant pas de grandes marges de variation de l'énergie incidente, nous avons préféré faire varier le diamètre de tache focale afin de générer différents niveaux de pression de chargement, au détriment du contrôle de la répartition spatiale de celui-ci. Certes, cette situation n'est pas des plus optimales. Néanmoins, elle se révèle nécessaire dès lors que l'on souhaite balayer un spectre le plus large possible sur un sujet donné.

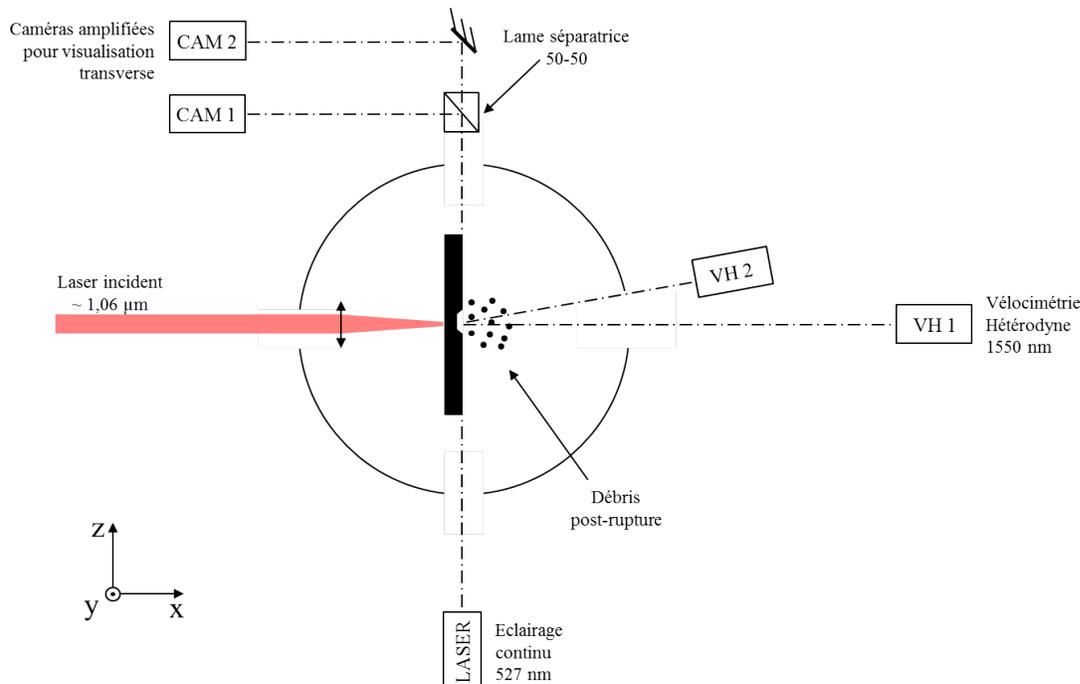


FIGURE 3.12 – Schématisation simplifiée de la configuration expérimentale des campagnes endommagement sur ELFIE et LULI2000 sur verre métallique. Les diagnostics utilisés furent une baie VH deux voies et une visualisation transverse équipée de deux caméras amplifiées.

Maintenant que nous avons traité des différents chargements, place à la configuration en salle d'expérience. Le schéma adopté est identique quelles que soient l'installation et la durée d'impulsion laser. Les échantillons ont été placés au centre de chambre d'expérience. Toujours pour s'affranchir du claquage avec l'air, la chambre fut mise au vide secondaire. Pour la focalisation du faisceau sur cible dans la configuration LULI2000, le lecteur sera invité à se référer à la section précédente. Concernant la focalisation sur ELFIE, la focalisation est effectuée de deux façons différentes selon la durée d'impulsion. Dans le cas des impulsions 600 ps , un achromat est positionné

à l'extérieur de la chambre d'expérience. Pour ce qui est des impulsions 350 fs, le faisceau en sortie de compresseur est acheminé par des tubes sous vide jusqu'à la chambre d'expérience. Le faisceau se retrouve alors focalisé sur cible par le biais d'une parabole.

Afin de mesurer la vitesse d'éjection de matière, deux sondes VH ont été positionnées en face arrière des cibles (cf. Fig. 3.12). L'envol de matière a quant à lui été observé par visualisation transverse. Grâce aux deux sondes VH, l'une positionnée normalement et l'autre à 15° par rapport à l'axe du laser, il est possible de corrélérer les vitesses des éventuels nuages de débris aux clichés obtenus par visualisation transverse. En recoupant ces divers résultats, les processus complexe d'endommagement peuvent ainsi être étudiés aussi bien qualitativement que quantitativement. Pour clore cette partie, plusieurs nuances de verre métallique ont été utilisées. Parmi les nuances retenues – $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$, $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$, $Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ – des échantillons plans d'épaisseurs variables comprises entre 150 μm et 800 μm ont été façonnés à partir de barreaux de verres métalliques massifs. Le protocole de mise en forme est décrit en section 3.4.

3.3 Caractérisation post-mortem

Nous l'avons évoqué auparavant, les lasers offrent la possibilité – dans la majeure partie des cas – de récupérer les échantillons après essais. Leur étude post-mortem a pu se faire par le biais de divers instruments que nous proposons de passer en revue dans cette section.

3.3.1 Microscope optique

Les premières observations suite aux campagnes de tirs se sont faites par microscope. Le laboratoire dispose d'un Keyence (VHX5000) équipé de plusieurs objectifs permettant des grossissements entre X20 à X200 et de X500 à X5000. Les images très haute résolution peuvent y être directement post-traitées et analysées par algorithme constructeur de traitement d'image. De plus, il offre la possibilité de réaliser de mesures dimensionnelles non métrologiques. Il s'est révélé particulièrement utile pour estimer les dimensions des cratères formés en face arrière, leurs morphologies macroscopiques ainsi que pour mettre en évidence des mécanismes de rupture se produisant à plus faible échelle.

3.3.2 Microscope électronique à balayage

Outil phare de l'étude à l'échelle microscopique, le microscope électronique à balayage JEOL (7100F) de la plateforme SCANMAT (UMS 2001, Rennes, France) a été utilisé pour étudier plus en détails les mécanismes d'endommagement dans les verres métalliques en fonction de la composition de nos échantillons, des vitesses de déformation et des niveaux de pression (cf. chapitre 6). Couplé à une sonde OXFORD (50

mm^2), des mesures de spectroscopie à rayons X à dispersion en énergie ont pu être réalisées afin d'étudier des changements locaux de composition.

3.3.3 Profilomètre optique

Une caractérisation quantitative des faciès de rupture passe nécessairement par de l'analyse de surface. Pour cette raison, nous avons eu recours à un profilomètre optique confocal de la société ALTIMET. Contrairement aux profilomètres mécaniques, qui sont constitués d'une pointe se déplaçant sur les surfaces à mesurer, celui-ci utilise une lumière polychromatique qui une fois diffractée associe des plages de longueurs d'ondes à différentes valeurs de profondeurs. La mesure finale correspond à la plage de longueurs d'ondes de plus fortes intensités. Contrairement aux profilomètres mécaniques, il évite toute détérioration de la surface liée au contact. Sa résolution spatiale varie en fonction du pas de la mesure mais aussi de la sonde utilisée. À l'aide de cet outil métrologique, les cratères entiers ont pu être cartographiés avec une résolution de $1 \mu m \times 1 \mu m$. Le post-traitement de ces images 3D nous a notamment permis de déterminer les profondeurs de cratère, leur rugosité et de mesurer les dimensions de motifs précédemment observés par microscopie optique et électronique à balayage.

3.4 Mise en forme des échantillons

Le comportement fragile macroscopique des verres métalliques fait qu'ils sont sensibles aux défauts de surface à partir desquels une rupture peut s'initier. Par conséquent, contrôler l'état de surface en faces avant et arrière des cibles apparaît comme déterminant afin de pouvoir caractériser au mieux son comportement. En parallèle, leurs dimensions doivent pouvoir respecter la règle empirique relative aux effets 2D. Enfin, en fonction des caractéristiques lasers et des niveaux de pressions souhaités, les ondes de choc sont sujettes ou non à de l'amortissement hydrodynamique en conséquence des temps de maintien et des distances parcourues. Pour tenir compte de ces différentes contraintes, deux protocoles de mise en forme ont été développés pour nos matériaux.

Dans les deux cas, les barreaux de verre métallique sont découpés en tranches à l'aide d'une tronçonneuse MECATOME T210 fabriquée par la société PRESI. Les barreaux sont dans un premier temps collés à l'aide d'une cire sur un support en aluminium porté à une température de $100^\circ C$ afin d'éviter toute modification de l'historique de température de nos matériaux. Pour réaliser la découpe, un disque diamanté fut utilisé. Les découpes sont effectuées à une vitesse de rotation de 3200 tr.min^{-1} avec une avance de $0,1 \text{ mm}_s^{-1}$.

Une fois sous forme de pastilles, les échantillons furent collés par cire au centre d'un polissoir. En périphérie du polissoir sont disposés trois petits plots en verre à vitre plus épais que les tranches découpées, dans le but de définir un plan. S'en suit la première phase, dite d'ébauche. Une face de référence est alors réalisée par polissage sur

l'échantillon de verre métallique. Des disques de papier SiC de granulosités variant de 180 à 1200 sont utilisés afin d'aplanir au mieux la face de l'échantillon brute de découpe et ainsi obtenir un défaut de planéité inférieur à $10 \mu m$. Celle-ci est contrôlée au cours des opérations de mise en forme à l'aide d'un palpeur mécanique. Dès lors, un travail plus précis sur la rugosité débute. Les disques de papier SiC sont remplacés par des disques en tissus sur lesquels sont pulvérisés des solutions diamantées permettant d'atteindre des niveaux de rugosité moyennes comprises entre $\frac{1}{4} \mu m$ et $9 \mu m$. En commençant par la granulométrie la plus élevée, la face avant est progressivement polie à différentes rugosités jusqu'à atteindre un aspect miroir. L'état de surface est contrôlé au cours du processus de polissage à l'aide d'une binoculaire. Finalement, la rugosité et la planéité de cette face sont mesurées par profilomètre optique confocal (cf. section 3.3.3). Si celles-ci se trouvent respectivement inférieures à $1 \mu m$ et $5 \mu m$, l'échantillon est décollé, sinon l'étape de polissage est reprise à partir de la granulométrie de $9 \mu m$.

Après avoir obtenu cette face de référence, l'échantillon est alors décollé puis passé dans un bain d'éthanol soumis à des ultrasons pour éliminer tout résidu de cire. Débute alors l'étape de mise en forme de la deuxième face. C'est à cet instant que les deux protocoles divergent l'un de l'autre. Le premier est très similaire aux étapes de mise en forme de la face de référence. Il permet d'obtenir un échantillon plan à la cote désirée. La seule différence réside dans la phase d'ébauche qui comporte une étape d'amincissement afin d'atteindre l'épaisseur d'échantillon souhaitée moyennant une fine marge. L'autre protocole concerne la réalisation d'encoches sur la face arrière de l'échantillon.

Nous l'avons vu, les mesures de la célérité de l'onde de choc reposent toutes sur la mesure du temps de transport de l'onde pour une distance donnée. À partir de ce constat, un assemblage adaptable à la tronçonneuse MECATOME T210 a été conçu afin de pouvoir réaliser des encoches de profondeur « contrôlée » sur des échantillons de faibles diamètres ($<10 \text{ mm}$). Ce type de tronçonneuse ne disposant pas d'une précision en positionnement vertical suffisante – de l'ordre d'une dizaine de micromètre – un dispositif spécifique a donc dû être réalisé pour l'occasion. Sur la figure 3.13 est représentée une vue en trois dimensions de l'assemblage.

Dans un premier temps, une ébauche de la face non polie est réalisée afin d'obtenir un défaut de planéité inférieur à $10 \mu m$. Ensuite, la face de référence de l'échantillon est positionnée face cachée dans le V de centrage – solidarisé à la plaquette orange par vis – sur lequel l'échantillon est collé par cire chauffée. L'échantillon, le V de centrage et la plaquette orange sont ensuite vissés sur un assemblage composé de deux équerres à 90° reliées entre elle par une platine micro-contrôle. Cette dernière autorise un déplacement vertical micrométrique de l'équerre noire sur laquelle est fixé l'échantillon. Enfin, le tout est rendu solidaire du bâti de la tronçonneuse par la semelle bleue.

Pour réaliser des encoches suffisamment larges, le disque de tronçonnage est remplacé par une meule diamantée d'épaisseur 2 millimètres. Le support d'usinage de la figure 3.13 est ensuite rapproché de l'outil. Pour contrôler la profondeur de passe, un circuit électrique ouvert composé d'une LED est fixé d'une part sur l'échantillon et

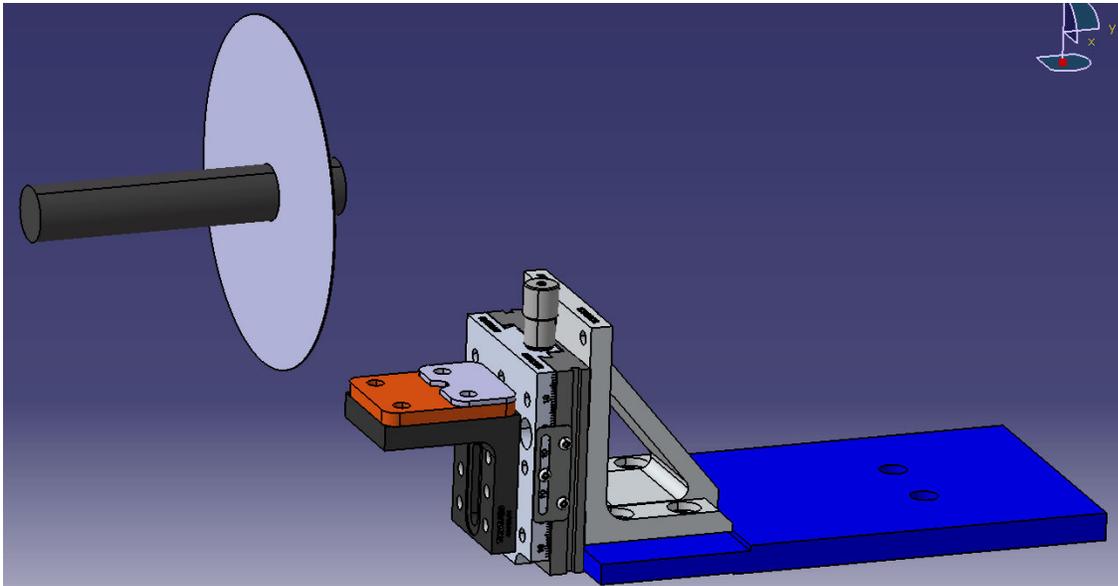


FIGURE 3.13 – Système développé pour la réalisation d’encoches sur des échantillons de verre métallique.

d’autre part sur la meule diamantée. La mise en contact de la meule et de l’échantillon est alors communiquée par le signal lumineux émis par la LED. Dès lors, une référence est établie à partir de laquelle il est possible de définir une profondeur de passe de l’outil. Après avoir usiné ces marches, l’échantillon est décollé de la plaquette orange et positionné une nouvelle fois sur un polissoir de verre. La profondeur de l’encoche est alors adaptée à des dimensions limitant au mieux les effets d’amortissement hydrodynamique ($<20 \mu m$) par polissage de la partie non usinée. Enfin, celle-ci subit des étapes de polissages identiques à celles suivies pour l’obtention de la face de référence dans le but d’obtenir comme précédemment une rugosité inférieure au micromètre.

Pour clore la préparation des échantillons, un film d’aluminium est déposé dans certains cas sur une face de l’échantillon. Ce dépôt, réalisé dans une enceinte sous vide par évaporation d’un fil d’aluminium dans une nacelle en tungstène soumise à un fort courant ($>50 A$), servira à déterminer par simulation le chargement mécanique résultant de l’interaction laser-matière avec l’aluminium.

3.5 Synthèse

À travers ce chapitre, nous avons pu préciser l’approche expérimentale suivie pour étudier à la fois la propagation des ondes de choc et les processus d’endommagement dans les verres métalliques.

En effet, à partir d’instruments de mesure installés dans l’environnement proche de la cible, nous avons vu qu’il était possible d’accéder à certains états de la matière nous renseignant sur le comportement dynamiques des matériaux.

Par ailleurs, nous avons souligné l'intérêt d'avoir recours à différents types de chargement laser pour étudier et caractériser nos matériaux. Cela s'est traduit par la présentation de deux installations laser sur lesquelles nous avons réalisé tous nos essais.

Enfin, nous avons passé en revue plusieurs diagnostics de caractérisation de surface. Ces outils beaucoup plus conventionnels se sont révélés être de puissants alliés sur lesquels nous avons pu nous appuyer pour étudier les processus d'endommagement et de rupture sous choc de nos verres métalliques.

Chapitre 4

Équation d'état des verres métalliques : résultats expérimentaux

« La véritable supériorité de l'homme, ce n'est pas de dominer, de vaincre la nature. C'est, pour le penseur, de la comprendre, de faire tenir l'univers immense dans le microcosme de son cerveau. C'est, pour l'homme d'action, de garder une âme sereine devant la révolte de la matière, c'est de lui dire : « Me détruire, soit ! m'émouvoir, jamais ! » »

| Jules Verne (1869), *Vingt mille lieues sous les mers*.

Sommaire

4.1	Approche du comportement sous choc des solides	84
4.2	Polaires de choc des verres métalliques ZrCuAl	85
4.2.1	Méthode de construction des polaires	86
4.2.2	Polaire D-u	88
4.2.3	Polaire P-u	89
4.2.4	Origines et natures des régimes de vitesses	90
4.2.5	Validité du chargement	94
4.3	Compression quasi-isentropique	96
4.3.1	Analyse des caractéristiques	97
4.3.2	Chargement laser	100
4.3.3	Analyse des signaux de vitesses	101
4.3.4	Exploitation et discussion	103
4.4	Synthèse	107

Lors des chapitres précédents, nous avons tâché de spécifier le cadre scientifique théorique et expérimental dans lequel s'inscrivent nos travaux. Pour l'heure, nous voici enfin arrivé dans l'antre où reposent l'ensemble de nos résultats expérimentaux relatifs à l'équation d'état de nos matériaux. Dans un premier temps, il sera question de la courbe d'Hugoniot de nos verres métalliques et de leur cohérence vis-à-vis des conditions expérimentales et des données bibliographiques. Dans un second temps, nous présenterons les données obtenues sous rampe de compression quasi-isentropique. Le chapitre s'achèvera sur une comparaison et une discussion des résultats obtenus par ces deux méthodes.

4.1 Approche du comportement sous choc des solides

Au cours du chapitre 2, nous avons introduit la notion d'onde dite « de choc », en la définissant comme discontinuité en pression. En raison du phénomène d'ablation, celle-ci se retrouve nécessairement suivie d'un faisceau d'ondes de détentes qui ramène progressivement la pression à l'état initial. Pour décrire phénoménologiquement sa formation et sa propagation, nous avons alors pris l'exemple d'un fluide compressible parfait monodimensionnel dont la résistance au cisaillement est nulle. Appliquée aux matériaux solides, cette vision est particulièrement vraie dès lors que « l'amplitude de l'onde de contrainte excède tellement la résistance à l'écoulement dynamique que le cisaillement peut être négligé » comme le souligne A. Meyers [110]. Autrement dit, pour des niveaux de pressions suffisamment élevées le comportement d'un solide peut s'apparenter à celui d'un fluide. L'inconvénient avec cette description, est son omission à l'égard de l'élasto-plasticité des matériaux solides, soit leur résistance au cisaillement pour des pressions plus faibles. Pour l'y inclure, repartons de l'expression de la conservation de la quantité d'énergie interne dans un solide :

$$\rho \frac{\partial e}{\partial t} = \sigma : \dot{\varepsilon} + r - \text{div}(\vec{q}) \quad (4.1)$$

Avec ρ la masse volumique, e l'énergie interne, σ le tenseur des contraintes, $\dot{\varepsilon}$ le tenseur des taux de déformation, r production de chaleur volumique, \vec{q} flux de chaleur surfacique. Or nous avons vu qu'une onde de choc était une transformation adiabatique non-réversible. En faisant abstraction de la production de chaleur et de son transfert, l'équation (4.1) se simplifie telle que :

$$\rho \frac{\partial e}{\partial t} = \sigma : \dot{\varepsilon} \quad (4.2)$$

Si l'on se place maintenant dans le cas d'un cas de déformation uniaxiale selon x , alors les tenseurs des contraintes $\bar{\bar{\sigma}}$ et déformations $\bar{\bar{\varepsilon}}$ s'écrivent dans $(\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)$:

$$\bar{\bar{\sigma}} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{zz} \end{pmatrix}_{(\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)} \quad (4.3)$$

$$\bar{\bar{\varepsilon}} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}_{(\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)} \quad (4.4)$$

Avec $\sigma_{yy} = \sigma_{zz}$. Le tenseur des contraintes peut ensuite être décomposé en une partie sphérique, associée au caractère hydrodynamique (pression), et une partie déviatorique, relative au cisaillement. Il peut alors s'écrire :

$$\bar{\bar{\sigma}} = -P\bar{\bar{I}} + \bar{\bar{S}} \Leftrightarrow \bar{\bar{\sigma}} = -P \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}_{(\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)} + \begin{pmatrix} S_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & S_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & S_{zz} \end{pmatrix}_{(\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)} \quad (4.5)$$

Avec cette décomposition, il est alors possible d'écrire le terme de droite de l'équation (4.2) comme suit :

$$\sigma : \dot{\epsilon} = \sigma_{xx} \dot{\epsilon}_{xx} = -P \dot{\epsilon}_{xx} + S_{xx} \dot{\epsilon}_{xx} \quad (4.6)$$

$$\Leftrightarrow \sigma : \dot{\epsilon} = \frac{-P}{v} \frac{\partial v}{\partial t} + S_{xx} \dot{\epsilon}_{xx} \quad (4.7)$$

A partir de cette dernière expression, il devient possible de décomposer le calcul de la conservation d'énergie interne du solide sous la forme d'une somme de deux termes correspondant respectivement à l'écoulement d'un fluide et à sa résistance non nulle au cisaillement :

$$\rho \frac{\partial e}{\partial t} = \rho \frac{\partial e_{\text{fluide}}}{\partial t} + \frac{\partial e_{\text{cisaillement}}}{\partial t} \quad (4.8)$$

Où

$$\rho \frac{\partial e_{\text{fluide}}}{\partial t} = \frac{-P}{v} \frac{\partial v}{\partial t} \quad (4.9)$$

Et

$$\rho \frac{\partial e_{\text{cisaillement}}}{\partial t} = S_{xx} \dot{\epsilon}_{xx} \quad (4.10)$$

En d'autres termes, une partie correspondra à la composante hydrodynamique du solide et l'autre à sa loi de comportement. La résolution de la partie hydrodynamique se fera par un système d'équations composé des relations de Rankine-Hugoniot (cf. chapitre 2 section 2.2.1) et d'une équation d'état. La partie liée au comportement est calculée postérieurement à la propagation des ondes par l'utilisation de différents modèles d'élasto-plasticité. Pour ce qui est de la propagation des ondes de choc dans les verres métalliques, il n'existe que peu d'informations sur leurs équations d'état (cf. chapitre 2 section 2.3). Concernant la loi de comportement, nous avons vu dans le chapitre 1 section 1.5 qu'il existe un certain nombre de données relatives à leur comportement élasto-plastique. Comme il est souvent de coutume dans le domaine des chocs, il est tout à fait envisageable de s'inspirer de leur comportement en statique pour modéliser le déviateur des contraintes \bar{S} . Pour cette raison, il est primordial de résoudre dans un premier temps la propagation des ondes dans nos matériaux avant de complexifier la modélisation de leur réponse dynamique par l'introduction d'une loi de comportement. Dans ce qui suit, nous tâcherons d'exposer les différents travaux entrepris afin d'établir l'équation d'état de notre verre métallique *ZrCuAl*.

4.2 Polaires de choc des verres métalliques ZrCuAl

La construction des polaires de choc $D - u$ et $P - u$ renseignera sur une partie des états atteignables sous choc. À partir de celles-ci, il sera ensuite possible de développer

plusieurs modèles d'équations d'état dont l'objectif sera de reproduire, le plus fidèlement et avec le plus de sens physique possible, les résultats expérimentaux tout en y incluant tous les états thermodynamiques de nos verres.

4.2.1 Méthode de construction des polaires

Pour établir les polaires de choc de notre matériau, nous avons suivi une démarche similaire à celles de Togo et al [147] et Martin et al [105]. À savoir, la vitesse matérielle u est calculée à l'aide de l'approximation de surface libre¹. La célérité du choc D est quant à elle calculée à partir de la durée de traversée entre l'arrivée du laser sur cible et l'instant du débouché du choc en face arrière. La pression est ensuite déduite à partir de la résolution des relations de Rankine-Hugoniot (cf. chapitre 2, relations 2.10 à 2.12).

En usant de deux taches focales de diamètres différents, tout en faisant varier l'énergie entre tirs, nous avons pu mesurer des vitesses de surface libre comprises entre $1,2 \text{ km.s}^{-1}$ et 4 km.s^{-1} ainsi que des célérités d'ondes de choc comprises entre $4,3 \text{ km.s}^{-1}$ et $8,5 \text{ km.s}^{-1}$. Au total, huit tirs ont été réalisés sur $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ et trois sur $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$. L'ensemble des tirs réalisés au cours de cette campagne sont récapitulés dans le tableau 4.1. Dans ce cas de figure, nous avons supposé l'hypothèse de l'adiabatique unique comme valide. Les polaires $D - u$ et $P - u$ sont illustrées en figures 4.1 (a) et 4.1 (b). Sur celles-ci sont aussi représentées les données recueillies par Togo et al [147], Martin et al [105] et Xi et al [159] sur lesquelles nous baserons notre analyse.

TABLE 4.1 – Récapitulatif des tirs de choc laser effectués en configuration 15 ns sur la chaîne laser LULI2000. (*) Durée de balayage de la STREAK de 20 ns. (†) Durée de balayage de la STREAK de 50 ns.

Tir	Composition	Flux [TW.cm ⁻²]	u_{SL} [km.s ⁻¹]	D [km.s ⁻¹]	P [GPa]
L17-039(*)	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	4,67	$2,75 \pm 0,10$	$6,04 \pm 0,26$	$54,7 \pm 7,8$
L17-041(*)	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	5,26	$2,30 \pm 0,10$	$5,89 \pm 0,29$	$44,6 \pm 6,7$
L17-043(†)	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	5,87	$4,10 \pm 0,10$	$8,68 \pm 0,79$	$117,1 \pm 22,4$
L17-044(†)	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	2,42	$1,75 \pm 0,10$	$5,70 \pm 0,48$	$32,8 \pm 6,1$
L17-045(†)	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	3,59	$2,30 \pm 0,10$	$5,86 \pm 0,46$	$44,3 \pm 7,9$
L17-046(†)	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	1,43	$1,30 \pm 0,10$	$4,30 \pm 0,27$	$18,4 \pm 3,0$
L17-047(†)	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	1,11	$1,50 \pm 0,10$	$5,20 \pm 0,30$	$25,7 \pm 4,1$
L17-059(†)	$Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$	5,17	$3,40 \pm 0,10$	$5,54 \pm 0,43$	$43,8 \pm 7,8$
L17-061(†)	$Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$	2,38	$1,50 \pm 0,10$	$2,90 \pm 0,16$	$14,1 \pm 2,2$
L17-063(†)	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	7,56	$3,40 \pm 0,10$	$6,77 \pm 0,39$	$75,7 \pm 11,9$
L17-065(†)	$Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$	7,09	$3,50 \pm 0,10$	$7,10 \pm 0,62$	$81,5 \pm 15,3$

1. Où l'isentrope est considérée comme la courbe symétrique de l'Hugoniot dans le plan $P - u$.

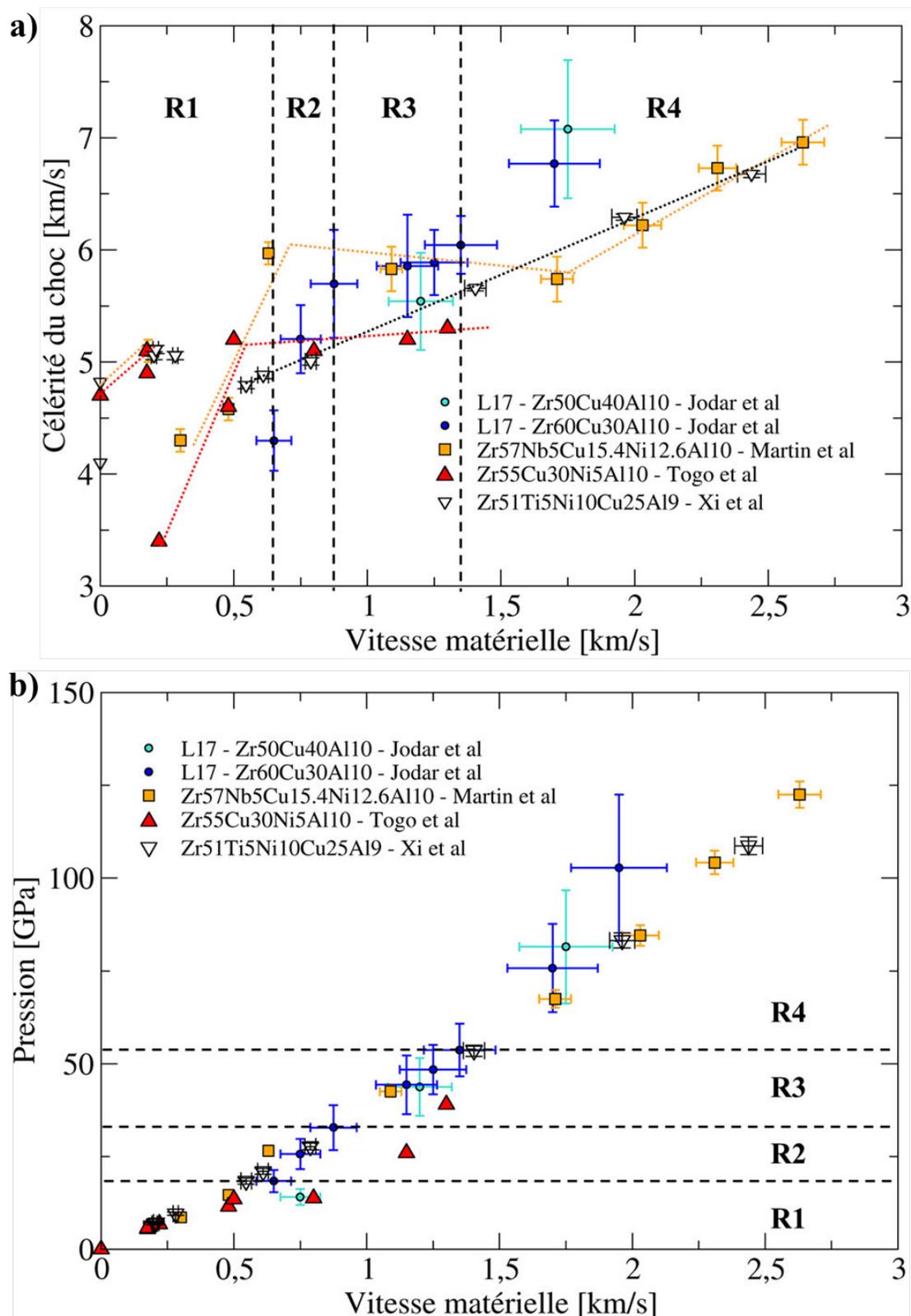


FIGURE 4.1 – (a) Polaire de choc illustrant l'évolution de la célérité du choc D en fonction de la vitesse matérielle u . (b) Polaire de choc dans le plan pression-vitesse matérielle. Les résultats de la campagne LULI2000 sur $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ sont représentés respectivement par les points en bleus clair et foncé. Aux côtés de nos résultats sont tracés les données issues des études de Togo et al [147] (triangle rouge), de Martin et al [105] (carré jaune) et de Xi et al [159] (triangle blanc).

4.2.2 Polaire $D-u$

Dans cette section, nous nous concentrerons sur l'analyse de la polaire $D-u$ illustrée en figure 4.1 (a).

Dans un premier temps, la célérité du choc D croît de manière prononcée entre $4,3 \text{ km.s}^{-1}$ et $5,5 \text{ km.s}^{-1}$, entraînant une variation de la vitesse matérielle u entre $0,6 \text{ km.s}^{-1}$ et $0,9 \text{ km.s}^{-1}$. Ensuite, ce taux de variation se réduit quand u est comprise entre $0,9 \text{ km.s}^{-1}$ et $1,3 \text{ km.s}^{-1}$, où la célérité de l'onde de choc semble tendre lentement vers 6 km.s^{-1} . Enfin, au-delà, une forte variation de la vitesse matérielle et de la célérité du choc est de nouveau observée. Nonobstant le peu de tirs sur $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$, deux tirs sur trois – effectués dans des conditions de chargement très similaires – procurent des résultats très proches de la tendance décrite par les tirs sur $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$. À ce niveau de l'étude, il est donc raisonnable de supposer, au regard des barres d'erreurs, que l'effet de la composition sur la propagation des ondes n'est pas significatif.

Au final, nos résultats semblent révéler l'existence de trois régimes de vitesses, que nous nommerons respectivement R2, R3 et R4 selon leur ordre d'apparition avec l'augmentation de la vitesse matérielle. Le terme R1 est attribué au régime élastique bien qu'il soit absent de l'étude présente. La présence de ces régimes tend à pencher en faveur des conclusions tirées par Togo et al [147] et Martin et al [105] en contredisant du même temps celles de Xi et al [159] (cf. chapitre 2 section 2.3). En analysant leurs résultats, Xi et al s'opposèrent aux dires de Togo et al et Martin et al en concluant qu'aucune transition de phase ne se produisait sous choc.

Cependant, en examinant plus précisément leurs résultats et en les mettant en parallèle des nôtres, il semblerait que leurs données ne soient en aucun cas en contradictoires. Bien que les données de Xi et al suggèrent une croissance linéaire de la célérité du choc au-delà d'une vitesse matérielle de $0,5 \text{ km.s}^{-1}$, certaines données sont absentes sur la plage de vitesses matérielles comprises entre $0,75 \text{ km.s}^{-1}$ et $1,5 \text{ km.s}^{-1}$, là où une transition de régime semble s'opérer. Il apparaît donc délicat de stipuler un avis aussi catégorique à partir de leurs données.

Quantitativement, il apparaît que nos trois régimes de vitesses se manifestent pour des seuils de vitesses matérielles distincts. Le régime R2, correspondant aux études de Togo et al et Martin et al, se produit pour des vitesses matérielles comprises entre $0,25 \text{ km.s}^{-1}$ et $0,5-0,6 \text{ km.s}^{-1}$, soit approximativement $0,3 \text{ km.s}^{-1}$ avant le nôtre. Malgré cette différence, la célérité du choc D semble varier de façon similaire dans les trois cas. Le régime R3, assimilable à un régime plateau où la célérité D n'évolue guère, est quant à lui beaucoup plus long dans leurs études. Il apparaît pour des vitesses matérielles plus faibles – autour de $0,5 \text{ km.s}^{-1}$ et $0,6 \text{ km.s}^{-1}$ – et s'étend jusqu'à $1,2 \text{ km.s}^{-1}$ pour la nuance de Togo et al, et $1,7 \text{ km.s}^{-1}$ pour celle de Martin et al. Le niveau de ce plateau, i.e. le niveau de célérité D , est à première vue dépendant de la composition. En s'attardant sur les barres d'erreurs, cette dépendance à la composition ne semble pas aussi évidente. Même si les barres d'erreurs viennent à manquer dans l'étude de Togo

et al, nos résultats sont clairement situés à mi-chemin entre les leurs. Se pose alors la question de savoir si la composition joue un rôle significatif sur la célérité du choc ou bien uniquement sur les seuils d'apparition et la durée des régimes. Concernant le dernier régime R4, la comparaison de nos résultats avec ceux de Martin et al soulève bien moins de questions sur ce dernier point. En effet, une nette différence est observable à hauts flux, bien que nos barres d'erreurs soient assez larges. L'effet de la composition du système est ici bien marqué et pourrait se révéler particulièrement intéressant pour les applications visées.

Il convient de distinguer l'effet de la composition au sein d'un même système, de celui entre système. Comme l'illustrent les deux points obtenus sur $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ et $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ autour de $1,75 \text{ km.s}^{-1}$, les célérités de choc obtenues sont très proches l'une de l'autre. Cette observation tend à suggérer qu'au sein de ce même système la variation de la fraction volumique de certains composants n'a pas d'influence notable à haut flux. Au contraire, en modifiant le système, la célérité du choc peut varier grandement, comme illustré par le point de Martin et al autour de $1,75 \text{ km.s}^{-1}$. Ce constat est à rapprocher des observations précédentes faites sur les régimes R2 et R3 concernant la variation de D , où nous avons constaté que celle-ci était quasi-identique quelle que soit la composition du système.

Résumons :

- La composition au sein d'un système n'induit pas de modifications significatives dans la propagation d'ondes de choc dans les régimes R2, R3 et R4.
- Les différences de compositions entre système occasionnent l'apparition de régimes similaires à des seuils et plages distincts.
- L'effet de composition entre système n'engendre pas de modification dans la variation de la célérité du choc dans les régimes R2 et R3.
- Une dépendance à la composition d'un système se fait ressentir dès l'apparition du régime R4, notamment sur la variation de la vitesse du choc D .

Enfin, nous n'avons pas évoqué le premier régime R1 s'étalant entre 0 et $0,25 \text{ km.s}^{-1}$ dans les études de Togo et al et Martin et al. Après calcul de la limite élastique de l'Hugoniot, ils ont déduit que le régime R1 s'assimilait au domaine élastique du matériau. Cette limite a été estimée autour des 5 GPa pour Togo et al à 7 GPa pour Martin et al. Ne disposant pas de données sous choc dans ce régime, nous ne pouvons étendre à ce régime la discussion précédente sur l'effet de composition. Passons donc à la suite afin d'estimer les seuils d'apparition des régimes R2, R3 et R4.

4.2.3 Polaire P–u

Dans ce plan, nous retrouvons les trois régimes R2, R3 et R4 précédemment identifiés dans le plan $D - u$, bien que le passage d'un régime à l'autre soit bien moins marqué. En combinant ces deux polaires, il est possible d'identifier les seuils de pression pour lesquels ces régimes se manifestent. Ainsi, le régime R2 apparaît aux alentours

de 17 *GPa* et s'étend jusqu'à 32 *GPa*. Le plateau décrivant le régime R3 est pour sa part compris entre 32-53 *GPa*. Au-dessus, il s'agirait du régime R4. Au regard des barres d'erreurs, une première approximation consisterait à considérer une évolution polynomiale du second degré de la pression avec la vitesse matérielle, similaire aux polaires de choc $P - u$ généralement obtenues pour une phase donnée. C'est d'ailleurs certainement l'approche à adopter pour développer un premier modèle d'équation d'état afin de réaliser de premières simulations visant à restituer les données expérimentales.

Quoi qu'il en soit, la pente de la polaire des ternaires ZrCuAl se révèle légèrement plus raide aux barres d'incertitudes près que celles rapportées dans la littérature, et plus précisément dans R4. D'ailleurs, il est surprenant d'observer un écart si conséquent entre notre polaire et celle de Togo et non pas celle de Martin. Sa composition diffère en effet très peu de celles de cette étude. En dépit du manque de barres d'incertitudes, l'ajout de 5 % de nickel semble occasionner une modification significative de la propagation des ondes au-delà de 14 *GPa*. Ce nouveau constat abonde une nouvelle fois dans le sens des hypothèses que nous avons formulé (cf. section 4.2.2, à savoir que l'effet de composition se fait ressentir entre les systèmes et non au sein d'un même système. Cependant, nous avons aussi pu observer que pour ce régime, les différences de vitesses du choc entre systèmes ne variaient que peu. Seules leurs variations divergent.

Pour tenter d'expliquer ces phénomènes, Martin et al ont supposé que le régime R2 correspond à un régime de plasticité à basse pression. Celui-ci a été identifié de par les signaux VISAR, ceux-ci révélant un dédoublement du front de choc (cf. Fig. 4.2). Ce phénomène est observé au passage de la transition élasto-plastique qui entraîne une instabilité dans le front de choc. En conséquence, un précurseur élastique se propageant à la célérité des ondes élastiques est généré avant d'être suivi par un choc plastique. En se focalisant sur les signaux vert (0675) et rouge (0701), l'on peut distinguer que la vitesse de surface libre décroît après le débouché du précurseur élastique et celui de la composante plastique. Cette décroissance a été attribuée par Turneure et al [151] et Martin et al [105] à l'adoucissement observé en quasi-statique dans les verres métalliques suivant le passage de la limite élastique. La présence de cet adoucissement, censé modifier la vitesse du choc, n'est toutefois pas révélée par les polaires $D - u$ ou $P - u$ de ces deux auteurs. À la fin de ce régime R2, ces deux équipes de recherche ont supposé qu'une transition de phase s'opérait, avant de laisser place à un nouveau régime de plasticité haute pression (R4).

4.2.4 Origines et natures des régimes de vitesses

Après impacts, des morceaux de cibles ont pu être récupéré par Togo et al. Ils ont alors réalisé des mesures de diffraction par les rayons X très localement focalisées. L'analyse des signaux (cf. Fig. 4.3) n'a montré aucun signe de cristallisation quelle que soit la pression de choc, et en particulier au-dessus de 14 *GPa*, où la présence du plateau R3 est supposée s'expliquer par un phénomène de transition de phase. En faisant le postulat qu'il s'agisse effectivement d'un changement de phase, plusieurs hy-

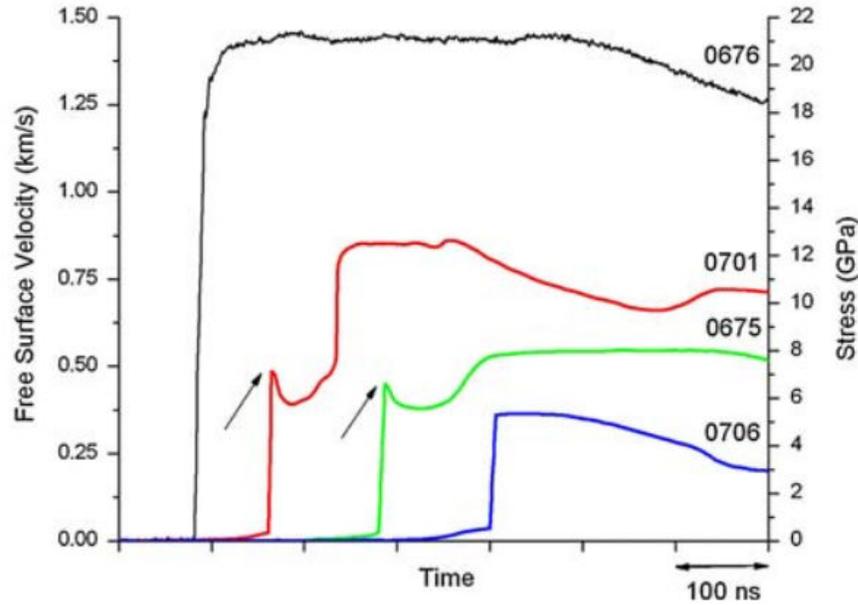


FIGURE 4.2 – Vitesses de surface libre mesurées après impacts de plaques sur du verre métallique $Zr_{57}Nb_5Cu_{15,4}Ni_{12,6}Al_{10}$ d'après Martin et al [105]. Les profils de vitesses ont été obtenus pour divers niveaux de chargement. Les profils vert (0675) et rouge (0701) illustrent l'instabilité d'un choc lié au passage de la transition élasto-plastique générant un dédoublement du front de choc en un précurseur élastique et un front de choc plastique.

pothèses peuvent alors être envisagées. Avant de les présenter, il est important de faire un bref point sur la notion de température. Jusqu'à présent nous avons principalement évoqué la température dans le cas de la plasticité des verres métalliques. Comme expliqué au chapitre 2, le passage d'une onde de choc entraîne une discontinuité en pression qui se répercutera sur les autres paramètres thermodynamiques, telle la température. Pour connaître les états de la matière atteints sous choc il est alors nécessaire de se référer à la courbe d'Hugoniot, mais aussi au diagramme de phase pression-température du matériau étudié. Le seul souci, c'est que nous n'en disposons pas! De ce fait, nous sommes contraints de limiter notre réflexion à des considérations phénoménologiques sur la température de fusion sous choc de notre ternaire $ZrCuAl$ et la température induite par le choc.

Dans ce qui suit nous distinguons deux cas de figure : le cas où la température de fusion sous choc est dépassée ($T_{choc} > T_{fusionchoc}$), et celui où l'élévation de la température induite par le choc reste inférieure à la température de fusion sous choc ($T_{choc} < T_{fusionchoc}$).

Dans le premier cas où $T_{choc} > T_{fusionchoc}$, le passage du choc entraîne la fusion de notre verre. De ce fait, deux scénarios peuvent être envisagés :

- Le passage du faisceau de détente entraîne une trempe.
- La diminution de température n'est pas suffisamment rapide pour engendrer une trempe. Dans ce cas, le temps de maintien permet d'initier une germination

de cristaux.

Dans le deuxième cas où $T_{choc} < T_{fusionchoc}$, le passage du choc permet d'atteindre des conditions suffisantes de cristallisation. Ainsi deux scénarios peuvent aussi être proposés :

- La détente isentropique permet de conserver cette structure cristalline.
- Le niveau de pression du choc permet d'atteindre un niveau d'entropie permettant la formation d'un verre diaplectique en détente.

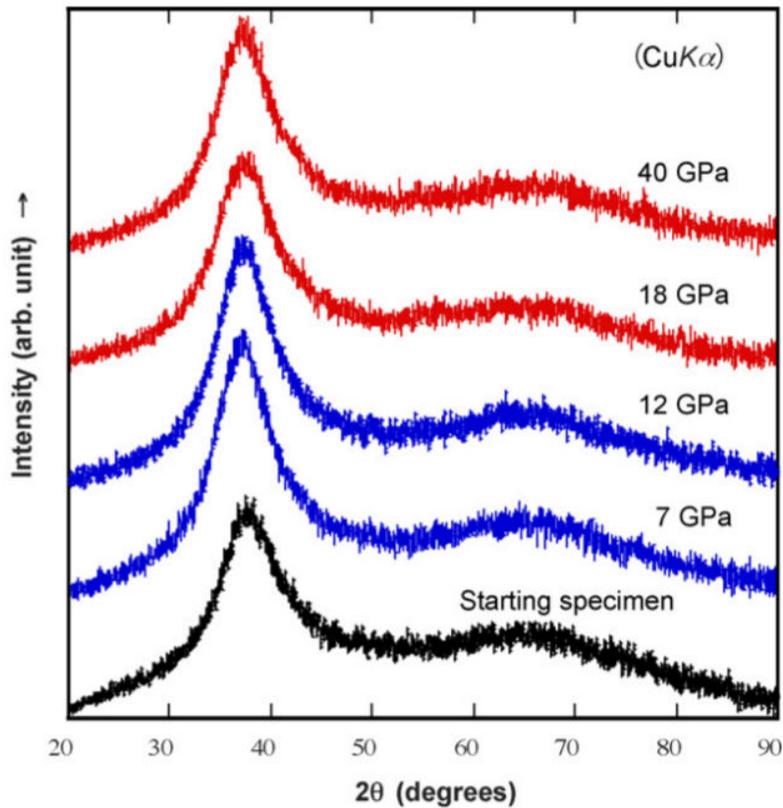


FIGURE 4.3 – Signaux post-mortem de diffraction par les rayons X focalisés sur une surface micrométrique d'échantillons de verre métallique $Zr_{55}Cu_{30}Al_{10}Ni_5$ choqués à différentes pressions. Ces signaux sont comparés au signal de référence du spécimen non testé [147].

Si $T_{choc} > T_{fusionchoc}$, la température induite par le passage du choc sera amenée à décroître dès l'apparition du faisceau de détentes. La forme de celle-ci dépend de son étalement spatial et temporel. Ainsi, nous pouvons envisager la situation où une fois à l'état liquide, le passage des ondes de détente entraînera une diminution rapide de la température assimilable à une trempe. Le matériau à l'état liquide se retrouvera de nouveau figé dans un état hors équilibre suivant une structure désordonnée. L'état amorphe alors atteint pourra aussi bien être similaire à celui de départ ou bien plus condensé. En effet, certains auteurs ont rapporté l'existence de deux types de structure amorphe pour des verres métalliques base cérium [12], [32] et pour du verre de silice

[51]. En réalisant des essais de compression quasi-statique et dynamique, ils ont distingué par diffraction des rayons X l'existence d'une phase amorphe de basse compacité – Low Density Amorphous (LDA) – d'une phase amorphe plus compacte – High Density Amorphous (HDA). Cette dernière a notamment été constatée dans le verre de silice post-détente. A ce stade de notre étude, il est alors raisonnable de supputer qu'un tel scénario de transition de phase amorphe à amorphe puisse se produire.

Une autre possibilité, reviendrait au contraire à supposer que le faisceau de détente n'engendre pas une diminution suffisante de la température pour figer la matière dans un état amorphe. Dans de telles circonstances, nous assisterions à des prémices de cristallisation. Or, Togo et al ont effectué des mesures de diffraction par les rayons X focalisés sur des morceaux d'échantillons récupérés post-choc. Les signaux recueillis sont illustrés en figure 4.3. En analysant ceux-ci, aucune signature caractéristique de la formation de structures cristalline n'a été constatée. Dans leur article, la résolution spatiale de la sonde n'est malheureusement pas mentionnée. Par conséquent, il est tout à fait possible d'émettre des doutes quant à la capacité de l'instrument employé à détecter des structures cristallines de très petites tailles – type nano cristaux. Bien que le faisceau de détente n'entraîne pas de trempe, son passage n'en reste pas pour le moins bref. En fonction du temps caractéristique de germination des cristaux aux conditions de pression et température concernées, il serait alors tout à fait possible d'assister à un début de cristallisation. À cause de la brièveté du faisceau de détentes, le processus de cristallisation – se faisant par diffusion à partir des premiers germes formés – n'aurait alors pas disposé de suffisamment de temps pour que des réseaux cristallins puissent se former.

Si $T_{choc} < T_{fusionchoc}$, la température induite par le choc peut permettre le passage de la température de transition vitreuse et celle de la température de cristallisation. D'après la théorie des chocs, le chemin thermodynamique suivi par la matière en détente est celui d'une isentrope. En supposant une élévation de pression et de température suffisante à l'apparition d'une transition de phase d'un état amorphe vers un état cristallin, la matière cherchant en tout temps à se retrouver dans une forme minimisant son niveau d'énergie, alors la transformation isentropique induite par le faisceau de détente permettrait de conserver entièrement ou partiellement la structure engendrée par le choc. Ainsi, les échantillons récupérés présenteraient une structure cristalline post-détente. Cependant, comme illustré en figure 4.3, il semblerait peu probable que des réseaux cristallins aient pu se former lors du passage de R2 à R3, à moins qu'il ne s'agisse de formations nano cristallines. En ce qui concerne R4, aucune donnée n'est disponible sur le sujet que cela soit dans littérature ou bien dans notre étude. La question reste donc entière concernant ce régime.

Enfin la dernière hypothèse se rapporte à la formation d'un verre diaplectique en détente. La formation de ce type de verre ne requiert pas le passage par l'état liquide. Il est obtenu par friction à haute pression, par exemple suite à des impacts météoritiques [45]. De récents travaux de Gleason et al [51] ont été menés sur du verre de silice choqué par laser. Pour suivre l'évolution de la structure au cours de compression et de la

détente, les essais ont été réalisés sur une ligne de diffraction par les rayons X au Linac Coherent Light Source (LCLS). Ainsi, ils ont observé que durant la compression la silice se transformait en stishovite – une phase cristalline de la silice obtenue à haute pression – avant de se transformer progressivement au cours de la détente en phase amorphe hautement compacte (HDA). Ils alors ont pu constater que pour une pression de choc de 19 *GPa*, le niveau d'entropie associée atteignait un état entropique similaire à celui du quartz choqué à 30 *GPa*. Or, c'est à partir de ce seuil que des verres diaplectiques peuvent se former en détente dans le quartz. Bien que la formation de ce type de verre n'ait été mise en évidence, a priori, que pour des verres d'oxyde, il n'est pas impossible qu'un processus similaire puisse se produire dans nos verres. Par conséquent, les changements de régimes observés dans nos verres correspondraient à des transitions vers des phases cristallines obtenues uniquement lors de la compression.

Pour éprouver chacun des scénarios énoncés, il serait nécessaire de sonder le voisinage atomique avant, pendant et après essais pour lever le voile sur les origines atomiques de ces régimes. Expérimentalement, le suivi de la structure du voisinage atomique peut notamment se faire par des méthodes de spectroscopie d'absorption des rayons X telles que par XANES ou EXAFS. Le couplage de ces techniques d'absorption à des essais de choc laser offrirait la possibilité d'identification de la nature de ces régimes. La réalisation d'une campagne couplant ces deux techniques fait partie des perspectives de ce travail.

4.2.5 Validité du chargement

Si la célérité du choc et la vitesse matérielle peuvent être obtenues expérimentalement sans trop de difficultés, il en est autrement pour la pression. En effet, l'estimation de celle-ci se révèle beaucoup plus délicate. Nous avons soulevé dans le chapitre 2 les limites que pouvaient soulever l'utilisation de l'approximation de la surface libre et de l'adiabatique unique. En particulier au sujet des possibles transitions de phase pouvant s'opérer sous choc. En supposant que notre cas nous soyons en présence de phénomènes similaire, alors les pressions que nous avons déduites de nos mesures de vélocimétrie par les relations de Rankine-Hugoniot deviennent contestables.

Pour cette raison, d'autres approches ont été envisagées pour calculer la pression en face arrière. La première consiste à utiliser des lois empiriques d'interaction laser-matière permettant de remonter à une pression de chargement. L'autre concerne des simulations d'interaction laser-matière fournissant un niveau de pression d'ablation en face avant. Dans les deux cas, nous supposons que la pression en face arrière correspond à la pression de chargement du fait que nos échantillons aient été dimensionnés pour éviter l'effet de l'amortissement hydrodynamique.

Pour confronter toutes ces approches, nous avons repris la figure 2.4 du chapitre 2 en y incorporant les pressions calculées par Rankine-Hugoniot pour les cibles en $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$. Celle-ci est illustrée en figure 4.4. La relation de Fab-

bro sur aluminium est tracée en rouge, celle de Grün sur aluminium en violet et celle de Phipps sur aluminium en cyan discontinu. La loi de B. Aubert développée numériquement à partir des tirs de calibration sur aluminium est tracée en magenta et l'application de sa loi au cuivre est représentée en orange. Les erreurs de ces deux méthodes sont illustrées par les zones magenta et orange. En réalisant un fit des données expérimentales par une loi de puissance, il est alors possible d'exprimer l'évolution de la pression induite par le choc en fonction de l'intensité maximale telle que :

$$P_{far} = P_{abl} = 18,15.I_L^{0,74} \quad (4.11)$$

Où P_{far} décrit la pression en face arrière en GPa , P_{abl} la pression d'ablation en GPa et I_L l'intensité maximale en $TW.cm^{-2}$.

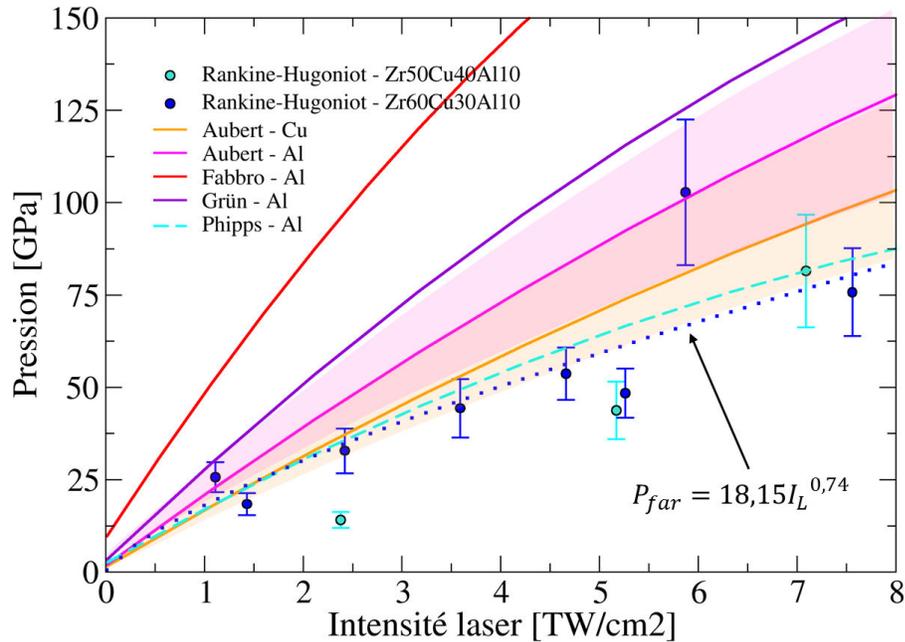


FIGURE 4.4 – Évolution de la pression de choc sur verres métalliques calculée en face arrière à partir des relations de Rankine-Hugoniot (points bleus), comparée aux pressions d'ablation prédites par les modèles de Fabbro (rouge), Grün (violet), Phipps (bleu discontinu) et Aubert (magenta) sur aluminium et d'Aubert sur cuivre (orange).

En premier aperçu, la pression calculée par Rankine-Hugoniot suit une évolution similaire à celles des autres méthodes. Cependant, de grandes différences sont observables au niveau des ordres de grandeurs des pressions prédites par chacun des modèles. En effet, les modèles de Fabbro, Grün et Phipps sont censés prédire les pressions d'ablation résultant de l'interaction laser-matière sur aluminium. Au cours du chapitre 2, nous avons déjà constaté que l'absorption laser liée à la nature de l'atome influençait le niveau de pression d'ablation. Plus précisément, nous avons constaté d'après la relation de Phipps que l'augmentation de la masse atomique entraînait une diminution du rapport $\frac{A^{7/16}}{Z^{9/16}}$ et donc de la pression d'ablation. En se basant sur la composition

du $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$, le rapport $\frac{A^{7/16}}{Z^{9/16}}$ est environ égal à 0,623 alors qu'il est de 0,749 pour l'aluminium. Il n'est donc pas étonnant d'observer un écart si important entre les valeurs calculées par Rankine-Hugoniot et ces trois relations.

La loi de B. Aubert appliquée au cuivre vient corroborer ce dernier constat. D'après la figure 4.4, celle-ci prédit des pressions d'ablation les plus proches des données de Rankine-Hugoniot. D'ailleurs, si l'on reprend l'expression de la loi Aubert 2.5 sur aluminium en l'exprimant cette fois-ci en fonction de l'intensité laser I_{L2} exprimée en $TW.cm^{-2}$ et non plus l'intensité I_L en $GW.cm^{-2}$, il vient :

$$P_{abl_{Al}} = 0,063.I_L^{0,85} \Leftrightarrow P_{abl_{Al}} = 22,35.I_{L2}^{0,85} \quad (4.12)$$

Or, nous avons vu que les pressions maximales prédites par ESTHER après simulations sur cuivre était en moyenne 20 % plus faibles que sur aluminium. En retranchant ces 20 %, la variation de pression d'ablation en fonction de l'intensité laser sur cuivre peut s'exprimer telle que :

$$P_{abl_{Cu}} = 0,8.P_{abl_{Al}} = 17,88.I_{L2}^{0,85} \quad (4.13)$$

Nous retrouvons alors une expression très proche de la relation (4.11) issue de l'interpolation effectuée sur les données de Rankine-Hugoniot. En conséquence, la loi de pression développée par B. Aubert sur aluminium adaptée au cuivre nous fournit un ordre de grandeur de pression d'ablation cohérent avec celui fournit par les relations de Rankine-Hugoniot. Les doutes que nous émettions quant à la validité des pressions obtenues par Rankine-Hugoniot se dissipent donc en partie.

4.3 Compression quasi-isentropique

La formation d'une rampe de compression quasi-isentropique par laser peut se faire par deux approches différentes : via la technique dite du réservoir ou bien par la pression d'ablation. Celles-ci peuvent être soit en attaque directe soit indirecte. Sans rentrer dans les détails de la technique du réservoir, il faut retenir qu'elle consiste à générer une puissante onde de choc dans un premier étage de matière situé en amont de la cible à une certaine distance, de sorte que celui-ci se transforme en plasma. Au sein de l'espace existant entre le premier étage de matière et la cible, le plasma créé va pouvoir se détendre et par la suite venir s'accumuler sur la cible. Il résultera de cette accumulation une compression progressive de nature quasi-isentropique [39]. Par cette technique, il est possible de s'affranchir de la mise en forme temporelle de l'impulsion laser. Cependant, la modélisation du chargement ne s'en retrouve que moins accessible. Grâce au développement des oscillateurs, il est possible de mettre en forme le profil temporel de l'impulsion laser de manière à contrôler l'interaction laser matière en attaque directe afin qu'elle produise une compression progressive de la matière en évitant la formation d'un choc sur une certaine épaisseur de cible.

Malgré une meilleure conversion de l'énergie laser en compression et une plus grande flexibilité dans les profils temporels d'impulsion, la technique de pression d'ablation soulève quelques inconvénients. Tout comme pour le choc, cette technique est sensible à la répartition spatiale de l'énergie, où la planéité du front de choc dépend fortement de la qualité de la tache focale. Afin de garantir la planéité de la rampe de compression, des lames de phase ont été utilisées comme pour les expériences de choc. De plus, comme l'illustre la figure 2.6, une rampe de compression finira toujours par former un choc. En fonction du matériau étudié, il est nécessaire d'optimiser la forme de l'impulsion afin d'éviter une apparition prématurée du choc. Cette optimisation peut se faire notamment par l'analyse des caractéristiques. Dans la prochaine section, nous nous contenterons de nous limiter aux bases théoriques de l'analyse des caractéristiques sans parler de l'optimisation. Cette dernière requiert une attention particulière qui est en dehors du cadre de ce projet, ainsi qu'un nombre important de tirs dont nous ne disposons pas. Pour ces raisons, nous avons utilisé une rampe de compression optimisée sur le fer [2, 3].

Avant de continuer, il est important de clarifier certains aspects de cette étude par les rampes de compressions. Celles-ci se révèlent très pratiques pour obtenir en très peu de tirs une ou plusieurs courbes de la surface d'état. En un seul tir, il est possible d'obtenir une courbe correspondant à une partie d'une isentrope alors qu'un tir de choc ne nous donne qu'un point de la surface d'état. De plus, un seul tir peut nous donner accès à d'éventuels changements de phases. Cela suppose cependant que le matériau soit suffisamment connu de sorte que l'impulsion temporelle du laser soit optimisée et donc que les conditions de chargement restent quasi-isentropiques. Dans notre situation, nous avons clairement pris un risque compte tenu de notre méconnaissance du matériau, des interrogations liées aux résultats obtenus sous chocs et des hypothèses utilisées. Il aurait tout à fait été possible que nos conditions de chargement se soient retrouvées nullement quasi-isentropiques et qu'un choc se soit formé. Heureusement, les événements ont pris une tout autre tournure.

L'initiative d'avoir recours à une rampe optimisée sur du fer repose sur la proximité entre les polaires du fer et de nos verres métalliques. En dépit les variations importantes de vitesse du choc avec la pression, nous avons estimé dans un premier temps que la propagation des trains d'ondes ne serait pas significativement influencée par les changements de régimes. Dans ce qui suit, nous tacherons de présenter la méthode suivie pour analyser les signaux de vitesses de surfaces libres obtenues, de manière à aboutir à une partie de l'équation d'état.

4.3.1 Analyse des caractéristiques

Pour déterminer en un tir l'isentrope $P(\rho)$, il est possible d'adopter une fois de plus une vision lagrangienne du problème. La mesure expérimentale de la célérité du son repose sur le même principe que celle employée pour la célérité du choc. La figure 4.5 schématise la méthode suivie : pour une vitesse de surface libre donnée, la vitesse du

son associée c_s correspond au rapport de la hauteur de la marche sur le temps pris par l'onde pour parcourir cette distance. Ensuite, cette vitesse de surface libre doit être transformée en vitesse matérielle. C'est à partir de cet instant que l'analyse des caractéristiques rentre en jeu.

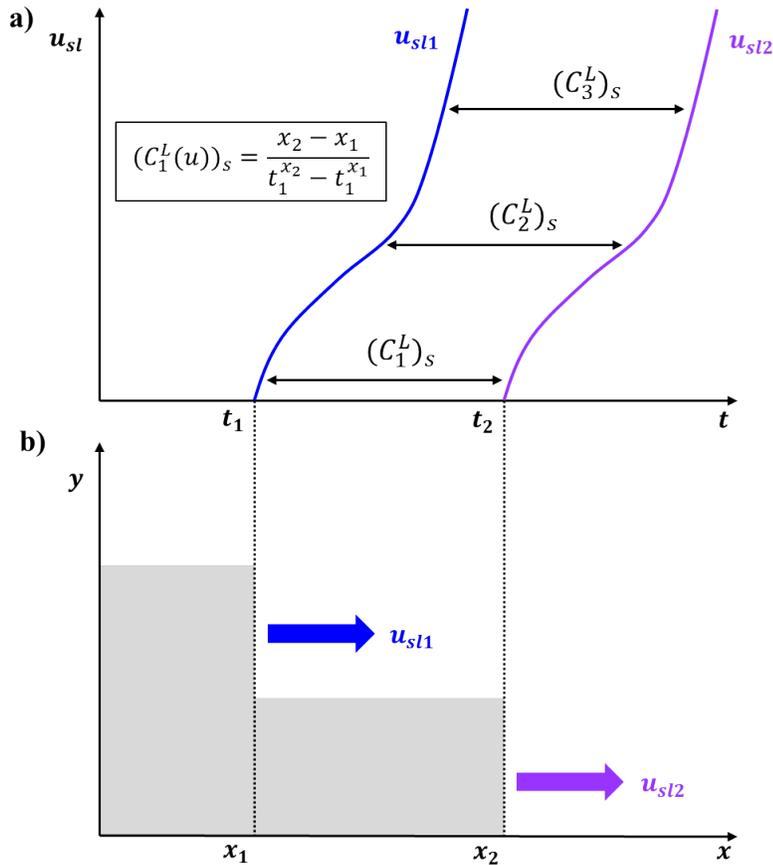


FIGURE 4.5 – Schématisation de la mesure de célérité du son suite à une compression quasi-isentropique : obtention de profils de vitesse de surface libre (a) obtenus à différents instant sur chacune des marches (b).

Contrairement à un front de choc se réfléchissant dans sa totalité en un faisceau de détentes, le train d'ondes de compression va se réfléchir à plusieurs instants différents en fonction de l'arrivée de chacune des compressions. Un fois la première onde arrivée en face arrière (cf. Fig. 4.6), celle-ci va se réfléchir semblablement à un choc en une détente. Celle-ci va se propager en sens contraire et croiser la deuxième onde atteignant à son tour la surface libre. De ce croisement, résultera une modification de l'état (2,1) de pression, de masse volumique et de vitesse matérielle en un nouvel état (2,2). De ce fait, la vitesse de surface libre mesurée correspondra à l'état (2,2) résultant de la superposition des ondes et non (2,1), et ainsi de suite pour les autres ondes suivant. Pour prendre en considération ce phénomène, il est possible de déterminer itérativement par le calcul la valeur réelle de la vitesse matérielle u . Pour ce faire, il faut d'abord exprimer la pression P et la masse volumique ρ en fonction de la vitesse du son c_s entre l'état initial

au repos (0) et le premier état comprimé (1) :

$$P_1 - P_0 = \int \rho_0 c_s(u) du \quad (4.14)$$

et

$$\frac{1}{\rho_1} - \frac{1}{\rho_0} = -\frac{1}{\rho_0} \int \frac{du}{c_s(u)} \quad (4.15)$$

Où la vitesse matérielle u est dans un premier temps calculée grâce à l'approximation de surface libre $u_{SL} \simeq 2u$. Une première équation d'état doit alors être calculée sans prendre en compte l'interaction entre les ondes. Une fois obtenue, la propagation des ondes de compression et de détente peut être résolue et reproduite.

Dans ce but, la phase de compression est décomposée en deux zones : une zone où les ondes incidentes se propagent sans modification et une zone d'interaction où elles interagissent avec les ondes de détente réfléchies. La trajectoire des ondes acoustiques est quant à elle exprimée en fonction des invariants de Riemann, définissant la dite courbe caractéristique. Ces invariants de Riemann J_+ et J_- correspondent alors respectivement à l'onde de compression incidente et à l'onde de détente issue de la réflexion et s'expriment :

$$J_+ = u + \int \frac{dP}{\rho_0 c_s} \quad (4.16)$$

$$J_- = u - \int \frac{dP}{\rho_0 c_s} \quad (4.17)$$

Pour trouver u , ces deux équations doivent être résolues en tout point. En particulier l'abscisse $x_{i,j}, x_{i,j-1}$ et $x_{i-1,j}, x_{i,j}$ correspondant au point où la i -ème caractéristique positive interagit avec la j -ème caractéristique négative doit être déterminée. Elle s'exprime respectivement pour J_+ et J_- telle que :

$$x_{i,j} = x_{i,j-1} + \frac{1}{2}(c_s^{i,j} + c_s^{i,j-1})(t_{i,j} - t_{i,j-1}) : J_+ \quad (4.18)$$

$$x_{i,j} = x_{i-1,j} + \frac{1}{2}(c_s^{i,j} + c_s^{i-1,j})(t_{i,j} - t_{i-1,j}) : J_- \quad (4.19)$$

Où $\frac{1}{2}(c_s^{i,j} + c_s^{i,j-1})$ et $\frac{1}{2}(c_s^{i,j} + c_s^{i-1,j})$ sont respectivement les moyennes de la vitesse du son sur les segments $(x_{i,j}, x_{i,j-1})$ et $(x_{i,j}, x_{i-1,j})$. Ainsi, la vitesse matérielle u en ces points peut s'écrire comme :

$$u_{i,j} = \frac{1}{2}(J_+^i + J_-^j) \quad (4.20)$$

Compte tenu des conditions initiales, la pression en face arrière est nulle et à partir de l'équation (4.20) on retombe sur une expression des invariants connue telle que :

$$J_+ = J_- = \frac{1}{2} u_{SL} \quad (4.21)$$

Après avoir résolu en tout point la propagation des ondes, nous devons déterminer la limite entre la zone de propagation non perturbée et la zone d'interaction. Cette limite est donnée par la propagation de la première caractéristique négative, soit pour une abscisse $x_{i,1}$ et un temps $t_{i,1}$, puisqu'elle est la seule à ne pas être influencée par une détente. Par ailleurs, en l'absence d'interaction avec des détente, les caractéristiques positives sont des droites. Il nous est alors possible de corrélérer le temps t_i mesuré d'arrivée de l'onde en fonction de la zone d'interaction, tel que :

$$t_i = t_{i,1} + \frac{ep - x_{i,1}}{c_s^{i,1}} \quad (4.22)$$

Où ep est l'épaisseur de l'échantillon. Enfin, le positionnement de la zone d'interaction sera ajusté par itération via les paramètres de l'équation d'état de manière à reproduire le signal expérimental de surface libre. Nous présenterons dans la section dédiée aux résultats le profil de l'équation d'état issu de ce processus itératif.

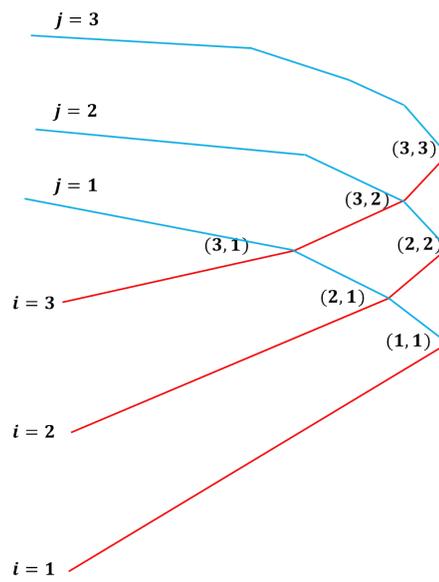


FIGURE 4.6 – Illustration de l'interaction des caractéristiques suite au phénomène de réflexion en surface libre (en noire). Les ondes de compression sont représentées en rouge et les ondes de détente en bleu. Les ondes de compression se propagent à vitesse constante et sont donc représentées par des droites. Dès lors qu'il y a interaction avec des ondes de détente issues de la réflexion, les caractéristiques positives deviennent courbées, modifiant ainsi la vitesse de surface libre mesurée [127].

4.3.2 Chargement laser

Durant la campagne LULI2000, trois tirs ont pu être effectués sous rampes sur la chaîne Nord. Le profil temporel associé à chacun de ces tirs est présenté en figure 4.7. Au total, deux tirs ont été réalisés sur la composition $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ et le dernier sur du $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$. Pareillement aux tirs sous chocs, les échantillons testés sous rampes ne comportaient pas de marches, à cause des plus grandes incertitudes en position

qu'elles occasionnent. Se pose ensuite la question de la démarche suivie pour construire l'équation d'état par les rampes. En s'intéressant à la figure 4.7, nous pouvons distinguer de grandes similitudes entre chacun des profils appliqués, et plus particulièrement entre les chargements des tirs 54 et 56 sur $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$. Outre l'absence de marches, et à la vue des profils temporels d'impulsion laser, il est raisonnable de supposer que le chargement est identique pour les trois tirs. A l'aide de ce postulat et de la géométrie contrôlée de nos échantillons, nous pouvons envisager que la hauteur de marche n'est rien d'autre que la différence en épaisseur entre les tirs 54 et 56. En connaissant les temps de débouché sur chaque échantillon, nous pouvons en déduire la vitesse moyenne du son par l'équation (4.23) :

$$c_s^i(u) = \frac{ep_{56} - ep_{54}}{t_i^{56} - t_i^{54}} \quad (4.23)$$

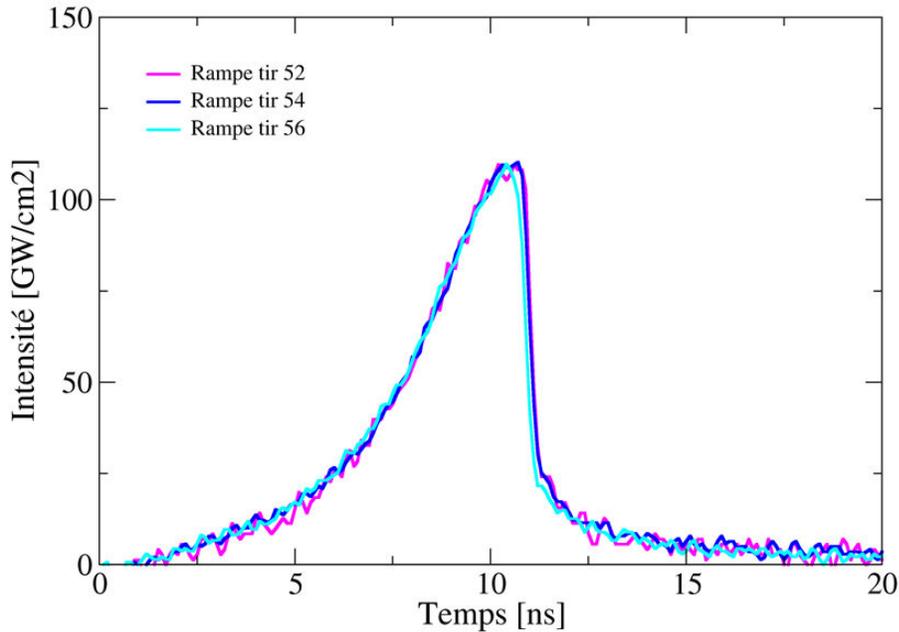


FIGURE 4.7 – Profils temporels des chargements laser des rampes de compression quasi-isentropique des tirs 52 sur $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ et 54 et 56 sur $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$.

Avec ep_{56} et ep_{54} faisant respectivement référence aux épaisseurs des cibles 54 et 56. Les temps de débouché des ondes à niveau de vitesse donné sont pour leur part exprimés par t_i^{56} et t_i^{54} . Par conséquent, la démarche présentée dans la section précédente reste applicable et il est possible d'extraire des profils de vitesses de surface libre une version de l'équation d'état pour le $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$.

4.3.3 Analyse des signaux de vitesses

La figure 4.8 regroupe les signaux de vitesses de surfaces libres des tirs 52, 54 et 56. Leurs allures globales diffèrent très nettement des signaux généralement obtenus sous

chocs. Elles sont dans l'ensemble très similaires les unes des autres pour les trois tirs. Cette première observation nous conforte sur la proximité du chargement laser induit sur chacune des cibles. Si celui-ci avait engendré des signaux de vitesses de surface libre très distincts, nous n'aurions pas pu calculer à l'aide des caractéristiques la vitesse du son à l'isentrope.

Sur ces signaux trois allures majeures se démarquent. La première fait référence au débouché : la vitesse de surface libre croît rapidement dans un premier temps jusqu'à atteindre 0,8 à 1 $km.s^{-1}$. Toutefois, le signal du tir 52 se distingue nettement des deux autres tirs pour cette plage de vitesses. En effet, la mise en vitesse pour le tir 52 est beaucoup plus raide que pour les tirs 54 et 56 ce qui laisse à penser qu'un choc s'est formé pour ce tir et non pour les autres. Ce résultat n'entachera heureusement pas la suite de notre analyse étant donné que nous ne disposons que d'un tir sur cette composition.

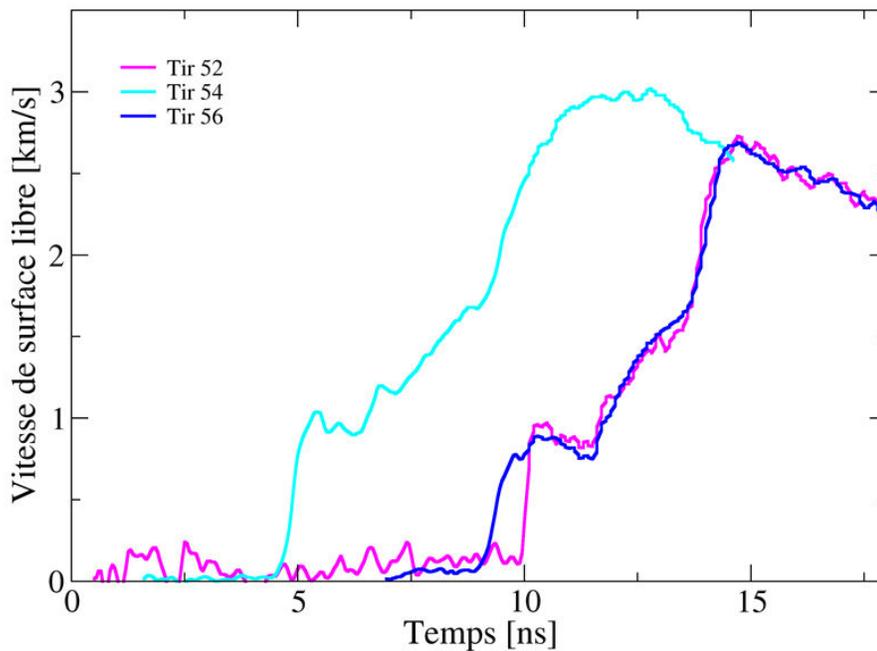


FIGURE 4.8 – Profils de vitesse de surface libre obtenus lors du tir 52 sur $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ et des tirs 54 et 56 sur $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$.

À la suite de ce premier domaine, une diminution de vitesse est ensuite observée sur un intervalle de temps relativement court. Au-delà, la vitesse croît de nouveau jusqu'à 1,7 $km.s^{-1}$, mais sa variation est plus faible. La différence de pente entre ces deux domaines de vitesses pourrait laisser présager un changement de comportement ou bien une transition de phase. S'en suit une nouvelle croissance plus rapide révélée par une nouvelle rupture de pente se manifestant autour des 1,7 $km.s^{-1}$ avant d'atteindre une valeur limite située dans les environs de 2,6 à 3,0 $km.s^{-1}$. Enfin la dernière partie des signaux correspond à l'arrivée de la détente incidente, déchargeant le matériau et provoquant la chute de la vitesse de surface libre. Il est intéressant de souligner que les

pentés de ces deux derniers domaines apparaissent légèrement plus raides pour les tirs 52 et 56 que pour le tir 54. Cette observation peut s'expliquer par une distance de trajet parcouru plus importante. En effet, nous avons vu au début de la section dédiée à la théorie des chocs que la vitesse des ondes sonores était fonction du niveau de pression. Ainsi, les ondes élémentaires de compression constituant d'un train d'ondes ont tendance à se rattraper pour aboutir à la formation d'un choc. Plus ces ondes élémentaires disposent de temps, i.e. de distance, plus elles se rattraperont. On assiste donc à un raidissement progressif du train d'ondes.

Pour résumer, les tirs effectués sur $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ se traduisent par une compression quasi-isentropique rapide jusqu'à $1,0 \text{ km.s}^{-1}$, puis d'une autre compression plus douce jusqu'à $1,7 \text{ km.s}^{-1}$ afin de terminer sur une dernière compression plus raide jusqu'à l'apparition des détentes incidentes dès $2,6 \text{ km.s}^{-1}$. Par la suite nous noterons ces trois régimes R1', R2' et R3' de sorte à faire écho aux régimes de vitesses observés sur la courbe de l'Hugoniot.

4.3.4 Exploitation et discussion

Après analyse des signaux expérimentaux par la méthode des caractéristiques (cf. Fig. 4.8), l'évolution de la célérité du son en fonction de la vitesse matérielle a pu être établie (cf. Fig. 4.9 (a)). Nous avons pu en déduire la variation de pression et ainsi incorporer les niveaux de pression associés à la polaire de choc $P - u$ (cf. Fig. 4.9 (b)).

Tout d'abord, la variation de la célérité du son dans le diagramme $c_s - u$ suit une évolution similaire aux allures observées dans la figure 4.1 (a). D'après nos données sous choc et celles de la littérature, nous avons identifié un régime R2 s'étalant sur la plage $0,6$ à $0,9 \text{ km.s}^{-1}$, un régime R3 de $0,9$ à $1,3 \text{ km.s}^{-1}$ et un régime R4 au-dessus de $1,3 \text{ km.s}^{-1}$. Nous avons déduit de la littérature l'existence d'un régime R1 allant de 0 à $0,6 \text{ km.s}^{-1}$. En se basant sur les régimes de vitesse de surface libre obtenus sous rampe et en les reportant sur le diagramme $c_s - u$ (cf. Fig. 4.9 (a)), une analogie entre les régimes R1' - R2' - R3' et les régimes R1 - R2 - R3 peut être faite. Ici, En effet, R1' s'étale de 0 à $0,45 \text{ km.s}^{-1}$, R2' de $0,45$ à $0,8 \text{ km.s}^{-1}$ et R3' de $0,8 \text{ km.s}^{-1}$ jusqu'à $1,3 \text{ km.s}^{-1}$. Il est nécessaire de souligner que la limite de ce dernier n'est pas aussi bien identifiée que pour les deux autres étant donné que chargement laser ne nous a pas permis d'atteindre des vitesses de surface libre supérieures à $2,6 \text{ km.s}^{-1}$. Compte tenu de la cohérence entre les régimes R1, R2, R1' et R2', il serait raisonnable de supposer que la limite de R3' se situe au même niveau que la limite de R3.

En se penchant sur le régime R1', trois allures sont observables. La première concerne l'augmentation de la célérité jusqu'à environ $5,8 \text{ km.s}^{-1}$. Ensuite, celle-ci se stabilise autour de $5,6 \text{ km.s}^{-1}$ avant de décroître et ainsi tendre vers un minima de $3,85 \text{ km.s}^{-1}$ marquant le début de R2'. Les travaux de Wang et al [157, 156] visant à étudier l'équation d'état de plusieurs verres métalliques base zirconium par échographie ultrasonore ont renseigné sur l'évolution des célérités des ondes longitudinales en fonction de la

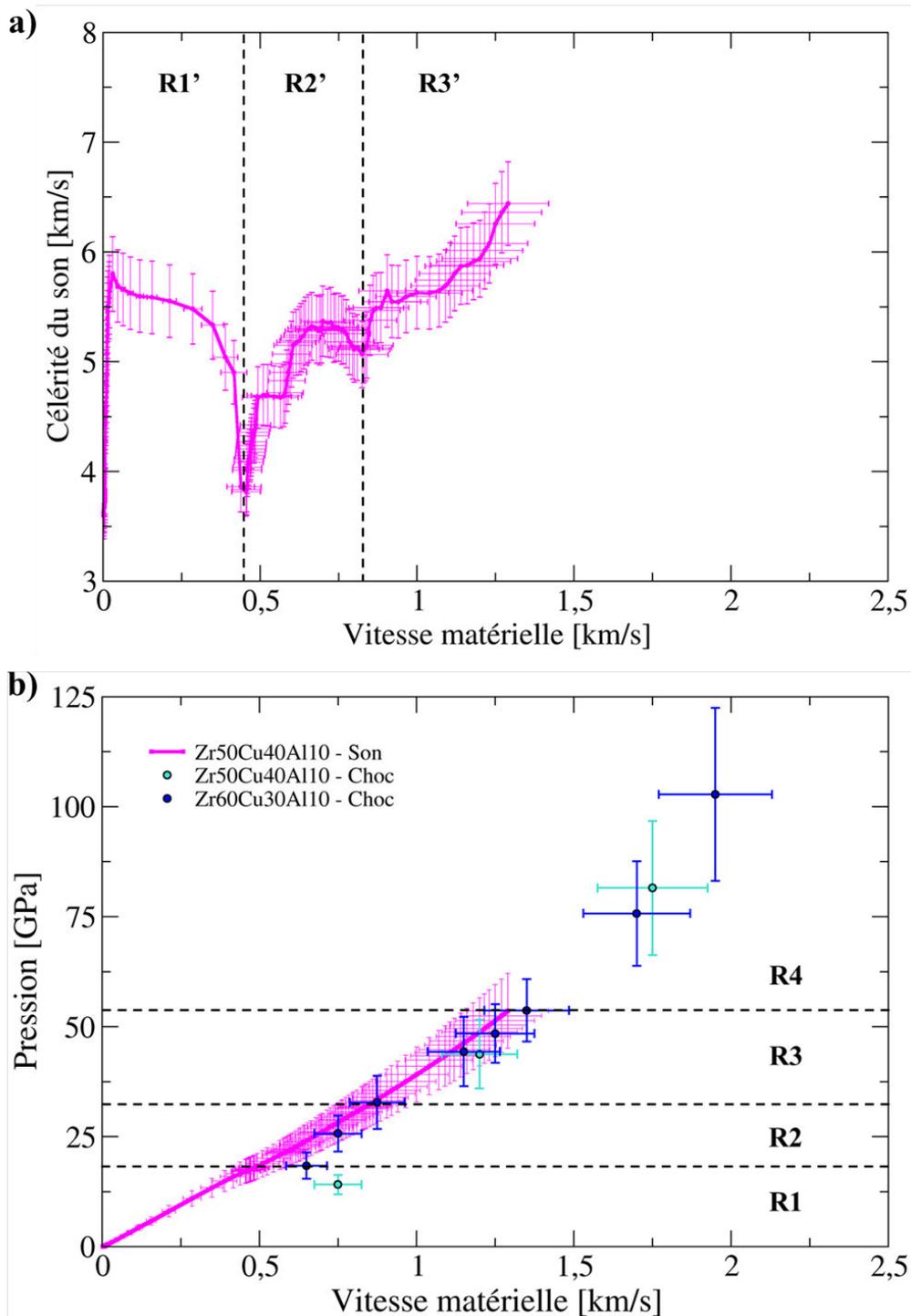


FIGURE 4.9 – (a) Evolution de la vitesse du son en fonction de la vitesse matérielle, obtenue par les tirs 54 et 56 sous rampe de compression isentropique ; (b) Comparaison des pressions obtenues sous compression quasi-isentropique et sous choc en fonction de la vitesse matérielle.

pression. D'après leurs résultats, ces célérités peuvent augmenter jusqu'à 2 % pour des pressions allant jusqu'à 2 *GPa*. Ils en ont conclu qu'en-dessous de 2 *GPa* les verres métalliques se comportent comme des matériaux parfaitement élastiques. Dans notre cas, le début de R1' pourrait s'expliquer par la présence de bruit sur les signaux VISAR, empêchant de mesurer précisément les basses vitesses. Une alternative consisterait à supposer que la dépendance de la célérité du son observée par Wang et al se transposerait à notre cas mais de manière plus prononcée. En faisant une analogie avec le comportement sous choc d'autres matériaux, le plateau correspondrait à la célérité des ondes longitudinales élastiques. La décroissance pourrait quant à elle correspondre à la signature de l'adoucissement observé lors du dédoublement du front de choc.

Pour analyser les régimes R2' et R3', il suffit de se tourner vers la polaire $P-u$ afin de les confronter aux données sous choc (cf. Fig. 4.9 (b)). Sur celle-ci, nous distinguons une très bonne cohérence entre les points de l'Hugoniot et ceux de l'isentrope. Pour ces deux régimes, isentrope de compression et Hugoniot apparaissent confondus. Voilà un point des plus rassurants. De cette proximité, il nous est donc possible de déduire que l'hypothèse de l'adiabatique unique est applicable dans notre étude ! Cela laisse donc à penser que les valeurs de pression calculées par les équations de Rankine-Hugoniot via l'approximation de la surface libre sont valables, et ce en dépit des multiples régimes de vitesses. Ce résultat est conséquent dans le sens où il valide d'un même coup deux démarches expérimentales distinctes et les méthodes de dépouillement employées. Grâce à ce résultat, des futurs travaux sur la modélisation de l'équation d'état, l'interaction laser-matière ou encore sur de l'endommagement pourront se baser sur des données expérimentales relativement fiables décrivant différents états de la matière. Une autre conséquence directe concerne les travaux de Togo et al, Martin et al et Xi et al. Au cours du chapitre 2, nous émettions des réserves au sujet de la méthode d'analyse employée et des conclusions tirées – i.e. opposées – par ces trois auteurs. Ainsi, nous sommes en mesure d'attester que les données recueillies par ces trois équipes sont cohérentes et dans les mêmes ordres de grandeur que les nôtres.

Mise à part la validation de l'emploi de l'adiabatique unique, la proximité de ces résultats dans le plan $P - u$ nous met sur la piste des origines de ces régimes. En effet, en traçant l'évolution des célérités du choc et du son en fonction de la pression (cf. Fig. 4.10), il ressort clairement que tous les régimes – excepté R4 – apparaissent respectivement pour de mêmes niveaux de pression. Ce constat suggère que le passage d'un régime à un autre est mécaniquement activé. En effet, l'élévation de température induite par la compression n'est pas identique qu'il s'agisse d'un choc ou d'une compression isentropique. La possibilité d'une transition de phase – comme suggérée par Togo et al et martin et al – est donc à prendre avec précaution. Une alternative reviendrait donc à analyser les changements de régimes R1 à R3 comme étant lié au comportement matériau, et plus particulièrement à des effets de localisation auxquels peuvent s'ajouter de faibles effets de densification (2-3 % en statique [156]). Nous savons depuis le chapitre 1 que la plasticité dans les verres métalliques peut notamment s'exprimer sous la forme de localisation de contraintes de cisaillement donnant naissance à des bandes de cisaillement. D'ailleurs, à ce phénomène est toujours associée une élévation localisée

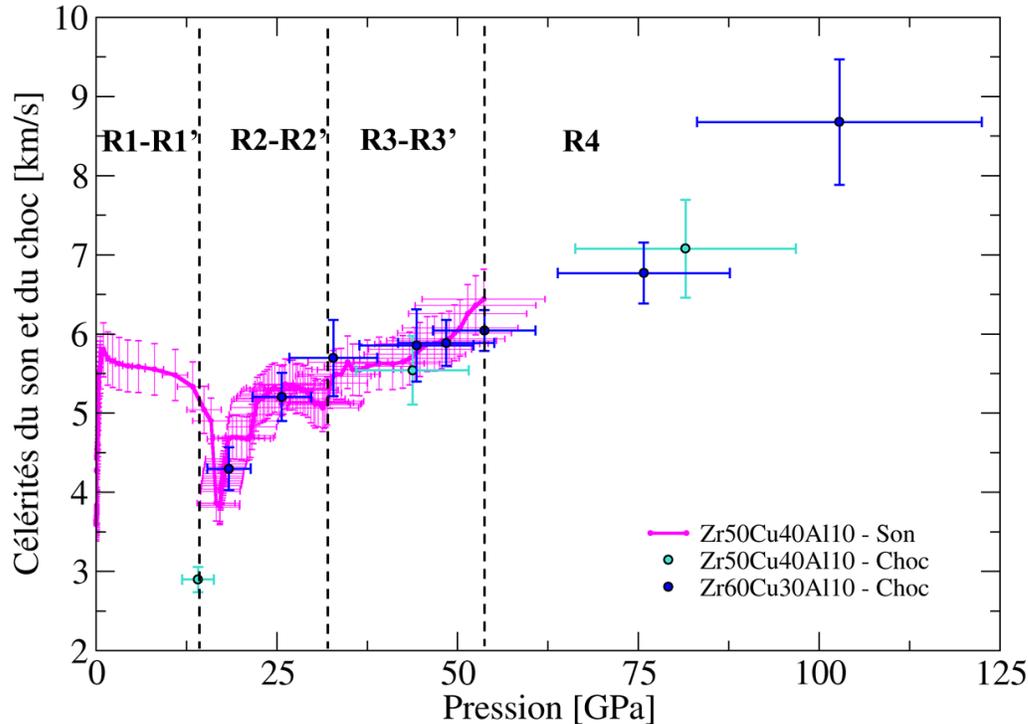


FIGURE 4.10 – Dépendance des célérités du son et de choc en fonction de la pression.

non négligeable de la température. Ainsi, en fonction du nombre de sites de plasticité activés, cette élévation de la température se retrouvera plus ou moins étendue dans le bulk. Connaissant la sensibilité de la viscosité à la température, il est alors tout à fait possible que les régimes R1, R2 et R3 correspondent à des marqueurs de changement de viscosité. Pour ce qui est du passage de R3 à R4, nous ne disposons pas de données sous rampe nous permettant de constater si isentropie et Hugoniot sont confondues.

Pour finir, mettons en perspectives la première hypothèse émise en section 4.2.2 au sujet de l'effet de composition au sein d'un système en fonction de ces derniers résultats.

Naguère, nous avons postulé que l'effet de la composition n'entraînait pas de modifications significatives dans la propagation des ondes de choc dans les régimes R2, R3 et R4. Au regard de la figure 4.8, cette hypothèse se révèle cohérente pour les données sous rampes. Nonobstant la formation d'un choc dans le régime R1 pour le tir 52 sur $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$, les allures en surface libre associées à R2 et R3 des tirs sur $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ se montrent identiques. Il est donc à supposer que la composition n'influence pas significativement la célérité des ondes sonores. Concernant les autres hypothèses, nous ne pouvons les discuter en raison d'un manque de données. Une des perspectives sera donc de réaliser plusieurs tirs sous rampes sur différents systèmes afin de les confirmer ou infirmer. Pour patienter, des éléments de réponse au sujet des régimes pourront être obtenus par la modélisation de l'équation d'état de notre ternaire

ZrCuAl.

4.4 Synthèse

Dans ce chapitre, nous avons exposé les résultats des expériences visant à caractériser l'équation d'état de notre verre métallique ternaire *ZrCuAl* jusqu'à 100 *GPa*. Pour ce faire, nous avons eu recours à deux types de chargement distincts afin d'obtenir à la fois des données relatives à la courbe d'Hugoniot et à une isentrope de compression.

Après confrontation de nos résultats sous chocs avec les données de la littérature, nous avons pu constater une certaine proximité avec celles-ci. Notamment, plusieurs régimes de vitesses ont pu être observés. À partir de ces similitudes, nous avons formulé quatre hypothèses principales quant à la variation de la propagation des ondes de choc dans les verres métalliques base zirconium. Celles-ci se résument telles que :

- La composition au sein d'un système n'induit pas de modifications significatives dans la propagation d'ondes de choc dans les régimes R2, R3 et R4.
- Les différences de compositions entre systèmes occasionnent l'apparition de régimes similaires à des seuils et plages distincts.
- L'effet de composition entre système n'engendre pas de modification dans la variation de la célérité du choc dans les régimes R2 et R3.
- Une dépendance à la composition d'un système se fait ressentir dès l'apparition du régime R4, notamment sur la variation de la vitesse du choc D .

En particulier, nos résultats obtenus sous rampe de compression quasi-isentropique ont renforcé cette première hypothèse. Pour ce qui est des trois autres, davantage d'essais seront requis afin d'attester de leurs validités. Toutefois, nous avons pu constater une certaine cohérence dans le plan $P - u$ entre les points de l'Hugoniot et ceux de l'isentrope de compression, validant ainsi notre démarche expérimentale. Cet important résultat servira de base de construction de futures modèles d'équation d'état et permettra de pousser plus loin l'analyse du comportement sous choc des verres métalliques *ZrCuAl* par le biais de la simulation.

Enfin, pour expliquer l'origine des régimes de vitesses R1 à R4, nous avons envisagé quatre scénarios différents. Ceux-ci sont basés sur la comparaison de la température atteinte sous choc T_{choc} par rapport à la température de fusion sous choc $T_{fusionchoc}$. En fonction du cas de figure, les températures et pressions induites par le passage de l'onde de choc fourniraient des conditions suffisantes à l'apparition de transitions de phases. Dans un avenir proche, une campagne d'essais couplant choc laser et spectroscopie d'absorption aura pour objectif d'identifier l'origine structurale de ces changements de régimes et ainsi éprouver ces quatre scénarios.

Chapitre 5

Équation d'état des verres métalliques : ébauches de modélisation

« Créer, - voilà la grande délivrance de la souffrance, voilà ce qui rend la vie légère. »

| Friedrich Wilhelm Nietzsche (1883 - 1885), *Ainsi parlait Zarathoustra*.

Sommaire

5.1 Équation d'état de Mie-Grüneisen	109
5.2 Mie-Grüneisen référencée à une isotherme	112
5.2.1 Identification des paramètres de construction	112
5.2.2 Construction des potentiels thermodynamiques	116
5.2.3 Étude paramétrique sur K_0 , K'_0 et Γ_0	120
5.2.4 Synthèse sur l'approche de Mie-Grüneisen référencé à une isotherme	124
5.3 Mie-Grüneisen référencée à l'Hugoniot	125
5.4 Synthèse et limitations	130

L'étude expérimentale portant sur l'équation d'état de nos verres métalliques a fourni une quantité importante de résultats, dont certains restent pour l'heure sans explications tangibles. Pour ne citer qu'un exemple, la température induite par le choc constitue un élément clé auquel nous ne pouvons accéder directement par l'expérience, mais dont l'estimation se révélerait cruciale à la compréhension de certains phénomènes. Pour pousser plus loin l'interprétation des résultats, il est possible d'avoir recours à la simulation numérique. Ainsi, nous présentons dans ce chapitre deux modèles d'équation d'état pouvant être implémentés dans des codes de simulation de sorte à reproduire les régimes de propagation des ondes de choc dans les verres métalliques *ZrCuAl*.

5.1 Équation d'état de Mie-Grüneisen

Précédemment, nous indiquions que la résolution des équations de Rankine-Hugoniot nécessitait l'introduction d'une équation supplémentaire. Pour déterminer nos états

sous choc, nous avons alors eu recours à la relation empirique $D = c_0 + su$. En parallèle, nous disposons d'un ensemble de points expérimentaux décrivant ces états. En pratique, il ne nous reste donc plus qu'à nous servir des données expérimentales pour résoudre le système d'équations. Seulement, celui-ci se restreint uniquement aux états atteints sous choc.

Au cours du chapitre 1, nous avons insisté sur la nature hors équilibre thermodynamique des verres et notamment sur l'effet de la température sur leur comportement. De ce fait, la compréhension des régimes de vitesses observés dans les polaires de choc requiert d'étudier l'évolution de variables thermodynamiques et plus précisément celle de la température. Pour ce faire, nous devons être en mesure de modéliser l'ensemble des états thermodynamiques de notre matériau, de sorte à prédire l'évolution des variables d'état sous choc et sous compression isentropique. Une telle modélisation revient donc à établir une Equation d'Etat de notre verre métallique en fonction d'un potentiel thermodynamique.

Dans le domaine des chocs, l'équation d'état de Mie-Grüneisen est réputée pour avoir permis de décrire les états thermodynamiques d'un bon nombre de matériaux métalliques polycristallins et certains poreux [110]. En dépit de la structure amorphe du matériau étudié, nous avons décidé de vérifier si ce modèle lui est adapté. La formulation de Mie-Grüneisen se présente sous la forme suivante :

$$P(v, e) - P_{ref}(v) = \frac{\Gamma(v)}{v} (e - e_{ref}(v)) \quad (5.1)$$

Où P désigne la pression, e l'énergie interne spécifique, v le volume spécifique et Γ le coefficient de Grüneisen. D'après sa définition initiale, ce dernier est censé rendre compte de la dépendance de la fréquence de vibration d'un réseau cristallin au changement de volume. Autrement dit, il exprime l'effet de la température sur la taille de la maille cristalline, soit sur la variation de la pression. Ce paramètre adimensionnel possède donc à la fois un sens microscopique et un sens macroscopique. Il peut être déterminé à partir de la relation suivante :

$$\Gamma = \frac{3\alpha K_S V}{C_p} = \frac{3\alpha K_T v}{C_v} \quad (5.2)$$

Avec α , K_S , K_T , v , C_p et C_v correspondant respectivement au coefficient de dilatation thermique linéaire, le coefficient de compressibilité à entropie constante, le coefficient de compressibilité à température constante, le volume spécifique, la capacité calorifique à pression constante et la capacité calorifique à volume constant. Les paramètres P_{ref} et e_{ref} expriment quant à eux les niveaux de pression et d'énergie interne à un état de référence choisi de volume v identique à $\frac{\Gamma(v)}{v}$.

La construction de cette équation d'état repose finalement sur le choix de l'état de référence. Celui-ci peut par exemple être la courbe d'Hugoniot ou encore une isotherme. Si l'on base la référence sur la courbe de l'Hugoniot, alors la relation (5.1) devient :

$$P(v, e) - P_H(v) = \frac{\Gamma(v)}{\nu} (e - e_H(v)) \quad (5.3)$$

Avec P_H , e_H déterminés par les relations de continuité de Rankine-Hugoniot, notamment grâce à la relation empirique $D = c_0 + su$. Dans cette configuration, la modélisation d'état reviendra majoritairement à déterminer les paramètres c_0 et s à partir des polaires de choc expérimentales.

Alternativement, la relation de Mie-Grüneisen référencée à une isotherme s'écrit :

$$P(v, e) - P_{0K}(v) = \frac{\Gamma(v)}{\nu} (e - e_{0K}(v)) \quad (5.4)$$

Avec l'état 0K faisant référence à l'état thermodynamique au zéro absolu. Pour décrire P_{0K} et e_{0K} il est alors possible de choisir une isotherme. Il existe dans la littérature plusieurs formulations telles les isothermes de Birch [13], Brennan-Stacey [137], Vinet [152], ou encore Hama-Suito [56] s'exprimant :

$$\text{Birch: } P_B(v, T_0) = \frac{3}{2} K_0 [\chi^{-7} - \chi^{-5}] \left[1 + \frac{3}{4} (K'_0 - 4) (\chi^{-2} - 1) \right] \quad (5.5)$$

$$\text{Brennan - Stacey: } P_{BS}(v, T_0) = \frac{3K_0\chi^{-4}}{3K'_0 - 5} \left[\exp \left[\frac{(3K'_0 - 5)(1 - \chi^3)}{3} - 1 \right] \right] \quad (5.6)$$

$$\text{Vinet: } P_v(v, T_0) = 3K_0\chi^{-2}(1 - \chi) \exp \left[\frac{3}{2} (K'_0 - 1)(1 - \chi) \right] \quad (5.7)$$

$$\text{Hama - Suito: } P_{HS}(v, T_0) = 3K_0\chi^{-5}(1 - \chi) \exp \left[\frac{3}{2} (K'_0 - 3)(1 - \chi) + \left[\xi - \frac{3}{2} \right] (1 - \chi)^2 \right] \quad (5.8)$$

Où $\chi = \frac{v}{v_0}^{\frac{1}{3}}$ et $\xi = \frac{3}{8}(K'_0 - 1)(K'_0 + 3) - \frac{3}{5}K'_0{}^2 + \frac{1}{5}$, avec K'_0 et K_0 correspondant respectivement au module de compressibilité isotherme et sa dérivée première par rapport à la pression à volume constant. Contrairement à l'équation (5.4), ces isothermes ne sont pas exprimées à l'état 0K mais un état 0 de référence à partir duquel l'isotherme a été établie où T_0 peut être différent du zéro absolu. En pratique, il n'est pas simple de mesurer expérimentalement les paramètres K'_0 et K_0 au zéro absolu. Il est alors possible d'écrire la relation de Mie-Grüneisen à l'état de référence 0 et non plus 0K :

$$P(v, E) - P_0(v) = \frac{\Gamma(v)}{\nu} (e - e_0(v)) \quad (5.9)$$

Avec cette modélisation, il est usuel de distinguer la contribution froide – explicitée par l'isotherme – de la contribution thermique – donnée par le coefficient de Grüneisen. L'obtention de ces deux contributions passera nécessairement par la mesure expérimentale des paramètres K_0 , K'_0 , α et c_v .

5.2 Mie-Grüneisen référencée à une isotherme

Classiquement, cette approche consiste à choisir une phase à l'équilibre thermodynamique sur laquelle baser l'isotherme. Ensuite, le modèle de Mie-Grüneisen est construit à partir des paramètres K_0 , K'_0 , α , c_v , P_0 , v_0 et T_0 de la phase associée. Par la suite, les transitions de phases sont gérées par le calcul de l'enthalpie libre G . Parmi les phases possibles, la phase existante après transition correspond à celle disposant du niveau d'enthalpie libre le plus faible après retour à l'équilibre thermodynamique [104, 16].

Dans le cas qui nous intéresse, nous disposons d'un matériau initialement hors équilibre thermodynamique, présentant potentiellement plusieurs phases solides. Bien que celles-ci ne soient pas clairement identifiées, la démarche voudrait que nous construisions le modèle pour chacune des phases potentielles. Une alternative serait de considérer qu'il n'existe pas de discontinuité entre la phase liquide et la phase amorphe. Dans ce dernier cas, l'équation d'état serait identique à celle de la phase liquide. Les changements de régimes R1 à R4 se traduiraient alors par une variation de la capacité calorifique.

Le sujet étant loin d'être évident à aborder, nous présenterons dans cette section les résultats de la démarche généralement adoptée pour construire une équation d'état de Mie-Grüneisen référencée à une isotherme. Bien entendu ceux-ci sont à prendre avec beaucoup de précaution compte tenu de la nature même des verres et des hypothèses sur lesquelles est basée cette modélisation.

5.2.1 Identification des paramètres de construction

La première étape consiste à rassembler les paramètres requis à la construction des potentiels thermodynamiques. Parmi ceux-ci, le coefficient de Grüneisen Γ , le module de compressibilité isotherme K_0 et sa dérivée première par rapport à la pression à volume constant K'_0 , sont les paramètres les plus critiques à la construction des contributions froide et thermique.

D'après l'équation (5.2), nous avons vu que le coefficient de Grüneisen était défini en fonction du coefficient de dilatation linéaire, de la capacité calorifique à volume constant et du module de compressibilité isotherme. Dans la littérature, il a été rapporté que ce coefficient évoluait en fonction de la température dans les verres métalliques, notamment aux abords de la température de transition vitreuse [83]. Pour nos verres, nous ne disposons pas de l'évolution de la dilatation linéaire en fonction de la température. Néanmoins, il a été rapporté par Kato et al [83] que celui d'un verre métallique $Zr_{55}Cu_{30}Al_{10}Ni_5$ était égal à $11,3 \cdot 10^{-6} K^{-1}$ à température ambiante.

En ce qui concerne la capacité calorifique à volume constant, aucune étude dans la littérature ne fait état de la variation du C_v en fonction de la température pour notre

ternaire. Cependant, plusieurs études ont été menées sur l'évolution de la capacité calorifique à pression constante C_p moins compliquée à obtenir pour les solides. A partir de la relation de Mayer généralisée, il est possible de montrer que les capacités calorifiques à volume constant et pression constante dans les solides sont très proches l'une de l'autre :

$$C_p - C_v = T \left[\frac{\partial P}{\partial T} \right]_V \left[\frac{\partial V}{\partial T} \right]_P = TV\alpha^2 K_T \quad (5.10)$$

A partir des données recueillies Wang et al [157] et He et al [61] sur un verre métallique $Zr_{41,2}Ti_{13,8}Cu_{12,5}Ni_{10}Be_{22}$ (cf. tableau 5.1), la relation (5.10) devient :

$$c_p - c_v = TV\alpha^2 K_T = 300 \times \frac{1}{6125} \times (9,9 \cdot 10^{-6})^2 \times 114,1 \cdot 10^9 \approx 0,55 J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1} \quad (5.11)$$

Avec c_p , c_v et v , les capacités calorifique massique à pression constante, volume constante et le volume spécifique. Comparativement à l'ordre de grandeur du c_p pour les solides ($\approx 10^2 J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$), cette valeur est de plus de deux ordre de grandeur inférieure à celui-ci. Pour cette raison, l'approximation $c_p \approx c_v$ peut être utilisée pour les solides.

Ainsi, les travaux de Jiang et al [77] ont montré que pour un ternaire $Zr_{46}Cu_{46}Al_8$, très proche des compositions considérées dans cette étude, le c_p de la phase amorphe était identique à celle de la phase cristalline jusqu'à atteindre la température de transition vitreuse. Au-delà de la T_g , on sort de l'état solide vitreux pour se retrouver dans l'état de liquide visqueux, la phase amorphe commence à se relaxer ce qui entraîne une hausse de la capacité calorifique c_p (cf. Fig. 5.1) correspondant à l'état liquide classique. Avant la température de transition vitreuse, la valeur du c_p voisine les 25 $Jmol^{-1}K^{-1}$, ce qui est en accord avec les données rapportées par Kanomata et al [81] sur un $Zr_{65}Cu_{27,5}Al_{7,5}$ et Kato et al [83] sur $Zr_{55}Cu_{30}Al_{10}Ni_5$. Une fois la T_g dépassée, Kanomata et al ont déduit de leurs données expérimentales que l'enthalpie de la zone de liquide surfondu diminue plus lentement que son entropie, expliquant l'augmentation du c_p vers une valeur de 45 $Jmol^{-1}K^{-1}$. Bien entendu, pour appréhender au mieux le comportement à hautes températures et pressions de nos compositions dans notre modélisation, il serait nécessaire d'effectuer des mesures de c_p au-delà de la T_g . Néanmoins, faute de mesures disponibles de c_p dans la littérature pour des températures dépassant les 800 K, nous décidons de faire l'hypothèse que la capacité calorifique c_p reste constante et égale à 45 $Jmol^{-1}K^{-1}$ soit 612 $Jkg^{-1}K^{-1}$ au-dessus de la T_g .

Pour ce qui est des valeurs de K_0 et K'_0 , nous y avons accès soit expérimentalement, soit via la littérature. La valeur du module de compressibilité isotherme peut être calculée à partir des modules d'élasticité déduits des mesures par échographie ultrasonore à température ambiante :

$$K_{0,300K} = \frac{E}{3(1-2\nu)} \quad (5.12)$$

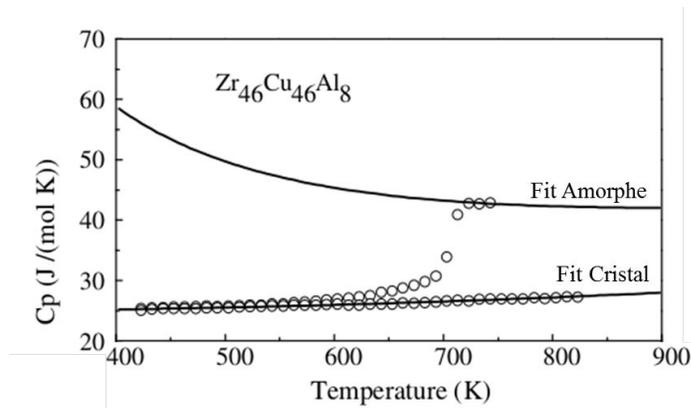


FIGURE 5.1 – Variation de la capacité calorifique à pression constant d'un verre métallique $Zr_{46}Cu_{46}Al_8$ en fonction de la température. La température de transition vitreuse pour cette nuance se situe à 588 K.

En appliquant cette relation à partir de nos données expérimentales, nous obtenons respectivement des modules de compressibilité isotherme de 113 *GPa* et 109 *GPa* pour les compositions $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$. À partir des valeurs de e et ν rapportées par Yokoyama et al [169] sur ces mêmes compositions, des modules de compressibilité de 107 *GPa* et 105 *GPa* sont trouvés. En comparant ces données à celles de la littérature sur d'autres compositions, on retrouve une cohérence dans les ordres de grandeur. A partir de leurs mesures sur le coefficient de dilatation thermique, Kato et al [83] ont calculé un module de compressibilité à l'ambiante de 113 *GPa* sur un $Zr_{55}Cu_{30}Al_{10}Ni_5$. En utilisant la relation (5.12), Jiang et al [77] ont déterminé de leurs mesures par échographie ultrasonore une valeur de module de compressibilité isotherme égale à 121,6 *GPa* sur un $Zr_{46}Cu_{46}Al_8$. Concernant la dérivée première de ce module par rapport à la pression à volume constant, Wang et al [157] ont rapporté une série de valeurs pour plusieurs compositions de verres métallique base *Zr*. De leur étude d'équation d'état à basse pression ($P < 2$ *GPa*) – aussi effectuée par une méthode ultrasonique – il en est ressorti que le K'_0 se situait autour de 4. Le tableau 5.1 rassemble l'ensemble des données nécessaires à la construction des potentiels thermodynamiques.

TABLE 5.1 – Paramètres de construction des potentiels thermodynamiques à l'ambient. * Valeurs calculées à partir de l'équation (5.2) et des données de la littérature concernant α_{300K} et c_{p300K} .

Composition	ρ_0 [$kg.m^{-3}$]	α_{300K} [$10^{-6}.K^{-1}$]	c_{p300K} [$J.kg^{-1}.K^{-1}$]	c_{pTg} [$J.kg^{-1}.K^{-1}$]	$K_{0,300K}$ [GPa]	$K'_{0,300K}$ [–]	Γ_0 [–]
$Zr_{55}Cu_{30}Al_{10}Ni_5$ [83]	6790	11,3					
$Zr_{46}Cu_{46}Al_8$ [77]	7021		340	612			
$Zr_{41,2}Ti_{13,8}Cu_{12,5}Ni_{10}Be_{22,5}$ [157, 61]	6125	9,9			114,1	4,06	1,25 – 1,85
$Zr_{48}Nb_8Cu_{12}Fe_8Be_{24}$ [157]	6436				113,6	4,1	1,84
$Zr_{50,6}Ti_5Cu_{18,9}Ni_{11,2}Al_{14,3}$ [157]	6608				112,6	4,34	1,95
$Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ [169]	6809				107–113		1,65*
$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ [169]	6581				105–109		1,65*

5.2.2 Construction des potentiels thermodynamiques

Dorénavant, nous possédons les différents paramètres nous permettant de construire nos potentiels thermodynamiques. Toutefois, ceux-ci ont été obtenus à température ambiante, ce qui n'est pas sans nous handicaper. En effet, à chaque phase identifiée correspond un set de paramètres retranscrivant l'état de la matière. En supposant l'existence de plusieurs phases solides – comme avancé par Togo et al et Martin et al – il est peu probable que les paramètres du tableau 5.1 soient adaptés aux phases apparaissant sous pression. Pour cette raison, nous allons dans cette section nous contenter de modéliser la phase solide de notre ternaire $ZrCuAl$ à partir des paramètres obtenus à l'ambiant, en supposant qu'ils restent constants malgré l'élévation de la température, et l'absence de transition de phase.

Pour construire nos potentiels thermodynamiques, repartons de l'équation de Mie-Grüneisen 5.9. La modélisation référencée à l'isotherme doit pouvoir vérifier la courbe d'Hugoniot telle que :

$$P_H(v) - P_F(v, T_0) = \frac{\Gamma(v)}{v} (e_H(v) - e_F(v, T_0)) \quad (5.13)$$

Avec P_H , e_H et v se rapportant respectivement à la pression, l'énergie interne à l'Hugoniot, et P_F et e_F se rapportant à l'isotherme à 300 K. En remplaçant e_H dans 5.13, par son expression donnée par l'équation de conservation de l'énergie 2.12 des relations de Rankine-Hugoniot, il est alors possible d'exprimer P_H telle que :

$$P_H(v) = \frac{1}{1 - \frac{\Gamma(v)}{2v}(v_0 - v)} \left[P_F(v) + \frac{\Gamma(v)}{v} (e_0 - e_F(v)) + \left[\frac{v_0 - v}{2} \right] P_0 \right] \quad (5.14)$$

En faisant l'hypothèse que $\frac{\Gamma(v)}{v} = \frac{\Gamma_0}{v_0}$ est constant pour une phase, on aboutit à une forme simplifiée telle que :

$$P_H(v) = \frac{2v_0}{2v_0 - \Gamma_0(v_0 - v)} \left[P_F(v) + \frac{\Gamma_0}{v_0} (e_0 - e_F(v)) + \left[\frac{v_0 - v}{2} \right] P_0 \right] \quad (5.15)$$

L'expression de $P_F(v)$ est donnée par une des formulations des isothermes (5.5) – (5.8) et $e_F(v)$ peut s'écrire à l'isotherme sous la forme :

$$e_F(v) = f_F(v) + T_0 s_F(v, T_0) \quad (5.16)$$

Avec $f_F(v)$, T_0 et $s_F(v, T_0)$ représentant respectivement l'énergie libre massique de la contribution froide, la température à 300 K et l'entropie massique de la contribution froide. Pour déterminer l'expression de, il suffit de repartir de la forme de la différentielle de l'énergie libre :

$$df = -Pdv - sdT \quad (5.17)$$

L'énergie libre $f(v, T)$ peut alors s'écrire :

$$f(v, T) = f(v_0, T_0) - \int_{v_0}^v \int_{T_0}^T (Pdv + sdT) \quad (5.18)$$

Par définition, le potentiel $f(v, T)$ est une fonction d'état, autrement dit le calcul de son intégrale ne dépendra pas du chemin suivi mais uniquement des états initiaux et finaux. Nous pouvons donc décomposer le chemin thermodynamique en une transformation isotherme à température T_0 faisant passer le volume de v_0 à v et en une transformation isochore de volume v faisant passer la température de T_0 à T . L'équation (5.18) devient :

$$f(v, T) = f(v_0, T_0) - \int_{v_0}^v (Pdv + sdT)_{T_0} - \int_{T_0}^T (Pdv + sdT)_v \quad (5.19)$$

Qui une fois simplifiée résulte en :

$$f(v, T) = f(v_0, T_0) - \int_{v_0}^v P(v, T_0)dv - \int_{T_0}^T s(v, T)dT \quad (5.20)$$

Le terme $P(v, T_0)$ se rapporte à l'évolution de la pression pour une isotherme donnée, soit à la pression froide. Par conséquent, $f_F(v)$ s'écrira sous la forme :

$$f_F(v, T_0) = f(v_0, T_0) - \int_{v_0}^v P_F(v, T_0)dv \quad (5.21)$$

Pour expliciter complètement e_F , nous devons nous pencher sur la définition de l'entropie $s_F(v, T_0)$. À partir des dérivées du premier et du second ordre de l'énergie libre :

$$\left(\frac{\partial f}{\partial T}\right)_v = -s \quad (5.22)$$

$$\left(\frac{\partial f}{\partial v}\right)_T = -P \quad (5.23)$$

$$\left(\frac{\partial^2 f}{\partial T^2}\right)_v = -\left(\frac{\partial s}{\partial T}\right)_v = -\frac{c_v}{T} \quad (5.24)$$

$$\frac{\partial^2 f}{\partial T \partial v} = \frac{\partial^2 f}{\partial v \partial T} = -\left(\frac{\partial s}{\partial v}\right)_T = -\left(\frac{\partial P}{\partial T}\right)_v = -\frac{\Gamma(v)}{v} c_v \quad (5.25)$$

Il est possible de déterminer une forme différenciée de l'entropie telle que :

$$ds = \left(\frac{\partial s}{\partial v}\right)_T dv + \left(\frac{\partial s}{\partial T}\right)_v dT \quad (5.26)$$

De même que pour $f(v, T)$, l'entropie est une fonction d'état donc son calcul ne dépend pas du chemin suivi. Par conséquent, nous décomposons le chemin thermodynamique en une transformation isochore et une transformation isotherme. L'entropie s'exprime alors :

$$s_F(v, T) = s(v_0, T_0) + \int_{v_0}^v \int_{T_0}^T \left(\frac{c_v}{T} dT + \frac{\Gamma(v)}{v} c_v dV \right) = s(v_0, T_0) + \int_{T_0}^T \frac{c_v}{T} dT + \int_{v_0}^v \frac{\Gamma(v)}{v} c_v dv \quad (5.27)$$

En postulant $c_v = c_{v_0}$ et $\frac{\Gamma(v)}{v} = \frac{\Gamma_0}{v_0}$, l'expression de l'entropie s revient à :

$$s_F(v, T) = s(v_0, T_0) + \frac{\Gamma_0}{v_0} c_{v_0} (v - v_0) \quad (5.28)$$

Finalement, il ne reste plus qu'à remplacer dans l'équation 5.16 les expressions de $f_F(V)$ et $s_F(v, T)$:

$$e_F(v) = f(v_0, T_0) + T_0 s(v_0, T_0) - \int_{v_0}^v P_F(v, T_0) dv + T_0 \frac{\Gamma_0}{v_0} c_{v_0} (v - v_0) \quad (5.29)$$

Avec $e_0(v, T_0) = f(v_0, T_0) + T_0 s(v_0, T_0)$. En réinjectant l'équation (5.29) dans l'équation (5.15), nous pouvons tracer nos surfaces d'états pour différentes formulations d'isothermes. Une fois la pression P_H et l'énergie interne e_H déterminées par ce modèle, on utilise les équations de conservation 2.10 à 2.12 pour déterminer la vitesse matérielle u et la célérité de l'onde de choc D_{01} associées, telles que :

$$D_{01} = u_0 \cdot \frac{v_1}{v_1 - v_0} - u_1 \cdot \frac{v_0}{v_1 - v_0} \quad (5.30)$$

et

$$-u_1^2 \left[\frac{v_0}{v_1 - v_0} \right] + u_1 \left[\frac{u_0 v_1}{v_1 - v_0} \right] - u_0 \left[\frac{u_0 v_1 - u_1 v_0}{v_1 - v_0} \right] - (P_H - P_0) v_0 = 0. \quad (5.31)$$

La figure 5.2 rassemble les données obtenues par le modèle de Mie-Grüneisen référencé à 300 K selon les isothermes de Birch, Brennan-Stacey, Vinet et Hama-Suito. Ces données sont comparées aux résultats expérimentaux de l'Hugoniot dans les plans $D - u$ et $P - u$.

Les valeurs calculées par chacun des modèles ne diffèrent que très légèrement d'une formulation d'isotherme à l'autre sur le domaine de pression considéré. En effet, le nombre de points expérimentaux allié à un domaine de pressions relativement réduit ne permet pas de mettre en avant de flagrantes différences entre les formulations de Birch, Brennan-Stacey, Vinet ou encore Hama-Suito.

Avec le jeu de paramètres basé sur les données du tableau 5.1 issues de la littérature ($K_0 = 110 \text{ GPa}$; $K'_0 = 4$; $\Gamma_0 = 1,65$, $f_0 = 0 \text{ J.kg}^{-1}$, $s_0 = 0 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$, $c_{v_0} = 340$

$J.kg^{-1}.K^{-1}$), le modèle de Mie-Grüneisen référencé aux isothermes ne semble en mesure de reproduire que les points de l'Hugoniot associé au régime R3. Dans le diagramme $D - u$, les célérités d'ondes de choc sont raisonnablement approchées par le modèle dans le régime R3 au regard des incertitudes de mesure de 15 %. En dehors, des différences sont observées. Dans le diagramme $P - u$, les basses pressions calculées par le modèle apparaissent proches des données expérimentales.

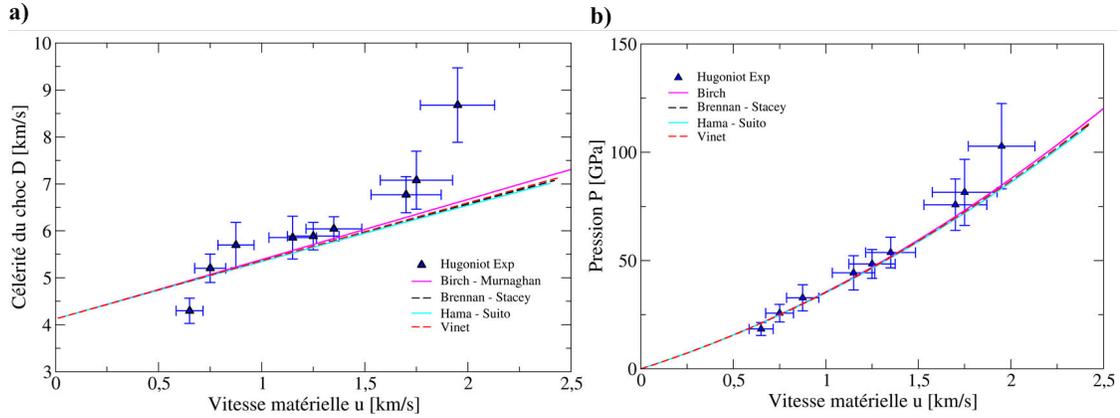


FIGURE 5.2 – Confrontation des résultats prédits par le modèle de Mie-Grüneisen référencé aux isothermes de Birch- (bleu), de Brennan-Stacey (noir discontinu), Hama-Suito (bleu ciel) et Vinet (rouge discontinu) aux données expérimentales de la campagne LULI2000, pour $K_0 = 110 \text{ GPa}$; $K'_0 = 4$; $\Gamma_0 = 1,65$, $f_0 = 0 \text{ J.kg}^{-1}$, $s_0 = 0 \text{ J.kg}^{-1}.K^{-1}$, $c_{v_0} = 340 \text{ J.kg}^{-1}.K^{-1}$.

Ce constat était à prévoir compte tenu des allures de vitesses observées dans ces deux plans. Toutefois, il est étonnant que ces paramètres de constructions obtenus à l'ambiante puissent permettre au modèle de reproduire le régime R3 apparaissant autour de 30 GPa . À partir de cette observation, nous sommes en mesure de postuler un avis contraire à celui émis par Togo et al et Martin et al. En effet, la modélisation que nous avons effectuée se base uniquement sur une approche hydrodynamique ignorant tout comportement élasto-plastique. En partant de ce principe, la capacité de ce modèle à reproduire R3 pourrait signifier que ce domaine soit purement hydrodynamique. Dans ce cas, les régimes R1 et R2 seraient dus au comportement élasto-plastique de notre ternaire. Dans cette optique, les verres métalliques $ZrCuAl$ pourraient alors être modélisés par une équation d'état de Mie-Grüneisen référencée à une isotherme à 300 K , auquel il serait possible de coupler une loi de comportement élasto-plastique tenant compte des effets d'adoucissement. Ce n'est que par la simulation numérique qu'il sera possible d'attester de la pertinence de cette modélisation.

Une alternative reviendrait à suivre les conclusions de Togo et al et Martin et al, en modélisant les régimes R2, R3 et R4 comme étant des phases distinctes. Dans ce cas, les jeux de paramètres permettant de construire nos potentiels thermodynamiques doivent pouvoir être mesurés expérimentalement ou bien déduits par la modélisation. Dans la prochaine section, nous présentons une étude paramétrique sur K_0 , K'_0 et Γ_0 afin d'attester s'il est possible de reproduire les données expérimentales avec cette ap-

proche. À la vue des faibles divergences entre les résultats obtenus pour chacune des formulations d'isothermes, nous décidons de réduire notre étude paramétrique à un seul cas, à savoir l'isotherme de Birch.

5.2.3 Étude paramétrique sur K_0 , K'_0 et Γ_0

L'influence du module de compressibilité isotherme K_0 est décrite dans les plans $D - u$ et $P - u$ des figures 5.3 (a) et (b) pour des valeurs s'étalant de 0 à 189 GPa. L'augmentation de K_0 entraîne un accroissement conséquent de la célérité du choc, et plus particulièrement pour des vitesses matérielles faibles (cf. Fig. 5.3 (a)). Cette observation est cohérente avec la définition même de la vitesse du son. Globalement, cela se traduit par un décalage vertical dans le plan $D - u$. Ce gain sur D se répercute sur la courbure du profil de polaire $P - u$ à basses pressions – qui s'en retrouve augmenté – à laquelle s'ajoute un décalage vertical pour les pressions élevées (cf. Fig. 5.3 (b)). Le module K_0 va donc jouer sur la pente à basse pression et sur le niveau de célérité D de départ.

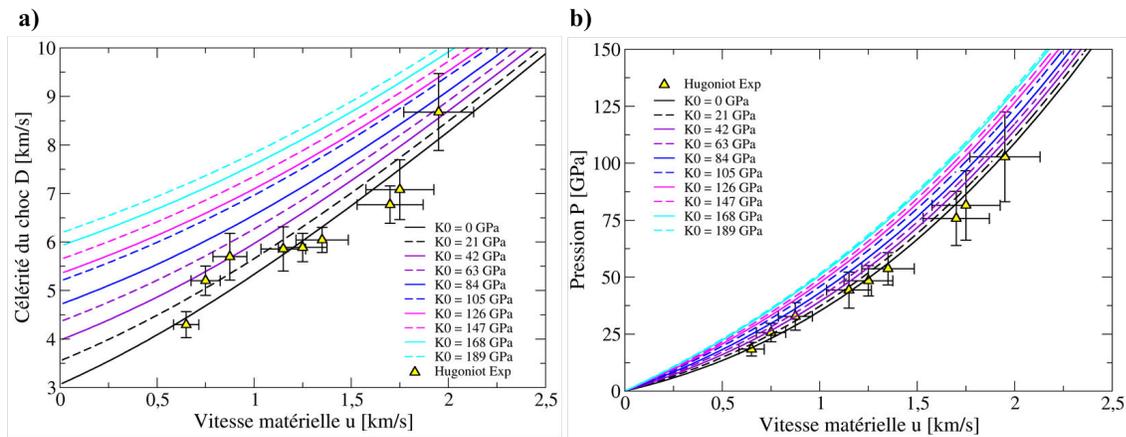


FIGURE 5.3 – Influence du coefficient de compressibilité isotherme K_0 sur l'évolution du modèle dans les plans $D - u$ (a) et $P - u$ (b). Ce paramètre modifie significativement le niveau de vitesse du choc initial (a) et la pente de la courbe à basse pression (b).

Au contraire, en faisant varier K'_0 il est possible d'agir plus particulièrement sur la courbure de la polaire $P - u$ à moyennes et hautes pressions/vitesses matérielles (cf. Fig. 5.4). Semblablement à K_0 , la pente à basse pression est aussi ajustable via sa dérivée première K'_0 . Ces deux paramètres se révèlent donc cruciaux quant à l'évolution de la pression depuis l'état de référence choisi. L'objectif sera donc de conserver les valeurs expérimentales obtenues à l'ambiant et à l'état de repos de sorte à refléter au mieux la réalité. Néanmoins, comme l'illustrent les figures 5.3 et 5.4, ils ne sont pas en mesure de modifier significativement l'allure à basses pressions et vitesses matérielles, empêchant ainsi de reproduire le régime R2.

Enfin, le paramètre de Grüneisen à l'état de référence Γ_0 induit une modification sur l'évolution de D et P similaire à un combiné de K_0 et K'_0 . En effet, sur la figure

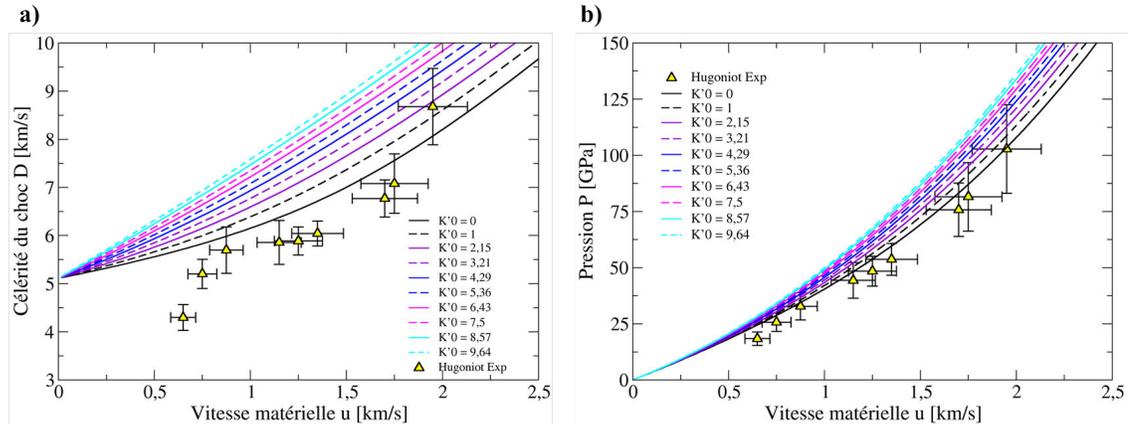


FIGURE 5.4 – Influence de la dérivée première du coefficient de compressibilité isotherme K'_0 sur l'évolution du modèle dans les plans $D-u$ (a) et $P-u$ (b). Ce paramètre permet d'introduire une courbure dans l'évolution de la vitesse du choc et de la pression pour les moyennes et hautes pressions.

5.5 nous pouvons distinguer que son augmentation se traduit par l'augmentation de la courbure à hautes pressions. Autre effet connexe visible dans le plan $D-u$ de la figure 5.5 (a) : un décalage vertical positif des vitesses de choc lorsque augmente d'autant plus prononcé que la vitesse matérielle augmente.

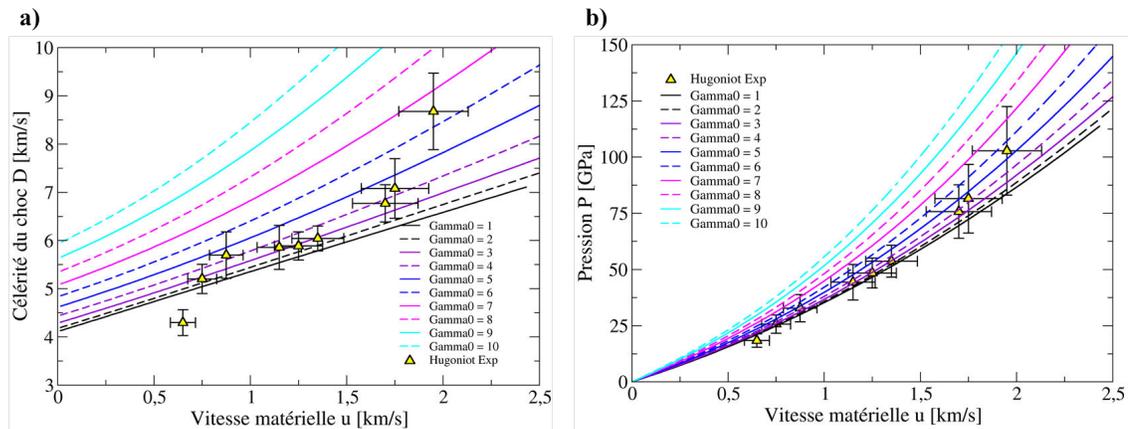


FIGURE 5.5 – Influence du paramètre de Grüneisen Γ_0 sur l'évolution du modèle dans les plans $D-u$ (a) et $P-u$ (b). Le niveau initial du choc se voit modifié par ce dernier ainsi que la courbure de la variation de vitesse du choc et de pression à moyennes et hautes pressions.

En étudiant séparément chacun des coefficients intervenant dans le modèle, nous avons pu isoler l'effet de chacun d'entre eux. La prochaine étape consiste à déterminer s'il existe un jeu de coefficients à même de reproduire la courbe d'Hugoniot expérimentale. Étant au fait de ruptures d'allures marquées entre chacun des régimes, il est impossible de déterminer une unique configuration à même de restituer toute l'Hugoniot.

Pour y pallier, nous avons opté de nouveau pour un découpage de l'Hugoniot en trois zones. Des sets de paramètres ont été déterminés pour les régimes R2, R3 par une méthode d'approximation non-linéaire basée sur l'algorithme « Generalized Reduced Gradient » développé par Leon Lasdon et al [89]. Le régime R4 pour sa part n'a malheureusement pas pu être approché par cette modélisation. Pour rappel, le calcul de la contrainte sous choc se fait dans le cadre d'une approche purement hydrodynamique.

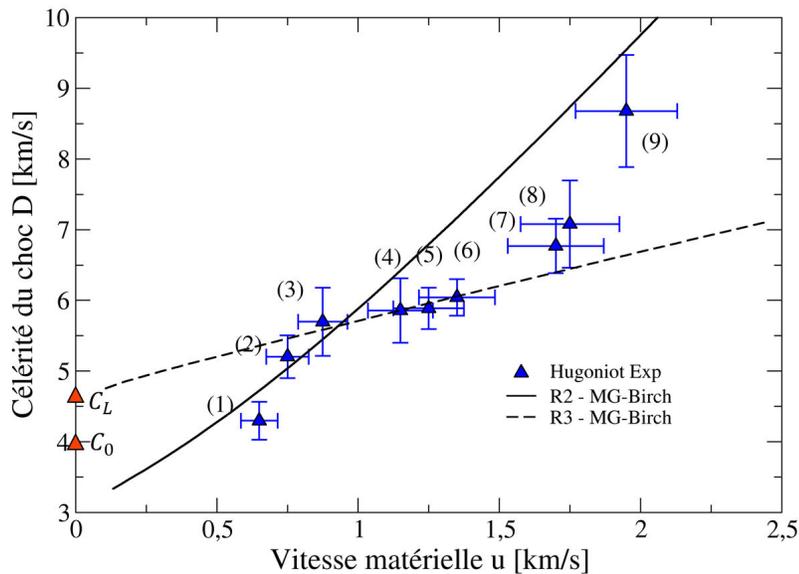


FIGURE 5.6 – Polaire $D - u$ illustrant le modèle d'équation d'état de Mie-Grüneisen référencé à une isotherme de Birch pour les régimes R2 et R3.

Les figures 5.6 et 5.7 illustrent l'évolution du modèle pour les régimes R2 et R3 dans les plans $D-u$ et $P-u$ selon deux jeux de paramètres résumés dans le tableau 5.2. Les différentes courbes ont été obtenues en contraignant la valeur de cv_0 à la valeur de la littérature et en faisant varier les autres paramètres K_0 , K'_0 , Γ_0 , f_0 et s_0 . Dans le plan $D-u$, le modèle R2 ne reproduit qu'avec peu de satisfaction les points expérimentaux. Bien que les valeurs calculées par le modèle se retrouvent dans les barres d'erreur des points (2) et (3), elles restent malgré tout distantes du point (1). Bien entendu, le manque de points expérimentaux ne permet pas de discriminer complètement si le modèle n'est pas réellement en mesure de reproduire correctement les basses vitesses. De plus, l'ordonnée à l'origine apparaît bien en-dessous de la célérité du son au repos. En principe, la modélisation devrait pouvoir prédire une célérité de l'onde de choc tendant vers celle de l'onde acoustique au repos. À ces écarts s'ajoutent les valeurs de K_0 , K'_0 et Γ_0 déterminés par l'algorithme d'approximation bien différentes de celles de l'ambiant. Pour reproduire la variation de la célérité du choc à partir de $4,2 \text{ km.s}^{-1}$, le module de compressibilité a dû être abaissé à $9,3 \text{ GPa}$ et celui de sa dérivée première par rapport à la pression à 0. Le coefficient de Grüneisen a quant à lui été amené à 8,9. L'abaissement du module de compressibilité n'est pas chose étonnante lorsque l'on remet en perspective l'éventuel phénomène d'adoucissement se produisant une fois la limite élastique dépassée. Pour ce qui est du K'_0 , l'étude paramétrique nous a permis de mettre en

évidence qu'une valeur proche de 0 permettait d'avoir une évolution quasi constante de la célérité du choc pour de basses vitesses matérielles. Il n'est donc pas surprenant que sa valeur ait été ramenée à 0. Dans cet esprit, il n'est « en principe » pas si étonnant d'observer un coefficient de Grüneisen si élevé. Toujours d'après l'étude paramétrique, la figure 5.5 nous a montré que celui-ci jouait directement sur la variation de la célérité du choc D . Compte tenu de la très rapide variation de celle-ci dans R2, l'algorithme d'optimisation n'a eu d'autre moyen que d'accroître la valeur de Γ_0 . Seulement, elle dépasse très largement les valeurs généralement rapportée pour les verres métalliques, ainsi que celles de la majorité des matériaux métalliques [110]. Reste donc à savoir si une telle modélisation a un sens pour ce régime.

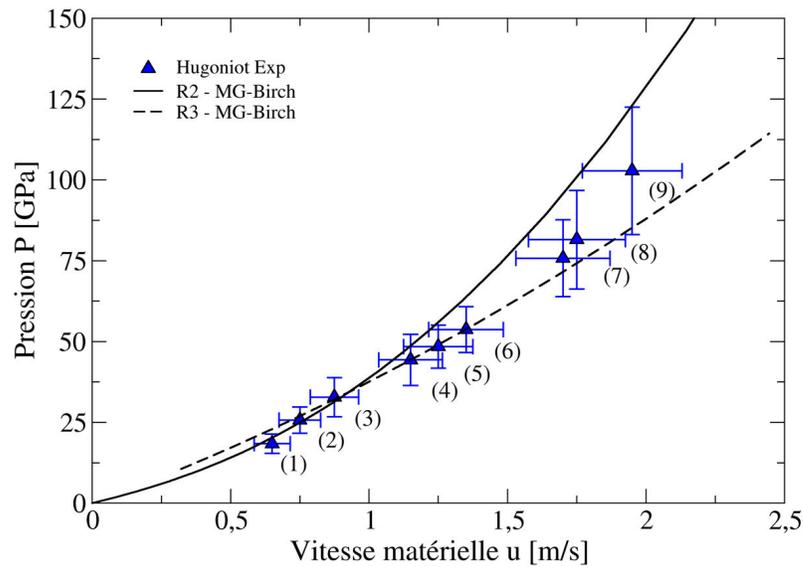


FIGURE 5.7 – Polaire $P - u$ illustrant le modèle d'équation d'état de Mie-Grüneisen référencé à une isotherme de Birch pour les régimes R2 et R3.

Concernant R3, les points (3) à (6) sont relativement bien reproduits par le modèle. Ce constat était à prévoir étant donné que les données issues de la littérature permettaient de reproduire spécifiquement ce régime. En examinant les données du tableau 2, les données obtenues diffèrent beaucoup moins de celles de la littérature que pour R2. Les coefficients K'_0 et Γ_0 jouant directement sur la pente de l'évolution de la célérité du choc, leur valeur se retrouve abaissée afin de pouvoir reproduire plus précisément le pseudo-plateau caractérisant R3. C'est aussi la raison pour laquelle K_0 se retrouve élevée, qui a priori se manifeste à des niveaux de pression plus élevés. En admettant que pour ce régime de pression – apparaissant au-delà de 30 GPa – tous les mécanismes de plasticité, tels la génération de bandes de cisaillement ou bien la densification, ont été activés à plus faibles pressions, alors il apparaît cohérent d'observer une augmentation de K_0 avec la pression. Étant donné que ce coefficient rend compte de la variation du volume en fonction de la pression à température constante, il n'est pas étonnant de voir sa valeur augmenter lorsque le matériau se retrouve compressé.

TABLE 5.2 – Paramètres du modèle de Mie-Grüneisen référencé à l'isotherme de Birch. ρ_0 , u_0 , P_0 , K_0 , K'_0 , Γ_0 , c_{v_0} , T_0 , f_0 , s_0 représentent respectivement la pression, la vitesse matérielle, le coefficient de compressibilité isotherme et sa dérivée première, le paramètre de Grüneisen, la capacité calorifique, la température, l'énergie libre et l'entropie pour un état de référence choisi.

Paramètres	R2	R3
ρ_0 [$kg.m^{-3}$]	6580	6580
u_0 [$km.s^{-1}$]	0	0
P_0 [GPa]	0	0
K_0 [GPa]	9,29	145,71
K'_0 [-]	0	3,05
Γ_0 [-]	8,92	0,8
c_{v_0} [$J.kg^{-1}.K^{-1}$]	340	340
T_0 [K]	300	300
f_0 [$J.kg^{-1}$]	0	0
s_0 [$J.kg^{-1}.K^{-1}$]	0	0

5.2.4 Synthèse sur l'approche de Mie-Grüneisen référencé à une isotherme

Finalement, que faut-il retenir de cette ébauche de modélisation par Mie-Grüneisen référencé à une isotherme ? Tout d'abord, le faible nombre de points de la courbe d'Hugoniot ne nous a pas permis de discriminer si un modèle d'isotherme prévalait sur les autres. Ensuite, nous avons pu constater que les données de la littérature – nous permettant de construire les potentiels thermodynamiques – restituaient étonnamment bien le régime R3. Souhaitant suivre les conclusions apportées par Togo et al et Martin et al, nous avons décidé de chercher des sets de coefficients permettant de reproduire notre courbe d'Hugoniot expérimentale pour chacun des régimes. Nous nous sommes alors confrontés à des valeurs peu convaincantes pour le régime R2 et l'absence totale d'approximation de R4 par ce modèle. Une fois de plus, seul R3 a pu être reproduit de manière satisfaisante par cette approche.

Au cours de la construction de ce modèle, nous avons émis plusieurs hypothèses dont $c_v = c_{v_0} = cst$ et $\frac{\Gamma(v)}{v} = \frac{\Gamma_0}{v_0} = cst$ auxquelles s'ajoutent des formulations d'isothermes qui ne permettent pas de restituer des phénomènes de transition vitreuse ou de densification. De par la présence d'une température de transition vitreuse, de cristallisation et de l'effet de la température sur l'évolution du c_p , et des hypothèses simplificatrices formulées, il n'est finalement pas aussi évident de restituer les données sous choc en se basant uniquement sur une isotherme ne rendant pas compte des phénomènes thermo-activés et du simple coefficient de Grüneisen. Ne disposant ni d'un diagramme de phase pression-température, ni de l'évolution du c_p avec la température, il n'est donc pas étonnant d'avoir rencontré autant de difficultés à modéliser l'équation d'état de notre ternaire par cette approche. Malgré cela, l'étonnante restitution de R3 par ce modèle pourrait nous apporter des pistes de réflexions quant à la nature des ré-

gimes R2 et R3.

En supposant le régime R3 comme purement hydrodynamique, il serait alors possible de modéliser notre verre métallique sans postuler l'existence de transitions de phases solides-solides. Ainsi, nous nous affranchirions des problèmes liés au calcul de l'enthalpie libre et à l'identification « aveugle » de la phase existante. En y ajoutant une loi de comportement adaptée pouvant prendre en compte des effets d'adoucissement et de légère densification, il serait alors possible d'estimer pour la première fois la température atteinte sous choc.

Une autre alternative reviendrait à modéliser notre matériau à partir de sa phase liquide. Au regard des résultats obtenus sous choc et sous compression isentropique, aucun saut en entropie n'a pu être identifié. De plus, lors de leur fabrication les verres ne subissent pas de saut d'entropie aussi brutal que celui lié au changement d'état liquide-solide. Ainsi, il serait possible d'imaginer modéliser nos verres à partir de la phase liquide et ensuite piloter le passage d'un régime à l'autre via des changements de capacité calorifique ou encore de développer une isotherme « ad hoc ». En effet, les données expérimentales ne donnent accès qu'à une ligne sur la surface d'état. Or, dans le chapitre précédent nous avons pu observer que la courbe d'Hugoniot et l'isentropie de compression étaient confondues dans le plan $P - u$. Par conséquent, il n'est pas possible de statuer de sur la validité du choix d'une isotherme « classique » du type Birch, Brennan-Stacey, Vinet ou Hama-Suito.

Pour l'heure, cette modélisation n'apporte pas les résultats escomptés. Bien que plusieurs pistes alternatives aient été envisagées, elles requièrent de collecter des données complémentaires aussi bien expérimentales que numériques. Pour cette raison, nous avons décidé de concentrer notre modélisation sur des données dont nous disposons. Dans la prochaine section, nous aborderons la modélisation de l'équation d'état de notre verre métallique par la formulation de Mie-Grüneisen référencée à l'Hugoniot.

5.3 Mie-Grüneisen référencée à l'Hugoniot

La construction de cette équation d'état revient à déterminer pour chacun des régimes dans le plan $D-u$, les équations d'un ou de plusieurs polynômes s'approchant au mieux de nos données expérimentales. Compte tenu du nombre de points de l'Hugoniot obtenus et de la présence de plusieurs régimes, nous avons opté pour une approximation par un polynôme de degrés 1 ou 2 pour chacun d'entre deux. L'avantage de cette approche repose clairement sur sa simplicité de mise en pratique, que cela soit dans la détermination des coefficients des polynômes ou dans son implémentation dans un code numérique. En contrepartie, elle introduit des incertitudes non négligeables liées au nombre de points de mesure et au choix du degré du polynôme. Toutefois, nous aurons accès pour la première fois à toutes les variables thermodynamiques dont celles non mesurables in-situ telle que la température.

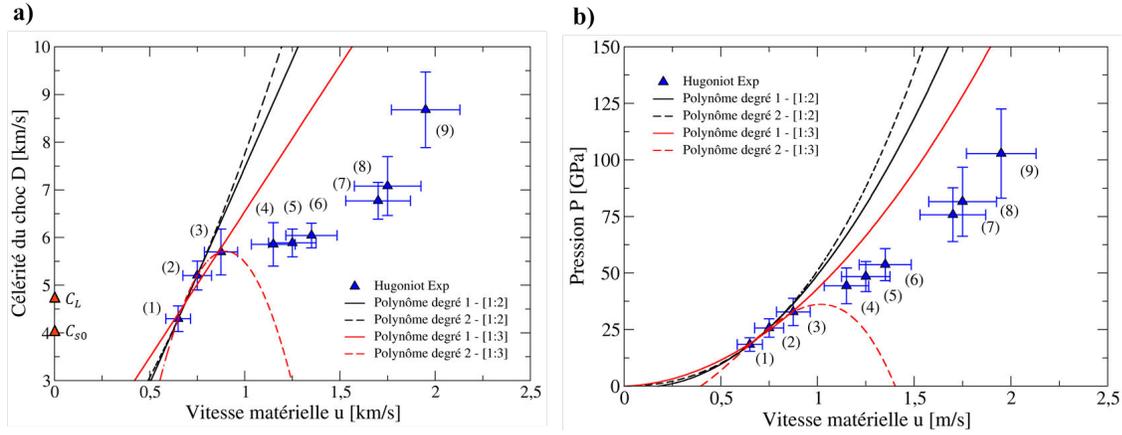


FIGURE 5.8 – Tracés des approximations polynomiales du régime R2 obtenus dans les diagrammes $D-u$ (a) et $P-u$ (b).

Les figures 5.8, 5.9 et 5.10 présentent les données des tirs sous chocs sur $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ dans les plans $D-u$ (a) et $P-u$ (b), aux côtés des différentes approximations polynomiales de degrés 1 et 2 pour les régimes R2, R3 et R4 calculées par la méthode des moindres carrés. Les approximations pour R2, R3 et R4 ont été réalisées pour plusieurs intervalles de points. Les expressions polynomiales de chacune des courbes sont résumées dans le tableau 5.3. Compte tenu du nombre de points employés pour réaliser les approximations polynomiales, toutes les versions se révèlent plus ou moins valides. Néanmoins, si l'on souhaite attribuer à ces expressions un minimum de sens physique, il convient de se rapprocher d'une formulation similaire à la relation empirique $D = c_0 + su$. Ainsi, nous devons nous restreindre aux polynômes d'ordre 1. Dans la formulation $D = c_0 + su$, le c_0 s'apparente pour un grand nombre de matériaux à la célérité des ondes sonore au repos. Par conséquent, seuls les polynômes d'ordre 1 présentant un c_0 positif seront retenus pour modéliser notre matériau par cette relation.

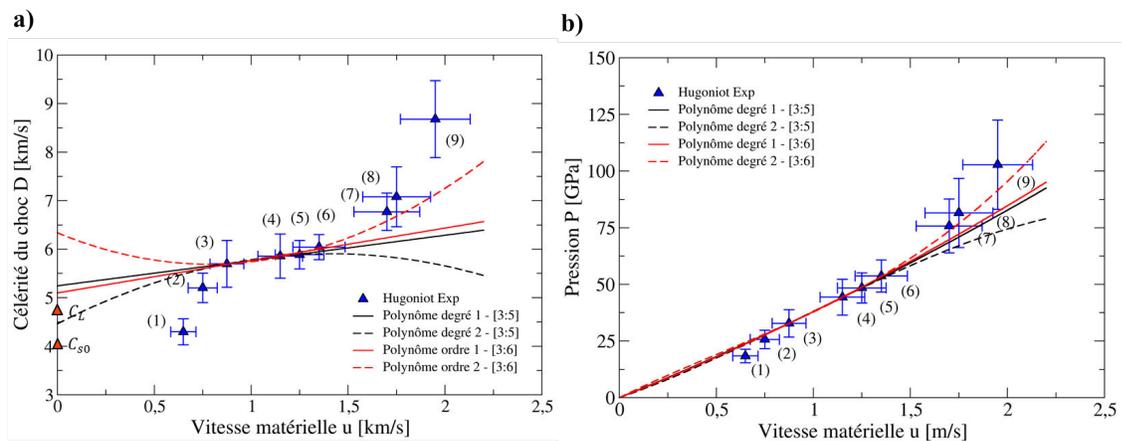


FIGURE 5.9 – Tracés des approximations polynomiales du régime R3 obtenus dans les diagrammes $D-u$ (a) et $P-u$ (b).

D'après la figure 5.8 et le tableau 5.3, seule la courbe rouge continue ($D = 0,418 - 0,0061.u$) déterminée à partir des points (1) à (3) s'exprime en fonction d'un c_0 positif. Certes, celui-ci est très nettement en dessous de la célérité des ondes sonores déduite des mesures par échographie ultrasonore ($\approx 4,08 \text{ km}_s^{-1}$). Ce résultat fait écho au module de compressibilité isotherme obtenu pour R2 via le modèle de Mie-Grüneisen référencé à l'isotherme. En effet, la vitesse du son peut s'exprimer comme :

$$c_s = \sqrt{\frac{K_s}{\rho}} \quad (5.32)$$

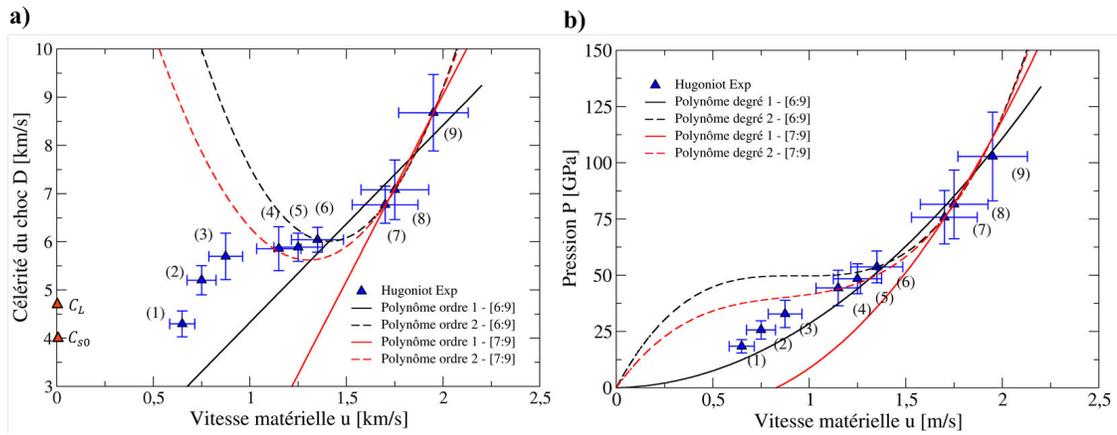


FIGURE 5.10 – Tracés des approximations polynomiales du régime R4 obtenus dans les diagrammes $D - u$ (a) et $P - u$ (b).

Bien que les expressions de K_s et K_T diffèrent l'une de l'autre, elles rendent néanmoins compte de la variation relative de volume sous l'effet de la pression. Or, nous avons constaté que la restitution de R2 par Mie-Grüneisen référencé à une isotherme de Birch nécessitait une chute de K_T par rapport à sa valeur au repos et à l'ambiante. Ici, un parallèle peut être fait à partir de la célérité du choc D observée au début de R2 mais aussi par la valeur du c_0 obtenu par l'approximation polynomiale d'ordre 1. On se retrouve alors avec une célérité très proche du c_{s_0} au repos alors que le passage du choc a engendré une compression de la matière. À l'instar de la silice qui présente une chute de son coefficient de compressibilité à cause du phénomène de densification, ces différentes observations pourraient correspondre à la manifestation d'un comportement atypique des verres métalliques tel l'adoucissement ou encore une légère densification.

En examinant la figure 5.9, les deux approximations illustrées par les courbes rouges et noires continues fournissent des valeurs très proches des données expérimentales tout en conservant le format $D=c_0+su$. Compte tenu de leur proximité, les deux formulations $D = 5,245 + 0,521.10^{-3}.u$ et $D = 5,099 + 0,668.10^{-3}.u$ peuvent être envisagées pour modéliser R3. Cette fois-ci, les valeurs de c_0 obtenues sont nettement au-dessus du c_{s_0} , ce qui apparaît cohérent à la fois avec la définition de la célérité du son et la valeur de module de compressibilité à l'ambiant.

TABLE 5.3 – Polynômes d'ordre 1 et 2 pour les différents régimes et points choisis pour réaliser l'approximation. La vitesse matérielle u est exprimée en $km.s^{-1}$.

Solution	R2	R3	R4	Courbe	Intervalles
1	$-1,599 + 0,0091.u$	$5,245 + 0,521.10^{-3}.u$	$0,232 + 4,1.10^{-3}.u$	noire conti- nue	(1 : 2), [3 : 5], [6 : 9]
2	$0,0045.u + 3,3.10^{-6}.u^2$	$4,464 + 2,04.10^{-3}.u - 72,37.u^2$	$24,224 - 5,83.10^{-3}.u + 9,2.10^{-6}.u^2$	noire pointillée	(1 : 2), [3 : 5], [6 : 9]
3	$0,418 - 0,0061.u$	$5,099 + 0,668.10^{-3}.u$	$-6,418 + 7,737.u$	rouge conti- nue	(1 : 3), [3 : 6], [7 : 9]
4	$-12,64.10^{-6} + 0,0408.u - 22,7.10^{-6}.u^2$	$6,338 - 1,651.10^{-3}.u + 1,1.10^{-6}.u^2$	$18,08 + 19,11.10^{-3}.u - 7,3.10^{-6}.u^2$	rouge poin- tillée	(1 : 3), [3 : 6], [7 : 9]

Pour le dernier régime R4 (cf. Fig. 5.10), l'approximation linéaire établie entre les points (7) à (9) illustrée par la courbe rouge continue reproduit de manière satisfaisante les données expérimentales. Bien que le c_0 soit négatif, l'objectif de cette modélisation est d'ajuster un modèle empirique dont les paramètres n'ont pas de sens physique particulier. Pour cette raison, notre choix se porte sur l'équation de la courbe rouge continue, soit $D = -6,418 + 7,737.u$.

Maintenant que les relations empiriques pour chacun des régimes sont connues, nous pouvons résumer nos choix de modélisation en traçant l'évolution de la célérité du choc en fonction de la pression (cf. Fig. 5.11). Le modèle ne prenant pas en compte le comportement élasto-plastique de nos verres métalliques, les vitesses au repos des ondes acoustiques ne sont pas reproduites. Au-delà, l'allure est bien approchée bien par le modèle pour tous les régimes. Les valeurs prédites par le modèle procurent une bonne estimation des valeurs expérimentales. En résumé, le comportement hydrodynamique de notre verre métallique ternaire *ZrCuAl* peut être reproduit pour une plage de pressions s'étalant de 15 à 110 *GPa* par les équations empiriques $D = 0,418 - 0,0061.u$ pour R2, $D = 5,099 + 0,668.10^{-3}.u$ pour R3 et $D = -6,418 + 7,737.u$ pour R4.

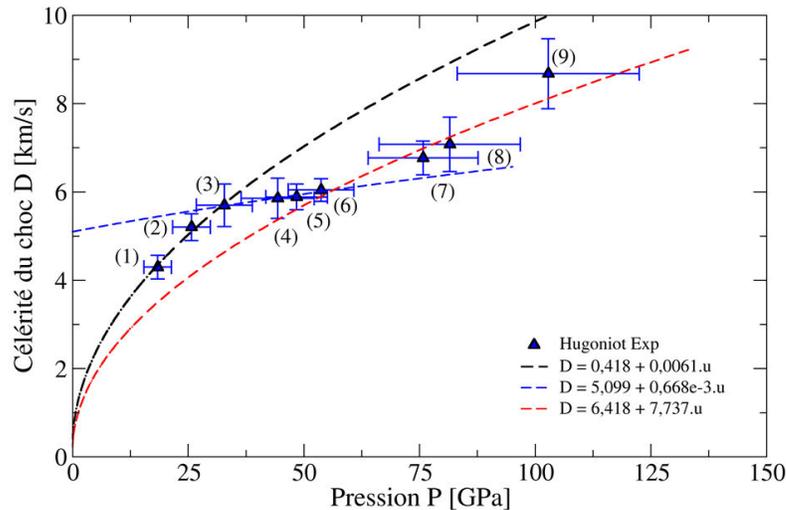


FIGURE 5.11 – Comparaison des approximations polynomiales retenues pour chaque régime aux données expérimentales obtenues sous choc.

Cette version d'équation d'état, aussi simple et empirique soit elle, constitue un résultat important puisqu'une fois implémentée dans un code hydrodynamique elle permettra de résoudre la propagation des ondes de choc dans nos matériaux. En usant des données de la littérature sur les valeurs de Γ_0 et de c_p , de premières simulations pourront être entreprises afin de tenter de restituer les signaux VISAR de surface libre ayant servi à notre courbe d'Hugoniot. En fonction des résultats prédits, les pertinences du Γ_0 , du c_p et de la modélisation par Mie-Grüneisen pourront être évaluées. En conséquence seulement, de premier ordre de grandeurs relatifs à la température, la variation

d'entropie ou encore des vitesses de déformations pourront être obtenus.

5.4 Synthèse et limitations

De cette succincte étude sur la modélisation du comportement hydrodynamique de nos verres métalliques, il ressort que la présence de plusieurs régimes complexifie la modélisation de leurs équations d'état. Bien entendu, en utilisant la relation empirique $D = c_0 + s.u$, il nous fut possible de déterminer un set de paramètres à même de reproduire l'allure de nos polaires. Par choix, nous avons décidé de conserver le découpage en régimes alors qu'il aurait tout à fait été possible de chercher une fonction à même de reproduire l'intégralité de notre polaire $D - u$. Néanmoins, souhaitant introduire des paramètres physiques dans notre modélisation, notamment via une modélisation par Mie-Grüneisen, nous nous sommes confrontés à quelques difficultés. En effet, en référant l'équation de Mie-Grüneisen à une isotherme « classique », nous avons mis en exergue l'impossibilité de cette approche à reproduire l'ensemble des régimes notamment par la prise en compte de phénomènes thermo-activés. En choisissant une nouvelle fois de découper notre courbe d'Hugoniot en trois régimes, nous nous sommes aperçu que cette approche ne permettait de reproduire uniquement les résultats expérimentaux des régimes R2 et R3. De plus, les valeurs du coefficient de compressibilité K_0 , de sa dérivée première par rapport à la pression K'_0 et du coefficient de Grüneisen déterminés, se révèlent nettement différentes des données initiales pour le régime R2. Seules les données obtenues pour R3 semblent en accord avec les données initiales et les valeurs du coefficient de Grüneisen généralement observées pour les métaux [110]. Par ailleurs, une récente étude théorique de Pandey et al [121] a montré que pour une modélisation de l'équation d'état des verres métalliques base zirconium par une isotherme de Birch les coefficients K'_0 et Γ_0 diminuaient avec l'augmentation de la pression, tandis que K_0 augmentait. Ce résultat souligne une fois de plus la cohérence relative des paramètres déterminés pour R3, et l'aberration de ceux obtenus pour R2.

L'inaptitude apparente de cette approche est à rapprocher des différentes hypothèses nécessairement formulées au regard des données dont nous disposons. En plus de se baser sur une isotherme, nous avons supputé une invariance du rapport $\frac{\Gamma(v)}{v}$ et du c_p pour la phase solide. Or contrairement aux solides cristallins, les verres disposent de seuils de température clés, tels que la température de transition vitreuse ou de cristallisation, aux passages desquels le comportement change. Par conséquent, ces paramètres peuvent être amenés à varier fortement.

Il a été rapporté par plusieurs auteurs que la température de transition vitreuse variait quasi linéairement avec l'augmentation de la pression – jusqu'à 5 *GPa* – dans les verres métalliques base *Zr* [160, 78], tout comme la température de cristallisation [174, 162]. D'ailleurs, l'étude de Yang et al [162] a montré l'existence d'une dépendance de la vitesse de trempe sur le processus de cristallisation sous pression au-delà de 6 *GPa* dans un verre métallique $Zr_{41}Ti_{14}Cu_{12,5}Ni_{10}Be_{22,5}$. Pour étudier plus en détails

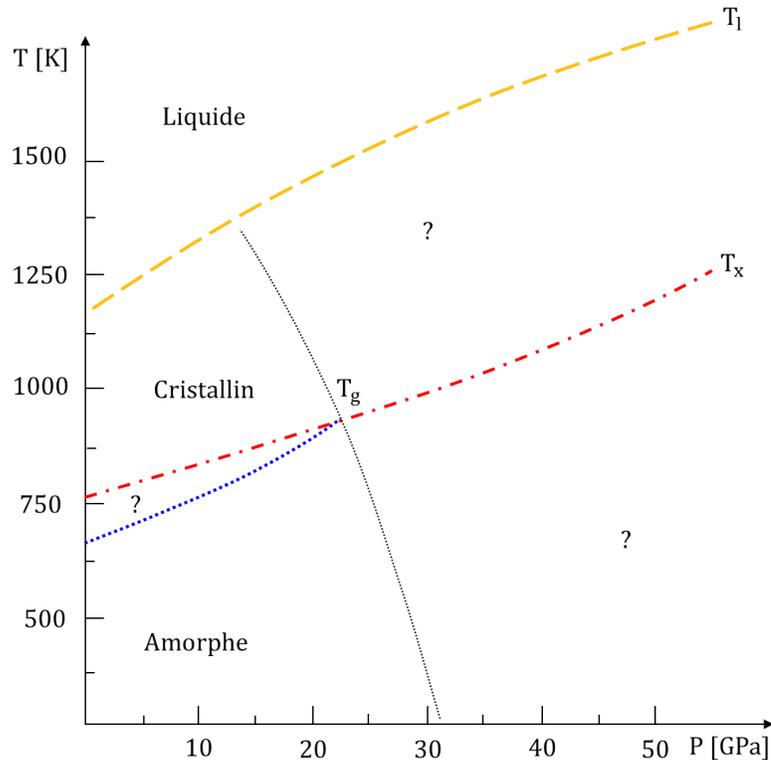


FIGURE 5.12 – Diagramme schématique pression-température, inconnu pour un grand nombre de verres métalliques. D'après plusieurs études sur l'évolution de la T_g et de la T_x avec la pression, la température de transition vitreuse semblerait croître plus rapidement que la température de cristallisation. Leur intersection pourrait alors engendrer de nouvelles configurations pouvant expliquer l'apparition de régimes sous choc.

l'effet de la pression sur la transition vitreuse et la cristallisation, une étude récente de Hu et al [66] a révélé qu'il existait une forte dépendance à la pression de la dynamique de formation de l'état vitreux. En particulier, ils ont étudié par dynamique moléculaire les fonctions de distribution de paires d'un verre métallique $Zr_{50}Cu_{44}Al_6$ – très proche de notre composition – sous l'effet du refroidissement et d'une compression hydrostatique. Dans les deux cas, une densification générale de la structure était observée jusqu'à un certain degré, tout en influençant significativement la coordination. Il s'est avéré que la chute de température favorisait la formation de liaisons avec les atomes de zirconium. Au contraire, l'augmentation de la pression a pour conséquence d'accroître la coordination du cuivre avec l'aluminium et d'ainsi tendre vers une structure locale atomique plus organisée, le plus souvent autour du cuivre sous la forme d'icosaèdres complets. Or, nous l'avons vu dans le chapitre 1, la présence de ces organisations locales semble être en partie responsable du comportement des verres métalliques.

Ainsi, aborder la modélisation de l'équation d'état de nos verres métalliques par une isotherme supposerait que nous connaissions précisément les états dans lesquels se trouve la matière pour la plage de pressions considérées. En établissant un parallèle entre notre courbe d'Hugoniot et les observations de Hu et al [66], il est fort à parier que

des réorganisations locales proches de celles de structures icosaédriques ou de cristaux sont à l'origine de certains des régimes observés. Pour progresser à l'avenir dans cette démarche de modélisation, il faudra pouvoir établir quantitativement le diagramme pression-température de la figure 5.12 en n'y indiquant les éventuelles modifications de structure à l'échelle locale, et déterminer l'élévation de température induite par le choc. Dans cette optique, nous avons entrepris de compléter nos quelques points de l'Hugoniot par des données relatives à une isentrope de compression. En effet, en comprimant à l'aide d'une rampe quasi-isentropique la matière il est possible d'avoir accès en très peu de tirs – un voire deux – à un très grand nombre d'informations, telles que les changements de phase, et ainsi confirmer la présence ou non des régimes observés sous choc.

Chapitre 6

Endommagement et rupture dynamique des verres métalliques

« Don't be too proud of this technological terror you've constructed. The ability to destroy a planet is insignificant next to the power of the Force... ».

| Darth Vador (An 0), *Star Wars : Episode IV – Un Nouvel Espoir*.

Sommaire

6.1 L'écaillage	134
6.2 À l'échelle macroscopique	137
6.2.1 Impulsions brèves : 350 fs	138
6.2.2 Impulsions modérées à longues	144
6.2.3 Synthèse	149
6.2.4 Intérêt du verre métallique comme élément de blindage	150
6.3 Analyse post-mortem des faciès de rupture	152
6.3.1 Évolution des coupelles et des cônes	154
6.3.2 Formation des cônes et coupelles	168
6.3.3 Morphologie des cônes et coupelles	173
6.4 À l'échelle microscopique	175
6.5 Synthèse	179

Jusqu'à présent, nous avons principalement concentré notre attention sur la façon dont se propageaient les ondes de chocs dans les verres métalliques base zirconium. Pour compléter notre caractérisation, nous avons entrepris plusieurs campagnes d'essais laser dans le but d'étudier les processus d'endommagement et de rupture dynamique. Dans ce chapitre, il sera question d'étudier à plusieurs échelles les phénomènes de rupture engendrés par divers chargements laser. L'objectif final de ce chapitre sera d'apporter des éléments de réponses quant à l'utilisation des verres métalliques base zirconium pour des application de défense.

6.1 L'écaillage

Dans le cadre des expériences de chocs non soutenus produits par impact, explosifs ou laser, plusieurs processus de rupture dynamique sont susceptibles de se produire, conduisant à l'éjection de fragments en face arrière des cibles – écaillage, micro-jetting, micro-écaillage, perforation. En ce qui concerne cette étude, nous nous focaliserons uniquement sur le phénomène d'écaillage. Celui-ci implique la séparation d'une portion de matière de son volume de départ – appelée écaille –, résultant d'un état de contrainte issu de l'interaction des ondes au sein du matériau. En propagation 1D, cet état se résume en une contrainte de traction générée par la rencontre et la superposition de deux faisceaux d'ondes de détentes se propageant en sens opposé. Si l'amplitude de cet état de traction est suffisante, alors la rupture se produit et une écaille est éjectée. Pour appréhender ce processus, nous nous intéresserons à l'interaction entre ondes de détentes suite à la réflexion des ondes de chocs non soutenus sur une surface libre.

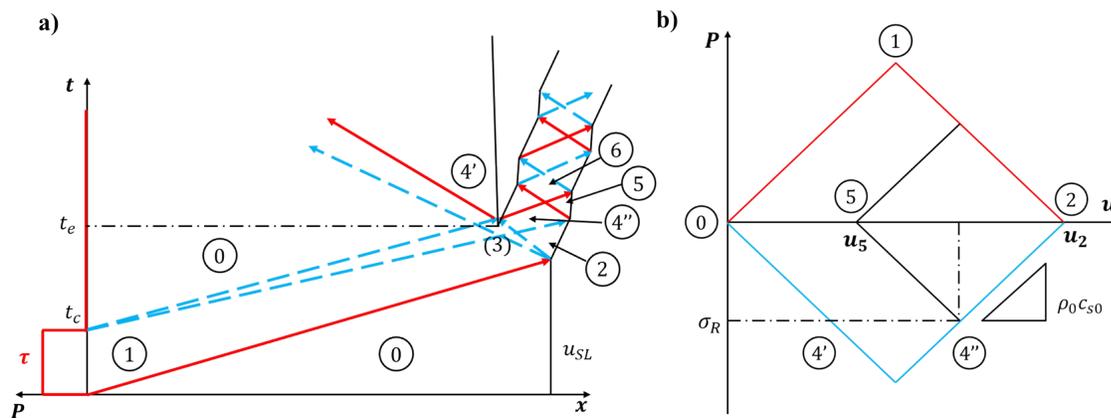


FIGURE 6.1 – Principe du phénomène d'écaillage. Diagrammes position-temps $x-t$ (a) et pression-vitesse matérielle $P-u$. Le chargement mécanique induit par laser est représenté par un créneau de durée τ . Les ondes de choc sont représentées en rouge et les ondes de détente en bleu pointillé dans la figure (a).

Soit une cible soumise à un chargement en créneau de durée τ d'un côté avec une surface libre de l'autre côté. Le diagramme de marches en figure 6.1 (a) représente les trajectoires des ondes de choc et de détente, les interfaces ainsi que les différents états thermodynamiques de la matière conduisant à l'apparition du phénomène d'écaillage. Le diagramme $P-u$ de la figure 6.1 (b) rassemble les différents états de la matière atteints lors de la propagation des ondes. À l'instant initial, le matériau se trouve à l'état de repos (0) ($P = 0, u = 0$). Lors du chargement, le choc généré induit un changement d'état dans la cible faisant passer de l'état (0) à l'état (1) ($P = P_1, u = u_1$). Dès la fin du chargement ($t = t_c$), un faisceau de détentes incident est émis et se propage de la face avant vers la face arrière de la cible à la poursuite du choc. Durant sa propagation, ce faisceau ramène progressivement la matière à l'état (0). En se propageant, le choc atteint la face arrière de l'échantillon, se réfléchit en un faisceau de détentes et engendre

l'état (2) ($P = 0$, $u = u_2$). À l'approche de la surface libre, les détentes incidentes interagissent avec les détentes issues de la réflexion du choc. De cette interaction résulte un état de traction (3). Si la contrainte en traction atteint la limite à la rupture dynamique σ_R alors la rupture se produit à l'état (4) et au temps $t = t_e$, donnant naissance à deux surfaces libres. À noter que les mécanismes de création de surfaces ne sont pas pris en compte dans cette approche. De cette séparation s'en suit une relaxation des contraintes de traction se propageant sous la forme d'une onde de re-compression, qui engendre une ré-accélération de l'écaillage (état (5)). Des réverbérations subséquentes d'ondes de compression et de détente dans l'écaillage peuvent par la suite être observées à l'aide de la mesure de la vitesse de surface libre par VISAR ou VH (cf. chapitre 3 section 3.1).

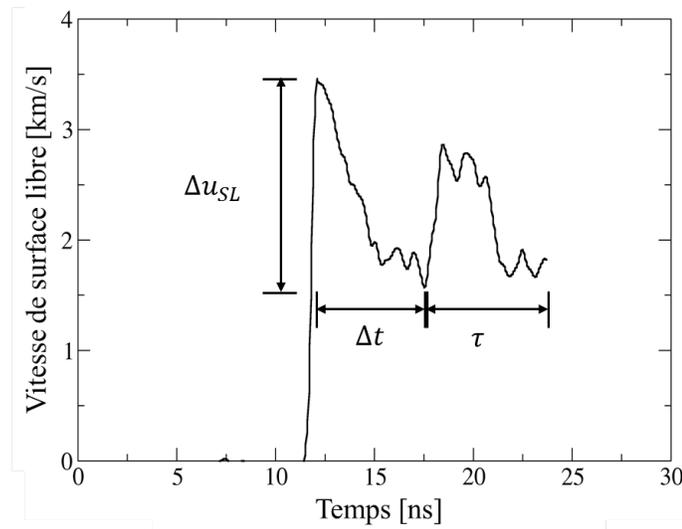


FIGURE 6.2 – Signal de vitesse de surface libre illustrant le phénomène d'écaillage. Après le débouché du choc à 12 ns, une diminution brutale de la vitesse s'observe, laissant apparaître une ré-accélération caractéristique de la rupture, suivie d'une oscillation.

La mesure et l'analyse de la vitesse de surface libre constituent une mine d'informations, nous renseignant à la fois sur le seuil de rupture dynamique du matériau, les vitesses de déformation associées et sur l'épaisseur de l'écaillage engendrée. En effet, la limite à la rupture σ_R peut être reliée à la décélération de la vitesse de surface libre $\Delta u_{SL} = u_2 - u_5$ (cf. Fig. 6.1 (b)), aussi dénommé « pull-back » dans la littérature anglaise. Dans le cadre d'une détermination simplifiée se basant sur l'« approximation acoustique », selon laquelle les ondes de compression et de détente se propagent à la célérité du son c_{s_0} à l'état de repos [118, 5], les variations de vitesse dans le plan $P - u$ sont alors assimilables à des droites de pente $\rho_0 c_{s_0}$ (cf. Fig. 6.1 (b)), permettant ainsi d'obtenir la limite à la rupture σ_R par l'expression :

$$\sigma_R = \frac{1}{2} \rho_0 c_{s_0} \Delta u_{SL} \quad (6.1)$$

L'inconvénient de cette relation est la non prise en compte du comportement élas-

tique et plastique du matériau pouvant entraîner des célérités différentes selon la nature de l'onde et des niveaux de pression. Pour prendre en compte cette différenciation, Stepanov [140] a proposé d'exprimer σ_R comme :

$$\sigma_R = \frac{1}{2} \rho_0 c_L \Delta u_{SL} \frac{1}{1 + \frac{c_L}{c_{s_0}}} \quad (6.2)$$

Cette relation fournit généralement des valeurs de limite à la rupture supérieures à celles obtenues par la relation 6.1 du fait que les ondes longitudinales élastiques se propagent à des célérités plus élevées que celle du son. À noter que cette limite n'est pas une caractéristique absolue du matériau. En effet, c'est un indicateur macroscopique rendant compte de l'amplitude de la tension nécessaire pour initier la rupture à un taux de déformation donné.

La détermination de la vitesse de déformation peut se faire par l'étude de la décroissance de vitesse de surface libre (cf. Fig. 6.2) Δu_{SL} pendant la durée de la décroissance Δt . Elle s'exprime par la relation (6.3), telle que :

$$\dot{\epsilon} = \frac{1}{2c_{s_0}} \frac{\Delta u_{SL}}{\Delta t} \quad (6.3)$$

Pour une grande partie des métaux polycristallins, la limite à la rupture croît avec le taux de déformation [5] (cf. Fig. 6.3).

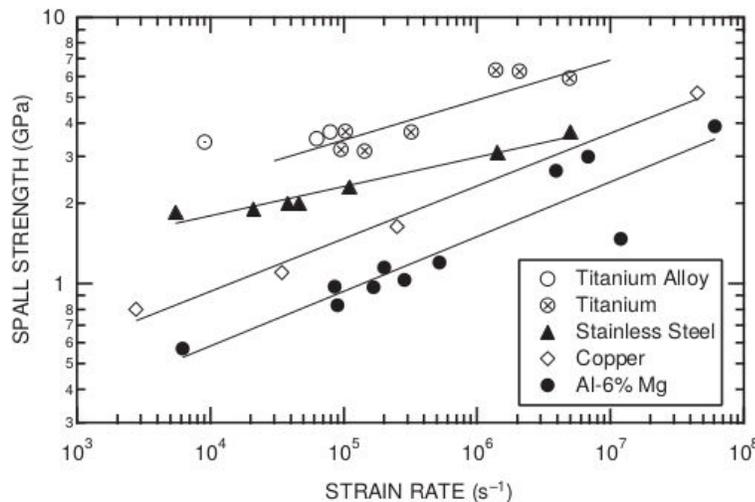


FIGURE 6.3 – Limites à la rupture en tension en fonction du taux de déformation pour différents métaux polycristallins [5].

L'épaisseur de l'écaïlle peut être déterminée par les réverbérations des ondes suivant la création de surfaces libres. La période des oscillations observée sur le signal de surface libre après la ré-accelération correspondent au temps τ nécessaire aux ondes longitudinales pour effectuer un aller-retour dans l'épaisseur de l'écaïlle. L'approximation de cette épaisseur se résume à :

$$d = \frac{1}{2} \tau c_L \quad (6.4)$$

Contrairement aux essais mécaniques quasi-statiques, le chargement lié à l'interaction entre ondes est fortement asymétrique par rapport au plan d'écaillage. En effet, lors de l'interaction entre le faisceau de détentes incident et celui issu de la réflexion, la zone de traction est située entre le plan d'écaillage et la surface libre (cf. Fig. 6.4, zone jaune) alors que la partie en amont à ce plan est encore comprimée (cf. Fig. 6.4, zone bleue). De plus, du fait de l'étalement des faisceaux de détentes, les vitesses de déformation sont nettement différentes de part et d'autre du plan d'écaillage (cf. Fig. 6.4).

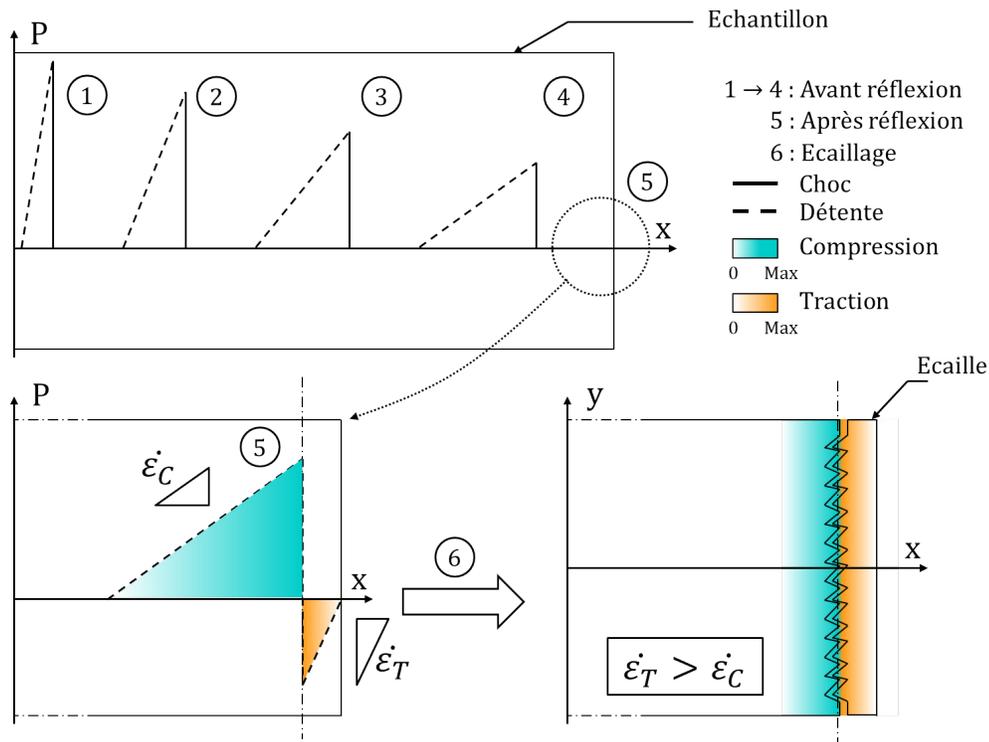


FIGURE 6.4 – Illustration de la propagation d'une onde de choc triangulaire générée par laser (1). Au cours de sa propagation, les ondes de détente s'étalement et le niveau de pression diminue avec la distance parcourue (1)→(4). Derrière le front de choc, une quantité de mouvement est communiquée à la matière. Une fois arrivée en face arrière, les ondes de choc sont réfléchies en faisceau de détentes entraînant une chute de la pression. Lors de l'interaction des faisceaux incident et réfléchi un état de traction est induit dans la matière (5), modifiant dans le même temps le taux de déformation qui résulte en un chargement asymétrique. La rupture apparaît quand le seuil de rupture dynamique en traction est excédé, conduisant à l'éjection d'une écaille (6).

6.2 À l'échelle macroscopique

La première étape de notre voyage au sein de la rupture de nos matériaux se situe à l'échelle macroscopique. Des tirs laser d'impulsions variables allant de plusieurs centaines de femtosecondes à la dizaine de nanosecondes ont été réalisés sur quatre com-

positions de notre verre métallique $ZrCuAl$. Parmi les compositions choisies, nous étudions les nuances : $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$, $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$, $Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$. Pour rappel, nos essais ont été menés sur les installations ELFIE et LULI2000. L'objectif est de pouvoir caractériser l'effet de la durée de chargement – et donc des vitesses de déformation – sur les mécanismes de rupture des verres métalliques $ZrCuAl$. Pour étudier les vitesses d'envol et la morphologie des fragments, les techniques de vélocimétrie hétérodyne et de visualisation transverse ont été employées.

6.2.1 Impulsions brèves : 350 fs

Dans cette configuration, les échantillons de verres métalliques d'épaisseurs variables ont été irradiés par un laser de longueur d'onde 1057 nm sur un diamètre de tache focale de $1,73\text{ mm}$. Les énergies délivrées par le laser ont varié de $9,11\text{ J}$ à $11,43\text{ J}$, permettant ainsi d'atteindre des flux de $1,11$ à $1,39\text{ PW}\cdot\text{cm}^{-2}$. Pour chacun des tirs, l'objectif initial est de maintenir un chargement identique entre chaque tir, que cela soit spatialement ou temporellement. La plage des flux mesurés (cf. tableaux 6.1 et 6.2) retranscrit l'instabilité de l'énergie au cours de la campagne. Au regard de celle-ci, il est cependant raisonnable de considérer que les différentes cibles ont subi un chargement laser quasi-identique.

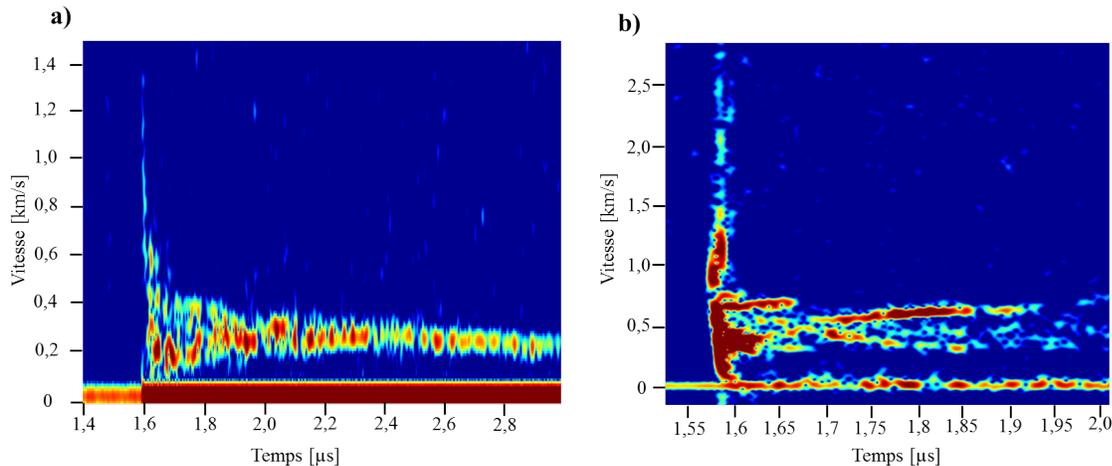


FIGURE 6.5 – Spectrogrammes obtenus par mesures de Vélocimétrie Hétérodyne. Un écaillage simple est illustré par la figure (a) de par l'apparition d'une vitesse plateau sur les temps long (cf. tir E16-012). Les différents plateaux de la figure (b) mettent en exergue l'éjection de plusieurs fragments (cf. tir E16-017).

De par cette hypothèse, nous sommes en mesure de nous concentrer exclusivement sur les effets de composition et de vitesse de déformation. L'ensemble des tirs en configuration 350 fs est résumé dans le tableau 6.1. Les vitesses obtenues ont été mesurées par VH – positionnée sur l'axe normal à la face arrière des cibles – dont les spectrogrammes multi-vitesses nous renseignent sur la vitesse de chacun des fragments passant dans le faisceau sonde. Dans le cas de l'éjection d'une écaille massive, une vitesse plateau est observée (cf. Fig 6.5 (a)). Dans le cas d'une multiple fragmentation ou d'un

multi-écaillage, des distributions vitesses sont alors discernables, telles que présentées en figure 6.5 (b). Pour corroborer les mesures de vitesses et la nature des écailles éjectées, les éjectas sont observés à différents instants par visualisation transverse (cf. Fig. 6.6). Enfin, l'épaisseur des écailles est déterminée post-mortem par mesures profilométriques des profondeurs moyennes des cratères présents en face arrière des échantillons récupérés après tir.

TABLE 6.1 – Récapitulatif des tirs effectués en configuration 350 fs sur la chaîne laser ELFIE. L'absence de mesure est signifiée par l'abréviation « n.m. » et l'absence d'écaille par « n.e. ».

Tir	Composition	Épaisseur [μm]	Énergie [J]	Flux [PW.cm ⁻²]	$V_{\text{écaille}}$ [m.s ⁻¹]	$d_{\text{écaille}}$ [μm]
E16-005	$Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$	219 ± 5,3	9,85	1,20	395 ± 60	17,5 ± 2,3
E16-006	$Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$	226 ± 3,0	9,18	1,12	350 ± 50	18,8 ± 3,2
E16-007	$Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$	226 ± 3,4	9,11	1,11	286 ± 20	18,9 ± 3,5
E16-008	$Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$	223 ± 2,4	9,66	1,18	250 ± 20	20,2 ± 4,5
E16-009	$Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$	196 ± 6,0	9,55	1,16	328 ± 50	20,1 ± 4,5
E16-010	$Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$	212 ± 5,2	9,73	1,19	275 ± 20	17,4 ± 4,1
E16-011	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	225 ± 4,4	9,11	1,11	156 ± 20	21,9 ± 1,9
E16-012	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	213 ± 4,7	10,29	1,25	260 ± 50	17,0 ± 1,9
E16-013	$Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$	152 ± 4,2	11,23	1,37	n.m.	13,6 ± 1,9
E16-014	$Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$	165 ± 3,0	11,30	1,38	475 ± 75	13,0 ± 2,6
E16-015	$Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$	173 ± 5,1	10,88	1,33	525 ± 50	11,8 ± 2,0
E16-016	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	163 ± 1,7	10,90	1,33	494 ± 50	10,9 ± 1,9
E16-017	$Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$	248 ± 1,1	10,86	1,32	500 ± 100	13,7 ± 3,3
E16-018	$Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$	268 ± 2,1	10,82	1,32	400 ± 50	27,1 ± 6,5
E16-019	$Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$	278 ± 5,5	11,43	1,39	425 ± 75	22,1 ± 6,6
E16-020	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	280 ± 0,9	10,79	1,32	n.e.	n.e.
E16-021	$Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$	469 ± 5,7	10,86	1,32	250 ± 50	33,9 ± 3,7
E16-022	$Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$	464 ± 0,8	10,82	1,32	n.e.	n.e.
E16-023	$Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$	477 ± 1,5	10,90	1,33	n.e.	n.e.
E16-024	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	480 ± 2,1	11,16	1,36	n.e.	n.e.

6.2.1.1 Effet de la composition

D'après les clichés recueillis par visualisation transverse, tous les échantillons ont été sujets à un écaillage simple, dont le niveau d'endommagement semble dépendre du taux de zirconium (cf. tableau 6.1). La figure 6.6 illustre les morphologies des écailles produites sur des échantillons d'épaisseur environ 220 μm . Pour des temps supérieurs à 2,5 μs après le déclenchement du tir, les écailles observées pour les compositions riches en cuivre restent majoritairement unitaires. Au contraire, pour les nuances plus riches en zirconium, elles semblent plus massives et moins sujettes à la fragmentation.

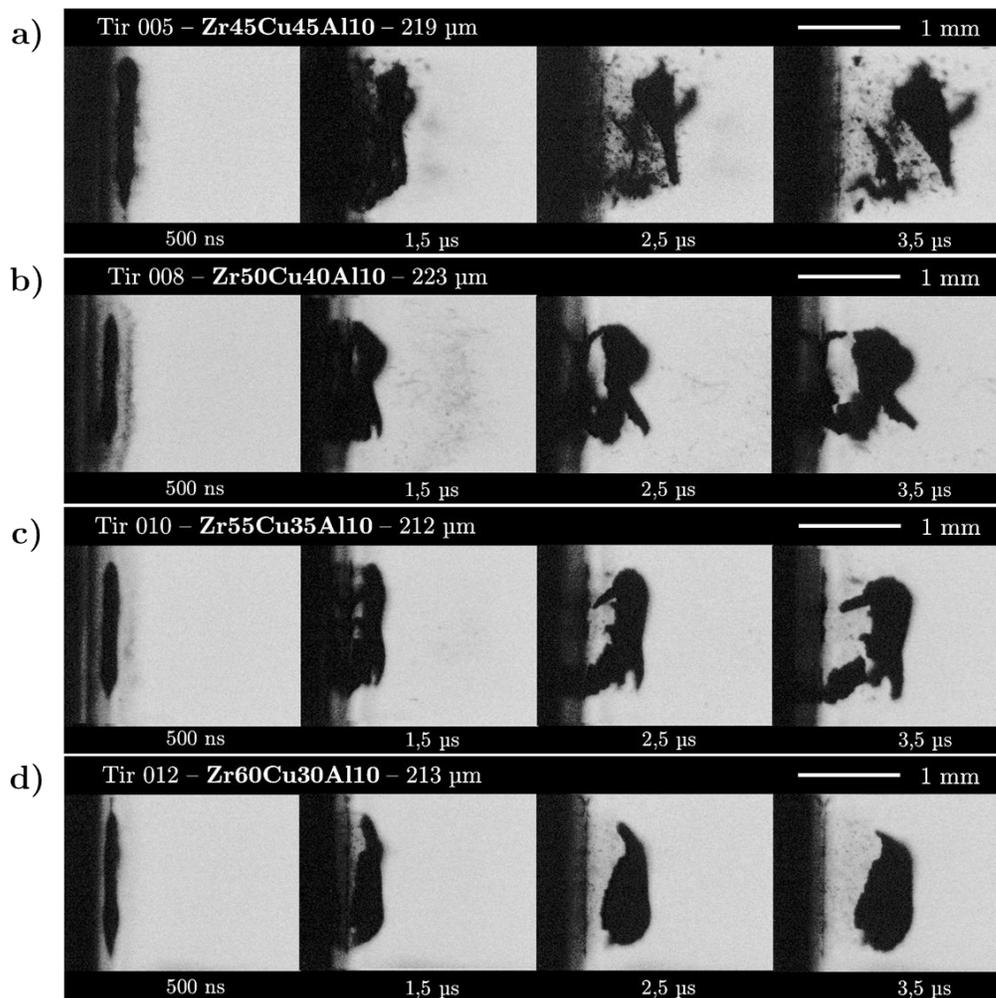


FIGURE 6.6 – Visualisations transverses des écaillés des tirs 005, 008, 010 et 012 respectivement réalisés sur $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$, $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$, $Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$. Les clichés ont été pris à des instants différents, tous espacés de 1 μs à 500 ns après tir laser.

À partir des spectrogrammes VH obtenus pour chacun des tirs, il est possible d'extraire la vitesse moyenne et d'étudier l'évolution de la vitesse de l'envol des débris en fonction de la composition des échantillons (cf. Fig. 6.7). En comparant les vitesses d'envol des écaillés, il apparaît que pour une épaisseur d'échantillon donnée – par exemple 220 μm – la vitesse d'envol la plus élevée se trouve être pour la composition la plus riche en cuivre ($Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$) tandis que la plus faible vitesse correspond à la composition la plus riche en zirconium ($Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$) (cf. Fig. 6.7).

6.2.1.2 Effet de l'amortissement hydrodynamique

En analysant la figure 6.7, force est de constater que la vitesse d'écaillage pour toutes les compositions diminue pour des échantillons d'épaisseurs situées entre 150 et 270 μm . Ce résultat reste cohérent et en accord avec la théorie des chocs, et plus particu-

lièrement avec le phénomène d'amortissement hydrodynamique observé dans le cas d'ondes de choc non soutenues [14, 30]. En effet, au cours de la propagation du faisceau de détente, les ondes de détente de tête rattrapent le front de choc ce qui a pour conséquence de diminuer l'amplitude en pression et donc la vitesse. Autrement dit, plus la distance parcourue par les ondes sera grande, plus la pression et la vitesse induites par le choc se retrouve diminuées.

Par ailleurs, autour de $270 \mu\text{m}$ un regain de vitesse peut être remarqué pour toutes les compositions, excepté pour le $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ qui n'a pas écaillé, avant de laisser de nouveau place à une décroissance de la vitesse d'envol avec l'épaisseur de l'échantillon (cf. $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$ autour de $460 \mu\text{m}$). Dans la section suivante, nous exposons différents éléments de réponse à même d'expliquer ce saut en vitesse.

Concernant les épaisseurs d'écaïlles, une croissance linéaire des épaisseurs d'écaïlle en fonction de l'épaisseur de l'échantillon est constatée (cf. Fig. 6.8). Ce résultat peut s'expliquer à l'aide de la théorie des chocs [14, 30] (cf. Fig. 6.9). En considérant un seuil de rupture σ_R constant, plus la distance parcourue par l'onde de choc et les ondes de détente est faible, moins le faisceau de détente s'étale et plus la mise en traction est rapide. En superposant les profils de chargement des ondes incidentes (en rouge) et réfléchies (en bleu clair), il devient possible de tracer le profil général résultant de l'interaction des ondes (en bleu foncé). Ainsi, si l'état de contrainte est suffisant, la rupture s'opère et le plan d'écaillage est situé à une distance d_{ec1} proche de la surface libre (cf. Fig. 6.9 (a)). À l'opposé, plus la distance parcourue par les ondes incidentes est grande, plus le faisceau de détente s'étale et plus la mise en traction est progressive. Dans ce cas,

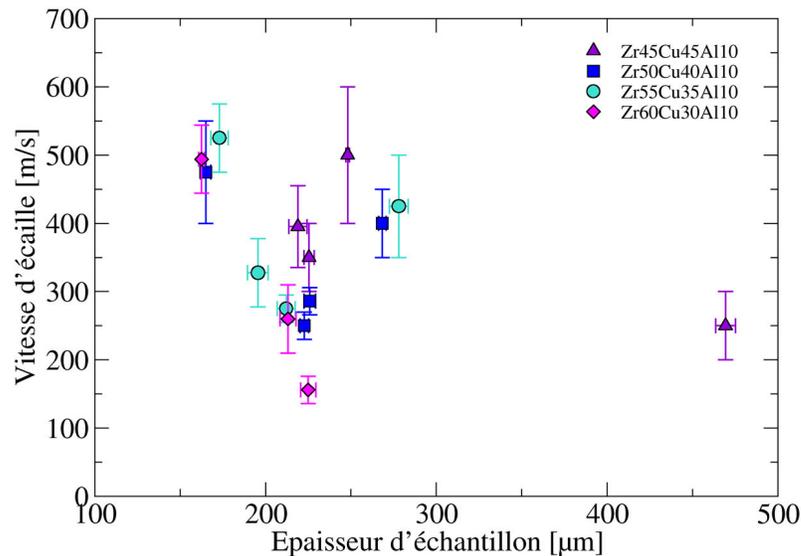


FIGURE 6.7 – Variation de la vitesse d'envol des écaïlles sur $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$, $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$, $Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ en fonction de l'épaisseur d'échantillon pour des conditions de chargement identiques d'impulsion 350 f.s. Une décroissance linéaire de la vitesse d'envol jusqu'à $270 \mu\text{m}$ est observée pour toutes les compositions avant de laisser place à un regain en vitesse. S'en suit une nouvelle décroissance linéaire de la vitesse d'envol avec l'épaisseur croissante d'échantillon.

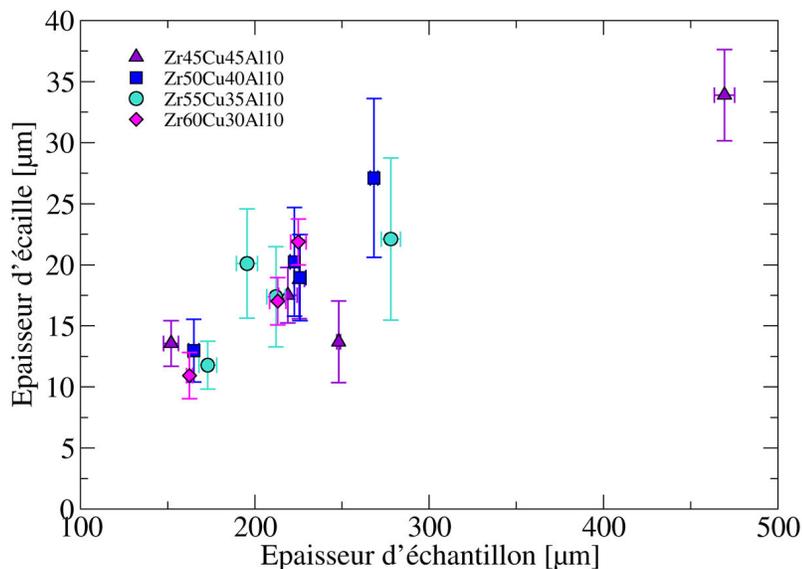


FIGURE 6.8 – Variation de l'épaisseur des écailles sur $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$, $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$, $Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ en fonction de l'épaisseur d'échantillon pour des conditions de chargement identiques d'impulsion 350 fs. Pour toutes les compositions, une croissance linéaire de l'épaisseur d'écaille avec l'épaisseur de l'échantillon peut être remarquée indépendamment de la nuance.

la contrainte à rupture σ_R est atteinte loin de la surface libre (cf. Fig. 6.9 (b)). Pourtant, nous avons vu précédemment que σ_R croît avec $\dot{\epsilon}$ pour une grande partie de matériaux métalliques polycristallins. Du fait de la diminution des vitesses de déformation causée par l'étalement du faisceau de détentes, la rupture pourrait s'opérer plus proche de la surface libre. Ainsi, ce deuxième effet va à l'encontre de la croissance linéaire de l'épaisseur d'écaille avec la distance parcourue. Pour le moment, nous ne sommes pas au fait de l'existence d'une telle dépendance entre σ_R et $\dot{\epsilon}$. Si celle-ci existe, son effet serait alors négligeable sur les résultats observés en figure 6.8.

6.2.1.3 Discussion

En mettant en relation l'ensemble de ces observations, la fraction volumique de zirconium au sein de notre système $ZrCuAl$ semble jouer un rôle sur l'écaillage. Ce constat se fait aussi bien au niveau des vitesses terminales d'envol des écailles que sur leur morphologie. Reste donc à savoir si l'origine de cette différenciation est liée à une modification de la propagation des ondes ou bien à un changement de seuil de rupture, voire de mécanisme. Ne disposant pas de mesures VISAR pour les tirs en 350 fs, il nous est impossible de discriminer directement les effets de la composition et des vitesses de déformation sur σ_R . Pour cette raison, nous envisageons deux cas de figure pour expliquer nos résultats :

- La pression de débouché du choc est plus élevée pour les compositions riches en cuivre.
- La limite à la rupture est liée au pourcentage de zirconium.

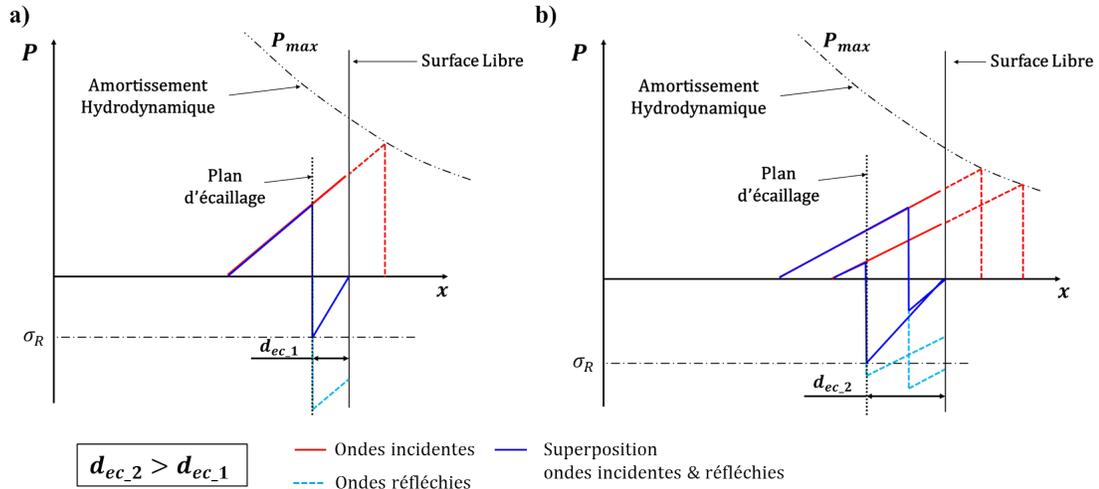


FIGURE 6.9 – Illustration de l'effet de l'amortissement hydrodynamique sur la position du plan d'écaillage. Pour une limite à la rupture constante, plus la distance parcourue est faible, plus le plan d'écaillage sera proche de la surface libre (a). Au contraire, plus les ondes parcourent une grande distance, plus le niveau de pression est atténué et le plan d'écaillage se retrouve en profondeur dans la cible (b).

Un amortissement hydrodynamique plus prononcé pour les compositions riches en zirconium aurait pour conséquence de réduire le niveau de pression en face arrière. Si l'on considère que pour toute composition, la limite à la rupture est identique et que l'évolution du seuil de rupture est toujours croissante avec le taux de déformation [5] (cf. Fig. 6.3), alors les vitesses d'écaillage seront plus faibles pour les compositions présentant un amortissement hydrodynamique plus prononcé. De plus, le plan d'écaillage se retrouvera à une distance plus importante de la surface libre, ayant pour conséquence l'envol d'une écaille plus épaisse. Or les résultats de la figure 6.8 illustrent une évolution similaire de l'épaisseur de l'écaille indépendamment de la concentration en zirconium. Par ailleurs, nous avons constaté dans le chapitre 4 que dans les régimes R2 à R4 la variation de la fraction volumique ne modifiait pas significativement la propagation des ondes de choc. Par conséquent, les différences observées sur les vitesses d'envol en régime 350 fs ne s'expliquent pas par une différence de propagation des ondes mais par une tenue mécanique différente.

À propos des sauts en vitesses aux alentours $270 \mu\text{m}$, ils pourraient s'expliquer par le passage de la transition élasto-plastique. Au cours du chapitre 4 (section 4.2.5), nous avons déterminé une loi empirique pression-intensité sur nos matériaux – dans un régime d'ablation nanosecondes – très proche de celle sur le cuivre 4.2.5. Grâce à cette proximité, nous pouvons estimer approximativement, par simulations ESTHER sur cuivre, les pressions en face arrière sur verre métallique en régime femtosecondes. Ainsi, en réalisant des simulations avec une approche purement hydrodynamique sur un échantillon de cuivre d'épaisseur $250 \mu\text{m}$, un niveau de pression en face arrière de 7 GPa a pu être déterminé. Or la limite élastique de l'Hugoniot des verres métalliques base zirconium se situe aux alentours de cette valeur. Dans ce cas, les sauts en vitesses cor-

respondraient au passage du régime R2 au régime R1. De ce fait, les différences des vitesses d'envol des écailles s'expliquent par une différence de limite à la rupture pour chacun de ces régimes. Pour en avoir le cœur net, deux pistes peuvent être proposées. La première consisterait à réaliser des tirs complémentaires dans des conditions similaires, et de relever par VISAR à la fois le débouché du choc, le pullback et les allers-retours dans l'écaille. L'autre approche serait d'implémenter l'équation d'état du chapitre 4 dans un code hydrodynamique, de réaliser des simulations 1D à partir de profils de chargements extraits de simulations ESTHER sur cuivre, pour enfin déterminer par une étude paramétrique une valeur seuil de rupture à même de reproduire les résultats de la figure 6.7.

6.2.2 Impulsions modérées à longues

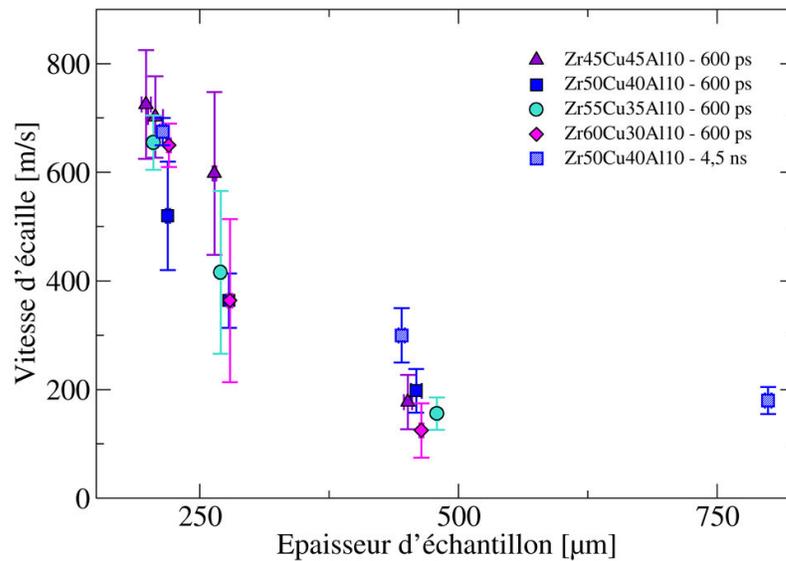
Des tirs ont été réalisés en régime picosecondes toujours sur la chaîne ELFIE et en régime nanosecondes sur la chaîne LULI2000. Pour le régime picosecondes, une impulsion de 600 ps de longueur d'onde 1057 nm avec une énergie variant de 57,5 J à 64,5 J pour un diamètre de tache focale de 1,27 mm a été utilisée pour étudier le comportement à la rupture de notre matériau. Concernant le régime nanosecondes, deux impulsions de 4,5 ns et 15 ns, de longueur d'onde 1053 nm et d'énergies d'environ 650 à 800 J ont été employées. Pour la première durée d'impulsion, la tache focale avait un diamètre de 2,87 mm tandis que pour la deuxième elle était de 0,9 mm. L'ensemble des configurations pour chaque tir et les intensités laser calculées sont résumées dans le tableau 6.2. Les tirs ont été instrumentés de mesures VH couplées à la visualisation transverse comme pour les tirs en 350 fs. Enfin, les profondeurs de cratères ont été déterminées par mesures profilométriques optiques.

L'emploi d'une large plage de durées d'impulsions permet de rendre compte de l'effet de la pression – i.e. amortissement hydrodynamique et des vitesses de déformation – sur les mécanismes de rupture, bien que les pressions exactes engendrées en face arrière ne puissent encore être déterminées. Malgré cela, et de manière analogue aux tirs femtosecondes, des simulations ESTHER sur cuivre ont montré que des pressions de 19-28 GPa et 11-20 GPa pouvaient être respectivement atteintes en face arrière en régimes 600 ps et 4,5 ns. Ces plages de pression correspondent à la fin du régime R1, i.e. au dessus de la HEL, et au régime R2, observés précédemment au chapitre 4

Les figures 6.10 et 6.11 rassemblent les vitesses d'écailles déduites des signaux VH et les épaisseurs d'écailles des tirs en 600 ps et 4,5 ns. D'après la figure 6.10, une décroissance des vitesses d'envol d'écaille en fonction de l'épaisseur de l'échantillon est une nouvelle fois observée (cf. Fig. 6.7). Étant donné les incertitudes, il est difficile d'analyser l'effet de la composition pour les tirs 600 ps. Les tirs en impulsion 4,5 ns révèlent par ailleurs des vitesses d'envol relativement proches de celles observées en régime picosecondes. En se penchant sur la figure 6.11, l'évolution linéaire de l'épaisseur de l'écaille avec celle de l'échantillon, précédemment constatée en régime femtosecondes, apparaît aussi en régime pico- et nanosecondes. Mis à part le tir 067 sur $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ pré-

TABLE 6.2 – Récapitulatif des tirs effectués en configuration 600 ps sur la chaîne laser ELFIE, 4,5 ns et 15 ns sur la chaîne LULI2000. L'absence de mesure est signifiée par l'abréviation « n.m. ».

Composition	Impulsion	Tir	Épaisseur [μm]	Flux [$\text{TW}\cdot\text{cm}^{-2}$]	$V_{\text{écaille}}$ [$\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$]	$d_{\text{écaille}}$ [μm]
$Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$	600 ps	E16-054	$207 \pm 7,2$	8,41	702 ± 75	$27,3 \pm 2,2$
	600 ps	E16-055	$198 \pm 4,5$	7,64	725 ± 100	$26,9 \pm 1,8$
	600 ps	E16-066	$264 \pm 1,7$	8,16	598 ± 150	$32,1 \pm 2,9$
	600 ps	E16-070	$451 \pm 4,0$	8,33	177 ± 50	$47,2 \pm 2,7$
	600 ps	E16-062	$219 \pm 2,1$	7,74	520 ± 100	$31,4 \pm 2,3$
$Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$	600 ps	E16-063	$218 \pm 2,2$	7,66	n.m.	$30,4 \pm 3,1$
	600 ps	E16-067	$278 \pm 1,1$	8,41	364 ± 50	$22,2 \pm 1,8$
	600 ps	E16-071	$459 \pm 5,2$	8,41	198 ± 40	$50,7 \pm 3,7$
	4,5 ns	L17-031	$799 \pm 3,1$	3,01	180 ± 25	$70,2 \pm 4,4$
	4,5 ns	L17-033	$214 \pm 2,9$	2,82	675 ± 25	$37,6 \pm 10$
$Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$	4,5 ns	L17-035	$445 \pm 3,0$	2,98	300 ± 50	$50,6 \pm 3,3$
	600 ps	E16-064	$205 \pm 2,0$	7,74	655 ± 50	$30,0 \pm 5,5$
	600 ps	E16-068	$270 \pm 6,6$	8,49	416 ± 150	$31,6 \pm 2,4$
	600 ps	E16-072	$479 \pm 2,3$	8,08	156 ± 30	$51,1 \pm 3,7$
	600 ps	E16-065	$220 \pm 1,9$	7,57	650 ± 40	$30,3 \pm 1,6$
$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	600 ps	E16-069	$279 \pm 2,3$	7,82	364 ± 150	$33,1 \pm 1,2$
	600 ps	E16-073	$464 \pm 1,8$	8,33	125 ± 50	$52,3 \pm 3,0$

FIGURE 6.10 – Variation de la vitesse d'envol des écailles sur $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$, $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$, $Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ en fonction de l'épaisseur d'échantillon pour des durées de chargement de 600 ps et 4,5 ns.

sentant une épaisseur d'écaïlle bien inférieure à la tendance générale, l'influence de la composition sur l'épaisseur d'écaïlle ne se fait pas ressentir. Un constat similaire peut être fait en étudiant la morphologie des écaïlles observées par visualisation transverse.

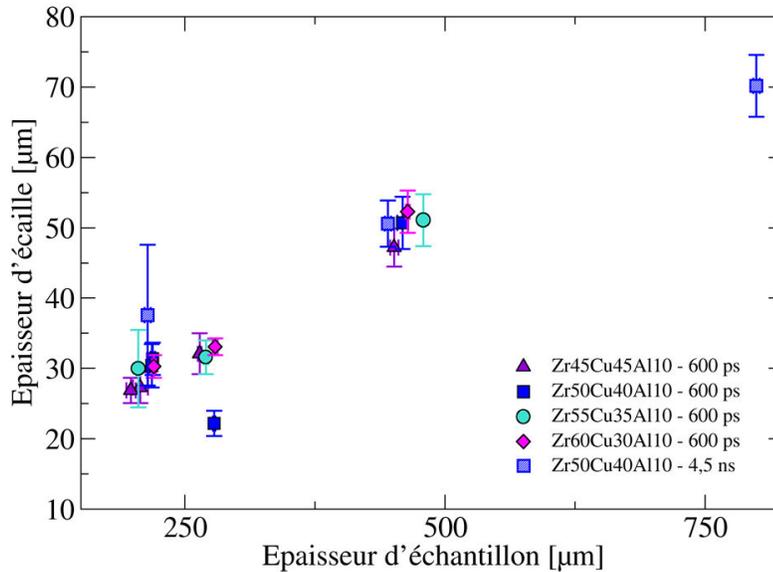


FIGURE 6.11 – Variation de l'épaisseur des écaïlles sur $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$, $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$, $Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ en fonction de l'épaisseur d'échantillon pour des conditions de chargement identiques d'impulsions 600 ps et 4,5 ns. Pour toutes les compositions, une croissance linéaire de l'épaisseur d'écaïlle avec l'épaisseur de l'échantillon peut être remarquée indépendamment de la nuance et de la durée d'impulsion.

Ces résultats renforcent les conclusions tirées des tirs en 350 fs, selon lesquelles le plan d'écaillage serait situé au même endroit dans l'échantillon quel que soit le pourcentage de zirconium. Cela atteste une fois de plus que la propagation des ondes n'est pas sujette à l'effet de composition. Cependant, contrairement aux tirs femtosecondes, il est moins évident de discriminer un effet de composition sur la vitesse d'envol des écaïlles et donc sur la limite à la rupture. Pour expliquer la proximité des vitesses d'envol en 600 ps et 4,5 ns, il faut une nouvelle fois se référer au phénomène d'amortissement hydrodynamique. En effet, en effectuant des simulations ESTHER sur cuivre, nous avons pu constater que les niveaux de pression en faces arrière en 600 ps étaient supérieurs à ceux en 4,5 ns. À cela s'ajoute un taux de déformation plus élevé pour les tirs picosecondes que pour les tirs nanosecondes. Si l'on suppose que l'amortissement hydrodynamique est indépendant de la composition, nos résultats suggèrent donc que la limite à la rupture en régime 600 ps est supérieure à celle en régime 4,5 ns.

Pour achever cet aperçu macroscopique de la rupture de nos matériaux, nous allons discuter des seuils de tension dynamique maximale obtenus sur les deux tirs effectués avec une impulsion de 15 ns. La figure 6.12 illustre les signaux de vitesse de surface libre au cours du temps obtenus par VISAR pour les tirs L17-063 et L17-065 pour des intensités respectives de 7,09 et 7,56 TW.cm⁻² (cf. tableau 6.3). D'après la courbe d'Hugoniot

établie dans le chapitre 4, les pressions atteintes en faces arrières pour ces deux tirs avoisinent les 75-80 *GPa*, ce qui correspond au régime R4. Contrairement aux tirs précédents – en 350 *fs*, 600 *ps* et 4,5 *ns* – ces deux tirs n’ont pas été sujets au phénomène d’amortissement hydrodynamique à cause de leurs faibles épaisseurs et de la longue durée d’impulsion laser utilisée.

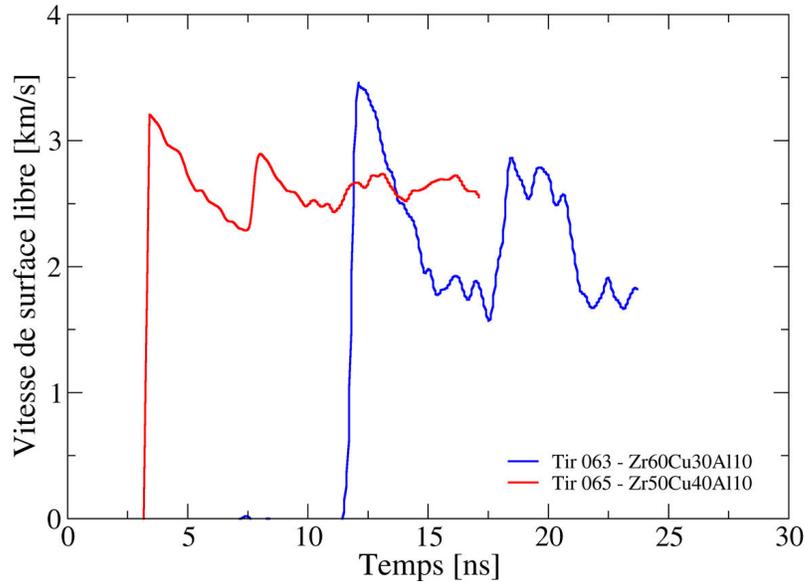


FIGURE 6.12 – Signaux de vitesses de surfaces libres des tirs 063 et 065 respectivement sur $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ et $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$, suite à une impulsion laser de 15 *ns* et d’environ 7 $TW.cm^{-2}$. Les pressions en face arrière avoisinent les 80 *GPa*.

Sur ces deux signaux, il est possible de distinguer la signature caractéristique d’un écaillage de par la présence de pull-back et d’oscillations des ondes dans l’écaillage. En mesurant la différence de vitesse entre le débouché et le début de ré-accélération, nous avons estimé les seuils de rupture du $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ et du $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ comme étant respectivement égaux à 15 et 30 *GPa*, soit un facteur deux entre les compositions ! Les allers-retours nous ont aussi permis de déterminer approximativement l’épaisseur des écaillages éjectés (cf. tableau 6.3 : 7,5 μm pour le $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ et 13 μm pour le $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$). De nouveau, un facteur de deux peut être constaté. N’ayant pu récupérer les échantillons après tir, il nous est impossible de confronter ces valeurs à d’éventuelles mesures profilométriques de profondeur de cratère. Quant aux vitesses d’éjection moyennes, elles sont situées autour de 2,5 $km.s^{-1}$ pour le $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ et 2,0 $km.s^{-1}$ pour le $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$. Enfin, il est important de souligner que les vitesses de déformation respectivement engendrées sont de l’ordre de $2.10^7 s^{-1}$ et $5.10^7 s^{-1}$.

Que ressort-il de ces résultats ? Tout d’abord, l’effet de la composition pour ce niveau de chargement apparaît beaucoup plus marqué que pour R2 (cf. tirs 600 *ps* et 4,5 *ns*). Ensuite, en se référant aux données disponibles dans la bibliographie sur σ_R , il est possible de distinguer une forte disparité entre nos données et celles de la littérature (cf. Fig. 6.13). En effet, les valeurs seuils recueillies dans la littérature se situent

TABLE 6.3 – Récapitulatif des tirs effectués en 15 ns sur la chaîne LULI2000. Les mesures de vitesses ont été pour ces tirs instrumentés d'un VISAR à la place d'une VH.

Tir	Composition	Épaisseur [μm]	Énergie [J]	Flux [$\text{TW}.\text{cm}^{-2}$]	$V_{\text{écaille}}$ [$\text{m}.\text{s}^{-1}$]	$d_{\text{écaille}}$ [μm]
L17-063	$\text{Zr}_{60}\text{Cu}_{30}\text{Al}_{10}$	70 ± 1	649	7,56	2000 ± 500	13
L17-065	$\text{Zr}_{50}\text{Cu}_{40}\text{Al}_{10}$	43 ± 1	645	7,09	2500 ± 200	7,5

autour de 5 GPa et font référence à des impacts de plaques ayant engendré des taux de déformation de $8,5.10^4 \text{ s}^{-1}$ à $5,0.10^6 \text{ s}^{-1}$ pour des pressions n'excédant pas 15 GPa – correspondant aux régimes R1 et R2. Dans notre cas, le seuil de rupture mesuré se rapporte au régime R4 et le taux de déformation est supérieur à 10^7 s^{-1} . De ce fait, nous ne sommes pas en mesure de confronter directement nos résultats à ceux de la littérature. Néanmoins, une réflexion peut être menée sur l'évolution de la contrainte à rupture en fonction du taux de déformation et du niveau de pression pour une application blindage face à des impacts hyper-véloces.

Nous avons évoqué précédemment que la croissance de la limite à la rupture avec l'augmentation de la vitesse de déformation est un phénomène généralement observé sur dans les métaux polycristallins (cf. Fig. 1.19 et 6.3). Ainsi, si l'on met le tir L17-065 en parallèle de ceux de l'étude de Lu et al [99] menée sur du $\text{Zr}_{50}\text{Cu}_{40}\text{Al}_{10}$ [99], un effet du taux de déformation sur la limite à la rupture peut être envisagé. En effet, Lu et al ont rapporté une valeur de seuil de rupture σ_R de 4,5 GPa pour une vitesse de déformation de $5,0.10^5 \text{ s}^{-1}$, alors que dans notre cas un σ_R de 15 GPa est mesuré pour une vitesse de déformation de 2.10^7 s^{-1} . Pour rappel, la limite à la rupture en traction en statique mesurée par Yokoyama et al [166] sur cette composition s'élève à 2 GPa. Cependant, compte tenu du fait que ces trois données aient été obtenues dans des régimes de pression R1 et R4, ils ne permettent pas de discriminer l'influence du taux de déformation de celui de la pression sur la contrainte à rupture, bien que les études menées par Mosh et al [115] sur cuivre et aluminium aient révélé une croissance prononcée du σ_R au-delà de 10^7 s^{-1} .

En outre, un examen approfondi de la figure 6.13 révèle que pour un verre métallique de composition $\text{Zr}_{56,7}\text{Cu}_{15,3}\text{Ni}_{12,5}\text{Nb}_{5,0}\text{Al}_{10}\text{Y}_{0,5}$ aucune dépendance à la vitesse de déformation n'est observée pour le régime R1 ($P < 10 \text{ GPa}$). De même, pour ce régime de pression et pour des vitesses de déformations comprises entre $8,5.10^4 \text{ s}^{-1}$ et $5,0.10^6$, aucun effet de la composition n'apparaît pour les verres métalliques base Zr testés. Par conséquent, nous pouvons en déduire que dans R1, le seuil de rupture dynamique des verres métalliques base zirconium est insensible au taux de déformation.

Concernant l'effet de composition, il apparaît non significatif dans le régime R1 et bien plus prononcé dans R4. Ce constat laisse supposer que les variations de limite à la rupture supposées en régime 350 fs – i.e. R1 – restent modérées au regard de l'effet observé dans R4.

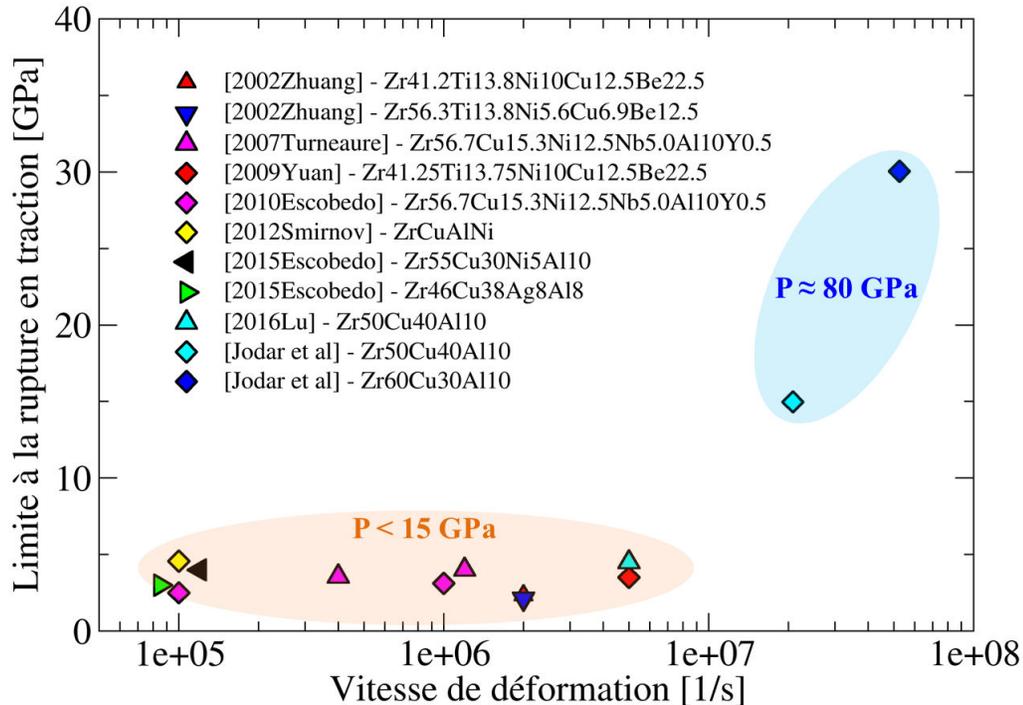


FIGURE 6.13 – Synthèse des tensions d'écaillage rapportées dans la littérature par différents auteurs sur verres métalliques base zirconium et celles calculées à partir des signaux de la figure 6.12. D'après les données disponibles dans la bibliographie, le taux de déformation ne semble pas jouer un rôle significatif dans l'évolution de la limite à la rupture dans R1. Les données recueillies dans notre étude dépassent très nettement celles observées par d'autres auteurs.

6.2.3 Synthèse

À la vue de ces premiers résultats et des hypothèses avancées, une synthèse est requise afin d'en retirer une première tendance. Durant les pages précédentes, nous nous sommes concentrés sur les effets et les répercussions qu'engendrent des modifications du taux de déformation, de la composition sur la rupture et de la pression.

L'étude des épaisseurs d'écaillage obtenues pour les tirs en 350 fs, 600 ps et 4,5 ns, nous ont révélé que l'écaillage éjectée était d'autant plus massive que la distance parcourue par l'onde était grande. Par ailleurs, les écaillages observés en régime 350 fs étaient en moyenne une à deux fois plus minces que celles observées pour les tirs d'impulsions plus longues. De plus, les profondeurs des cratères face arrière mesurées étaient quasi-identiques qu'il s'agisse d'une impulsion picosecondes ou nanosecondes. Ces deux aspects ont pu être expliqués grâce à la théorie des chocs et au phénomène d'amortissement hydrodynamique. Enfin, les mesures de limite à la rupture rapportées dans la littérature sur bon nombre de compositions n'ont pas démontré une influence significative du taux de déformation sur la limite à la rupture des verres métalliques base zirconium dans le régime R1. En ce qui concerne notre composition, nous avons ob-

servé une limite à la rupture trois fois supérieure à celle de Lu et al [99], attestant d'un potentiel couplage à la pression et/ou au taux de déformation. Pour résumer, nos analyses menées à l'échelle macroscopique nous suggèrent que les effets de vitesses de déformation et de composition sont étroitement liés au régime de pression considéré :

- Aucun effet de la composition et du taux de déformation sur le seuil de rupture dynamique dans R1.
- Un effet de la composition sur σ_R apparaît dans R4 pour des vitesses de déformations supérieures à 10^7 s^{-1} .

Bien que nous ne puissions pas déterminer qui de la pression ou du taux de déformation contribue le plus significativement à l'augmentation de σ_R dans R4, il reste indéniable que ce type de propriété peut s'avérer utile pour les applications visées.

6.2.4 Intérêt du verre métallique comme élément de blindage

En repositionnant ces constats dans le cadre de la problématique initiale, nous avons recensé les valeurs de limite dynamique à la traction de plusieurs métaux plus conventionnels. Nous les avons divisées en fonction de leur masse volumique et nous avons tracé leur évolution en fonction du taux de déformation (cf. Fig. 6.14). À partir de ce graphique, plusieurs constats peuvent être établis :

- Autour de 10^5 s^{-1} , le rapport des verres métalliques base *Zr* démontrent des valeurs proches du molybdène et du fer, toutes nettement supérieures à celles du cuivre, du tantale et de l'aluminium.
- Au-delà de 10^6 s^{-1} , les données de la bibliographie sur verre métallique base *Zr* indiquent une chute du rapport, les faisant tendre vers les données sur tantale et aluminium.
- À très hautes vitesses de déformation ($> 10^6 \text{ s}^{-1}$), le rapport calculé pour notre tir sur $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ s'inscrit dans la prolongation de celui du molybdène. Celui calculé à partir du tir sur $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ surpasse l'ensemble des métaux présentés ici.

Les données recensées sur les verres métalliques font volontairement abstraction du régime de pression – R1 ou R4 – dans lequel les seuils de rupture ont été obtenus.

Reste maintenant à savoir s'il serait pertinent d'avoir recours à nos matériaux pour se prémunir d'impacts hyper-véloces. Premièrement, les vitesses d'impact du régime balistique se situent entre 1,3 et 1,7 km.s^{-1} , alors que celui d'impacts de débris spatiaux est nettement supérieur à 10 km.s^{-1} . Dans un second temps, les vitesses de déformation pour ces deux régimes sont fonction des dimensions du projectile impactant la structure. Dans le cas d'impacts balistiques, les taux de déformation associés peuvent s'étendre de 10^4 s^{-1} à 10^6 s^{-1} . Concernant les impacts de débris spatiaux de dimensions inférieures au centimètre – censés être contenus par les assemblages multicouches de type WHipple – ils auront tendance à générer des chargements dont les vitesses de déformation les plus faibles commencent à 10^6 s^{-1} . En se référant à la figure

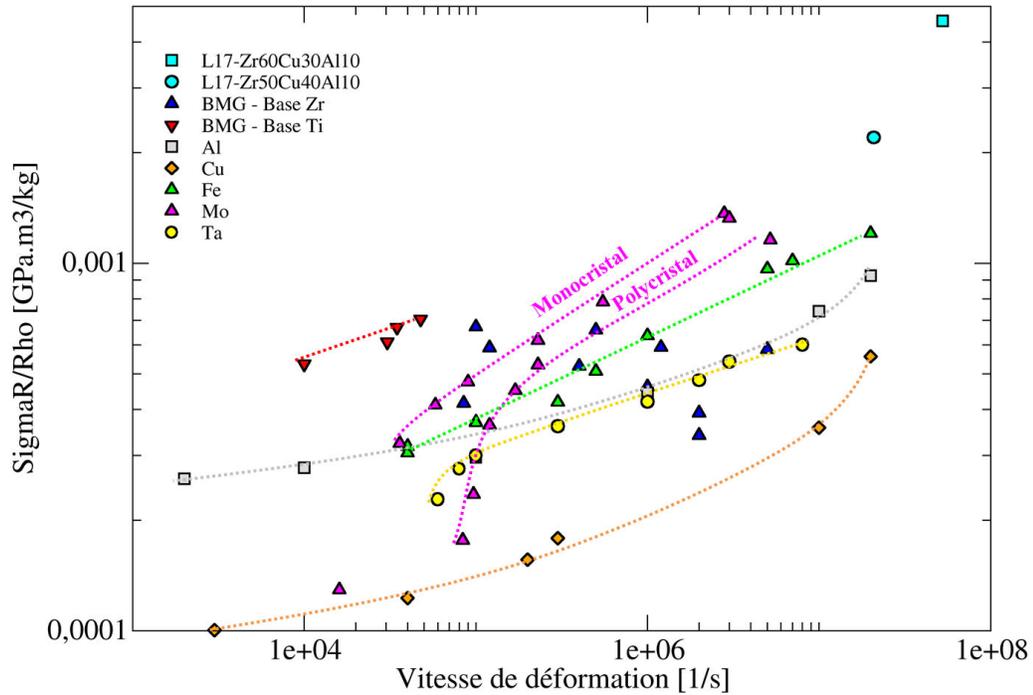


FIGURE 6.14 – Synthèse de la tension d'écaillage de plusieurs métaux polycristallins et amorphes divisés par leur masse volumique en fonction de la vitesse de déformation.

6.14, les verres métalliques base *Zr* et base *Ti* rapportés dans la littérature se révèlent autant voire plus performants que l'aluminium, le tantale, le molybdène ou le fer dans le régime de déformation balistique. Dans le cadre d'applications défense ou un compromis entre masse et performance mécanique doit être trouvé, les métaux amorphes se présentent donc comme de sérieux challengers.

Outre des seuils de ruptures élevés pour une masse volumique relativement faible, l'absence de couplage entre σ_R et $\dot{\epsilon}$ dans R1 peut représenter un frein à l'emploi. Toutefois, nous avons vu que pour des taux de déformation et des pressions élevées, les verres métalliques *ZrCuAl* disposent de limites à la rupture bien supérieures aux différents métaux polycristallins illustrés en figure 6.14. En se basant sur les polaires de choc de l'aluminium, du tungstène et du verre métallique (cf. chapitre 4 section 4.2.3), il est possible de déterminer les niveaux de pressions résultantes d'un impact de projectile en tungstène allant à $1,7 \text{ km.s}^{-1}$ et d'aluminium propulsé à 7 km.s^{-1} . Ainsi, la pression d'impact induite par le projectile en tungstène serait d'environ 48 GPa et celui en aluminium d'environ 150 GPa . Alors, la pression engendrée par le tungstène correspondrait au régime R3, voire au début de R4, et celui en aluminium au régime R4. En mettant en perspective nos précédentes conclusions, il semblerait donc que pertinent d'avoir recours aux verres métalliques *ZrCuAl* pour ces deux applications.

6.3 Analyse post-mortem des faciès de rupture

À la fin du chapitre bibliographique, nous avons mis en évidence que les faciès de rupture de verres métalliques base *Zr* choqués comportaient des cavités coniques [42, 41, 99]. Ces dernières sont désignées sous le terme anglais « cup-cone », pour les différencier des cupules généralement observées sur les faciès de rupture ductile des métaux. Derrière ce terme se cache un enchevêtrement et une alternance désordonnée de coupelles et de cônes – termes que nous conserverons par la suite – présents sur les cratères en faces arrière. Ceux-ci ont pu être observés sur les faciès de rupture d'échantillons de nuances $Zr_{56,7}Cu_{15,3}Ni_{12,5}Nb_{5,0}Al_{10}Y_{0,5}$ et $Zr_{46}Cu_{38}Ag_8Al_8$ par Escobedo et al [42, 41], de $Zr_{41,2}Ti_{13,8}Cu_{12,5}Ni_{10}Be_{22,5}$ par Huang et al [68] et de $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ par Lu et al [99], suite à des impacts de plaques dont les pressions engendrées étaient comprises entre 3 et 5 *GPa* (cf. Fig. 6.15), soit en dessous de la limite élastique de l'Hugoniot. Qu'en est-il concernant les faciès de rupture de nos échantillons ?

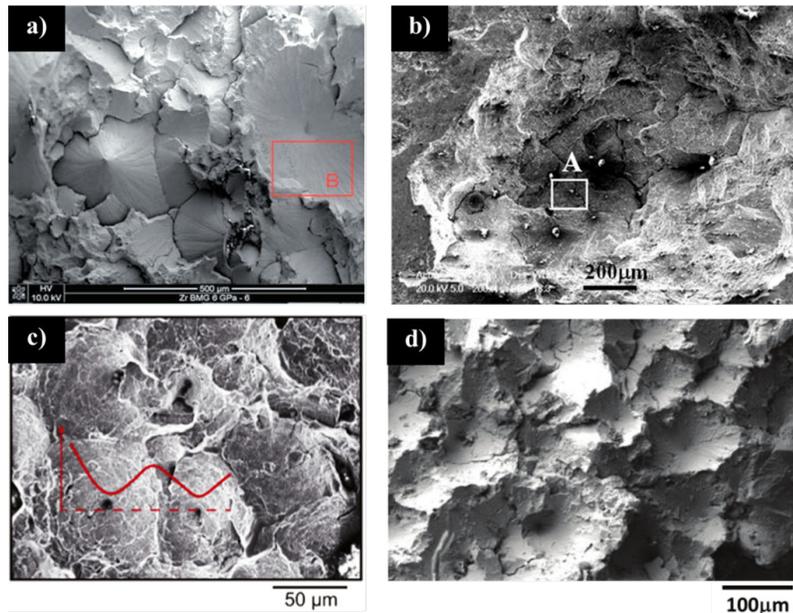


FIGURE 6.15 – Faciès de rupture après impacts de plaques de verres métalliques de compositions (a) $Zr_{56,7}Cu_{15,3}Ni_{12,5}Nb_{5,0}Al_{10}Y_{0,5}$ [42], (b) $Zr_{41,2}Ti_{13,8}Cu_{12,5}Ni_{10}Be_{22,5}$ [68], (c) $Zr_{46}Cu_{38}Ag_8Al_8$ [41] et (d) $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ [99]. Dans chaque situation, la surface de rupture présente des cavités connues sous le nom de « cup and cone ».

La figure 6.16 regroupe les clichés obtenus par microscope électronique à balayage des cratères présents en face arrière d'échantillons de diverses compositions soumis à une impulsion de 350 *fs*. Sur ces clichés, un grand nombre de coupelles sont discernables. De prime abord, cette observation semble cohérente avec les résultats d'Escobedo et al et Lu et al. En effet, nous avons vu précédemment que le régime de pressions associé aux tirs 350 *fs* s'étendait autour de la limite élastique de l'Hugoniot. De ce fait, il n'est pas étonnant que nos échantillons présentent des faciès similaires à ceux de la littérature, nonobstant un taux de déformation différent. Par contre, il apparaît bien

moins évident de pouvoir distinguer la présence de cônes comme ceux illustrés en figure 6.15 (a). Il est important de souligner que dans les travaux d'Escobedo et al et Lu et al seuls les cratères présents en face arrière des échantillons ont été rapportés.

Parallèlement, la morphologie des motifs observés en figure 6.15 se différencie de celle des faciès de la figure 6.16. Deux pistes peuvent alors être suggérées pour expliquer ces divergences. Dans un premier temps, les générateurs de choc utilisés pour chaque étude entraînent des vitesses de déformation différentes. Dans un second temps, les nuances étudiées sont très distinctes les unes des autres. La figure 6.15 (c) correspond au faciès observé par Lu et al sur un verre métallique $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$. En la comparant au faciès correspondant de la figure 6.16, nous pouvons supposer que le taux de déformation est à l'origine de la réduction de diamètre des coupelles. Par exemple, un facteur deux est observé entre les diamètres des deux plus larges coupelles de ces deux images. Cette observation reste malgré tout à pondérer par rapport à la sensibilité des verres métalliques aux moindres impuretés pouvant être à l'origine de la formation de nano- ou micro-cristaux.

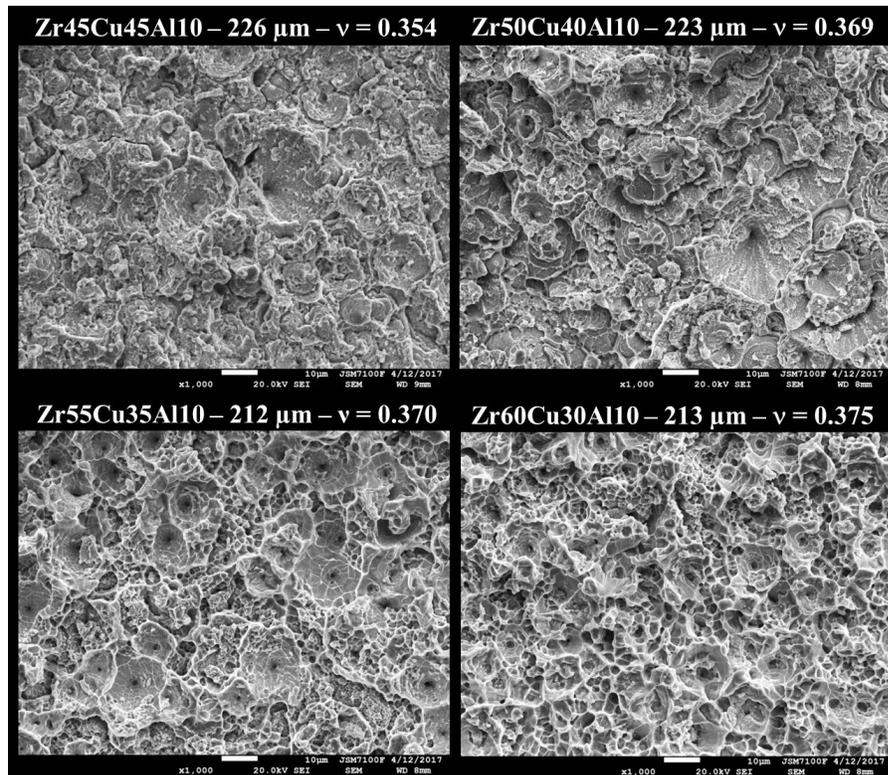


FIGURE 6.16 – Clichés réalisés par Microscopie Electronique à Balayage sur les faciès de rupture en face arrière de $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$, $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$, $Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ pour un grossissement x1000 suite à une irradiation de 350 fs. Sur chacune des nuances, un motif composé de cavités peut être remarqué, dont la morphologie varie avec le pourcentage de zirconium. Les compositions riches en zirconium présentent une rupture proche des matériaux ductiles tandis que ceux riche en cuivre apparaissent plus proches d'une rupture de type fragile.

Concernant l'effet de composition, une comparaison ne peut être menée qu'à partir de nos résultats. Ainsi, les cavités des tirs sur $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$ et $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ (cf. Fig. 6.16) disposent de surfaces étendues peu tortueuse voire lisses, assimilables à une rupture de nature fragile. Au contraire, les faciès des tirs sur $Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ se rapprochent bien plus de faciès de rupture ductile bien connus des métaux. Cette variabilité des faciès suggère une dissipation d'énergie préalablement à la rupture plus importante pour les compositions riches en zirconium. Cette dépendance peut être corrélée au coefficient de Poisson de nos verres. D'après les travaux de Lewandowski [95] et de Greer [52] sur l'évolution de l'énergie de rupture dans les verres métallique en fonction du coefficient de Poisson, les cibles en $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ sont supposées présenter un comportement macroscopique à la rupture des plus ductiles. Au contraire, ceux de composition $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$ apparaissent moins ductiles, voire fragiles.

Pour expliquer le plus grand nombre de coupelles sur nos faciès de rupture, il semblerait difficile de l'attribuer à un effet de la composition. Bien que nous ne disposions pas d'estimation quantitative, les différentes images de la figure 6.16 ne laissent pas présager une variation significative de leur nombre avec la nuance. Quant au niveau de pression en face arrière, il est supposé du même ordre de grandeur entre les études de Lu et al et la nôtre. Nonobstant de possibles effets de recouvrement effaçant « les pistes initiales » de la rupture, la seule piste restante serait d'attribuer la variation du diamètre aux vitesses de déformation.

En résumé, nos résultats tendent à suggérer que le taux de déformation entraîne une augmentation du nombre de coupelles et une réduction de leur diamètre, tandis que la fraction volumique au sein d'un même système modifie le seuil de dissipation d'énergie à la rupture. De plus, l'observation post-mortem des tirs en 600 ps et 4,5 ns (cf. Fig. 6.17) a révélé une nouvelle fois la présence de ce motif sur les faciès de rupture. Le fait que ces coupelles soient présentes sur les zones écaillées de différentes compositions et choquées à différents taux de déformation présume que ce motif est caractéristique du processus dynamique de rupture des verres métalliques base zirconium.

Pour essayer de comprendre plus en détails les origines fondamentales des résultats observés, il nous faut pour cela aller étudier les échantillons récupérés à une échelle plus fine. De ce fait, nous essayerons dans ce qui suit d'apporter des résultats semi-quantitatifs à partir de l'analyse détaillée des faciès de rupture à une échelle mésoscopique correspondant à l'échelle du cône.

6.3.1 Évolution des coupelles et des cônes

Pour examiner plus finement les faciès de rupture de manière à étudier l'influence de la durée du chargement et de la composition sur le comportement à la rupture – nous avons entrepris des mesures profilométriques 3D afin de cartographier métrologiquement les cratères en faces arrière. De ces relevés, nous avons suivi deux méthodes

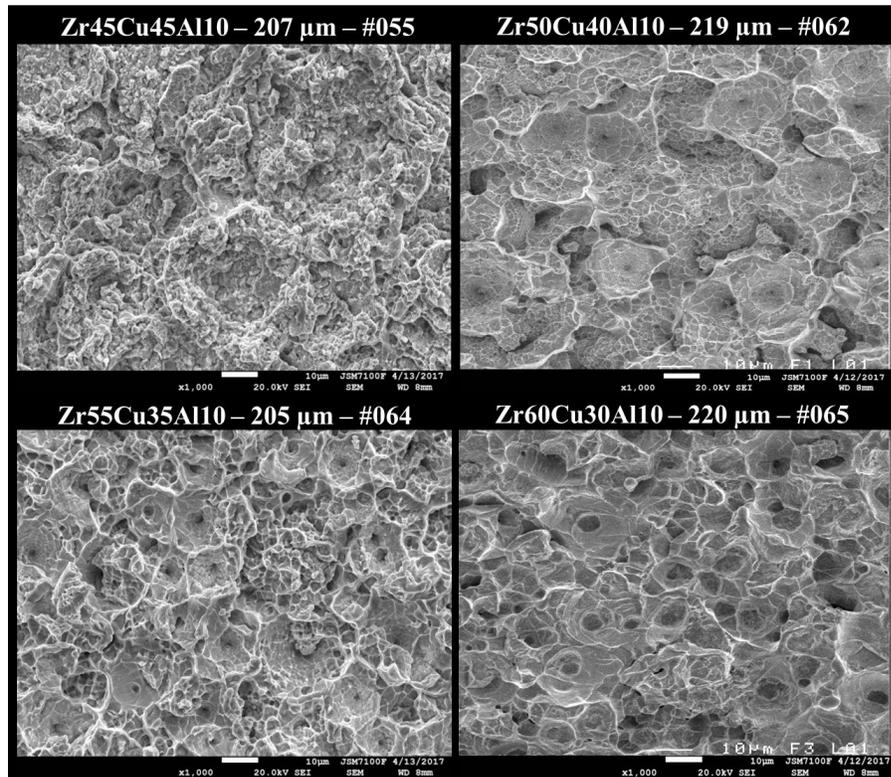


FIGURE 6.17 – Clichés réalisés par Microscopie Electronique à Balayage sur les faciès de rupture en face arrière de $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$, $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$, $Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ pour un grossissement $\times 1000$ suite à une irradiation de 600 ps . Sur chacune des nuances, un motif composé de cavités peut être remarqué, dont la morphologie varie avec le pourcentage de zirconium. Outre l'échantillon de nuance $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$ présentant un faciès de rupture fragile, les autres compositions plus riches en zirconium.

d'analyse de surface (cf. annexes A et B) se basant globalement sur l'analyse des « monts et vallées » présents sur les faciès de rupture. La première, usitée dans le monde de la métrologie pour caractériser les surfaces fonctionnelles obtenues suite à des opérations d'usinage, se réfère à la courbe d'Abbott-Firestone [1] construite à partir de mesures de rugosité. L'autre méthode quant à elle, repose dans ses grandes lignes sur l'algorithme « Watershed » utilisé dans le traitement d'image pour isoler les contours d'objets. Pour cette deuxième méthode, un algorithme a été spécifiquement développé pour nos faciès, l'objectif final étant de pouvoir extraire la géométrie chaotique des cavités observées sur les surfaces endommagées.

6.3.1.1 Influence de la composition

L'étude du motif s'est faite sur des images de plusieurs millimètres carrés, avec une résolution spatiale inférieure au micromètre ($\approx 500\text{ nm}$). Compte tenu du temps nécessaire à la détection et l'analyse des résultats, nous avons restreint notre étude aux tirs 006, 008, 009 et 012, dans le but de rendre compte d'une potentielle influence de la composition sur la morphologie des coupelles et des cônes.

Pour rendre cette étude plus quantitative, nous avons relevé les valeurs statistiques de rugosité à cœur, les hauteurs des monts et des creux des tirs 006, 008, 009 et 012 en configuration 350 *fs*. Ces paramètres une fois sommés sont censés représenter la rugosité totale de la zone endommagée. Autrement dit, ils permettent d'estimer quantitativement l'épaisseur de la zone mise en traction avant rupture aux abords du plan d'écaillage. Le tableau 6.4 recense l'ensemble des valeurs de S_k , S_{pk} et S_{vk} , correspondant respectivement aux rugosités à cœur, celle liée à aux monts et celle liée aux vallées, obtenues pour les tirs 006, 008, 009 et 012.

TABLE 6.4 – Valeurs de rugosité à cœur S_k , des monts S_{pk} et des vallées S_{vk} obtenues pour les tirs 006, 008, 009 et 012. E_k correspond à la somme des rugosités précédentes.

Tir	Composition	S_k [μm]	S_{vk} [μm]	S_{pk} [μm]	E_k [μm]
E16-006	$Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$	$11,9 \pm 0,5$	$4,25 \pm 0,5$	$5,29 \pm 0,5$	$21,45 \pm 1,5$
E16-008	$Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$	$12,4 \pm 0,5$	$8,3 \pm 0,5$	$4,72 \pm 0,5$	$25,4 \pm 1,5$
E16-009	$Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$	$10,9 \pm 0,5$	$3,19 \pm 0,5$	$4,27 \pm 0,5$	$18,4 \pm 1,5$
E16-012	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	$10,0 \pm 0,5$	$3,22 \pm 0,5$	$3,91 \pm 0,5$	$17,1 \pm 1,5$

L'examen des paramètres S_k calculés pour chaque nuance suggère que l'augmentation du taux de zirconium engendre une diminution de la rugosité à cœur. Ce même constat peut être formulé pour le paramètre S_{pk} . Seul le S_{vk} ne présente pas une tendance similaire. En particulier, la valeur obtenue pour le $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ correspond quasiment au double de celles obtenues pour les autres compositions. C'est d'ailleurs la raison pour laquelle aucune tendance n'est réellement constatée sur l'évolution du E_k en fonction du taux de zirconium. Autrement, nous aurions assisté à une diminution progressive de la rugosité totale – i.e. et donc de la zone mise sous traction – avec l'augmentation du taux de zirconium. En dépit du peu de données employées pour cette étude, il est difficile de se prononcer sur un quelconque effet de la composition sur l'épaisseur de la mise en traction.

En complément de ces mesures de rugosité, nous avons procédé à la détection et au filtrage des coupelles à l'aide de l'algorithme développé en interne. Les surfaces de rupture étant très chaotiques dues aux interactions entre coupelles, nous avons restreint notre étude aux coupelles les plus régulières. L'objectif initial était double : accéder à la géométrie de celles-ci et discriminer si leurs initiations diffèrent en fonction de la composition de l'échantillon. Pour ce faire, deux filtrages ont été utilisés. Le premier « MinPerim » est un critère permettant de conserver la partie la plus régulière de la géométrie avant de voir se produire les éventuels recouvrements inter-coupelles (cf. Fig. 6.18 (c)). En somme, il permet de conserver uniquement la géométrie suivant l'initiation de la coupelle. Le deuxième, « MeanPerim », est un critère rendant compte de la géométrie moyenne des coupelles (cf. Fig. 6.18 (e)). Il est moins précis et restrictif

que « MinPerim » en ce qui concerne les dimensions observées proche du site d'initiation, mais offre accès à des distributions de hauteurs et surfaces projetées de coupelles moyennes. Les tableaux 6.5 et 6.6 synthétisent les dimensions statistiques des coupelles selon les critères « MinPerim » et « MeanPerim ».

TABLE 6.5 – Données géométriques obtenues par le critère MinPerim.

Tir	Composition	Hauteur [μm]	Rayon équivalent [μm]	Demi-angle [$^{\circ}m$]	Densité [$nb.mm^{-2}$]
E16-006	$Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$	$2,7 \pm 1,2$	$4,1 \pm 1,4$	$55,5 \pm 10,1$	265
E16-008	$Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$	$3,5 \pm 2,6$	$3,8 \pm 2,2$	$46,9 \pm 9,1$	534
E16-009	$Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$	$3,0 \pm 1,3$	$3,0 \pm 1,1$	$46,5 \pm 10,7$	515
E16-012	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	$4,1 \pm 5,2$	$2,9 \pm 1,1$	$44,1 \pm 12,7$	447

TABLE 6.6 – Données géométriques obtenues par le critère MeanPerim.

Tir	Composition	Hauteur [μm]	Rayon équivalent [μm]	Demi-angle [$^{\circ}$]
E16-006	$Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$	$4,7 \pm 3,7$	$8,0 \pm 4,1$	$62,0 \pm 10,8$
E16-008	$Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$	$5,7 \pm 4,1$	$6,6 \pm 4,0$	$52,8 \pm 11,2$
E16-009	$Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$	$5,0 \pm 3,1$	$6,1 \pm 3,2$	$54,4 \pm 11,5$
E16-012	$Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$	$5,7 \pm 5,6$	$5,8 \pm 3,1$	$53,1 \pm 12,3$

Tout d'abord, intéressons-nous à la géométrie proche du site d'initiation. Lors de la première lecture des données du tableau 6.5, plusieurs tendances semblent émerger. Dans un premier temps, le rayon équivalent des coupelles diminue avec l'augmentation de taux de zirconium. Cette décroissance est à la fois liée à la hauteur moyenne des coupelles, mais aussi à l'angle au sommet mesuré. Dans un second temps, aucune tendance n'est discernable sur la variation des hauteurs avec le pourcentage en zirconium. Malgré tout, les résultats suggèrent que les coupelles ont tendance à devenir de plus en plus petites à mesure que la teneur en zirconium est grande. Il est à souligner que l'erreur calculée pour le tir 012 est conséquente par rapport aux autres tirs. Une hypothèse serait de supposer que l'algorithme de détection et/ou la résolution spatiale n'est pas suffisante pour prendre en compte les très nombreuses « microcavités » présentes sur les surfaces de coupelles et à leur périphérie, rendant la détection de contour plus ardue comme l'illustre la figure 6.16.

Par ailleurs, les demi-angles au sommet apparaissent identiques pour les compositions $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$, $Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$, soit autour des 45° . Seule la composition la plus riche en cuivre montre un demi-angle au sommet moyen supérieur. Un constat similaire peut être formulé concernant la densité des coupelles en fonction de la nuance. Mise à part la nuance $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$, les autres compositions révèlent une

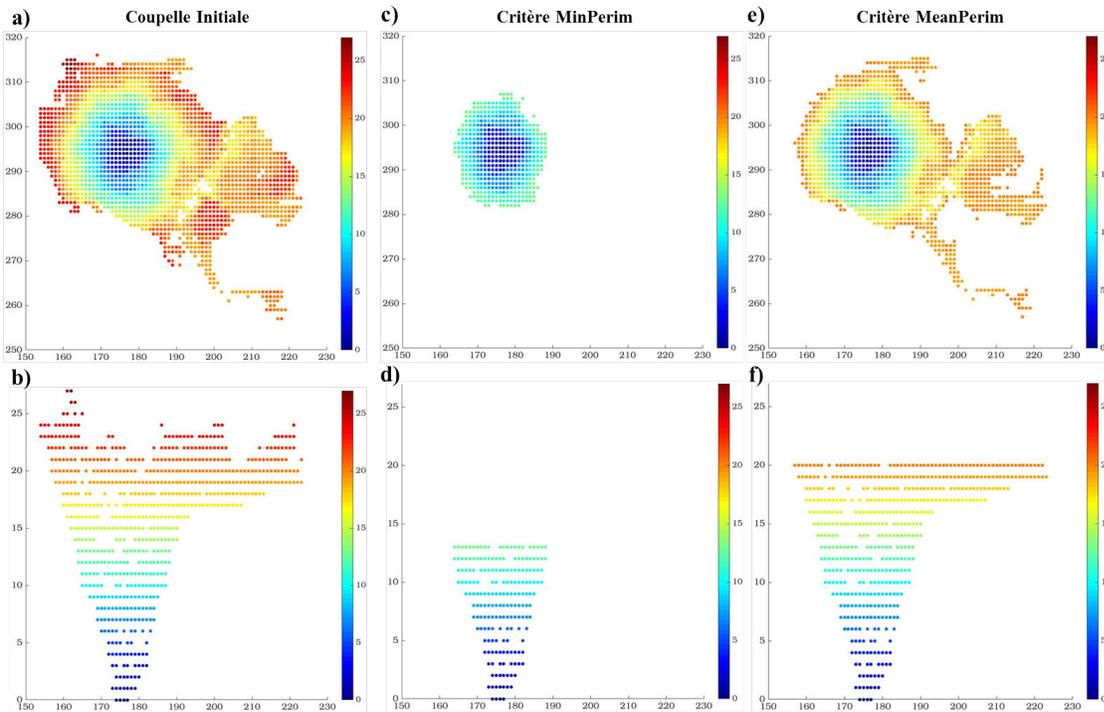


FIGURE 6.18 – (a) Vue de dessus de la coupelle initiale après détection ; (b) Vue de côté de la coupelle initiale ; (c) Vue de dessus de la coupelle écriée par le critère MinPerim ; (d) Vue de côté de la coupelle écriée par MinPerim ; (e) Vue de dessus de la coupelle écriée par le critère MeanPerim ; (f) Vue de côté de la coupelle écriée par MeanPerim.

densité de coupelles du même ordre de grandeur. Cette différence notable du nombre de coupelles recensées corrobore les observations faites à partir des clichés MEB (cf. Fig. 6.16).

En examinant qualitativement les faciès du tir 006, un nombre plus faible de coupelles de tailles plus conséquentes par rapport aux autres nuances est à souligner. À cela s'ajoute des zones contenant peu voire pas de coupelles, dont les aspects morphologiques rappellent les faciès de rupture fragile. La tendance à la réduction du diamètre des coupelles avec le taux de zirconium est aussi observé, ce qui tend à se confirmer visuellement. Enfin, l'observation en vue de coupe du tir 007 – dont les dimensions et les conditions de chargement étaient identiques au tir 008 (cf. tableau 6.1) – a permis de corroborer les mesures d'angles extraites par l'algorithme de détection (cf. Fig. 6.19). D'ailleurs, sur celle-ci sont visibles des sites d'initiation ainsi que des coupelles partiellement formées (cf. Fig. 6.19 (d)). Enfin, les résultats obtenus par le critère « MeanPerim » du tableau 6.6 amènent aux mêmes constatations.

Pour résumer, l'augmentation du taux de zirconium dans notre ternaire $ZrCuAl$ engendre une rupture en coupelles de diamètres de plus en plus réduits. L'orientation de l'initiation est identique pour toutes les compositions exceptées pour celles la plus pauvre en zirconium, présentant des faciès de rupture de nature fragile.

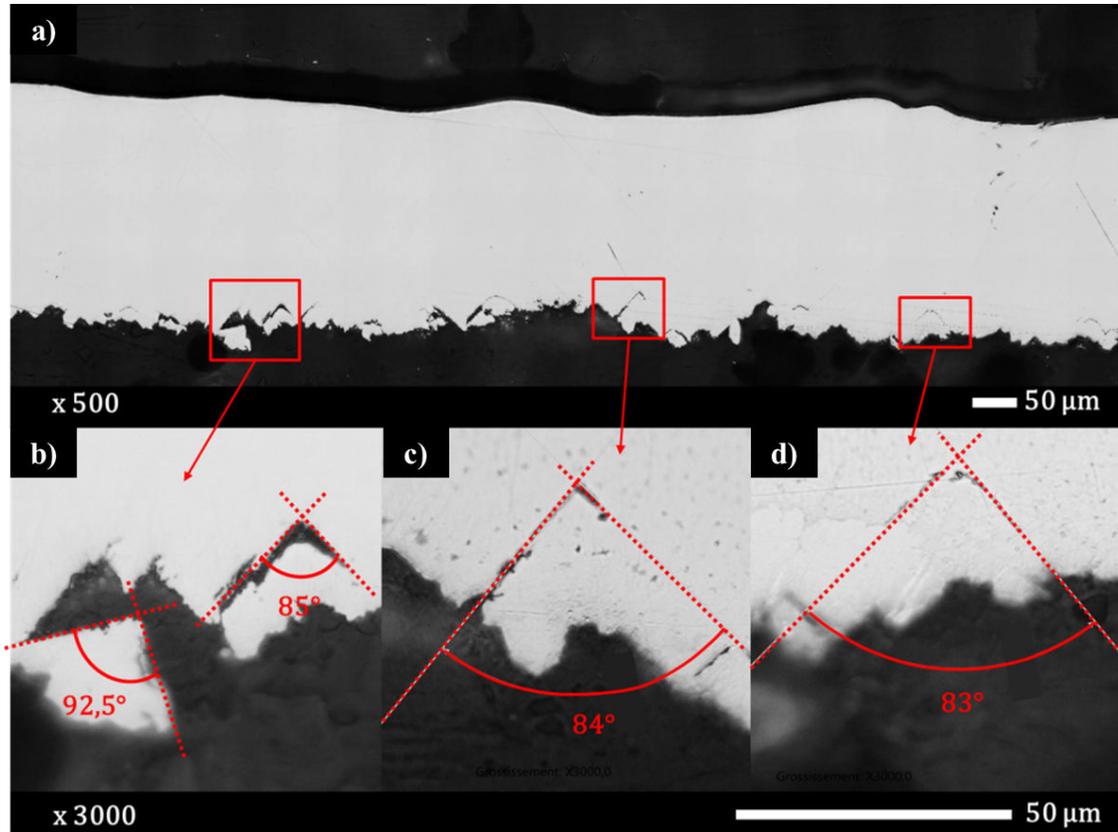


FIGURE 6.19 – Visualisation transversale de la zone écaillée révélant la formation de coupelles selon une direction à 45° avec le sens de propagation du choc.

En effet, des ruptures dont leurs plans de propagation sont proches d'une direction orthogonale à la contrainte imposée et dont les surfaces de rupture sont lisses, i.e. avec une création de surfaces limitée, sont considérées comme étant de nature fragile. Dans le cas présent, les nuances $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$, $Zr_{55}Cu_{35}Al_{10}$ et $Zr_{60}Cu_{30}Al_{10}$ montrent une initiation des coupelles à 45° . Leurs surfaces sont d'ailleurs assez chaotiques, avec notamment des veines. Le $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$ quant à lui, présente une initiation de coupelle supérieure à 45° dont les surfaces sont bien plus lisses.

Avant de poursuivre sur l'effet de composition sur l'évolution des faciès de rupture, nous nous proposons de faire un aparté sur l'orientation des cônes. La rupture dans les verres métallique est étroitement liée à la génération de bandes de cisaillement qui décrivent des chemins privilégiés pour la propagation de fissures. Nous avons vu au cours du chapitre 1 (cf. section 1.4.4.1, que les verres métalliques développaient une sensibilité à la pression, à l'origine d'une variation de l'angle de rupture en compression et traction uni-axiale. D'ailleurs, il a été rapporté que l'angle de rupture en compression avoisinait 42° , alors qu'en traction il se rapproche de 55° . Nos résultats quant à eux, suggère que la rupture pour toutes nos nuances, exceptée le $Zr_{45}Cu_{45}Al_{10}$, la rupture s'initie à 45° . Or, celle-ci est obtenue lors d'un chargement en traction et non

en compression. Étant au fait de cette sensibilité à la pression hydrostatique, se pose la question de savoir si les bandes de cisaillement menant à la formation des coupelles et des cônes sont générées en traction ou bien en compression. Pour y répondre, nous proposons dans la section 6.3.2 un mécanisme d'initiation et de propagation des coupelles et des cônes basé sur la théorie des chocs et des mécanismes de déformation connus dans les verres métalliques.

Pour en revenir à l'effet de composition, l'orientation de la rupture à 45° couplée à une importante création de surface pendant la propagation d'une fissure caractérise généralement les ruptures ductiles. Ces observations morphologiques et les mesures semi-quantitatives fournies par l'algorithme suggèrent que le taux de zirconium accroît la ductilité du matériau. En rapprochant ces résultats de ceux observés macroscopiquement, on retrouve une certaine logique. Nous avons constaté que l'augmentation du taux de zirconium engendrait une vitesse d'éjection des écailles plus faibles. De plus, les écailles paraissaient moins fragmentées pour les compositions riches en zirconium. En investiguant qualitativement les faciès de rupture, nous avons conclu que la rupture devenait de plus en plus ductile à mesure que la concentration en zirconium croissait. Avec l'étude mésoscopique, nous disposons maintenant de données semi-quantitatives suggérant des tendances similaires. Cette proximité entre les deux études est satisfaisante en un sens, puisqu'elle nous conforte dans notre analyse du processus d'endommagement et de rupture de nos verres métalliques. Néanmoins, une étude plus approfondie sur un plus large spectre d'échantillons devra être menée afin d'attester de la cohérence et validité de nos conclusions.

6.3.1.2 Influence du taux de déformation

Pour étudier l'effet de la durée du chargement, la démarche précédente est appliquée cette fois-ci à plusieurs échantillons de composition $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ d'épaisseurs différentes. En plus d'impulsions variables, la distance parcourue par les ondes permettra de renseigner sur l'effet de l'amortissement hydrodynamique et de son potentiel rôle sur la rupture. Tout d'abord, les niveaux de rugosité à cœur, des monts et des vallées ont été mesurés. L'ensemble des valeurs est recensé dans le tableau 6.7. Encore une fois, nous allons nous servir de la somme de ces paramètres pour discuter de l'évolution de la rugosité avec le taux de déformation, étant donné qu'ils ne rendent pas forcément compte de l'aspect chaotique des faciès observés.

Pour présenter de manière plus synthétique les résultats, la figure 6.20 représente l'évolution de la somme des rugosités – selon l'approche d'Abbott-Firestone – en fonction de l'épaisseur des échantillons pour différentes durées d'impulsion. En s'y référant, il est possible de constater que pour l'ensemble des échantillons, la rugosité mesurée, i.e. l'épaisseur de la zone mise en traction autour du plan d'écaillage, croît linéairement avec l'épaisseur de l'échantillon. Cette première constatation peut aisément s'expliquer par la théorie de l'amortissement hydrodynamique. Lors de leur propagation, les ondes de détentes rattrapent le front de choc en entraînant une diminution

TABLE 6.7 – Valeurs de rugosité à cœur S_k , des monts S_{pk} et des vallées S_{vk} obtenues sur différents échantillons de $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$. E_k correspond à la somme des rugosités précédentes.

Impulsion	Tir	Épaisseur [μm]	S_k [μm]	S_{vk} [μm]	S_{pk} [μm]	E_k [μm]
350 fs	E16-008	223 ± 2,4	12,4 ± 0,5	4,6 ± 0,5	7,9 ± 0,5	24,9 ± 1,5
	E16-014	165 ± 3,0	13,1 ± 0,5	5,2 ± 0,5	3,2 ± 0,5	21,5 ± 1,5
	E16-018	268 ± 2,1	19,4 ± 0,5	4,3 ± 0,5	19,2 ± 0,5	42,9 ± 1,5
600 ps	E16-062	219 ± 1,2	12,2 ± 0,5	4,2 ± 0,5	4,0 ± 0,5	20,4 ± 1,5
	E16-067	278 ± 1,1	11,9 ± 0,5	4,7 ± 0,5	8,3 ± 0,5	24,9 ± 1,5
	E16-071	459 ± 5,2	10,2 ± 0,5	7,4 ± 0,5	9,8 ± 0,5	27,4 ± 1,5
4,5 ns	L17-031	799 ± 3,1	22,8 ± 0,5	6,5 ± 0,5	9,0 ± 0,5	38,3 ± 1,5
	L17-033	214 ± 2,9	16,4 ± 0,5	5,7 ± 0,5	7,2 ± 0,5	29,3 ± 1,5
	L17-035	445 ± 3,0	23,9 ± 0,5	8,2 ± 0,5	12,2 ± 0,5	44,3 ± 1,5

du niveau de pression. De plus, leur étalement a pour conséquence une chute des vitesses de déformation tout en augmentant temporellement la durée totale du chargement. Spatialement, la zone sous tension se retrouvera alors d'autant plus grande que les faisceaux de détente se seront étalés. Une fois un compromis entre taux de déformation et seuil de rupture trouvé, l'écaillage pourra avoir lieu. Il est d'ailleurs rassurant d'observer une variation de la rugosité identique quelle que soit la durée d'impulsion.

Ce dernier point renforce d'autant plus notre interprétation par l'effet de l'amortissement hydrodynamique puisque celui-ci est censé être le même dans les trois cas. Toutefois, le tir L17-031 présente une rugosité en dehors de cette évolution linéaire. Pour apporter des pistes d'explication à son sujet, il faut se référer à son faciès et le confronter à celui des autres tirs (cf. Fig. 6.21).

D'après la figure 6.21, tous les faciès excepté le tir L17-031 révèlent la présence de coupelles. Sur ce dernier, il est en effet bien moins évident de discerner d'éventuelles formations circulaires pouvant s'apparenter aux coupelles. En corrélant cette observation morphologique à sa valeur de rugosité, il apparaît alors moins étonnant de constater que sa rugosité s'écarte de l'évolution linéaire rapportée précédemment. Reste à savoir s'il existe un seuil à partir duquel la formation des coupelles et des cônes ne pourrait avoir lieu.

Pour ce faire, nous avons eu recours à notre algorithme maison afin de quantifier la possible évolution géométrique des coupelles. De manière similaire à la section précédente, les deux critères « MinPerim » et « MeanPerim » ont été employés pour caractériser leurs géométries. Les résultats sont respectivement rassemblés dans les tableaux 6.8 et 6.9.

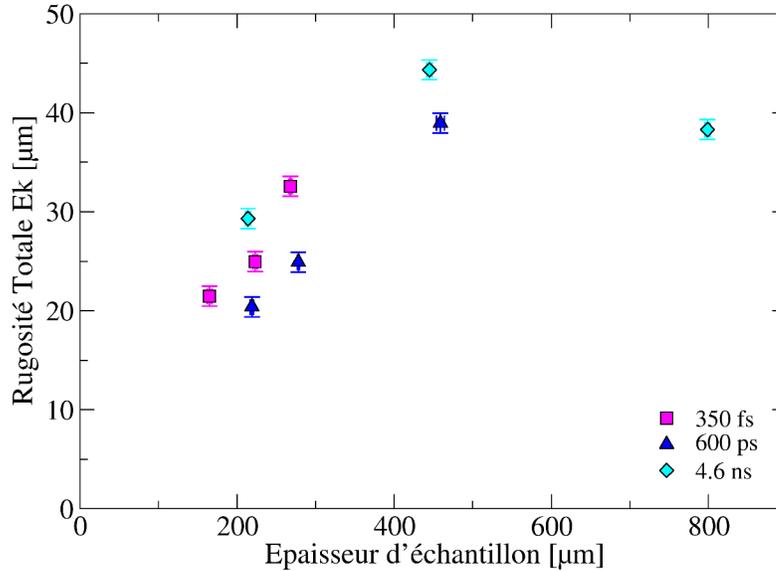


FIGURE 6.20 – Évolution de la rugosité totale E_k en fonction de l'épaisseur de l'échantillon pour différentes durées d'impulsion.

TABLE 6.8 – Données géométriques obtenues par le critère MinPerim sur différents échantillons de $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$.

Impulsion	Tir	Épaisseur [μm]	Hauteur [μm]	Rayon éq. [μm]	Demi-angle [$^\circ$]	Densité [$nb.mm^{-2}$]
350 fs	E16-008	$223 \pm 2,4$	$3,5 \pm 2,6$	$3,8 \pm 1,2$	$46,9 \pm 9,1$	337
	E16-014	$165 \pm 3,0$	$2,9 \pm 1,4$	$3,5 \pm 1,4$	$50,4 \pm 11,8$	535
	E16-018	$268 \pm 2,1$	$3,5 \pm 2,2$	$3,7 \pm 1,8$	$46,8 \pm 9,8$	371
600 ps	E16-062	$219 \pm 1,2$	$2,8 \pm 1,2$	$2,8 \pm 1,0$	$59,5 \pm 10,4$	565
	E16-067	$278 \pm 1,1$	$2,5 \pm 0,9$	$3,3 \pm 1,4$	$56,0 \pm 11,1$	548
	E16-071	$459 \pm 5,2$	$4,5 \pm 2,7$	$2,4 \pm 0,9$	$31,1 \pm 11,7$	1157
4,5 ns	L17-031	$799 \pm 3,1$	$4,6 \pm 3,7$	$2,4 \pm 1,1$	$33,5 \pm 15,9$	454
	L17-033	$214 \pm 2,9$	$6,0 \pm 14,5$	$2,9 \pm 1,0$	$38,4 \pm 12,6$	647
	L17-035	$445 \pm 3,0$	$4,0 \pm 3,5$	$2,3 \pm 0,9$	$36,7 \pm 16,8$	209

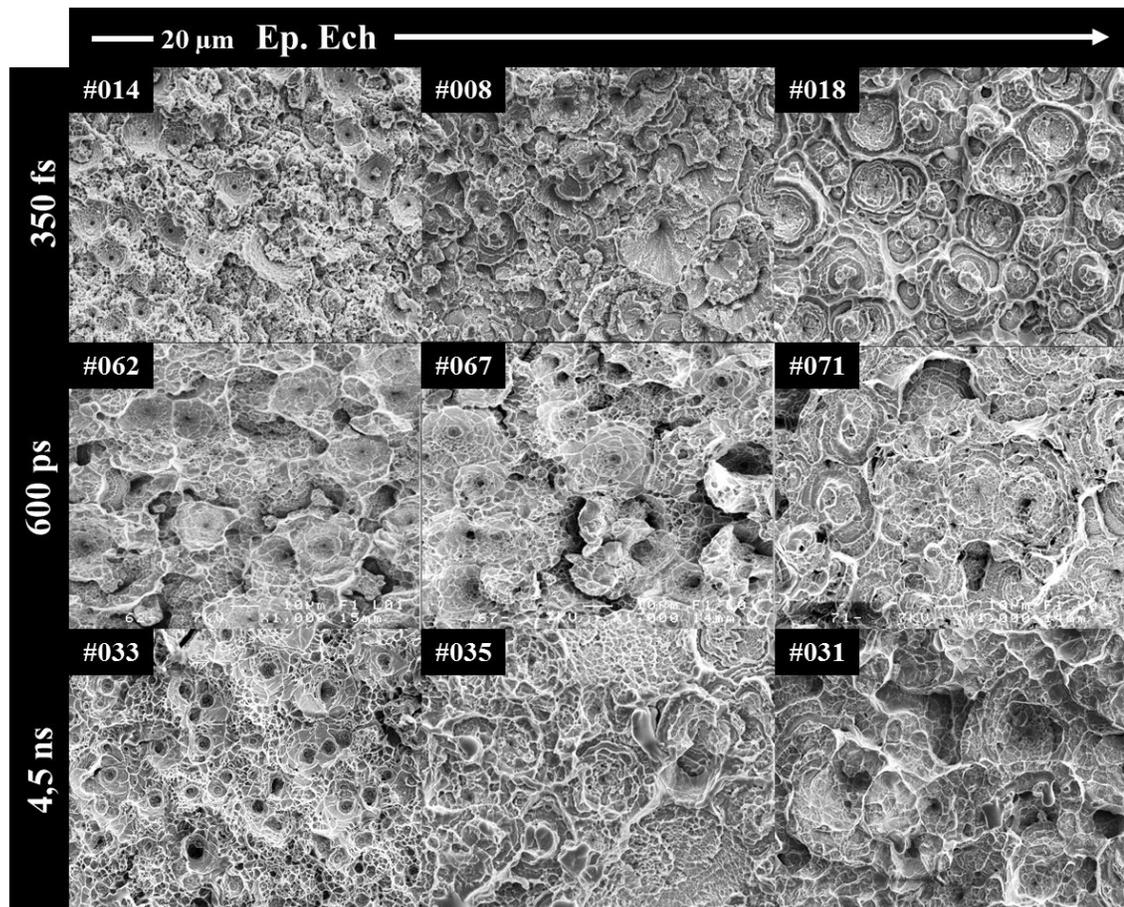


FIGURE 6.21 – Clichés MEB des surfaces de rupture des tirs sur $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ en 350 *fs*, 600 *ps* et 4,6 *ns* pour différentes épaisseurs.

TABLE 6.9 – Données géométriques obtenues par le critère MeanPerim sur différents échantillons de $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$.

Impulsion	Tir	Épaisseur [μm]	Hauteur [μm]	Rayon équivalent [μm]	Demi-angle [$^{\circ}$]
350 <i>fs</i>	E16-008	$223 \pm 2,4$	$5,7 \pm 4,1$	$6,6 \pm 4,0$	$52,8 \pm 11,2$
	E16-014	$165 \pm 3,0$	$4,7 \pm 2,8$	$7,0 \pm 3,6$	$58,8 \pm 10,9$
	E16-018	$268 \pm 2,1$	$6,3 \pm 4,7$	$6,5 \pm 4,0$	$51,1 \pm 11,3$
600 <i>ps</i>	E16-062	$219 \pm 1,2$	$4,8 \pm 2,9$	$5,3 \pm 3,0$	$60,5 \pm 9,9$
	E16-067	$278 \pm 1,1$	$5,1 \pm 3,1$	$5,3 \pm 3,1$	$59,7 \pm 10,2$
	E16-071	$459 \pm 5,2$	$7,3 \pm 4,6$	$4,0 \pm 2,2$	$34,0 \pm 12,3$
4,5 <i>ns</i>	L17-031	$799 \pm 3,1$	$8,2 \pm 7,3$	$5,0 \pm 4,7$	$36,4 \pm 15,0$
	L17-033	$214 \pm 2,9$	$7,5 \pm 9,8$	$5,6 \pm 3,7$	$43,15 \pm 13,$
	L17-035	$445 \pm 3,0$	$6,3 \pm 5,7$	$4,4 \pm 3,4$	$40,3 \pm 15,3$

Au sein d'une série de tirs réalisés avec une même durée d'impulsion (cf. tableau 6.8), les hauteurs et rayons équivalents proches du site d'initiation ne varient que légèrement, ne laissant pas supposer une quelconque tendance. À noter que le tir L17-033 présente des barres d'erreurs conséquentes, que nous ne sommes pas en mesure d'expliquer pour l'instant. Au contraire, une variation peut être remarquée entre séries d'impulsions différentes, d'autant plus visible sur les valeurs de demi-angle au sommet. Ainsi, la série en picosecondes possède les hauteurs de coupelles les plus réduites et les tirs nanosecondes les plus élevées. Concernant leurs rayons équivalents, ils sont du même ordre pour ces deux impulsions, tandis que ceux des tirs en femtosecondes sont supérieurs. Pour ces derniers, les valeurs d'angle se rapprochent de celles de l'étude précédente sur l'effet de composition, soit autour des 45° . Les coupelles formées suite au chargement picosecondes se trouvent plus ouvertes avec un demi-angle aux alentours de 55° - 60° , alors que ceux mesurés en impulsion nanosecondes se situent plus autour des 35° . Ces observations tendent à suggérer que la durée d'impulsion laser modifie significativement l'orientation de l'initiation des coupelles. Par ailleurs, la variation du taux de déformation lié à l'amortissement hydrodynamique semble induire une fermeture des coupelles (cf. Fig. 6.22).

En effet, en considérant la géométrie quasi-complète des coupelles – fournie par MeanPerim dans le tableau 6.9 – force est de constater que les demi-angles au sommet au sein d'une série diminuent avec l'augmentation de l'épaisseur des échantillons. Cette fermeture est accompagnée par une augmentation progressive des hauteurs de coupelles (cf. Fig. 6.23).

En somme, les coupelles se retrouvent de plus en plus étirées et fermées à mesure que la distance parcourue par les ondes de choc croît. En tenant compte de la chute du taux de déformation avec d'une part la distance parcourue, et d'autre part la durée d'impulsion, l'un pourrait en conclure que plus les vitesses de déformations sont élevées, plus les coupelles seront ouvertes et de faibles profondeurs. C'est malheureusement sans compter sur les résultats liés au régime picosecondes qui présentent les coupelles de plus faibles dimensions. Pour l'expliquer, il serait envisageable de ne plus se baser uniquement sur une analyse du taux de déformation lié à la durée d'impulsion et à l'amortissement hydrodynamique. Une hypothèse serait alors de considérer les régimes de pression dans lesquels se trouve la matière sous choc.

Lors du chapitre 4, nous avons constaté l'existence de plusieurs régimes de vitesses d'ondes apparaissant à différents niveaux de pressions. Plus tôt dans ce chapitre, nous indiquions que les pressions atteintes en impulsions picosecondes et nanosecondes étaient approximativement du même ordre de grandeur, soit comprises entre 11 et 28 *GPa*. Cette plage de pressions correspond à deux domaines de vitesses distincts, pouvant par conséquent engendrer des différences notables entre les tirs. Les tirs femtosecondes quant à eux étaient plutôt situés autour de la transition élasto-plastique, soit aux alentours de 7 *GPa*. Les fortes variations de célérité des ondes de choc pour ces domaines distincts s'accompagnent nécessairement d'une variation équivalente de la vitesse des ondes de détentes. De ce fait, confronter directement les géométries de cou-

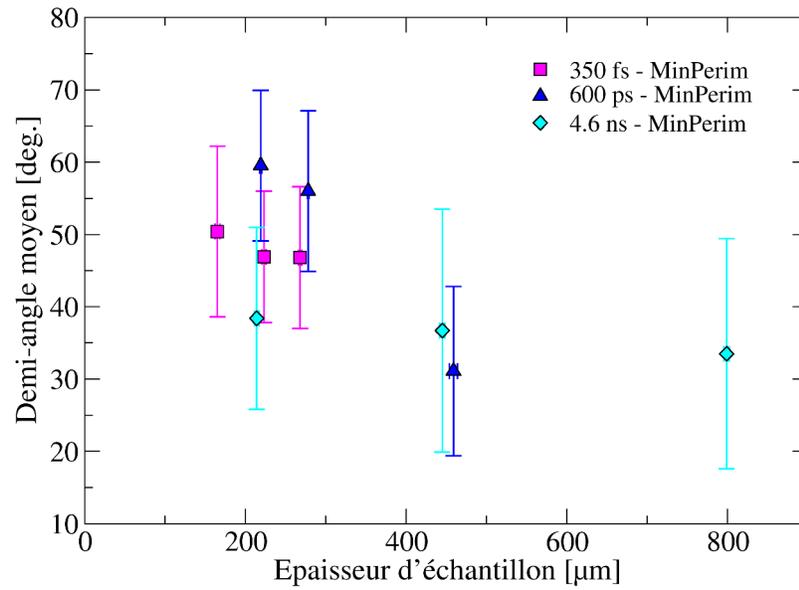


FIGURE 6.22 – Variation du demi-angle au sommet des coupelles en fonction de l'épaisseur de l'échantillon pour différentes durées de chargement.

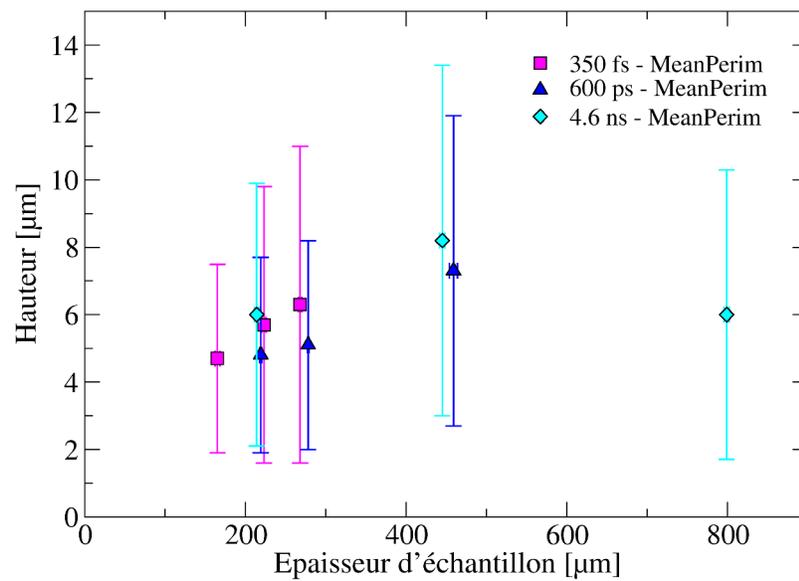


FIGURE 6.23 – Variation des hauteurs de coupelles en fonction de l'épaisseur de l'échantillon pour différentes durées de chargement.

nelles obtenues pour des durées d'impulsions et des domaines de pression différents peut s'avérer discutable. Pour cette raison, la tendance décrite par les données collectées pour différentes durées d'impulsion est à prendre avec précaution. Néanmoins, il reste évident qu'au sein d'une même impulsion la chute des vitesses de déformation entraîne l'étirement et la fermeture des coupelles. Nous tenterons par la suite d'apporter des éléments de compréhension de ce phénomène.

Pour en revenir au tir L17-031, la figure 6.23 illustre une profondeur moyenne de coupelle s'éloignant très nettement de la tendance. Cette observation corrobore les mesures de rugosité et clichés post-mortem. Finalement, ces différents éléments nous indiquent la présence d'un seuil à partir duquel les coupelles ne sont plus observables. La question se pose alors de savoir si la rupture s'initie de manière similaire ou non. Pour appréhender ce problème, il est possible de se référer à l'évolution de la densité de coupelles par unité de surface.

D'après les données du tableau 6.9, les tirs picosecondes montrent une évolution croissante du nombre de coupelles par unité de surface avec la distance. Pour les tirs femtosecondes une croissance est aussi constatée entre les tirs E16-014 et E16-008, avant d'observer une chute de leur nombre pour le tir E16-018. Ce constat ne s'applique malheureusement pas aux tirs nanosecondes, où une chute du nombre de coupelle entre les tirs L17-033 et L17-035 est observée. Pour expliquer ces différences, deux hypothèses peuvent être avancées. La première concerne la chute du nombre de coupelle entre le tir E16-008 et E16-018. L'autre se porte sur les différences de chargement entre les tirs nanosecondes.

Plus tôt dans le chapitre, nous rapportions un saut dans les vitesses d'envol d'écailles en régime femtosecondes. Nous avons attribué ce changement à une possible transition élasto-plastique. Or le tir concerné par cette potentielle transition est le tir E16-018. Ainsi, la chute du nombre de coupelles peut être le résultat d'un changement de comportement lié à la transition élasto-plastique.

Concernant l'autre hypothèse, nous avons vu depuis maintenant quelques lignes que le tir L17-031 se démarque de tous les autres tirs en ne montrant que très peu de coupelles visibles tout en ayant une rugosité inférieure aux autres. Cependant, les valeurs de densité rapportent que le tir L17-035 est celui en comportant le moins. Or, les simulations ESTHER sur cuivre nous ont indiqué que la pression atteinte en face arrière pour un tir équivalent au tir L17-033 serait de 20 *GPa*, alors qu'elle serait de 11 *GPa* pour un tir équivalent au tir L17-031. Par conséquent, les tirs nanosecondes se situeraient dans deux régimes différents de propagation d'ondes. Quid de la relation linéaire de croissance de l'épaisseur d'écaille (cf. Fig. 6.11) et de la diminution des vitesses d'envol (cf. Fig. 6.10)? Serait-ce par chance que nous eussions constaté une telle évolution? Certes, il est difficile d'observer une tendance concrète à partir de trois tirs. Néanmoins, rien ne présageait que nous rencontrions de telles divergences à une échelle plus fine pour une même impulsion. Pour comprendre plus en détail comment évolue le nombre de coupelles en fonction des différents régimes de pression et des vi-

tesses de déformation, plusieurs tirs devront indubitablement être entrepris. Bien que nous ne disposions malheureusement pas de données plus quantitatives sur le sujet, nous nous proposons de discuter de l'éventuelle croissance du nombre de coupelles ainsi que de leur étirement avec l'augmentation du taux de déformation.

6.3.1.3 Discussion

Lors de son étalement, nous avons vu que les faisceaux d'ondes de détente induisent une chute des vitesses de déformation. Cet étalement est de caractère à la fois spatial et temporel. Cela signifie que pour une même durée d'impulsion, la durée totale de la perturbation en pression sera d'autant plus longue que la distance parcourue sera grande. Dorénavant, supposons un état de pression suffisamment élevé pour déclencher les mécanismes de plasticité à partir de tous les sites potentiels d'initiation. Supposons maintenant qu'en ces sites se forment des bandes de cisaillement [42, 99]. Le motif en coupelles et en cône résulterait alors de la formation de ces bandes. Par conséquent, plus cette perturbation induira une mise sous tension longue, plus les bandes de cisaillement disposeront de temps et d'espace pour se former, expliquant ainsi l'augmentation des hauteurs de coupelles avec la chute des vitesses de déformation. Pour résumer, plus la contrainte est maintenue longtemps, plus elle favorisera la propagation des bandes de cisaillement à l'origine de la formation des coupelles.

Concernant la réduction des angles au sommet, l'origine est moins évidente. D'après les travaux de Houdoux et al [64] menés sur l'évolution des déformations plastiques dans le milieu granulaires, il a été rapporté que le champ de déplacement pouvait être décomposé en deux composantes évoluant à deux échelles de déformation découplées. En analysant les champs de déplacement par corrélation d'images d'un milieu granulaire soumis à des essais de compression bi-axiale, ces auteurs ont mis en évidence l'existence de deux inclinaisons différentes des contraintes maximales. D'une part, pour de faibles déformations ($\varepsilon < 5,95\%$), la fonction de corrélation - employée pour remonter au champ de déplacement - prenait une forme quadrupolaire avec une inclinaison moyenne de 48° . D'après leur interprétation, cette inclinaison pourrait être corrélée à la direction des contraintes maximales fournies par le tenseur d'Eshelby et correspondrait à une cascade d'événements plastiques élémentaires. D'autre part, pour des déformations plus importantes ($\varepsilon = 8,75\%$), la fonction de corrélation renvoyait une orientation à 63° des contraintes maximales. Plus précisément, au premiers instants de l'essai, les événements plastiques engendrés se répartissaient de manière homogène dans l'échantillon. Au fur et à mesure de l'application du chargement, ces événements plastiques se sont ensuite concentrés dans une zone active, précipitant le passage vers un régime hétérogène de déformations plastiques, zone précurseur de la bande de cisaillement macroscopique finale observée. Cette deuxième direction pourrait alors être reliée à la formation d'une bande de cisaillement macroscopique et dépendrait du coefficient de friction interne en accord avec le critère de Mohr-Coulomb. À partir de ces deux composantes, Houdoux et al proposent donc d'interpréter la plasticité et la rhéologie des matériaux amorphes de deux manières distinctes : la première

composante serait liée à une cascade d'événements plastiques élémentaire tandis que la deuxième permettrait de décrire des effets rhéologiques non locaux.

Dans notre situation, nous savons que la température est un élément clé pouvant engendrer d'importantes modifications rhéologiques, notamment à l'échelle des bandes de cisaillement. Ayant conscience de la variation du chargement lié à l'amortissement hydrodynamique – chute de pression, de température et de taux de déformation –, il est légitime de s'interroger quant à l'impact de cet amortissement sur la variation de température et les changements rhéologiques s'opérant au sein et aux abords des bandes de cisaillement. En s'appuyant sur les deux composantes de déformations plastiques proposées par Houdoux et al [64], et en les rapprochant de l'amortissement hydrodynamique, il nous serait possible de spéculer que l'angle des cônes résulterait de conditions sur $\dot{\epsilon}$ et T telles que l'une ou l'autre des composantes prédomine :

- Pour $\dot{\epsilon}$ élevé, i.e. pour de faibles distances parcourues, la durée de chargement est relativement courte et la température élevée. À partir de ces conditions, la première composante serait sollicitée ce qui aurait pour conséquence la formation de cônes dont les angles seraient proches de 45° .
- Pour $\dot{\epsilon}$ faible, i.e. pour des distances parcourues plus importantes, la durée de chargement est plus importante et la température plus faible, ce qui aurait pour conséquence « d'augmenter le coefficient de « friction interne » ». Ces conditions permettraient alors à la deuxième composante de prédominer et ainsi engendrer des cônes plus refermés.

Enfin, dans l'hypothèse où la croissance du nombre de coupelles avec l'augmentation de la distance parcourue est avérée, alors les mesures de rugosité nous permettront de lever le voile sur les origines de ce phénomène. En effet, si l'on considère le matériau comme étant relativement homogène, dans ce cas il dispose de la même probabilité d'activation des sites quelle que soit la zone de l'échantillon considérée. En couplant étalement du chargement et identique probabilité d'activation, il ressort que plus la zone de traction sera localisée plus les coupelles se trouveront à proximité les unes des autres dans des plans proches. Au contraire, plus le chargement sera spatialement large, plus un grand nombre de plans seront sollicités. Cet accroissement du nombre de plans aura pour conséquence d'augmenter le nombre total de coupelles ainsi que la rugosité. Finalement, la densité par unité de surface ne se révélerait plus comme un critère pertinent puisqu'il s'agirait au contraire d'un nombre de sites par unité de volume.

6.3.2 Formation des cônes et coupelles

Pour expliquer la formation de ces coupelles et de ces cônes, Escobedo et al [42] et Lu et al [99] ont basé leurs mécanismes sur la théorie des volumes libres. A partir de ces sites, Escobedo et al supposent que la compression due au choc engendrerait dans un premier temps une réduction du nombre de volume libre, de par les possibles réarrangements atomiques liés à la présence de mobilités. De ces zones d'intenses contraintes

de compression et tension, s'initieraient de multiples bandes de cisaillement – contrairement aux sollicitations quasi-statiques où une seule bande est généralement observée – qui en s'interceptant donneraient naissance à une zone où les contraintes de traction sont les plus intenses, définissant ainsi le plan d'écaillage. Lu et al pour leur part, considèrent tout comme Escobedo et al que les contraintes de compression et traction engendreront des bandes de cisaillement. Néanmoins, ils supposent qu'à l'intersection de celles-ci se formeront des micro-vides, desquels s'initieront le motif en coupelles et en cônes. Nous retrouvons en somme chez Lu et al un mécanisme assez similaire à la cavitation.

Dorénavant, l'objectif est d'attester si l'un des mécanismes proposés [42, 99] est en mesure d'expliquer les résultats recueillis durant nos différentes campagnes laser. Pour évaluer leurs pertinences, nous allons considérer le tir L17-033 effectué sur la chaîne LULI2000, pour lequel nous avons récupéré une écaille entière non fragmentée. La dite cible, de $215 \mu\text{m}$ d'épaisseur, fut irradiée à une intensité de $2,45 \text{ TW} \cdot \text{cm}^{-2}$ sur une surface de 2,7 millimètres durant 4,5 ns. D'après une simulation ESTHER sur cuivre, la pression engendrée en face avant atteindrait les 60 GPa . Après récupération, le cratère formé en face arrière et l'écaille éjectée ont été examinés par imagerie MEB. Les figures 6.24 et 6.25 rassemblent les clichés des faciès de rupture présents sur l'échantillon et l'écaille à plusieurs grossissements.

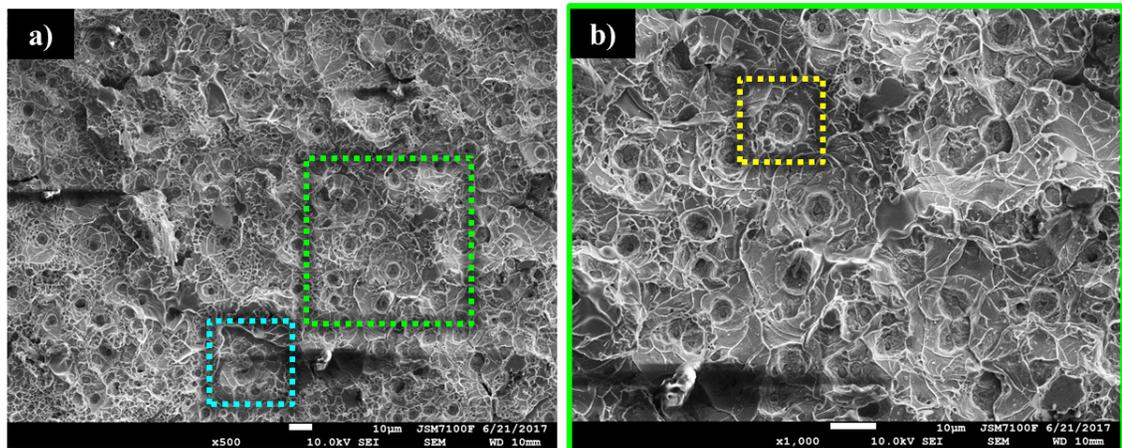


FIGURE 6.24 – Clichés MEB de la partie centrale du cratère en face arrière de la cible L17-033. (a) observation de la partie centrale à un grossissement x500. (b) zoom de la zone verte décrite par le carré vert dans l'image (a) au grossissement x1000.

Au début de cette section dédiée à l'analyse post-mortem de nos cibles, nous avons mis en avant le fait que le nombre et les diamètres des coupelles différaient significativement des observations rapportées par Escobedo et al et Lu et al. En particulier, nous avons constaté que les coupelles observées sous choc laser étaient en moyenne dix fois plus petites et plus nombreuses. En examinant plus précisément les figures 6.24 et 6.25, il apparaît que les coupelles sont principalement présentes sur la surface endommagée de l'échantillon alors que l'écaille semble ne disposer que de cônes. Malheureusement,

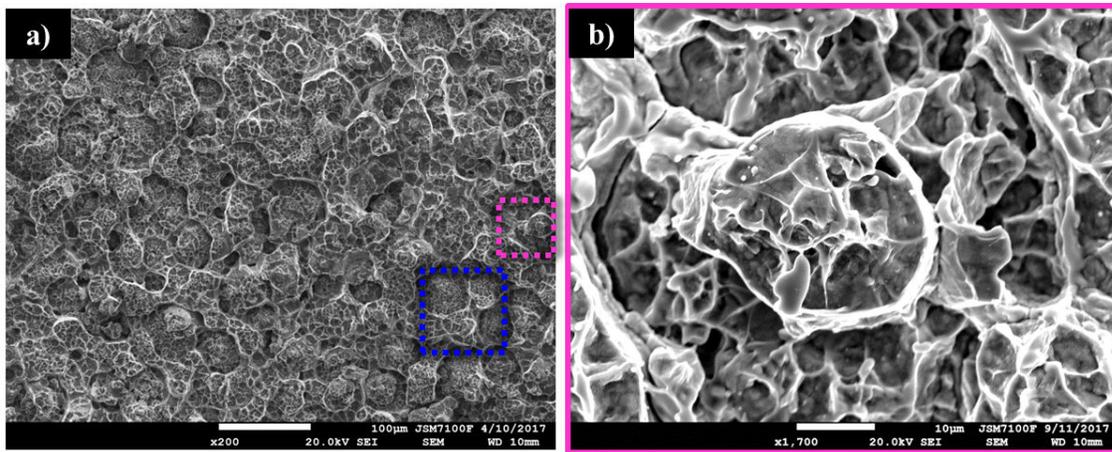


FIGURE 6.25 – Clichés MEB de la partie centrale côté rupture de l'écaille envolé de la cible L17-033. (a) observation de la partie centrale de l'écaille à un grossissement x200. (b) zoom du rectangle rose de l'image (a) révélant la présence de cônes.

une confrontation directe de ces observations avec les résultats de Lu et Escobedo n'est pas possible puisque dans leurs études les écailles n'ont pu être récupérées. Malgré tout, cette tendance est retrouvée sur d'autres échantillons, comme par exemple ceux de la campagne ELFIE en configuration 350 *f*s. Sur certains d'entre eux, des portions d'écailles sont encore solidaires de l'échantillon, mettant ainsi en exergue la présence de multiple cônes similaires à ceux observés sur l'écaille du tir LULI2000 considéré présentement. Ayant constaté la présence de ce motif pour divers générateurs de choc et différents taux de déformation, il est plus que probable que le mécanisme de formation des coupelles et des cônes soit identique dans tous les cas de figure.

De par leurs observations, Escobedo et al [42] et Lu et al [99] ne pouvaient présager de l'unique formation de cônes sur l'écaille et de coupelles sur l'échantillon. Bien que les deux mécanismes qu'ils aient proposés soient phénoménologiquement simples, ils se révèlent insatisfaisant dans le sens où ils ne sont pas en mesure d'expliquer l'origine de la distribution spatiale observée des coupelles et des cônes.

L'absence de cet aspect nous a mené à proposer un mécanisme alternatif basé sur la théorie des choc permettant de rendre compte de l'initiation, de la propagation et de la distribution spatiale particulière des « cups and cones ».

Avant de débiter notre propos, la nature du chargement envisagé se doit d'être rappelé. Dans la situation de la propagation d'une onde de choc, i.e. d'un choc induit par laser, la matière se trouvera dans un état à haute pression, température et vitesse de déformation. En parallèle, la majeure partie des travaux menés en quasi-statique sur les verres métalliques base *Zr* ont été synthétisés sous la forme d'une carte des déformations proposée par Schuh et al [130] (cf. chapitre 1 section 1.4.1). Cette carte offre une vue d'ensemble des différents régimes accessibles par le matériau, parmi lesquels deux régimes d'écoulement plastiques sont dissociables :

- un écoulement homogène à hautes températures et faibles taux de déformation.
- un écoulement inhomogène observé à basses températures et pour des vitesses de déformation modérées ($< 10^2 \text{ s}^{-1}$).

Ce dernier est notamment associé au phénomène de localisation sous la forme de bandes de cisaillement, qui pilote d'une certaine façon les déformations plastiques et la rupture. Nonobstant le manque de données en dynamique, il serait raisonnable de considérer que sous choc l'écoulement plastique est inhomogène. Cette hypothèse étant à la base de notre raisonnement, elle se devait d'être explicitée.

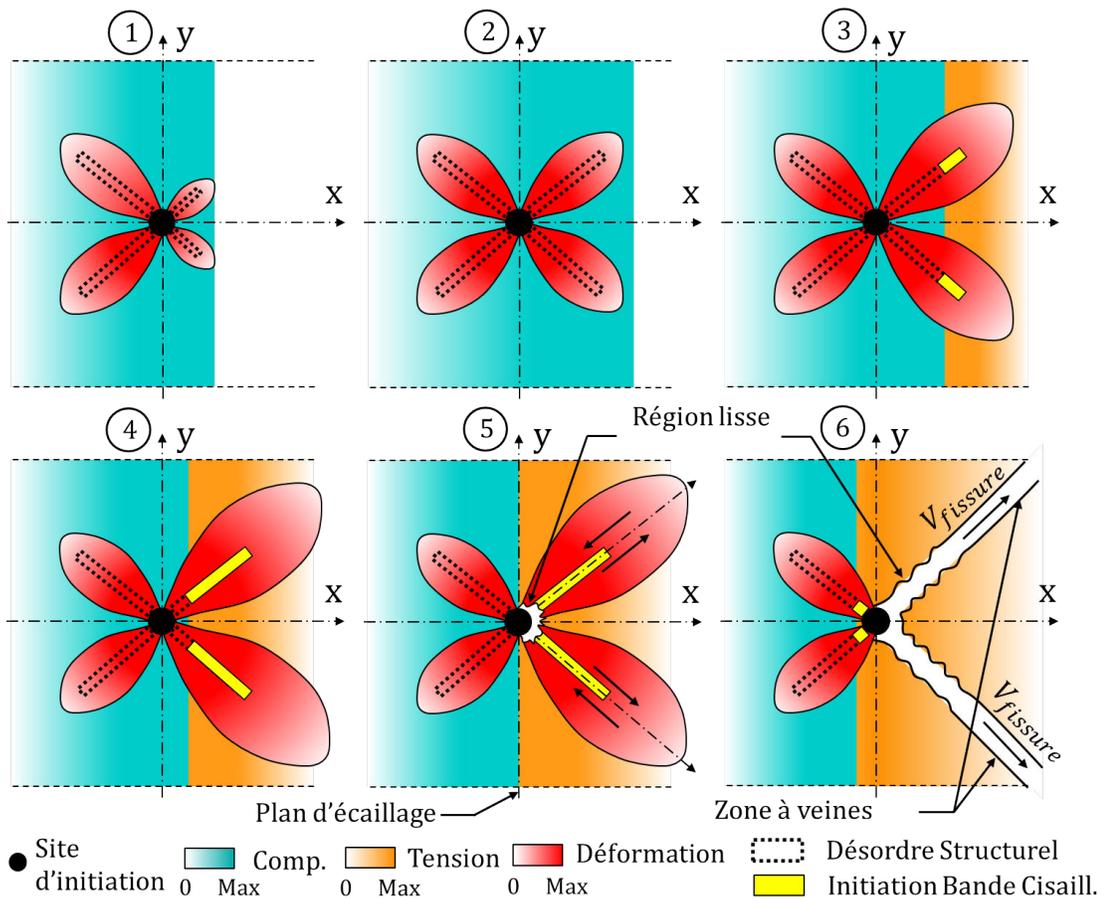


FIGURE 6.26 – Mécanisme de formation des coupelles et des cônes retrouvés respectivement sur les faciès de rupture de l'échantillon et de l'écaille. Ce mécanisme est basé sur la théorie des choc et le modèle de formation des bandes de cisaillement en deux étapes, d'après Klaumünzer et al [86] repris par Greer et al [52].

Le mécanisme d'initiation et de propagation des coupelles et des cônes est illustré en figure 6.26. Tout commence à partir d'un site particulier, que l'on nommera « site d'initiation », à partir duquel la plasticité du matériau peut être initiée. L'interaction d'une onde de choc (1) – schématisée par le front bleu voyageant de gauche à droite – avec le site considéré, induira autour de ce site un champ de déplacement.

Le déplacement atomique autour de ce dernier étant plus important que celui de la matrice environnante, ce déséquilibre engendrera du cisaillement localisé. Cette région de cisaillement et de déplacement atomique très localisé est connue sous le nom de « Shear Transformation Zone » dans la littérature. Elle est supposée être responsable de l'activation de la plasticité dans les verres métalliques (cf. chapitre 1 section 1.4.2). La concentration des contraintes de cisaillement sous une forme quadrupolaire se retrouve par exemple dans la théorie des inclusions d'Eshelby [43, 107]. Cette répartition des contraintes s'est notamment retrouvée confirmée à la fois expérimentalement [129] et numériquement [146], attestant d'une décroissance de l'intensité des contraintes avec la distance depuis le centre du site d'initiation considéré (cf. Fig. 6.26 zone rouge). De ces zones d'intense cisaillement s'initieraient les bandes de cisaillement. Les origines atomiques n'étant pas encore bien comprises, trois scénarios d'initiation de bandes de cisaillement ont été proposés par [52], confirmés soit expérimentalement [164, 163] ou numériquement [134, 21, 17]. Parmi ceux-ci, un scénario en deux étapes similaire à celui proposé par Klaumünzer [86] a retenu notre attention. Nous nous proposons de le rappeler ci-après.

Lors de l'activation d'une STZ – première étape –, la structure atomique environnante se retrouve dans un état désordonné favorisant les mobilités atomiques. A ce moment, le cisaillement est encore faible et l'élévation de température peu significative. Ce désordre atomique décrit alors un chemin privilégié selon lequel les atomes vont pouvoir « glisser » et les contraintes de cisaillement se concentrer – deuxième étape. Puisque la matière est désordonnée le long de ce chemin privilégié, d'importantes déformations plastiques vont alors pouvoir s'accumuler et se localiser, avant de donner lieu à des bandes de cisaillement. De cette localisation résultera cette fois-ci une forte élévation de température.

Dorénavant, essayons d'adapter ce scénario à notre situation. Tout d'abord, un site d'initiation est activé par l'arrivée du front de compression, induisant un champ de contrainte de forme quadrupolaire tel qu'illustré par les étapes (1)→(2) de la figure 6.26. Etant donné qu'il n'y pas de preuves évidentes que les coupelles et les cônes proviennent de l'activation des STZ, nous préférons considérer tout type de sites à partir desquels du cisaillement pourrait s'accumuler. L'onde de choc se transformant en faisceau de détentes suite à la réflexion en surface libre, l'interaction des détentes incidentes et réfléchies induit un état de traction (zone orange). Ce dernier serait alors à l'origine de l'activation de la deuxième étape à partir de laquelle les bandes de cisaillement s'initieraient (3)→(4). Une fois le plan d'écaillage atteint, les bandes de cisaillement sur la droite du site seraient alors entièrement formées et le glissement pourrait débiter (5). Au final, une fissure se propagerait le long des chemins privilégiés décrits par les bandes de cisaillement entièrement développées sur la droite du site d'initiation. En outre, de cet état de déformation uniaxial et de concentration du cisaillement sous forme quadrupolaire résulterait la formation de coupelles sur l'échantillon et de cônes sur l'écaillage.

6.3.3 Morphologie des cônes et coupelles

Un examen approfondi de la morphologie des coupelles et des cônes rend compte de différences morphologiques à la fois entre les coupelles et les cônes, mais aussi à l'échelle de l'objet. Les figures 6.27 et 6.28 obtenues par grossissement des images 6.24 et 6.25 nous permettent de distinguer l'existence de ces différences morphologiques.

D'une part, au centre de la coupelle une zone lisse à l'aspect visqueux est observable (cf. Fig 6.27 (a)), tandis qu'un motif à veines relativement épaisses peut être distingué en périphérie (cf. Fig 6.27 (a) et (b)). De plus, la présence de gouttelettes en périphérie suggère une chute de viscosité du matériau, voire de la fusion.

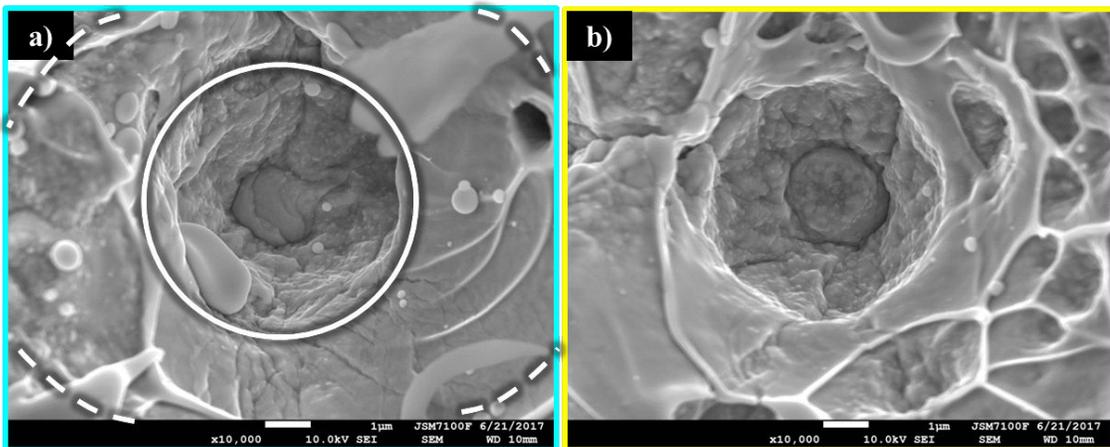


FIGURE 6.27 – (a) zoom de la zone bleue de figure 6.24 (a). (b) zoom de la zone jaune de la figure 6.24 (b). Ces deux grossissements mettent en évidence la présence d'une frontière morphologique au sein des coupelles : une partie grenue située au centre et une partie lisse en périphérie comportant un motif en veines.

D'autre part, la zone centrale des cônes apparaît plus grenue (cf. Fig. 6.28 (b)) avec beaucoup moins de gouttelettes. Les veines caractéristiques sont ici beaucoup plus fines que celles observées dans les coupelles. Des disques en périphérie comportant de larges veines sont quelques fois discernables à la base des cônes (cf. Fig. 6.27 (a) et (b)).

Selon une étude de Deibler et al [33], la taille des motifs de veines peut être attribuée à des divergences de viscosité, où un motif assez large est synonyme d'une viscosité faible. Au contraire, un motif plus fin indiquera une viscosité plus élevée. Cette différence de viscosité apparente entre les coupelles et les cônes peut être expliquée par les travaux de Pampillo et al [120] apportant les preuves d'un effet de désordre structural au sein des bandes de cisaillement. En particulier, il suggéra que les potentiels chimiques pouvaient être altérés relativement à ceux du bulk lors de l'initiation et la propagation des bandes de cisaillement. Enfin, il a été rapporté par Leamy et al [91] que les processus d'écoulement et de formation de surfaces de rupture dans les verres métalliques, dans le cas de traction quasi-statique, induisaient la création de deux zones : une lisse

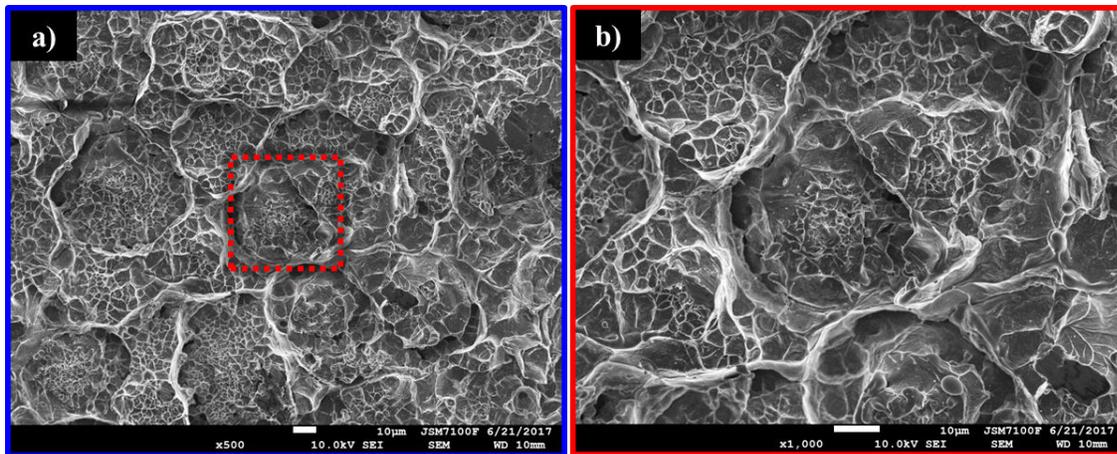


FIGURE 6.28 – (a) zoom de la zone bleue de la figure 6.25 (a). (b) zoom sur un cône de l'image 6.28 (a). Ces images révèlent une morphologie sur la surface des cônes distincte de celle observée dans les coupelles. Une frontière morphologique est aussi observée, bien que moins marquée.

et l'autre comportant une multitude de veines.

La formation de ces deux zones peut aussi être rapprochée de la variation de température au sein d'une bande de cisaillement. Depuis la découverte des bandes de cisaillement dans les verres métalliques, l'élévation de la température associée au phénomène a toujours été au centre de l'attention. Il est maintenant admis que leur génération est accompagnée nécessairement d'une élévation substantielle de la température. Sa variation au cours du glissement serait alors à même d'apporter des réponses quant aux zones distinctes visualisées sur les faciès des coupelles et des cônes.

Pour en rendre compte, nous pouvons postuler qu'aux premiers stades du glissement la température est plus faible, entraînant ainsi une viscosité plus élevée. Toutefois, plus le glissement s'opère plus la température croît au sein de la bande, ayant pour conséquence de faire chuter la viscosité. Par conséquent, le gradient de température observé le long de la bande durant le glissement serait responsable des deux zones distinctes visibles sur les coupelles et les cônes (cf. Fig. 6.29).

Toutefois, l'ensemble de ces pistes ne permet pas d'élucider l'origine des différences morphologiques entre coupelles et cônes. Les variations de viscosité sur chacune des parties endommagée suggèrent clairement des états de la matière distincts dans les coupelles et les cônes. Outre le mécanisme phénoménologique proposé, un processus complémentaire doit certainement venir s'ajouter à la formation des « cups and cones ». Ce n'est qu'en investiguant à une échelle encore plus fine que nous récolterons des bribes d'informations nous mettant sur la voie.

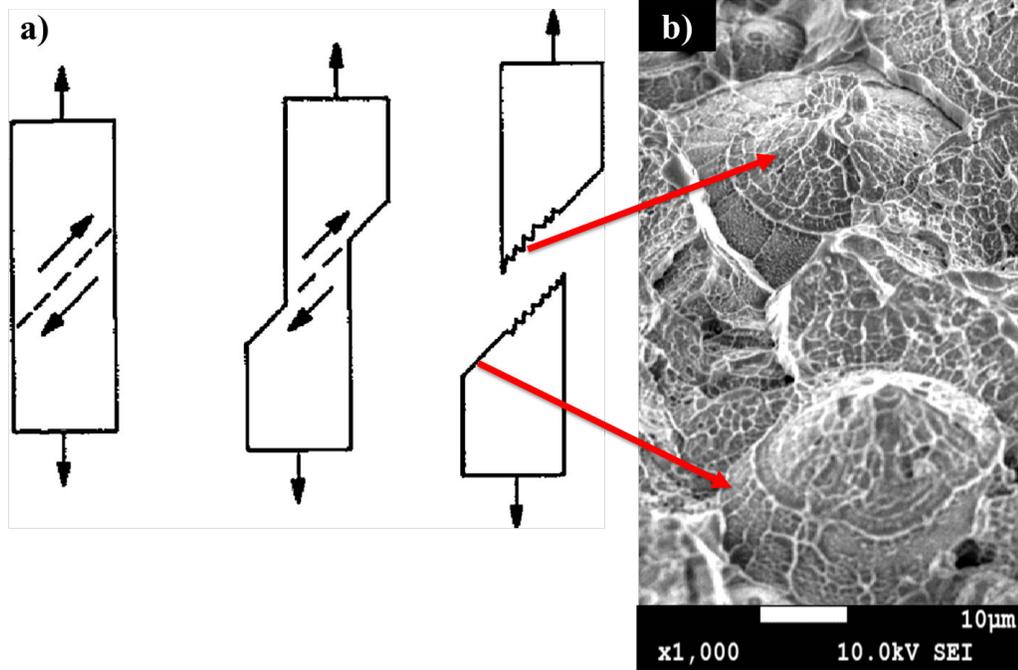


FIGURE 6.29 – (a) Processus d'écoulement et de rupture des verres métalliques en traction uniaxiale révélant la présence de deux régions distinctes : une lisse et une comportant des veines, d'après Leamy et al [91]. (b) Vue inclinée des cônes présents sur l'écaille illustrant les deux régions lisses et constituées de veines.

6.4 À l'échelle microscopique

Pour appréhender les variations de viscosité en surface des coupelles et des cônes, des analyses de spectroscopie dispersive ont été menées. Les mesures ont été effectuées à partir d'une sonde OXFORD 50 mm². La profondeur de pénétration permettant de déterminer le volume sondé est donnée par la formule de Castaing :

$$h_{\text{sondé}} = 0,33 \frac{E_0^{1,7}}{\rho} \sum_{i=1} \frac{C_i A_i}{Z_i} \quad (6.5)$$

Où $h_{\text{sondé}}$ est la profondeur de pénétration totale en μm , E_0 l'énergie des électrons en keV , ρ la masse volumique en g.cm^{-3} , et C_i , A_i , Z_i correspondant respectivement au titre massique, la masse et le numéro atomique de l'élément i . Dans notre situation, l'alliage de verre métallique est composé à 90 % de Zr et de Cu . Pour déterminer le volume sondé, une tension de 20 keV a été employée afin de se situer au-dessus du seuil d'émissivité du zirconium. Les profondeurs résultantes sont alors de 0,7 μm pour le cuivre et 0,34 μm pour le zirconium. Cette technique n'étant que semi-quantitative, nous avons approximé le volume sondé par un cube de 1 μm^3 , dont la précision est de plus ou moins 5 %. Au total, 50 coupelles et 50 cônes présents sur l'échantillon L17-033 ont été testés. Les zones sondées et les résultats associés sont illustrés par la figure 6.30.

À l'extérieur des coupelles et des cônes (cf. Fig. 6.30 (c)), les mesures de spectro-

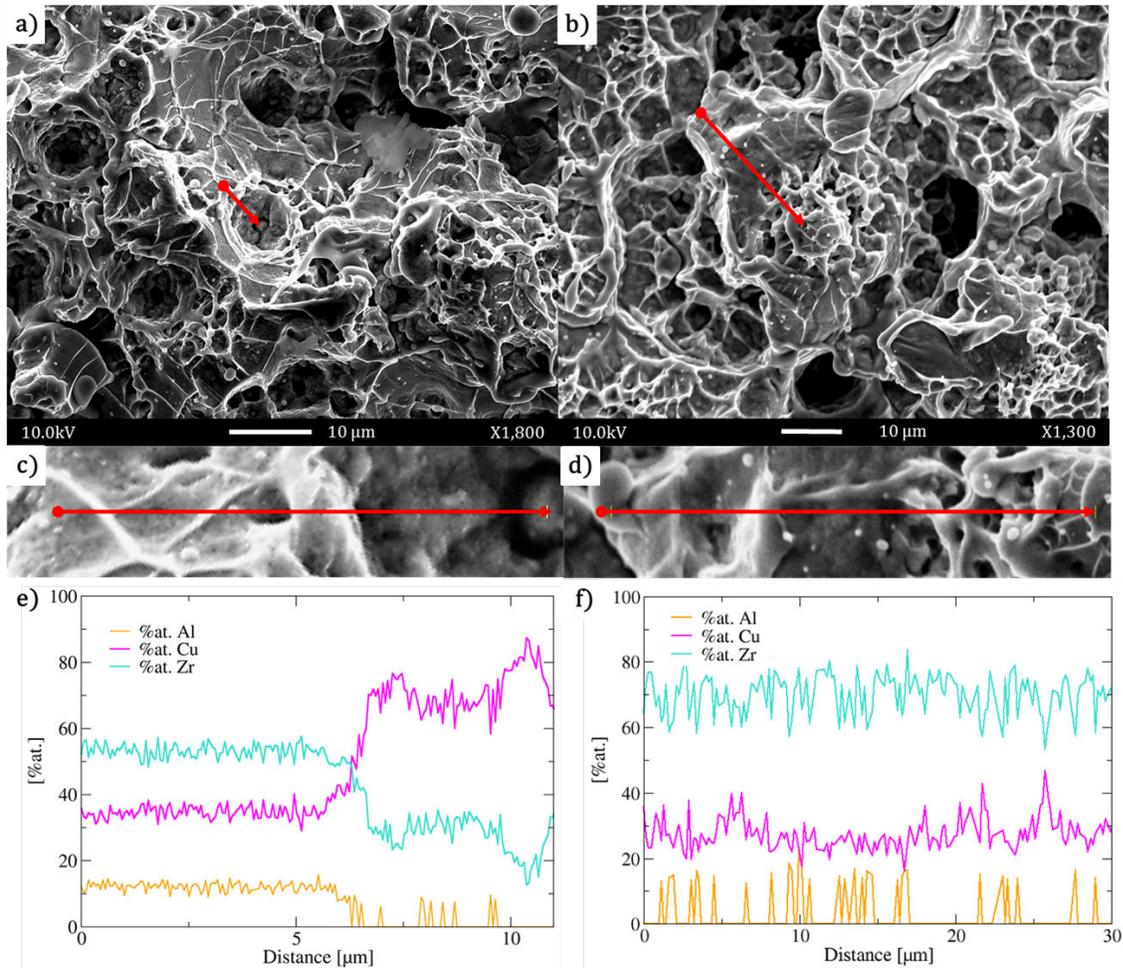


FIGURE 6.30 – Mesures d’analyse de spectroscopie dispersive en énergie sur la composition atomique des coupelles et des cônes. Clichés MEB d’une coupelle présente sur l’échantillon (a) et d’un cône sur l’écaïlle(b). Les positions de mesures sont illustrées par les lignes rouges. Les figures (c) et (d) correspondent à un zoom des parties sondées dans la coupelle et dans le cône. Les fractions volumiques en Zr, Cu et Al sont respectivement tracées pour la coupelle et le cône en figures (e) et (f).

scopie nous ont fourni une distribution atomique identique à la composition initiale¹, soit 50 % de Zr, 40 % de Cu et 10 % Al (cf. Fig. 6.30 (e)). Toutefois, en relevant la fraction volumique de chaque élément dans les coupelles et sur les cônes, des divergences ont émergé. Au sein des coupelles, une quantité importante de cuivre est observée ($\approx 70\%$) au détriment du zirconium ($\approx 25\%$) (cf. Fig. 6.30 (e)). Le taux d'aluminium reste pour sa part proche de sa valeur initiale ($\approx 5\%$). À l'opposé, les cônes apparaissent beaucoup plus riches en zirconium ($\approx 70\%$) qu'en cuivre ($\approx 25\%$) (cf. Fig. 6.30 (f)).

Cette étonnante répartition atomique au sein des coupelles et des cônes est probablement due à une ségrégation atomique se produisant durant la formation et propagation des bandes de cisaillement. Thermodynamiquement, une onde de choc est considérée comme une transformation adiabatique induisant un saut de pression. Il s'en suit de cette transformation une chute de volume ayant pour conséquence un gain en énergie libre et en température. Par ailleurs, la plasticité très localisée, responsable de la formation des coupelles et des cônes à partir des sites d'initiations, contribue en complément à l'élévation de température et d'énergie libre. Ce gain soudain de température, i.e. d'énergie libre, engendre une chute de la viscosité du matériau, promouvant dans le même temps une plus grande mobilité atomique au sein d'un voisinage local. Une fois la matière dans un état proche de celui d'un liquide, la quantité de mouvement transmise par le choc induirait une migration atomique. Puisque les composants de notre verre métallique possèdent différentes masses atomiques ($Zr : 91u$, $Cu : 63u$, $Al : 27u$), des effets inertiels à l'origine de leur séparation émergeraient.

En supposant une vitesse matérielle identique pour tout le matériau, les atomes de zirconium possèdent une énergie cinétique supérieure à celle des atomes de cuivre et d'aluminium. Ainsi, la ségrégation aurait lieu durant une phase de décélération, où les atomes d'aluminium et de cuivre verraient leurs vitesses décroître plus rapidement que celles des atomes de zirconium. Pour mieux se représenter ce scénario, il est possible de se référer à la figure 6.31 illustrant la variation de la pression et de la vitesse particulière lors de la réflexion et de la superposition des faisceaux de détente.

Aux premiers instants, la matière est comprimée de par la propagation de l'onde de choc se traduisant par un saut de pression, de température et de vitesse matérielle. A son arrivée en face arrière, la vitesse matérielle augmente subitement à cause de la réflexion du front de choc en faisceau d'ondes de détente. La vitesse sous la surface libre se retrouve alors plus ou moins doublée. Cette réflexion entraîne une chute abrupte de la pression et une diminution de la température, qui reste toutefois supérieure à la température initiale. A l'instant de la superposition des faisceaux incident de détente et issu de la réflexion au niveau du plan d'écaillage, la vitesse matérielle se voit drastiquement modifiée. De ce fait, la vitesse matérielle croît à la vitesse u_{t_1} (cf. Fig. 6.31) et

1. Dans le cas de la figure 6.30 (b), le cône employé pour illustrer le propos se situe dans un plan légèrement supérieur au plan moyen. Pour cette raison, la fraction volumique initiale de chacun des éléments n'est pas illustré dans le diagramme de la figure 6.30 (f). Cependant, il est s'est avéré pour toutes nos mesures que la composition initiale était aussi retrouvée en dehors des cônes sur la surface de rupture de l'écaille.

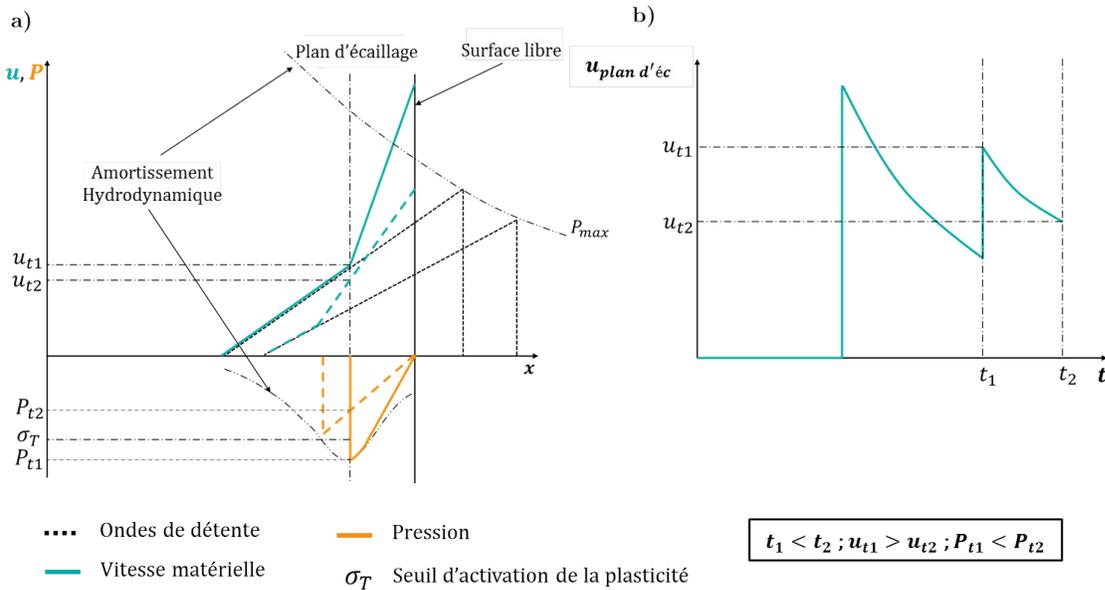


FIGURE 6.31 – Mesures d'analyse de spectroscopie dispersive en énergie sur la composition atomique des coupelles et des cônes. Clichés MEB d'une coupelle présente sur l'échantillon (a) et d'un cône sur l'écaillage(b). Les positions de mesures sont illustrées par les lignes rouges. Les figures (c) et (d) correspondent à un zoom des parties sondées dans la coupelle et dans le cône. Les fractions volumiques en Zr , Cu et Al sont respectivement tracées pour la coupelle et le cône en figures (e) et (f).

des contraintes de traction naissent de cette superposition. En supposant un niveau de contrainte suffisant pour activer la plasticité du matériau – relative à l'activation de sites d'initiation et par extension de bandes de cisaillement –, le phénomène de localisation et une chute de la viscosité apparaîtront peu après t_1 , favorisant ainsi la migration atomique. En tenant compte de l'amortissement hydrodynamique et de l'étalement des détente, la vitesse matérielle se mettra ensuite à décroître à la vitesse u_{t2} à l'instant t_2 . Pour résumer, une fois le seuil d'activation σ_T atteint, la viscosité chutera fortement et la vitesse matérielle atteindra la vitesse matérielle u_{t1} . Il en résultera une mise en vitesse des clusters atomiques. Peu après, la vitesse matérielle diminuera jusqu'à u_{t2} . De cette décélération naitraient des effets inertiels liés aux différences massiques des atomes constitutifs : le cuivre et l'aluminium se retrouvent plus facilement ralentis que le zirconium qui continue dans sa trajectoire. Cette hypothèse est suffisante pour expliquer l'origine des forts taux de zirconium et de cuivre dans l'écaillage et l'échantillon respectivement. Cependant, elle n'est pas satisfaisante en ce qui concerne la répartition de l'aluminium.

Selon les simulations de dynamique moléculaire réalisées par Cheng et al [21] sur un verre métallique $Zr_{47}Cu_{46}Al_7$ rapportant les fonctions de pair de ces composants, les couples $Cu - Al$ et $Zr - Al$ apparaissent comme les liens les plus forts. Viennent ensuite les couples $Cu - Zr$, $Cu - Cu$ et pour finir les couples $Zr - Zr$ comme étant les plus faibles. En postulant d'une part que les liens $Cu - Al$ et $Zr - Al$ sont les plus énergétiques comparativement aux autres, et d'autre part que la fissure aura tendance à se propager le long des chemins minimisant son énergie, nous pourrions en déduire

que durant la séparation la fissure négligera le plus possible ces liens. Par conséquent, seuls les liens $Cu - Zr$, $Cu - Cu$ et $Zr - Zr$ seront privilégiés par la fissure. Par ailleurs, les atomes d'aluminium sont les plus légers tout en possédant les liens les plus énergétiques. En recoupant toutes ces informations, nos résultats semblent suggérer que la fissure aura tendance à rompre les liens $Cu - Zr$ pendant ou après le phénomène de ségrégation.

Enfin, les différences flagrantes de morphologies entre les coupelles et les cônes pourraient s'expliquer par ce phénomène de ségrégation. En effet, le zirconium possède la température de fusion la plus élevée des trois : $T_{Zr} = 2130 K$, $T_{Cu} = 1350 K$, $T_{Al} = 933 K$. De plus, Yokoyama et al [167] ont montré que les ternaires $ZrCuAl$ riches en zirconium – pour une valeur fixe d'aluminium – possédaient les températures de fusion les plus élevées. Par conséquent, pour une température donnée, les zones les plus riches en zirconium disposeront d'une viscosité plus importante que les régions riches en cuivre. Ce constat est clairement en accord avec nos observations mais aussi avec la corrélation établie entre la taille des motifs à veines et le niveau de viscosité exposé par Deibler et al [33].

6.5 Synthèse

Au cours de ce chapitre, nous avons abordé les processus d'endommagement et de rupture dynamique dans les verres métalliques $ZrCuAl$ à plusieurs échelles.

À l'échelle macroscopique, nous avons étudié le processus d'écaillage pour les régimes R1, R2 et R4 à l'aide de quatre durées d'impulsion laser. En analysant les résultats obtenus par VISAR, VH et visualisation transverse, puis en les comparant aux résultats de la littérature, nous avons pu aboutir à quatre résultats majeurs :

- Les verres métalliques base zirconium ne présentent aucun effet de la composition et du taux de déformation sur le seuil de rupture dynamique dans le régime de pression R1 - R2, soit pour des pressions inférieures à 15 GPa.
- Dans un ternaire $ZrCuAl$, un effet de la composition sur le seuil de rupture apparaît dans R4 pour des vitesses de déformation supérieures à $10^7 s^{-1}$.
- Bien que dans le régime de pression R1, les verres métalliques base Zr disposent d'un rapport (σ_R/ρ) supérieur à l'aluminium, au fer, au tantale et au molybdène, leur application peut s'avérer limitée dans ce régime de pression de par leur absence de couplage entre le taux de déformation et la limite à la rupture σ_R .
- Les verres métalliques $ZrCuAl$ possèdent un rapport (σ_R/ρ) dans le régime R4 pour $\dot{\epsilon} > 10^7 s^{-1}$ nettement supérieur aux métaux précédents. Ces régimes de pression et de taux de déformation étant proches de ceux atteints lors impacts-hypervéloces, l'utilisation de ces compositions comme élément de blindage semble des plus pertinentes.

À l'échelle des coupelles et des cônes, nous avons pu constater que la teneur en zirconium pouvait influencer à la fois l'angle en pointes de coupelle, mais aussi leur taille.

Cette observation s'est traduite par une augmentation de la ductilité du verre métallique $ZrCuAl$ avec le taux de zirconium. En parallèle, l'étude des vitesses de déformation sur l'évolution des coupelles sur la composition $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$ a mis en avant un étirement couplé à une fermeture progressive des coupelles le long de l'axe de propagation des ondes à mesure que la distance parcourue est grande. Ce résultat a pu s'expliquer à la fois par l'étalement des faisceaux de déformations, par la formation des coupelles, des cônes et des effets rhéologiques. À ce sujet, nous avons proposé un mécanisme de formation se basant à la fois sur la théorie des chocs, des inclusions d'Eshelby et des modes de déformation dans les verres métalliques.

Enfin à l'échelle microscopique, nous avons mis en évidence l'existence d'une ségrégation atomique présente uniquement dans les coupelles et les cônes : un haut taux de cuivre se retrouve dans les coupelles alors qu'un haut taux de zirconium est trouvé dans les cônes. La présence d'un tel phénomène nous a permis d'expliquer les différences morphologiques existantes entre coupelles et cônes. Ainsi, nous avons suggéré un processus de migration et de ségrégation atomique basé sur des effets inertiels apparaissant au sein des bandes de cisaillement avant que la rupture ne s'opère.

Chapitre 7

Perspectives

« Le jour où la science commencera à étudier les phénomènes non physiques, elle fera plus de progrès en une décennie que dans tous les siècles précédents de son existence. ».

| Nikola Tesla (1856 - 1943)

Sommaire

7.1 Une structure à passer au crible	181
7.1.1 Une ardente modélisation	181
7.1.2 La rédemption par les X	184
7.2 Les origines de la rupture : hypothèses et investigations	188
7.3 Les verres métalliques : vers une application défense	188

Nous voici arrivé au dernier chapitre de ce manuscrit. Comme suggère son intitulé, nous évoquerons dans ce chapitre les perspectives envisageables à ces travaux de thèse. Nous tâcherons de dégager plusieurs axes de réflexions pouvant aboutir à de futurs travaux de recherche.

7.1 Une structure à passer au crible

À la suite de notre étude menée sur l'équation d'état de nos matériaux, plusieurs interrogations ont été soulevées et restent pour certaines en suspens. Nous proposons dans ce qui suit de passer en revue ces différents points, tout en apportant des pistes de réflexions quant aux potentiels travaux à mener permettant d'y répondre.

7.1.1 Une ardente modélisation

Tout d'abord, les résultats obtenus par compression quasi-isentropique et par choc pour les régimes R2 et R3 ont démontré une forte cohérence en dépit des différentes approximations formulées (adiabatique unique, approximation surface libre...). Cette proximité permet d'envisager que les changements de régimes observés ne s'apparenteraient pas à des changements de phase d'ordre 1. En faisant un parallèle avec les

conclusions tirées de l'étude paramétrique sur le modèle de Mie-Grüneisen référencé à une isotherme, il serait envisageable de voir les régimes R1 et R2 comme une manifestation d'un comportement élasto-plastique marqué avant de laisser place au régime R3 assimilable à un comportement purement hydrodynamique. En effet, les données recueillies tiennent nécessairement compte du comportement élasto-plastique généralement observé à bas flux. Comme expliqué au cours du chapitre 4, la dissociation d'un comportement hydrodynamique de celui d'une partie déviatorique n'est en somme qu'une représentation de l'esprit du problème. Elle s'est montrée particulièrement adaptée pour décrire le comportement dynamique d'un très grand nombre de matériaux. Cependant, au regard des très nombreux états métastables dans lesquels peuvent se trouver les verres, la pertinence d'une telle dissociation pourrait très bien être remise en cause. En l'absence de preuve, il faudra donc s'en contenter. Ainsi, en se calquant sur la définition même d'un comportement hydrodynamique, le régime R3 se présente comme tout à fait prédisposé à remplir cette fonction. En dépit d'un éventuel caractère hasardeux, la bonne restitution du régime R3 par l'approche de Mie-Grüneisen, usant de coefficients au repos issus de la bibliographie, tend à soutenir cette hypothèse. Par conséquent, une piste d'évolution quant à la modélisation de leur équation d'état reviendrait à se baser sur une isotherme à laquelle s'ajouterait un modèle de comportement permettant d'inclure des phénomènes tels que l'adoucissement, des effets de viscoélasticité et plasticité, une dépendance en pression et en vitesse de déformation. Parmi ceux-ci, nous pourrions citer les modèles de Drücker-Prager [38], Johnson-Holmquist 2 [80] ou encore Johnson-Cook [79], qui chacun à leur façon prennent en compte certains des phénomènes précédemment cités.

Au-delà de ce régime R3, il est moins évident de spéculer au regard du peu de données que nous avons pu recueillir. Malgré tout, l'obtention de signaux VISAR de bonne qualité suppose le maintien de la matière dans un état « solide ». Si un passage à l'état liquide était à constater, le signal de retour n'aurait permis une mesure de vitesse. S'agirait-il donc d'un passage à l'état cristallin ou bien la signature d'un polyamorphisme ? A ce sujet, plusieurs auteurs ont rapporté l'existence d'une transition entre un état amorphe de faible densité à celui d'un état amorphe de densité élevé dans des verres métallique base cérium [12, 32]. Cette transition a été mise en évidence lors d'essais de compression par enclume diamant auxquels ont été couplés des techniques de mesures in-situ par les rayons X (XANES, EXAFS, XRD). Ces très récents résultats ouvrent tout un champ de possibilité quant aux possibles changements structuraux à l'origine de R4. A cela viennent se coupler des phénomènes de cristallisation sous choc ayant déjà été observés dans d'autres matériaux amorphes tels que la silice [51, 133]. En se référant aux données statiques disponibles sur le sujet, plusieurs phases cristallines ont été répertoriées pour nos matériaux [69, 154]. De par la multitude de phases recensées, ainsi que l'effet des contraintes sur la formation de complexes cristallins [108, 161], cette piste ne peut évidemment pas être écartée.

L'ensemble de ces constats nous amène donc à la conclusion qu'un diagramme de phase pression-température doit être établi ! Pour s'en rapprocher, les températures sous choc devront être estimées via des simulations de propagation d'ondes de choc en

se basant sur un modèle simple d'équation d'état, tel que le modèle de Mie-Grüneisen référencé à l'Hugoniot. En ce qui concerne les évolutions de la température de fusion, de transition vitreuse ou encore de cristallisation, elles requièrent toutes des expériences dédiées. Nous présenterons dans la section suivante plusieurs démarches expérimentales envisageables pour les obtenir. Une fois ces courbes incorporées au diagramme pression-température, il nous sera alors possible de déterminer si la courbe de température sous choc intersecte ou non une ou plusieurs de ces courbes de températures, nous renseignant ainsi sur d'éventuels changements structuraux. D'ailleurs, ceux-ci pourront être mis en évidence en parallèle de l'établissement de ce diagramme. Trois types d'essais peuvent être envisagés à cet effet :

- Essais de choc laser d'impulsion longue sur des cibles semi-infinies pour des niveaux de pression s'étalant entre les régimes R1 à R4.
- Essais de pénétration sur des cibles semi-infinies pour des régimes de vitesse correspondant aux niveaux de pression caractéristiques des régimes R1 à R4.
- Essais de choc avec plaque témoin permettant d'étudier l'évolution des ondes de détente en fonction des régimes R1 à R4.

L'objectif des deux premiers essais repose sur la capacité de récupération des échantillons afin de pouvoir mener des études de caractérisation post-mortem. En réalisant des coupes par sonde ionique focalisée des zones affectées par le passage du choc, il serait possible d'effectuer des observations par microscopie électronique en transmission. En effet, la présence de complexes icosaédriques ou d'autres formations cristallines ont été révélés dans les verres métalliques base zirconium à plusieurs reprises dans la littérature [170, 62]. En particulier, les travaux de Hirata et al [62] ont montré qu'il était possible de remonter à la structure précise de ces complexes en ayant recours à une récente technique connue sous le nom de « angstrom-beam electron diffraction ». En l'alliant à des simulations prédisant les figures de diffraction de plusieurs configurations icosaédriques, il est possible de remonter à d'importantes informations relatives à la structure locale. De plus, il serait aussi envisageable de mesurer les vitesses de dissolution par attaque chimique des surfaces comportant des coupelles et d'autres des cônes. Des études menées sur la vitesse de dissolution par attaque chimique de la silice [117] ont renseigné sur le taux de densification résiduel après indentation. En usant de cette même technique pour nos verres métalliques, il serait hypothétiquement possible de corréliser la vitesse de dissolution chimique à la structure locale, moyennant le nombre d'icosaèdres présents. En appliquant cette démarche sur les différentes zones affectées par le choc, il serait alors possible de remonter à l'historique des changements structuraux.

C'est alors qu'interviennent les essais de choc par plaque témoin renseignant sur l'évolution des détente. En effet, la structure finale des échantillons étudiés post-mortem est intrinsèquement liée aux profils des ondes de détente. Lors de leur passage, elles pourraient aussi bien engendrer une nouvelle trempe, et ainsi figer les changements structuraux s'opérant sous choc, que les relaxer par des effets de recuit¹. Au final, des

1. Cf. Thèse C. Dereure

critères de viscosité pourraient être envisagés en conséquence de ces différentes observations.

7.1.2 La rédemption par les X

Afin d'étudier l'influence de la pression sur le processus de cristallisation dans les verres métalliques, Zhang et al [174] ont entrepris des essais sur synchrotron de diffraction par les rayons X en dispersion d'énergie (EDXRD) sur des poudres de verre métallique de composition $Zr_{46,7}Ti_{8,3}Cu_{7,5}Ni_{10}Be_{27,5}$ soumis à une compression par enclume diamant. La température des échantillons fut contrôlée par le biais de thermocouples disposant d'une stabilité de $\pm 1 K$. En mesurant différents spectres de diffraction suite à des chauffages isobariques, ils ont été en mesure d'obtenir l'évolution de la température de cristallisation jusqu'à $5 GPa$. En usant d'une démarche similaire, Yang et al [162] ont pour leur part établi une corrélation entre la pression et la température de transition vitreuse sur des poudres de verres métalliques $Zr_{41}Ti_{14}Cu_{12,5}Ni_{10}Be_{22,5}$. A partir de ces deux exemples, il serait alors envisageable de réaliser des expériences similaires afin d'établir une partie de notre diagramme pression-température. Or, la réalisation de poudre de verres métallique n'est pas chose aisée. À cette difficulté de mise en forme s'ajoute la probabilité d'obtention d'une structure non représentative de nos verres fabriqués sous la forme de barreaux. En effet, il est bien connu que les verres métalliques produits sous la forme de rubans présentent une structure atomique distincte de ceux synthétisés sous forme de barreaux. Etudier de telles poudres ne serait donc pas pour nous faciliter la tâche.

Une piste alternative reviendrait à effectuer des essais de compression par enclume diamant mais cette fois-ci en ayant recours à une diffraction par les rayons X en dispersion mais aux petits angles. Les récents travaux de Decremps et al [32] sur des verres métalliques à base cerium à température constante ont conduit à l'établissement d'une relation pression-masse volumique révélant l'existence d'une transition depuis une phase amorphe vers une autre phase amorphe plus dense. Pour l'anecdote, ils ont pu approcher leurs résultats expérimentaux par une équation d'état basée sur l'isotherme de Birch. Contrairement aux méthodes plus courantes de diffraction par les rayons X, cette variante est sensible aux inhomogénéités structurales et ne se limite pas à la présence d'un motif régulier se répétant dans plusieurs directions. Cette technique se retrouve donc particulièrement adaptée à plusieurs types de matériaux tels les polymères, les colloïdes, protéines ou encore les verres [158]. Elle renseigne à la fois sur l'état de la matière à l'ordre moyen et l'ordre long. En s'inspirant des travaux de Decremps et al [32], tout en s'assurant des potentielles limitations liées à la présence de zirconium, il serait envisageable d'établir plusieurs isothermes par cette méthode. En particuliers, les spectres recueillis comportaient des signatures particulières indiquant le passage de la T_g et la T_x . De manière indirecte, il deviendrait possible de suivre la manifestation de ces deux transitions clés et ainsi pouvoir compléter le diagramme pression-température.

Enfin pour compléter l'identification de la structure, mais cette fois-ci à une échelle plus faible, des expériences de spectroscopie d'absorption par les rayons X ont été envisagées. Un appel à projet a été déposé en mars 2018 auprès du comité de sélection de l'European Synchrotron Research Facility. Après évaluation et validation, une campagne d'essais se tiendra du 14 au 19 novembre 2018 sur la ligne ID24 afin d'entreprendre des mesures de spectroscopie d'absorption. Pour l'heure, seule une étude numérique simulant par dynamique moléculaire un impact de plaque fut rapportée sur le sujet par Arman et al [8]. Leur étude traite de l'implication de l'ordre court sur les propriétés élasto-plastiques d'un verre métallique binaire $Zr_{54}Cu_{46}$, notamment par l'évolution structurelle des icosaèdres. Cette campagne sera donc l'occasion de suivre, pour la première fois, le voisinage proche de verres métalliques sujets à la propagation d'ondes de choc !

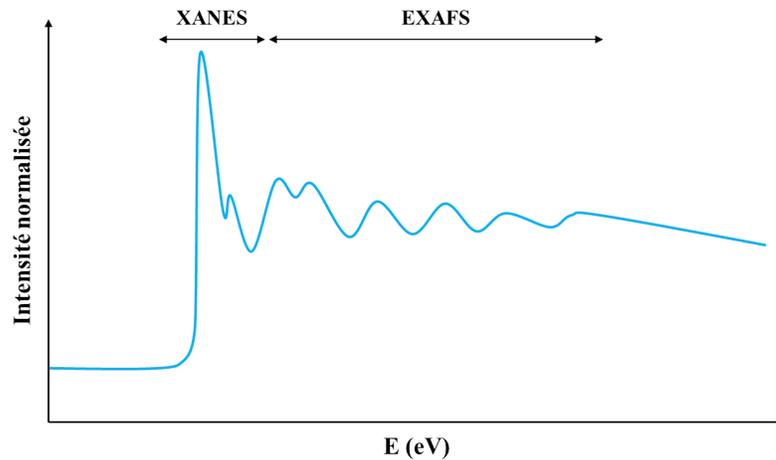


FIGURE 7.1 – Spectre d'absorption schématisé définissant les régions du XANES et de l'EXAFS.

La spectroscopie d'absorption donne accès aux propriétés électroniques des atomes tout en les corrélant à leur ordre structural. Autrement dit, il est à la fois possible de connaître les possibles états d'excitation des électrons de valence et de conduction, mais aussi la position relative des atomes dans un voisinage très proche de l'atome étudié. Ainsi, on distingue la technique dite de spectroscopie de structure près du front d'absorption des rayons X – X-ray Absorption Near-Edge Structure en anglais – de la spectroscopie de structure d'absorption étendue – Extended X-ray Absorption Fine Structure. Sans rentrer dans les détails, la principale différence entre ces deux techniques se situe autour du niveau d'énergie employée autour du front d'absorption. Le XANES est employé dès lors que l'on souhaite étudier la région proche du maximum d'absorption, de manière à rendre compte de l'état électronique. Au contraire, l'analyse des signaux d'EXAFS permet de remonter à la distance interatomique entre l'atome cible et ses proches voisins ainsi que leur nature. La figure 7.1 illustre les régions d'un spectre d'absorption correspondant aux seuils d'énergie caractéristiques du XANES et de l'EXAFS.

Dans le cas des verres métalliques, une récente étude menée par Antonowicz et al

[4] sur un verre métallique binaire $ZrCu$ a mis en avant la dépendance de la pression hydrostatique sur l'arrangement atomique local autour des atomes de zirconium et de cuivre. Plus précisément, cette équipe de recherche a démontré que la réponse élastique à l'échelle macroscopique découle d'une hiérarchie des constantes élastiques dans les différentes paires atomiques. Par ailleurs, leurs résultats ont souligné le rôle capital des icosaèdres dans cette hiérarchie. De ce fait, la campagne de novembre 2018 aura pour but de corrélérer l'étrange dépendance de la célérité des ondes de choc à la pression en étudiant les voisinages atomiques autour des atomes de cuivre et de zirconium.

En pratique, des spectres EXAFS devront être acquis à des niveaux d'énergie caractéristiques des seuils d'absorption du cuivre (8979 eV) et du zirconium (17998 eV), lors de la propagation d'ondes de choc. Ces dernières seront générées à l'aide d'une irradiation laser de 10 ns sur une surface de diamètre $250\text{ }\mu\text{m}$. L'énergie maximale délivrée par le laser atteint les 15 J . Pour contrôler répartition spatiale de l'énergie et ainsi s'assurer d'une mise en pression la plus homogène possible, des lames de phase seront employées. Pour s'assurer du bon déroulement des essais, les cibles devront pouvoir respecter les critères géométriques suivant :

- L'épaisseur de l'échantillon en verre métallique doit être inférieure à $15\text{ }\mu\text{m}$.
- Un confinement et une fenêtre doivent être respectivement disposés en face avant et arrière de l'échantillon.
- Le confinement et la fenêtre doivent être de même impédance que la cible et « transparents » aux X.
- L'assemblage ne doit pas dépasser une épaisseur totale de $80\text{ }\mu\text{m}$.

La première condition se rapporte à la quantité de photons nécessaires à l'acquisition des signaux. Le zirconium et le cuivre étant très absorbant, des épaisseurs relatives à une quantité de photons minimale sont déterminées en fonction des espèces étudiées. Dans le cas présent, pour obtenir un spectre de qualité les échantillons de verre métallique devront être inférieurs à $15\text{ }\mu\text{m}$.

Le confinement en face avant permet d'allonger la durée de chargement et ainsi retarder l'apparition des ondes de détente. En effet, les mesures de spectroscopie d'absorption doivent nécessairement être effectuées en configuration « single-bunch », soit avec un seul groupe de photons X dont la durée d'exposition est égale à 100 ps . Par conséquent, la pression dans le matériau cible doit pouvoir se trouver maintenue suffisamment longtemps pour acquérir les spectres d'absorption. Ceux-ci doivent bien évidemment pouvoir refléter la structure dans un état « stable » et non pas transitoire. Pour cette même raison, une fenêtre en face arrière doit aussi être positionnée afin d'éviter l'apparition des détentes issues de la réflexion en surface libre. L'adaptation d'impédance étant responsable de l'apparition des ondes de détente, la minimiser au mieux nous assurera d'un temps de maintien plus long. D'après nos résultats, la polaire de choc d'un ternaire $ZrCuAl$ se trouve proche de la polaire du fer. Or pour ce dernier, des fenêtres en saphir sont généralement utilisés car elles permettent une bonne transmission des chocs tout en réduisant la formation des détentes. A cela s'ajoute le fait que le saphir est principalement composé d'atomes d'aluminium et d'oxygène. Pour

les énergies de photons X considérées, seule une faible proportion de photons se retrouvera donc absorbée par ces atomes. Dans ce cas, il est possible de considérer le saphir comme « transparent » aux rayons X.

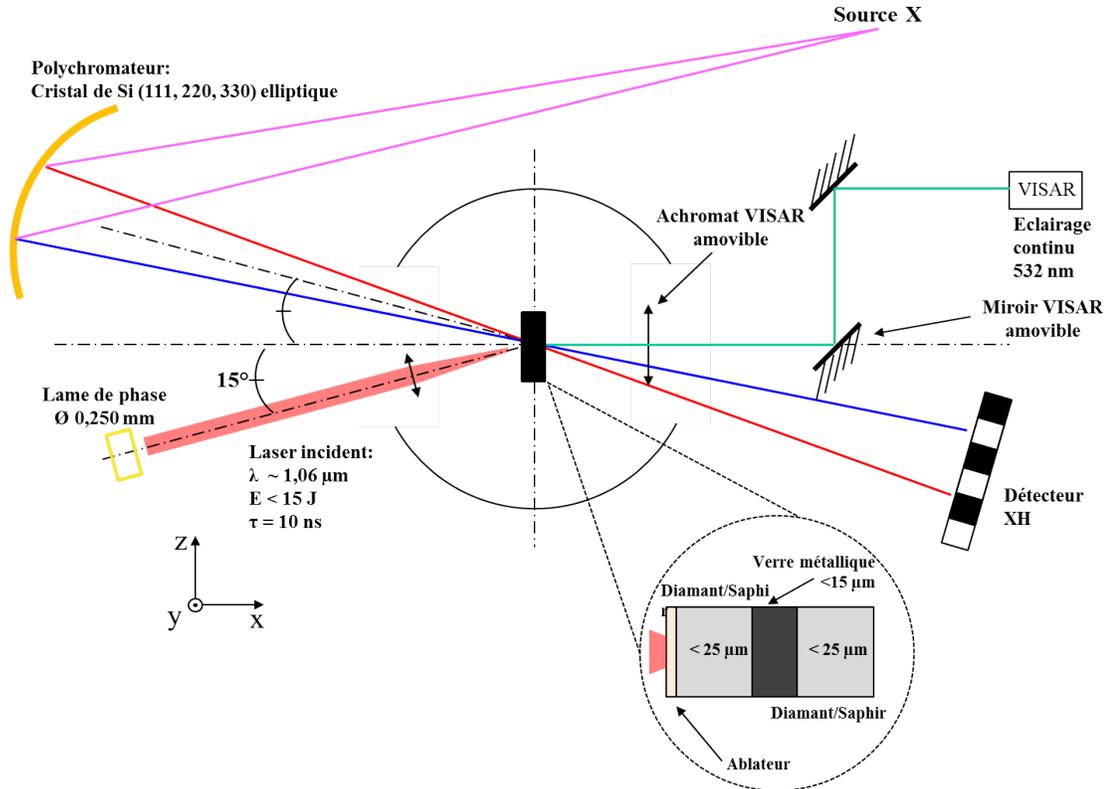


FIGURE 7.2 – Configuration expérimentale de la campagne laser-EXAFS HC-4010 à l’ESRF en novembre 2018.

Enfin, l’ensemble confinement-cible-fenêtre doit être inférieur au rayon de la tache focale afin de limiter au mieux les effets 2D. Compte tenu de la complexité de mise en forme de l’assemblage et des règles de chargement monodimensionnel, un compromis a dû être trouvé. Pour contrôler le niveau de pression et ainsi ajuster le niveau d’énergie en conséquence, un VISAR sera employé afin de corrélérer les niveaux de vitesses de surface libre aux polaires de choc du chapitre 4. Avec les caractéristiques de la source laser, il nous sera possible de sonder la matière jusqu’à des pressions maximales de 40 GPa. Selon la configuration expérimentale actuelle, les tirs seront réalisés sous vide et doublés (cf. Fig. 7.2). En effet, l’acheminement optique du VISAR en face arrière est limité de par la forme du faisceau d’X et l’encombrement du détecteur XH. De ce fait, les tirs seront réalisés en configuration VISAR – pour estimer le niveau de pression – et en configuration EXAFS – pour relever l’ordre atomique. Dernier point, mais non des moindres, ce projet de recherche – qui nous l’espérons sera des plus fructueux – est le résultat d’une étroite collaboration internationale entre la Faculté de Physique de Varsovie, l’ESRF, le PIMM et l’IPR.

7.2 Les origines de la rupture : hypothèses et investigations

Au cours de notre périple dans les tréfonds des faciès de rupture, nous avons centré notre attention sur les différents facteurs pouvant influencer sur la formation des « cups and cones ». Pour l'heure, nous avons proposé différentes hypothèses quant à leur origine. Pour traiter du sujet plus en profondeur, d'avantages d'essais peuvent être imaginés afin d'affirmer ou infirmer nos postulats.

Étant au fait de l'existence de plusieurs régimes de comportement, il est évident que, pour tracer le plus exhaustivement le paysage de l'endommagement dynamique des verres métalliques, des études dédiées à chacun de ces régimes sont nécessaires. Nos observations nous ont a priori permis de mettre en avant que le mécanisme de formation sous-jacent était identique quel que soit le régime considéré. Au contraire, le taux de déformation s'est révélé jouer un rôle important sur la forme de ces motifs. Outre une étude approfondie sur le sujet, il sera nécessaire de pouvoir corrélérer leur initiation aux phénomènes de migration et ségrégation atomique observés.

En premier lieu, une cartographie précise du paysage atomique aux abords des coupelles et cônes devra être établie. La réalisation de lames minces, par l'intermédiaire d'une découpe par sonde ionique focalisée de certains de ces objets, offrirait la possibilité d'observer en coupe par microscope électronique en transmission la population atomique. En plus de nous fournir des données quantitatives sur la distribution atomique, nous pourrions accéder à l'ordre structurel.

Pour évaluer la robustesse de notre scénario de migration et ségrégation, des essais de propagation d'onde de choc dans des bains visqueux comportant des particules pourraient être entrepris. La variation de la viscosité du milieu alliée à des particules de tailles, d'inerties et de répartitions massiques différentes offrirait un premier moyen d'attester de la pertinence de notre scénario. En fonction des résultats obtenus, un rapprochement avec la distribution atomique pourrait être établi.

En ce qui concerne l'orientation des coupelles et cônes, l'orientation des bandes de cisaillement pourrait être étudiée en fonction de la tribologie de particules et de la viscosité d'un fluide. Dans l'expérience de Houdoux et al [64], un amas de billes était soumis à des essais de compression uni-axiale. En modifiant à la fois le coefficient de frottement des billes et en y adjuvant plusieurs fluides de différentes viscosités, il serait possible d'évaluer leurs effets sur l'orientation des bandes de cisaillement.

7.3 Les verres métalliques : vers une application défense

Outre les études de Hamill et al [57] et Hofmann et al [63], les hautes limites à la rupture mesurées à très hautes vitesses de déformation sur notre ternaire $ZrCuAl$

n'ont fait que confirmer le potentiel des verres métalliques comme élément constitutifs de blindage. En dépit d'un comportement hydrodynamique peu sensible au système, l'effet de composition s'est révélé très présent dans les processus d'endommagement. Avant d'envisager un éventuel transfert technologique, il sera donc nécessaire de prospecter sur diverses compositions pouvant présenter un avantage stratégique. Pour rendre la rendre la plus efficace possible, une méthodologie de caractérisation préliminaire pourrait être envisagée :

- Effectuer quelques tirs de compression isentropique pour remonter aux polaires de choc.
- Effectuer deux à trois tirs d'endommagement pour chacun des domaines de pression identifié.

Les récents développements des sources laser permettent aujourd'hui de modifier avec plus d'aisance la durée du chargement. Sans avoir nécessairement recours aux grandes installations – telles que celles du LULI – il serait possible de balayer sur une même installation laser « industrielle » une grande variabilité de compositions. En très peu de tirs laser, il serait alors possible d'obtenir rapidement une première version de la courbe d'Hugoniot ainsi que les limites à la rupture pour chaque régime. En suivant une démarche de ce type, il serait possible d'isoler très rapidement les effets de la composition du système et de la micro-structure – telle la nano-cristallisation ou la nano-structuration [72, 65, 96, 15] – sur le comportement dynamique de certaines compositions. Pourraient alors s'en suivre des essais grandeur nature sur canon pour attester des performances en configuration opérationnelle des compositions retenues. Une fois seulement toutes ces étapes abordées, un transfert technologique aboutissant au dimensionnement de pièces concrètes pourra être envisagé.

Conclusion

Nous voici arrivés au terme de ce manuscrit. C'est le temps de conclure ces travaux de thèse en effectuant un récapitulatif des principaux résultats obtenus au regard de la problématique fixée.

Pour rappel, le cadre initial de ce projet de recherche supposait l'étude – au sens large du terme – du comportement des verres métalliques massifs lorsque ceux-ci sont sujets à des ondes de choc. Tout au long de ce manuscrit, nous nous sommes appliqués à traiter de la physique des chocs sur verres métalliques avec une approche globale, dans le but de pouvoir tester la pertinence de l'emploi de ces matériaux dans le domaine de la défense. Pour cette raison, nous avons dressé un panorama de leur comportement dynamique, et ce en dépit du faible nombre d'études publiées jusqu'à lors. Pour ce faire, plusieurs campagnes de choc laser ont été réalisées en laboratoire sur des verres métalliques ternaire $ZrCuAl$ afin d'obtenir leurs équations d'état, de caractériser leur endommagement et leur comportement à la rupture dynamique.

Les essais de caractérisation de l'équation d'état ont mis en évidence l'existence de quatre régimes de pression jusqu'à 100 GPa dans le ternaire $ZrCuAl$. Si leurs origines n'ont pu être entièrement élucidées, la confrontation de nos résultats avec ceux de la littérature nous a renseigné sur l'influence de l'effet de composition sur la propagation des ondes de choc. En effet, nous avons pu mettre en exergue que la variation de fraction volumique au sein d'un même système n'engendrait pas de modifications significatives dans la célérité des ondes de choc. Au contraire, nous avons pu constater que les différences de composition entre systèmes occasionnaient l'apparition de régimes de pression similaires se manifestant pour des seuils et plages de pression distinctes. Cet effet s'est montré particulièrement présent au-dessus de 50 GPa , où de fortes variations de la célérité des ondes de choc entre systèmes ont pu être observé. Nous avons proposé deux modèles d'équation d'état pouvant être implémentés dans des codes de simulation hydrodynamiques. Nonobstant l'approche classique suivie, l'emploi de ces modèles permettra dans un avenir proche d'approfondir la modélisation du comportement dynamique des verres métalliques et ainsi apporter des pistes de réflexion complémentaires quant à l'origine des régimes de pression observés.

Les travaux menés sur l'endommagement et la rupture dynamique à l'échelle macroscopique nous ont indiqué que les régimes de pression existants influençaient significativement le seuil de rupture en traction dynamique. Plus précisément, nous avons

pu déduire des données de la littérature que la limite à la rupture dynamique des verres métalliques base zirconium était très peu sensible aux effets de composition et de vitesse de déformation en-dessous de 15 *GPa*. Au contraire, pour des pressions supérieures à 50 *GPa* nous avons obtenu des seuils de rupture dynamique surpassant ceux de plusieurs matériaux métalliques polycristallins couramment utilisés dans le domaine de la défense. Nous avons pu discriminer pour ce dernier régime, des effets de composition auxquels pourraient s'ajouter des effets de vitesses de déformation. L'étude des faciès de rupture a démontré l'existence d'un mécanisme commun à plusieurs compositions et régimes de pression. Celui-ci se manifeste sous la forme de coupelles et de cônes répartis de part et d'autre du plan d'écaillage. Une étude semi-quantitative de la géométrie de ces objets a permis de mettre une nouvelle fois en avant des effets de composition et de vitesse de déformation. D'une part, l'augmentation de la fraction volumique du taux de zirconium permet d'accroître la ductilité du système *ZrCuAl*, d'autre part, la chute des vitesses de déformation entraîne un étirement et une fermeture progressive des coupelles le long de l'axe de propagation des ondes. À partir de ces différentes observations, nous avons pu proposer un mécanisme de formation des coupelles et des cônes tenant compte de la théorie des chocs, des modes de déformation des verres métalliques ainsi que des différences morphologiques entre coupelles et cônes. Enfin, un examen approfondi de ces dernières nous a conduit à révéler l'existence d'un processus de migration et de ségrégation atomique s'opérant au cours de la mise en traction de la matière, peu de temps avant la rupture.

En conclusion, ces travaux de recherche apportent de nouveaux éléments, chacun soulevant son lot d'interrogations. Nous disposons désormais de données fiables relatives à l'équation d'état, à l'endommagement et à la rupture dynamique des verres métalliques base zirconium, ouvrant la voie à de futures applications défense.

Annexe A

La courbe d'Abbott-Firestone

Les opérations de mise en forme de pièces causent indubitablement l'apparition d'irrégularités et de défauts à leurs surfaces. Ceux-ci peuvent se définir par l'écart entre la surface optimale et la surface réelle et sont constitués d'une alternance de pics et de creux. Quatre ordres sont généralement utilisés pour les différencier : l'écart de forme, l'ondulation, la rugosité et l'arrachement. L'écart de forme se réfère à l'écart de géométrie entre la pièce finale obtenue et celle désirée. L'ondulation correspond aux défauts dus aux vibrations et au mouvement d'avance de l'outil. Enfin la rugosité et l'arrachement font référence aux différents objets formés en surface par déplacement de l'outil et l'arrachement de matière.

Pour les caractériser, il existe différentes normes ISO, dont les critères peuvent être bidimensionnels ou tridimensionnels. Ceux-ci se répartissent en deux principales catégories : les critères définissant l'état de surface en globalité et les critères hybrides se focalisant sur des aspects particuliers des surfaces. Dans la première catégorie, tous les paramètres de rugosité sont calculés à partir de la mesure de distance entre pics et creux, et plus précisément par rapport à des maxima et minima globaux. Le calcul des paramètres se retrouve alors plus facilement influencé par des points extrêmes, leur enlevant ainsi toute représentativité. Au contraire, les paramètres hybrides permettent de déterminer de manière indépendante la hauteur de chaque pic et creux, mais aussi leur nombre (norme ISO 4287). D'après leur définition, ils apparaissent donc bien plus adaptés à la caractérisation des coupelles et des cônes. Pour les obtenir, il est nécessaire de tracer la courbe d'Abbott-Firestone [1] (cf. Fig. A.1).

Cette courbe représente la proportion de points du profil présents sous une hauteur de profil donné. Sur cette courbe, trois zones sont délimitées à partir du tracé d'une droite tangente au point d'inflexion correspondant à 40 % du taux de matière [1]. La zone centrale correspond au paramètre R_k , obtenue en traçant deux droites horizontales (H1) et (H2) aux intersections définies par le croisement de la tangente et des axes verticaux à 0 % et 100 % du profil. Le paramètre R_k correspond à la distance séparant ces droites horizontales, décrivant ainsi la rugosité à cœur. Les paramètres R_{pk} et R_{vk} représentent quant à eux les hauteurs du profil constitué de pics et de creux. Ils permettent de quantifier leur contribution à la rugosité totale. Pour les déduire, il

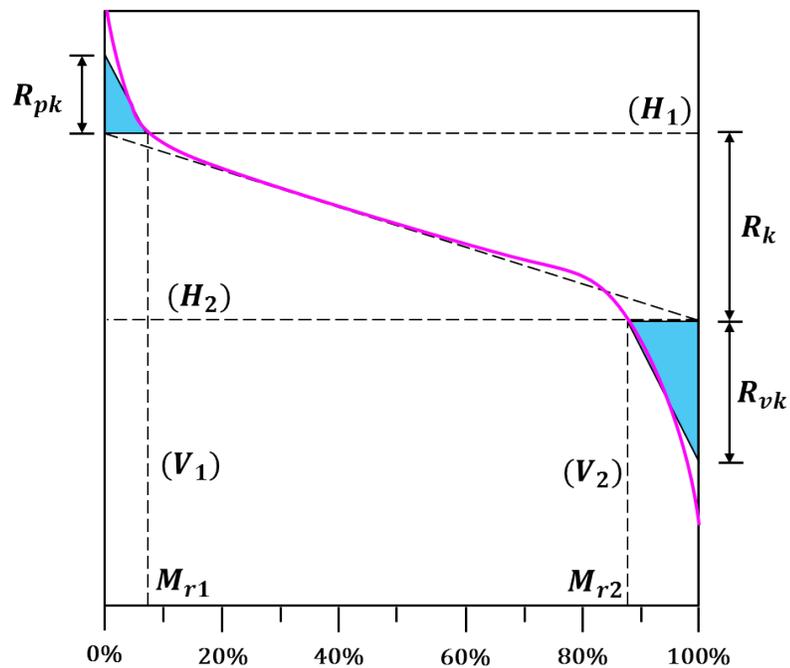


FIGURE A.1 – Courbe de Abbott-Firestone [1].

est nécessaire de calculer l'aire sous la courbe d'Abbott-Firestone pour les parties de la courbe en dehors de la zone centrale. Le R_{pk} est alors obtenu à partir de la construction d'une aire triangulaire entre la courbe d'Abbott-Firestone et la droite horizontale (H1). Le R_{vk} est construit de manière similaire mais avec la droite horizontale (H2). Dans la figure 1, le R_{pk} illustré est plus faible que le R_{vk} , ce qui implique que le profil mesuré possède plus de creux que de pics. En traçant deux droites verticales (V1) et (V2) à l'intersection des triangles et des droites horizontales (H1) et (H2), il est alors possible de définir les paramètres M_{r1} et M_{r2} . Ces derniers correspondent respectivement aux proportions de pics et de creux.

La généralisation de ces différents paramètres hybrides à l'échelle de la surface permet de définir les paramètres S_k , S_{pk} et S_{vk} . La somme de ces trois valeurs rend compte de la rugosité totale de la surface étudiée.

Annexe B

Algorithme de détection

Dans le but d'étudier quantitativement les coupelles et cônes observées sur les surfaces de rupture des cratères en face arrière, un algorithme de détection basé sur la méthode des monts et vallées a été développé. Les étapes de détection de l'algorithme sont décrites ci-après :

/* Initialisation */

Création d'une matrice [Z] à partir des hauteurs issues d'un fichier profilométrique ;
Création d'une copie [Z1] de la matrice [Z] ;

/*Détection des Extrema Globaux */

Recherche du maximum absolu Z_{max} de la matrice [Z] ;
Recherche du minimum absolu Z_{min} de la matrice [Z] ;
Création de la première coupelle/cône (CC) ;
Édition de la matrice [Z1] par suppression du minimum absolu Z_{min} ;

/*Détection des Coupelles*/

Tant que $\text{Min}(i)[Z1] < Z_{max}$
//Min(i) correspond au minimum absolu de la matrice [Z1] à l'itération i.
Recherche de $\text{Min}(i)[Z1]$;
Création d'une matrice voisinage [N] autour de l'actuel minimum absolu $\text{Min}(i)$;
Recherche dans [N] si un minimum a été précédemment détecté ;
Si un minimum a déjà été détecté **alors**
Recherche dans [N] de précédents minima à une distance inférieure à $3\sqrt{2}$;
//Cette valeur a été déterminée par convergence.
Vérifier dans la matrice [N] l'indice des minima les plus proches ;
Attribution à $\text{Min}(i)$ de l'indice le plus faible ;
//Indice relatif à la valeur du CC auquel appartient le minimum de l'itération i.
Si non
Création d'un nouveau CC ;
Fin
Édition de la matrice [Z1] par la suppression du minimum $\text{Min}(i)$ détecté ;
Fin

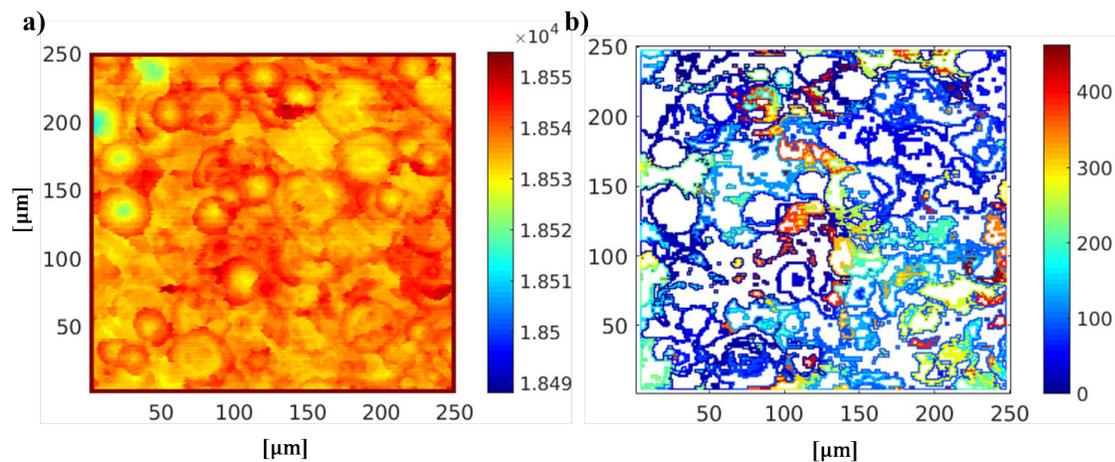


FIGURE B.1 – (a) Surface originale d’une zone du cratère en face arrière d’un verre métallique $Zr_{50}Cu_{40}Al_{10}$. (b) Image créée après détection de contour par l’algorithme de détection. Dans les deux images, les axes verticaux et horizontaux sont exprimés en micromètres. Dans l’image obtenue, l’indice des objets détecté est associé à une couleur.

Une fois tous les pixels de l’image traités, la matrice [Z1] comporte les indices de chaque pixel correspondant à la coupelle ou au cône auquel il appartient. Les figures B.1 (a) et (b) illustrent respectivement l’image initiale et l’image créée après détection. Sur ces images la résolution d’un pixel est de $1 \mu m^2$ et les hauteurs sont exprimées en micromètres. Concernant l’image contenant les indices des objets détectés, ceux-ci sont représentés par leur contour dont la couleur correspond au numéro d’indice. L’examen de cette nouvelle image révèle la détection d’un grand nombre d’objets ne possédant pas une géométrie proche de celle des coupelles et des cônes. Afin de pouvoir s’affranchir de ces objets peu représentatifs pour notre étude, nous avons ensuite soumis cette nouvelle image à des filtres morphologiques simples avant de pouvoir effectuer des calculs statistiques sur les objets restants.

Au regard de la complexité des surface, de possibles interactions entre coupelles et cônes peuvent avoir lieu entraînant ainsi des recouvrements. Dans le but d’effectuer une première étude sur le sujet, nous avons décidé de nous concentrer sur les coupelles et les cônes présentant les géométries les plus régulières possible. Ainsi, les filtres « MinPerim » et « MeanPerim » ont été développés afin de pouvoir conserver uniquement les objets les plus réguliers, mais aussi étudier en détail les zones les plus proches de la zone d’initiation. La construction de ces deux filtres repose sur la détection des contours des objets, i.e. de leurs périmètres.

Le premier filtre « MinPerim » est obtenu en détectant le pixel le plus bas appartenant au périmètre. Au-dessus de l’altitude de celui-ci, les pixels se retrouvent alors supprimés (cf. Fig. B.2 (c) et (d)). Il permet de conserver uniquement la géométrie suivant l’initiation de la coupelle.

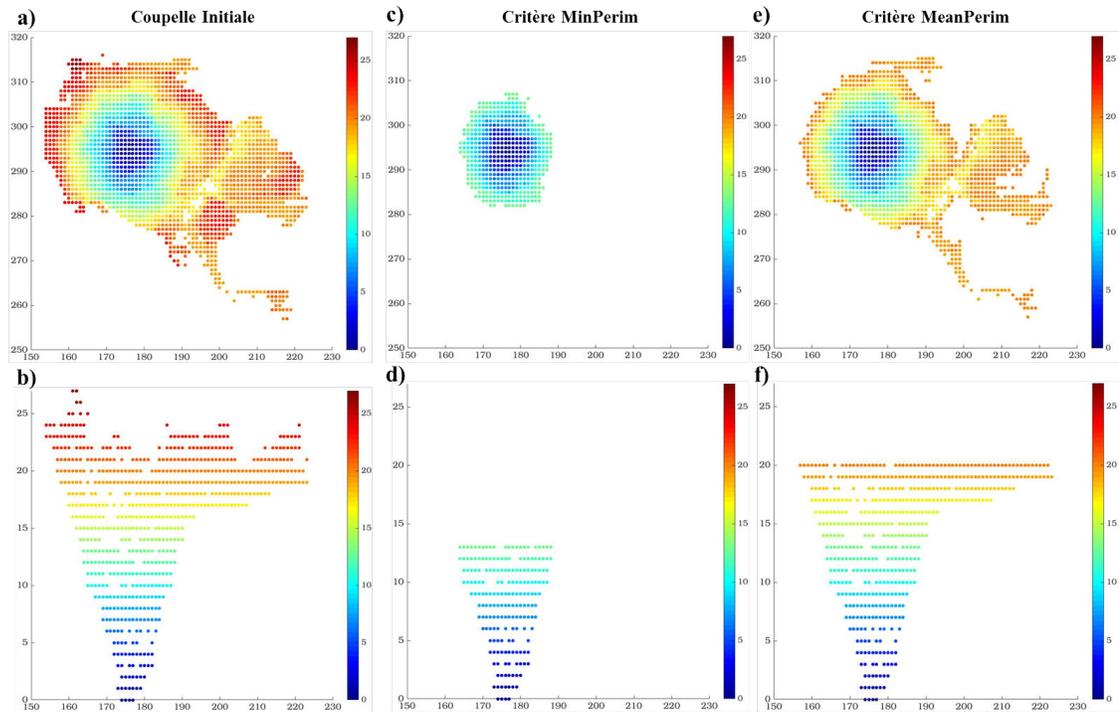


FIGURE B.2 – (a) Vue de dessus de la coupelle initiale après détection ; (b) Vue de côté de la coupelle initiale ; (c) Vue de dessus de la coupelle écrétée par le critère MinPerim ; (d) Vue de côté de la coupelle écrétée par MinPerim ; (e) Vue de dessus de la coupelle écrétée par le critère MeanPerim ; (f) Vue de côté de la coupelle écrétée par MeanPerim.

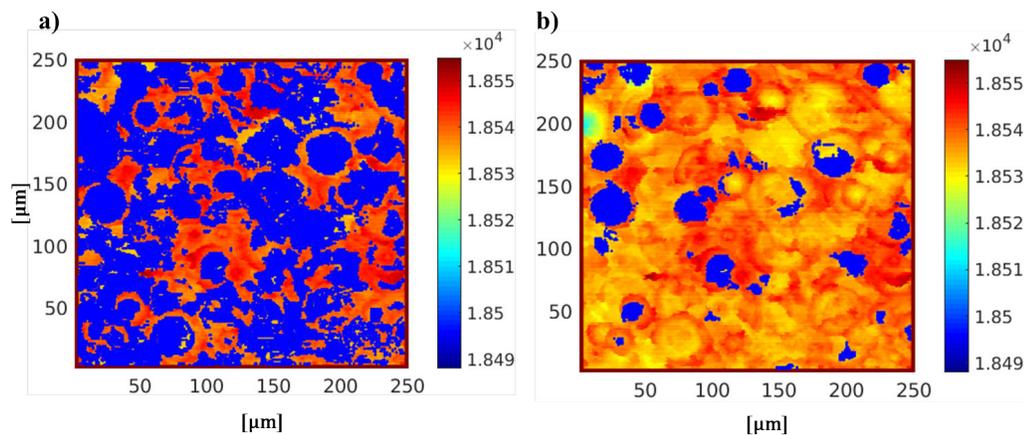


FIGURE B.3 – (a) Surface initiale à laquelle sont superposés les objets détectés par l’algorithme de détection. (b) Image finale conservée après application du filtre morphologique « MeanPerim ».

Le deuxième, « MeanPerim », correspond à la hauteur moyenne des pixels appartenant au périmètre. De manière similaire à « MinPerim », tous les pixels appartenant à l’objet se trouvant au-dessus de cette élévation moyenne du périmètre se retrouvent supprimés de l’objet. Comme l’illustrent les figures B.2 (e) et (f), ce filtre est moins précis et restrictif que « MinPerim ». Seulement, il offre accès à des distributions de hau-

teurs et surfaces projetées de coupelles moyennes.

Finalement, une étude statistique est menée uniquement sur les objets conservés par l'un des deux filtres (cf. Fig. [B.3](#)).

Bibliographie

- [1] E. ABBOTT AND F. FIRESTONE, *Specifying surface quality : a method based on accurate measurement and comparison*, Mechanical Engineering, 55 (1933), pp. 569–572.
- [2] N. AMADOU, E. BRAMBRINK, A. BENUZZI-MOUNAIX, G. HUSER, F. GUYOT, S. MAZEVET, G. MORARD, T. DE RESSEGUIER, T. VINCI, K. MYANISHI, N. OZAKI, R. KODAMA, T. BOEHLY, O. HENRY, D. RAFFESTIN, AND M. KOENIG, *Direct laser-driven ramp compression studies of iron : A first step toward the reproduction of planetary core conditions*, High Energy Density Physics, 9 (2013), pp. 243–246.
- [3] N. AMADOU, E. BRAMBRINK, T. DE RESSÉGUIER, A. MANGA, A. ABOUBACAR, B. BORM, AND A. MOLINERI, *Laser-Driven Ramp Compression to Investigate and Model Dynamic Response of Iron at High Strain Rates*, Metals, 6 (2016), p. 320.
- [4] J. ANTONOWICZ, A. PIETNOCZKA, G. A. EVANGELAKIS, O. MATHON, I. KANTOR, S. PASCARELLI, A. KARTOUZIAN, T. SHINMEI, AND T. IRIFUNE, *Atomic-level mechanism of elastic deformation in the Zr-Cu metallic glass*, Physical Review B, 93 (2016), pp. 1–5.
- [5] T. ANTOUN, D. R. CURRAN, V. S. RAZORENOV, L. SEAMAN, G. I. KANEL, AND A. V. UTKIN, *Spall Fracture*, Springer, New York, 2002.
- [6] A. S. ARGON, *Plastic deformation in metallic glasses*, Acta Metallurgica, 27 (1979), pp. 47–58.
- [7] A. S. ARGON AND M. SALAMA, *The mechanism of fracture in glassy materials capable of some inelastic deformation*, Materials Science and Engineering, 23 (1976), pp. 219–230.
- [8] B. ARMAN, S.-N. LUO, T. C. GERMANN, AND T. ÇAĞIN, *Dynamic response of Cu₄₆Zr₅₄ metallic glass to high-strain-rate shock*, Physical Review B, 81 (2010), p. 144201.
- [9] J. R. ASAY AND L. M. BARKER, *Interferometric measurement of shock-induced internal particle velocity and spatial variations of particle velocity*, Journal of Applied Physics, 45 (1974), pp. 2540–2546.
- [10] L. M. BARKER AND R. E. HOLLENBACH, *Laser interferometer for measuring high velocities of any reflecting surface*, Journal of Applied Physics, 43 (1972), pp. 4669–4675.
- [11] H. BEI, S. XIE, AND E. P. GEORGE, *Softening caused by profuse shear banding in a bulk metallic glass*, Physical Review Letters, 96 (2006), pp. 1–4.

- [12] L. BELHADI, F. DECREMPS, S. PASCARELLI, L. CORMIER, Y. LE GODEC, S. GORSSE, F. BAUDELET, C. MARINI, AND G. GARBARINO, *Polyamorphism in cerium based bulk metallic glasses : Electronic and structural properties under pressure and temperature by x-ray absorption techniques* *Polyamorphism in cerium based bulk metallic glasses : Electronic and structural properties under press*, Applied Physics Letters, 103 (2013), pp. 1–5.
- [13] F. BIRCH, *elasticity and constitution of Earth's interior*, Journal of Geophysical Research, 57 (1952), pp. 227–286.
- [14] M. BOUSTIE AND F. COTTET, *Experimental and numerical study of laser induced spallation into aluminum and copper targets*, Journal of Applied Physics, 69 (1991), pp. 7533–7538.
- [15] T. BRINK, M. PETERLECHNER, H. RÖSNER, K. ALBE, AND G. WILDE, *Influence of Crystalline Nanoprecipitates on Shear-Band Propagation in Cu-Zr-Based Metallic Glasses*, Physical Review Applied, 5 (2016), pp. 1–16.
- [16] F. BUY, C. VOLTZ, AND F. LLORCA, *State for Shock Wave*, in Shock Compression of Condensed Matter-2005, 2006, pp. 1503–1506.
- [17] A. J. CAO, Y. Q. CHENG, AND E. MA, *Structural processes that initiate shear localization in metallic glass*, Acta Materialia, 57 (2009), pp. 5146–5155.
- [18] P. M. CELLIERS, D. K. BRADLEY, G. W. COLLINS, D. G. HICKS, T. R. BOEHLY, AND W. J. ARMSTRONG, *Line-imaging velocimeter for shock diagnostics at the OMEGA laser facility*, Review of Scientific Instruments, 75 (2004), pp. 4916–4929.
- [19] Y. CHAMPION AND M. BL, *Propriétés mécaniques des verres métalliques Propriétés mécaniques des verres métalliques*, Techniques de l'ingénieur, 33 (2009), p. N2720 VI.
- [20] Y. Q. CHENG AND E. MA, *Intrinsic shear strength of metallic glass*, Acta Materialia, 59 (2011), pp. 1800–1807.
- [21] Y. Q. CHENG, E. MA, AND H. W. SHENG, *Atomic Level Structure in Multicomponent Bulk Metallic Glass*, Physical Review Letters, 102 (2009), p. 245501.
- [22] Y. Q. CHENG, H. W. SHENG, AND E. MA, *Relationship between structure, dynamics, and mechanical properties in metallic glass-forming alloys*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics, 78 (2008), pp. 1–7.
- [23] E. L. CHRISTIANSEN AND J. KERR, *Ballistic limit equations for spacecraft shielding*, International Journal of Impact Engineering, 26 (2001), p. 12.
- [24] M. H. COHEN AND D. TURNBULL, *Molecular transport in liquids and glasses*, The Journal of Chemical Physics, 31 (1959), pp. 1164–1169.
- [25] J. P. COLOMBIER, P. COMBIS, F. BONNEAU, R. LE HARZIC, AND E. AUDOUARD, *Hydrodynamic simulations of metal ablation by femtosecond laser irradiation*, Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics, 71 (2005), pp. 1–6.
- [26] R. CONNER, R. DANDLIKER, AND W. JOHNSON, *Mechanical properties of tungsten and steel fiber reinforced Zr_{41.25}Ti_{13.75}Cu_{12.5}Ni₁₀Be_{22.5} metallic glass matrix composites*, Acta Materialia, 46 (1998), pp. 6089–6102.

- [27] R. CONNER, R. DANDLIKER, V. SCRUGGS, AND W. JOHNSON, *Dynamic deformation behavior of tungsten-fiber/metallic-glass matrix composites*, International Journal of Impact Engineering, 24 (2000), pp. 435–444.
- [28] R. D. CONNER, W. L. JOHNSON, N. E. PATON, AND W. D. NIX, *Shear bands and cracking of metallic glass plates in bending*, Journal of Applied Physics, 94 (2003), pp. 904–911.
- [29] B. G. COUR-PALAIS AND J. L. CREWS, *A multi-shock concept for spacecraft shielding*, International Journal of Impact Engineering, 10 (1990), pp. 135–146.
- [30] J.-P. CUQ-LELANDAIS, M. BOUSTIE, L. SOULARD, L. BERTHE, T. DE RESSÉGUIER, P. COMBIS, J. BONTAZ-CARION, AND E. LESCOUTE, *Study of spallation by sub-picosecond laser driven shocks in metals*, EPJ Web of Conferences, 10 (2010), p. 00014.
- [31] F. H. DALLA TORRE, D. KLAUMÜNZER, R. MAASS, AND J. F. LÖFFLER, *Stick-slip behavior of serrated flow during inhomogeneous deformation of bulk metallic glasses*, Acta Materialia, 58 (2010), pp. 3742–3750.
- [32] F. DECREMPS, G. MORARD, G. GARBARINO, AND M. CASULA, *Polyamorphism of a Ce-based bulk metallic glass by high-pressure and high-temperature density measurements*, Physical Review B, 93 (2016), pp. 1–7.
- [33] L. A. DEIBLER AND J. J. LEWANDOWSKI, *Outer medium effects and fracture nucleation sites in model experiments to mimic fracture surface features of metallic glasses*, Materials Science and Engineering : A, 538 (2012), pp. 259–264.
- [34] J. DING, Y. Q. CHENG, AND E. MA, *Full icosahedra dominate local order in Cu₆₄Zr₃₄metallic glass and supercooled liquid*, Acta Materialia, 69 (2014), pp. 343–354.
- [35] D. H. DOLAN, *Accuracy and precision in photonic doppler velocimetry*, Review of Scientific Instruments, 81 (2010).
- [36] P. E. DONOVAN, *A yield criterion for Pd₄₀Ni₄₀P₂₀ metallic glass*, Acta Metallurgica, 37 (1989), pp. 445–456.
- [37] G. M. DOUGHERTY, G. J. SHIFLET, AND S. J. POON, *Synthesis And Microstructural Evolution Of Al-Ni-Fe-Gd Metallic Glass By Mechanical Alloying*, Acta metall. mater., 42 (1994), pp. 2275–2283.
- [38] D. C. DRUCKER AND W. PRAGER, *Soil mechanics and plastic analysis for limit design.*, Quarterly of Applied Mathematics, 10 (1952), pp. 157–165.
- [39] J. EDWARDS, K. T. LORENZ, B. A. REMINGTON, S. POLLAINÉ, J. COLVIN, D. BRAUN, B. F. LASINSKI, D. REISMAN, J. M. MCNANEY, J. A. GREENOUGH, R. WALLACE, H. LOUIS, AND D. KALANTAR, *Laser-Driven Plasma Loader for Shockless Compression and Acceleration of Samples in the Solid State*, Physical Review Letters, 92 (2004).
- [40] ESA-SPACE-DEBRIS-OFFICE, *ESA's Annual Space Environment Report*, GEN-DB-LOG-00239-OPS-GR, (2017).

- [41] J. P. ESCOBEDO, D. CHAPMAN, K. LAWS, A. D. BROWN, F. WANG, D. EAKINS, P. J. HAZELL, AND M. FERRY, *Effects of chemical composition and test conditions on the dynamic tensile response of Zr-based metallic glasses*, in AIP Conference Proceedings, vol. 1793, 2017.
- [42] J. P. ESCOBEDO AND Y. M. GUPTA, *Dynamic tensile response of Zr-based bulk amorphous alloys : Fracture morphologies and mechanisms*, Journal of Applied Physics, 107 (2010), p. 123502.
- [43] J. ESHELBY, *The Determination of the Elastic Field of an Ellipsoidal Inclusion , and Related Problems*, in Royal Society London, vol. 241, 1957, pp. 376–396.
- [44] R. FABBRO, B. FARAL, AND J. VIRMONT, *Experimental study of ablation pressure*, Phys. Fluids, 28 (1985), pp. 3414–3423.
- [45] L. FERRIÈRE AND G. OSINSKI, *Shock metamorphism in Impact Cratering : Processes and Products*, Blackwell Publishing Ltd., 2012.
- [46] K. M. FLORES AND R. H. DAUSKARDT, *Mean stress effects on flow localization and failure in a bulk metallic glass*, Acta Materialia, 49 (2001), pp. 2527–2537.
- [47] F. C. FRANK, *Supercooling of Liquids*, Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences, 215 (1952), pp. 43–46.
- [48] K. FUJITA, A. OKAMOTO, N. NISHIYAMA, Y. YOKOYAMA, H. KIMURA, AND A. INOUE, *Effects of loading rates, notch root radius and specimen thickness on fracture toughness in bulk metallic glasses*, Journal of Alloys and Compounds, 434-435 (2007), pp. 22–27.
- [49] C. GARBAN-LABAUNE, E. FABRE, AND A. MICHARD, *Effect of target material on absorption measurements at short laser wavelengths*, Optics Communications, 41 (1982), pp. 174–177.
- [50] M. GHIDELLI, H. IDRISSE, S. GRAVIER, J. J. BLANDIN, J. P. RASKIN, D. SCHRYVERS, AND T. PARDOEN, *Homogeneous flow and size dependent mechanical behavior in highly ductile Zr65Ni35 metallic glass films*, Acta Materialia, 131 (2017), pp. 246–259.
- [51] A. E. GLEASON, C. A. BOLME, H. J. LEE, B. NAGLER, E. GALTIER, R. G. KRAUS, R. SANDBERG, W. YANG, F. LANGENHORST, AND W. L. MAO, *Time-resolved diffraction of shock-released SiO₂ and diaplectic glass formation*, Nature Communications, 8 (2017), pp. 8–13.
- [52] A. L. GREER, Y. CHENG, AND E. MA, *Shear bands in metallic glasses*, Materials Science and Engineering : R : Reports, 74 (2013), pp. 71–132.
- [53] J. R. GREER AND J. T. M. DE HOSSON, *Plasticity in small-sized metallic systems : Intrinsic versus extrinsic size effect*, Progress in Materials Science, 56 (2011), pp. 654–724.
- [54] J. GRUN, R. DECOSTE, B. H. RIPIN, AND J. GARDNER, *Characteristics of ablation plasma from planar, laser-driven targets*, Applied Physics Letters, 39 (1981), pp. 545–547.
- [55] H. GUO, P. F. YAN, Y. B. WANG, J. TAN, Z. F. ZHANG, M. L. SUI, AND E. MA, *Tensile ductility and necking of metallic glass*, Nature Materials, 6 (2007), pp. 735–739.

- [56] J. HAMA AND K. SUITO, *The search for a universal equation of state correct up to very high pressures*, Journal of Physics Condensed Matter, 8 (1996), pp. 67–81.
- [57] L. HAMILL, S. ROBERTS, M. DAVIDSON, W. L. JOHNSON, S. NUTT, AND D. C. HOFMANN, *Hypervelocity impact phenomenon in bulk metallic glasses and composites*, Advanced Engineering Materials, 16 (2014), pp. 85–93.
- [58] Z. HAN AND Y. LI, *Cooperative shear and catastrophic fracture of bulk metallic glasses from a shear-band instability perspective*, Journal of Materials Research, 24 (2009), pp. 3620–3627.
- [59] T. M. HAYES, J. W. ALLEN, J. TAUC, B. C. GIESSEN, AND J. J. HAUSER, *Short-range order in metallic glasses*, Physical Review Letters, 40 (1978), pp. 1282–1285.
- [60] Q. HE, Y. Q. CHENG, E. MA, AND J. XU, *Locating bulk metallic glasses with high fracture toughness : Chemical effects and composition optimization*, Acta Materialia, 59 (2011), pp. 202–215.
- [61] Y. HE, R. B. SCHWARZ, AND D. G. MANDRUS, *Materials research*, Journal of Materials Research, 11 (1996), pp. 1836–1841.
- [62] A. HIRATA, L. J. KANG, T. FUJITA, B. KLUMOV, K. MATSUE, M. KOTANI, A. R. YAVARI, AND M. W. CHEN, *Geometric frustration of icosahedron in metallic glasses*, Science, 341 (2013), pp. 376–379.
- [63] D. C. HOFMANN, L. HAMILL, E. CHRISTIANSEN, AND S. NUTT, *Hypervelocity Impact Testing of a Metallic Glass-Stuffed Whipple Shield*, Advanced Engineering Materials, 17 (2015), pp. 1313–1322.
- [64] D. HOUDOUX, T. B. NGUYEN, A. AMON, AND J. CRASSOUS, *Plastic flow and localization in an amorphous material : what do experiments tell us ?*, Physical Review E, 022905 (2018), pp. 1–8.
- [65] Z. W. HSIAO, C. C. FU, P. H. TSAI, J. S. C. JANG, S. R. JIAN, AND J. C. HUANG, *Effect of Nano-Crystallization on the Mechanical Properties of the (Zr₅₃Cu₃₀Ni₉Al₈)_{99.5}Si_{0.5} Bulk Metallic Glass*, Materials Science Forum, 638–642 (2010), pp. 2933–2937.
- [66] Y. C. HU, P. F. GUAN, Q. WANG, Y. YANG, H. Y. BAI, AND W. H. WANG, *Pressure effects on structure and dynamics of metallic glass-forming liquid*, Journal of Chemical Physics, 146 (2017).
- [67] X. HUANG, Z. LING, AND L. H. DAI, *Ductile-to-brittle transition in spallation of metallic glasses*, Journal of Applied Physics, 116 (2014), p. 143503.
- [68] X. HUANG, Z. LING, H. S. ZHANG, AND L. H. DAI, *How does spallation microdamage nucleate in bulk amorphous alloys under shock loading ?*, Journal of Applied Physics, 103519 (2011).
- [69] M. IDRISSE, F. CÉLARIÉ, Y. YOKOYAMA, F. TESSIER, AND T. ROUXEL, *Evolution of the elastic modulus of Zr-Cu-Al BMGs during annealing treatment and crystallization : Role of Zr/Cu ratio*, Journal of Non-Crystalline Solids, 421 (2015), pp. 35–40.
- [70] A. INOUE, *Stabilization and high strain-rate superplasticity of metallic supercooled liquid*, Materials Science and Engineering A, 267 (1999), pp. 171–183.

- [71] A. INOUE, *Stabilization of metallic supercooled liquid and bulk amorphous alloys*, Acta Materialia, 48 (2000), pp. 279–306.
- [72] A. INOUE, H. M. KIMURA, AND T. ZHANG, *High-strength aluminum- and zirconium-based alloys containing nanoquasicrystalline particles*, Materials Science and Engineering A, 294-296 (2000), pp. 727–735.
- [73] A. INOUE, N. NISHIYAMA, AND H. KIMURA, *Preparation and thermal stability of bulk amorphous Pd 40 Cu 30 Ni 10 P 20 alloy cylinder of 72 mm in diameter*, 1997.
- [74] A. INOUE, K. OHTERA, K. KITA, AND T. MASUMOTO, *New Amorphous Mg-Ce-Ni Alloys with High Strength and Good Ductility : Condensed Matter*, Japanese Journal of Applied Physics, 27 (1988), p. L2248.
- [75] A. INOUE, T. ZHANG, AND T. ITOI, *1997 - Inoue - New Fe-Co-Ni-Zr-B amorphous alloys with wide supercooled liquid regions and good soft magnetic properties.pdf*, Material Transactions, JIM, 38 (1997), pp. 359–362.
- [76] A. INOUE, T. ZHANG, AND T. MASUMOTO, *Zr-Al-Ni Amorphous Alloys with High Glass Transition Temperature and Significant Supercooled Liquid Region*, 1990.
- [77] Q. K. JIANG, X. D. WANG, X. P. NIE, G. Q. ZHANG, H. MA, H. J. FECHT, J. BEND-NARCIK, H. FRANZ, Y. G. LIU, Q. P. CAO, AND J. Z. JIANG, *Zr-(Cu,Ag)-Al bulk metallic glasses*, Acta Materialia, 56 (2008), pp. 1785–1796.
- [78] H. J. JIN, X. J. GU, P. WEN, L. B. WANG, AND K. LU, *Pressure effect on the structural relaxation and glass transition in metallic glasses*, Acta Materialia, 51 (2003), pp. 6219–6231.
- [79] G. R. JOHNSON AND W. H. COOK, *Fracture characteristics of three metals subjected to various strains, strain rates, temperatures and pressures*, Engineering Fracture Mechanics, 21 (1985), pp. 31–48.
- [80] G. R. JOHNSON AND T. J. HOLMQUIST, *An improved computational constitutive model for brittle materials*, AIP Conference Proceedings, 309 (1994), pp. 981–984.
- [81] T. KANOMATA, Y. SATO, Y. SUGAWARA, H. M. KIMURA, T. KANEKO, AND A. INOUE, *Specific heat of Zr-based metallic glasses*, Journal of Alloys and Compounds, 461 (2008), pp. 39–41.
- [82] P. L. M. KARLSON, © 1959 Nature Publishing Group, Nature, (1959), pp. 55–56.
- [83] H. KATO, H. S. CHEN, AND A. INOUE, *Relationship between thermal expansion coefficient and glass transition temperature in metallic glasses*, Scripta Materialia, 58 (2008), pp. 1106–1109.
- [84] Y. KAWAMURA, T. NAKAMURA, H. KATO, H. MANO, AND A. INOUE, *Newtonian and non-Newtonian viscosity of supercooled liquid in metallic glasses*, Materials Science and Engineering A, 304-306 (2001), pp. 674–678.
- [85] D. KLAUMÜNZER, R. MAA, F. H. D. TORRE, AND J. F. LÖFFLER, *Temperature-dependent shear band dynamics in a Zr-based bulk metallic glass*, Applied Physics Letters, 96 (2010), pp. 22–25.
- [86] D. KLAUMÜNZER, R. MAASS, AND J. F. LÖFFLER, *Stick-slip dynamics and recent insights into shear banding in metallic glasses*, Journal of Materials Research, 26 (2011), pp. 1453–1463.

- [87] W. KLEMENT, R. H. WILLENS, AND P. DUWEZ, *Non-crystalline structure in solidified Gold-Silicon alloys*, *Nature*, 187 (1960), pp. 869–870.
- [88] H. U. KÜNZI, *Mechanical Properties of Metallic Glasses*, *Glassy Metal II*, (1983).
- [89] A. J. L. S. LASDON, A. D. WARREN AND M. RATNER, *Design and testing of a generalized reduced gradient code for nonlinear programming*, *ACM Trans. Math. Software* 4, (1978), pp. 34–50.
- [90] C. LABAUNE, *Effect of the laser wavelength : A long story of laser-plasma interaction physics for Inertial Confinement Fusion Teller Medal Lecture*, *EPJ Web of Conferences*, 59 (2013), p. 01012.
- [91] H. J. LEAMY, T. T. WANG, AND H. S. CHEN, *Plastic flow and fracture of metallic glass*, *Metallurgical Transactions*, 3 (1972), pp. 699–708.
- [92] J. J. LEWANDOWSKI, *Effects of Annealing and Changes in Stress State on Fracture Toughness of Bulk Metallic Glass*, 2001.
- [93] J. J. LEWANDOWSKI AND A. L. GREER, *Temperature rise at shear bands in metallic glasses*, *Nature Materials*, 5 (2006), pp. 15–18.
- [94] J. J. LEWANDOWSKI AND P. LOWHAPHANDU, *Effects of hydrostatic pressure on the flow and fracture of a bulk amorphous metal*, *Philosophical Magazine A : Physics of Condensed Matter, Structure, Defects and Mechanical Properties*, 82 (2002), pp. 3427–3441.
- [95] J. J. LEWANDOWSKI, W. H. WANG, AND A. L. GREER, *Intrinsic plasticity or brittleness of metallic glasses*, *Philosophical Magazine Letters*, 85 (2005), pp. 77–87.
- [96] J. LIU, S. SOHN, Y. LI, J. J. CHA, Y. LIU, AND J. SCHROERS, *Metallic glass nanostructures of tunable shape and composition*, *Nature Communications*, 6 (2015), pp. 1–6.
- [97] P. LOWHAPHANDU, S. MONTGOMERY, AND J. LEWANDOWSKI, *Effects of superimposed hydrostatic pressure on flow and fracture of a Zr-Ti-Ni-Cu-Be bulk amorphous alloy*, *Scripta Materialia*, 41 (1999), pp. 19–24.
- [98] J. LU AND G. RAVICHANDRAN, *Pressure-dependent flow behavior of*, 91125 (2003), pp. 2039–2049.
- [99] L. LU, C. LI, W. WANG, M. ZHU, X. GONG, AND S. LUO, *Ductile fracture of bulk metallic glass Zr₅₀Cu₄₀Al₁₀ under high strain-rate loading*, *Materials Science and Engineering : A*, 651 (2016), pp. 848–853.
- [100] A. C. LUND AND C. A. SCHUH, *The Mohr-Coulomb criterion from unit shear processes in metallic glass*, *Intermetallics*, 12 (2004), pp. 1159–1165.
- [101] E. MA, *Tuning order in disorder*, *Nature Materials*, 14 (2015), pp. 547–552.
- [102] R. MAASS, D. KLAUMÜNZER, AND J. F. LÖFFLER, *Propagation dynamics of individual shear bands during inhomogeneous flow in a Zr-based bulk metallic glass*, *Acta Materialia*, 59 (2011), pp. 3205–3213.
- [103] R. MAASS AND J. F. LÖFFLER, *Shear-band dynamics in metallic glasses*, *Advanced Functional Materials*, 25 (2015), pp. 2353–2368.

- [104] C. MABIRE, *Transformation polymorphique et fusion de l'étain sous choc dans la gamme 0-100 GPa. Étude expérimentale et modélisation*, Université de Poitiers – ENSMA, Thèse de doctorat, (2002).
- [105] M. MARTIN, T. SEKINE, T. KOBAYASHI, L. KECSKES, AND N. THADHANI, *High-Pressure Equation of the State of a Zirconium-Based Bulk Metallic Glass*, *Metallurgical and Materials Transactions A*, 38 (2007), pp. 2689–2696.
- [106] E. MATSUBARA, K. HARADA, AND Y. WASEDA, *X-ray diffraction study of amorphous Al_{77.5}Mn_{22.5} and Al₅₆Si₃₀Mn₁₄ alloys*, *Journal of Materials Science*, 23 (1988), pp. 753–756.
- [107] S. MCNAMARA, J. CRASSOUS, AND A. AMON, *Eshelby inclusions in granular matter : Theory and simulations*, *Physical Review E*, 94 (2016).
- [108] F. Q. MENG, K. TSUCHIYA, AND Y. YOKOYAMA, *Crystalline to amorphous transformation in Zr-Cu-Al alloys induced by high pressure torsion*, *Intermetallics*, 37 (2013), pp. 52–58.
- [109] P. MERCIER, J. BENIER, A. AZZOLINA, J. M. LAGRANGE, AND D. PARTOUCHE, *Photonic doppler velocimetry in shock physics experiments*, *Journal de Physique IV (Proceedings)*, 134 (2006), pp. 805–812.
- [110] M. A. MEYERS, *Dynamic Behavior of Materials*, John Wiley & Sons, 1994.
- [111] D. B. MIRACLE, *A structural model for metallic glasses*, *Nature Materials*, 3 (2004), pp. 697–702.
- [112] D. B. MIRACLE, *The efficient cluster packing model - An atomic structural model for metallic glasses*, *Acta Materialia*, 54 (2006), pp. 4317–4336.
- [113] D. B. MIRACLE, K. LAWS, O. N. SENKOV, AND G. B. WILKS, *Partial coordination numbers in binary metallic glasses*, *Metallurgical and Materials Transactions A : Physical Metallurgy and Materials Science*, 43 (2012), pp. 2649–2661.
- [114] D. B. MIRACLE, W. S. SANDERS, AND O. N. SENKOV, *The influence of efficient atomic packing on the constitution of metallic glasses*, *Philosophical Magazine*, 83 (2003), pp. 2409–2428.
- [115] E. MOSHE, S. ELIEZER, E. DEKEL, A. LUDMIRSKY, Z. HENIS, M. WERDIGER, I. B. GOLDBERG, N. ELIAZ, D. ELIEZER, E. MOSHE, S. ELIEZER, E. DEKEL, A. LUDMIRSKY, Z. HENIS, AND M. WERDIGER, *An increase of the spall strength in aluminum, copper, and Metglas at strain rates larger than 10^7 s⁻¹*, *Journal of Applied Physics*, 83 (1998), pp. 4004–4011.
- [116] T. MUKAI, T. G. NIEH, Y. KAWAMURA, A. INOUE, AND K. HIGASHI, *Effect of strain rate on compressive behavior of a Pd₄₀Ni₄₀P₂₀ bulk metallic glass*, *Intermetallics*, 10 (2002), pp. 1071–1077.
- [117] Y. F. NIU, K. HAN, AND J. P. GUIN, *Locally enhanced dissolution rate as a probe for nanocontact-induced densification in oxide glasses*, *Langmuir*, 28 (2012), pp. 10733–10740.
- [118] S. A. NOVIKOV, I. I. DIVNOV, AND A. G. IVANOV, *A study of the failure in steel, aluminum, and copper on explosive loading*, *Fiz. Met. Metalloved*, 21 (1966), pp. 608–615.

- [119] R. C. O'HANDLEY, *Physics of ferromagnetic amorphous alloys*, Journal of Applied Physics, 62 (1987).
- [120] C. A. PAMPILLO, *Localized shear deformation in a glassy metal*, Scripta Metallurgica, 6 (1972), pp. 915–917.
- [121] A. K. PANDEY, B. K. PANDEY, AND RAHUL, *Theoretical prediction of Grüneisen parameter for bulk metallic glasses*, Journal of Alloys and Compounds, 509 (2011), pp. 4191–4197.
- [122] P. PANISSOD, D. A. GUERRA, A. AMAMOU, J. DURAND, W. L. JOHNSON, W. L. CARTER, AND S. J. POON, *Local symmetry around the glass-former sites in amorphous metallic alloys through electric quadrupole effects*, Physical Review Letters, 44 (1980), pp. 1465–1468.
- [123] A. PEKER AND W. L. JOHNSON, *A highly processable metallic glass : Zr_{41.2}Ti_{13.8}Cu_{12.5}Ni_{10.0}Be_{22.5}*, Applied Physics Letters, 63 (1993), pp. 2342–2344.
- [124] C. R. PHIPPS, J. R. LUKE, G. G. MCDUFF, AND T. LIPPERT, *Laser ablation powered mini-thruster*, Spie, 4760 (2002), pp. 833–842.
- [125] A. PINEAU, A. A. BENZERGA, AND T. PARDOEN, *Failure of metals I : Brittle and ductile fracture*, Acta Materialia, 107 (2016), pp. 424–483.
- [126] D. E. POLK, *Structural model for amorphous metallic alloys*, Scripta Metallurgica, 4 (1970), pp. 117–122.
- [127] S. D. ROTHMAN AND J. MAW, *Characteristics analysis of Isentropic Compression Experiments (ICE)*, Journal De Physique Iv, 134 (2006), pp. 745–750.
- [128] K. RUSSEW AND F. SOMMER, *Length and density changes of amorphous Pd₄₀Cu₃₀Ni₁₀P₂₀alloys due to structural relaxation*, Journal of Non-Crystalline Solids, 319 (2003), pp. 289–296.
- [129] P. SCHALL, D. A. WEITZ, AND F. SPAEPEN, *Structural rearrangements that govern flow in colloidal glasses*, Science, 318 (2007), pp. 1895–1899.
- [130] C. SCHUH, T. HUFNAGEL, AND U. RAMAMURTY, *Mechanical behavior of amorphous alloys*, Acta Materialia, 55 (2007), pp. 4067–4109.
- [131] C. A. SCHUH, A. C. LUND, AND T. G. NIEH, *New regime of homogeneous flow in the deformation map of metallic glasses : Elevated temperature nanoindentation experiments and mechanistic modeling*, Acta Materialia, 52 (2004), pp. 5879–5891.
- [132] A. V. SERGUEEVA, N. A. MARA, D. J. BRANAGAN, AND A. K. MUKHERJEE, *Strain rate effect on metallic glass ductility*, Scripta Materialia, 50 (2004), pp. 1303–1307.
- [133] Y. SHEN, S. B. JESTER, T. QI, AND E. J. REED, *Nanosecond homogeneous nucleation and crystal growth in shock-compressed SiO₂*, Nature Materials, 15 (2016), pp. 60–65.
- [134] F. SHIMIZU, S. OGATA, AND J. LI, *Yield point of metallic glass*, Acta Materialia, 54 (2006), pp. 4293–4298.
- [135] I. SMIRNOV, S. ATROSHENKO, Y. SUDENKOV, N. MOROZOV, W. ZHENG, N. NAUMOVA, AND J. SHEN, *Dynamic properties of bulk metallic glass on the base of Zr*, in Shock Compression of Condensed Matter-2011, vol. 1124, 2012, pp. 1121–1124.

- [136] F. SPAEPEN, *A microscopic mechanism for steady state inhomogeneous flow in metallic glasses*, Acta Metallurgica, 25 (1977), pp. 407–415.
- [137] F. D. STACEY, *a Thermodynamically Based Equation of State Iv Tm*, Journal of Geophysical Research, 84 (1979).
- [138] A. K. STEMSHORN AND Y. K. VOHRA, *Structural stability and compressibility of group IV transition metals-based bulk metallic glasses under high pressure*, Journal of Applied Physics, 106 (2009), pp. 1–4.
- [139] A. K. STEMSHORN AND Y. K. VOHRA, *to 122 GPa*, High Pressure Research, 31 (2011), pp. 287–291.
- [140] G. V. STEPANOV, *Spall fracture of metals by elastic-plastic loading waves.*, Problemy Prochnosti, 8 (1976), pp. 66–70.
- [141] O. T. STRAND, D. R. GOOSMAN, C. MARTINEZ, T. L. WHITWORTH, AND W. W. KUHLLOW, *Compact system for high-speed velocimetry using heterodyne techniques*, Review of Scientific Instruments, 77 (2006).
- [142] D. SUH AND R. H. DAUSKARDT, *Effects of open-volume regions on relaxation time scales and fracture behavior of a Zr-Ti-Ni-Cu-Be bulk metallic glass*, Journal of Non-Crystalline Solids, 317 (2003), pp. 181–186.
- [143] B. SUN AND W. WANG, *Fracture of bulk metallic glasses*, Progress in Materials Science, 74 (2015), pp. 211–307.
- [144] B.-R. SUN, Z.-J. ZHAN, B. LIANG, R.-J. ZHANG, AND W.-K. WANG, *Light Emission and Dynamic Failure Mechanism of Hypervelocity Impact on Zr-Ti-Ni-Cu-Be Bulk Metallic Glass*, Chinese Physics Letters, 28 (2011), p. 096102.
- [145] P. TANDAIYA, R. NARASIMHAN, AND U. RAMAMURTY, *On the mechanism and the length scales involved in the ductile fracture of a bulk metallic glass*, Acta Materialia, 61 (2013).
- [146] A. TANGUY, F. LEONFORTE, AND J. L. BARRAT, *Plastic response of a 2D Lennard-Jones amorphous solid : Detailed analysis of the local rearrangements at very slow strain rate*, European Physical Journal E, 20 (2006), pp. 355–364.
- [147] H. TOGO, Y. ZHANG, Y. KAWAMURA, AND T. MASHIMO, *Properties of Zr-based bulk metallic glass under shock compression*, Materials Science and Engineering : A, 449–451 (2007), pp. 264–268.
- [148] M. M. TREXLER AND N. N. THADHANI, *Mechanical properties of bulk metallic glasses*, Progress in Materials Science, 55 (2010), pp. 759–839.
- [149] S. J. TURNEAURE, S. K. DWIVEDI, AND Y. M. GUPTA, *Shock-wave induced tension and spall in a zirconium-based bulk amorphous alloy*, Journal of Applied Physics, 101 (2007), p. 043514.
- [150] S. J. TURNEAURE, J. M. WINEY, AND Y. M. GUPTA, *Compressive shock wave response of a Zr-based bulk amorphous alloy*, Applied Physics Letters, 84 (2004), p. 1692.
- [151] S. J. TURNEAURE, J. M. WINEY, AND Y. M. GUPTA, *Response of a Zr-based bulk amorphous alloy to shock wave compression*, Journal of Applied Physics, 100 (2006), p. 063522.

- [152] P. VINET, J. R. SMITH, J. FERRANTE, AND J. H. ROSE, *Temperature effects on the universal equation of state of solids*, Physical Review B, 35 (1987), pp. 1945–1953.
- [153] C. A. VOLKERT, A. DONOHUE, AND F. SPAEPEN, *Effect of sample size on deformation in amorphous metals*, Journal of Applied Physics, 103 (2008).
- [154] C. P. WANG, S. B. TU, Y. YU, J. J. HAN, AND X. J. LIU, *Experimental investigation of phase equilibria in the Zr-Cu-Al system*, Intermetallics, 31 (2012), pp. 1–8.
- [155] G. WANG, K. C. CHAN, X. H. XU, AND W. H. WANG, *Instability of crack propagation in brittle bulk metallic glass*, Acta Materialia, 56 (2008), pp. 5845–5860.
- [156] W. H. WANG, C. DONG, AND C. H. SHEK, *Bulk metallic glasses*, Materials Science and Engineering R : Reports, 44 (2004), pp. 45–90.
- [157] W. H. WANG, P. WEN, L. M. WANG, Y. ZHANG, M. X. PAN, D. Q. ZHAO, AND R. J. WANG, *Equation of state of bulk metallic glasses studied by an ultrasonic method*, Applied Physics Letters, 79 (2001), pp. 3947–3949.
- [158] C. E. WILLIAMS, *Neutron and synchrotron radiation for condensed matter studies, HERCULES Volume 1 - Theory, Instruments and Methods - Chapter X: Small angle scattering from solids and solutions*, (1993), pp. 235–245.
- [159] F. XI, Y. YU, C. DAI, Y. ZHANG, AND L. CAI, *Shock compression response of a Zr-based bulk metallic glass up to 110 GPa*, Journal of Applied Physics, 108 (2010), p. 083537.
- [160] P. F. XING, Y. X. ZHUANG, W. H. WANG, L. GERWARD, AND J. Z. JIANG, *Glass transition, crystallization kinetics and pressure effect on crystallization of ZrNbCuNiBe bulk metallic glass*, Journal of Applied Physics, 91 (2002), pp. 4956–4960.
- [161] M. YAMADA, R. KAMISATO, T. YAMASAKI, H. ADACHI, K. TSUCHIYA, AND Y. YOKOYAMA, *Nanocrystallization of Zr-Cu-Ni-Al-Au glassy alloys during severe plastic deformation*, IOP Conference Series : Materials Science and Engineering, 63 (2014).
- [162] C. YANG, W. P. CHEN, R. P. LIU, Z. J. ZHAN, M. Z. MA, W. K. WANG, X. D. WANG, Q. P. CAO, J. Z. JIANG, C. LATHE, AND H. FRANZ, *Pressure effect on crystallization of Zr₄₁Ti₁₄Cu_{12.5}Ni₁₀Be_{22.5} bulk metallic glass prepared by shock-wave quenching*, Journal of Physics : Condensed Matter, 20 (2008), p. 015201.
- [163] C. YANG, R. LIU, Z. ZHAN, L. SUN, AND W. WANG, *High speed impact on Zr₄₁Ti₁₄Cu_{12.5}Ni₁₀Be_{22.5} bulk metallic glass*, Materials Science and Engineering : A, 426 (2006), pp. 298–304.
- [164] C. YANG, R. P. LIU, B. Q. ZHANG, Q. WANG, Z. J. ZHAN, L. L. SUN, J. ZHANG, Z. Z. GONG, AND W. K. WANG, *Void formation and cracking of Zr₄₁Ti₁₄Cu_{12.5}Ni₁₀Be_{22.5} bulk metallic glass under planar shock compression*, Journal of Materials Science, 40 (2005), pp. 3917–3920.
- [165] L. YANG AND G. Q. GUO, *Preferred clusters in metallic glasses*, Chinese Physics B, 19 (2010).
- [166] Y. YOKOYAMA, K. FUKAURA, AND A. INOUE, *Formation and mechanical properties of Zr-Cu-Al bulk glassy alloys*, Materials Science and Engineering A, 375-377 (2004), pp. 427–431.

- [167] Y. YOKOYAMA, T. ISHIKAWA, J. T. OKADA, Y. WATANABE, S. NANAŌ, AND A. INOUE, *Volume and viscosity of Zr-Cu-Al glass-forming liquid alloys*, Journal of Non-Crystalline Solids, 355 (2009), pp. 317–322.
- [168] Y. YOKOYAMA, E. MUND, A. INOUE, AND L. SCHULTZ, *Production of Zr₅₅Cu₃₀Ni₅Al₁₀ Glassy Alloy Rod of 30 mm in Diameter by a Cap-Cast Technique*, Materials Transactions, 48 (2007), pp. 3190–3192.
- [169] Y. YOKOYAMA, H. TOKUNAGA, A. R. YAVARI, T. KAWAMATA, T. YAMASAKI, K. FUJITA, K. SUGIYAMA, P. K. LIAW, AND A. INOUE, *Tough Hypoeutectic Zr-Based Bulk Metallic Glasses*, Metallurgical and Materials Transactions A, 42 (2011), pp. 1468–1475.
- [170] Y. YOKOYAMA, T. YAMASAKI, P. LIAW, R. BUCHANAN, AND A. INOUE, *Glass-structure changes in tilt-cast Zr–Cu–Al glassy alloys*, Materials Science and Engineering : A, 449–451 (2007), pp. 621–626.
- [171] Y. YOKOYAMA, T. YAMASAKI, P. K. LIAW, AND A. INOUE, *Study of the structural relaxation-induced embrittlement of hypoeutectic Zr–Cu–Al ternary bulk glassy alloys*, Acta Materialia, 56 (2008), pp. 6097–6108.
- [172] F. YUAN, V. PRAKASH, AND J. J. LEWANDOWSKI, *Spall strength of a zirconium-based bulk metallic glass under shock-induced compression-and-shear loading*, Mechanics of Materials, 41 (2009), pp. 886–897.
- [173] J. ZARZYCKI, *Les verres et l'état vitreux*, Masson, 1982.
- [174] H. W. ZHANG AND T. J. ZHOU, *Pressure effect on the crystallization behavior of Zr_{46.7}Ti_{8.3}Cu_{7.5}Ni₁₀Be_{27.5} bulk metallic glass*, Physics Letters, Section A : General, Atomic and Solid State Physics, 350 (2006), pp. 297–301.
- [175] Z. F. ZHANG, J. ECKERT, AND L. SCHULTZ, *Difference in compressive and tensile fracture mechanisms of Zr₅₉Cu₂₀Al₁₀Ni₈Ti₃ bulk metallic glass*, Acta Materialia, 51 (2003), pp. 1167–1179.
- [176] Z. F. ZHANG, G. HE, J. ECKERT, AND L. SCHULTZ, *Fracture Mechanisms in Bulk Metallic Glassy Materials*, Physical Review Letters, 91 (2003), pp. 2–5.
- [177] W. ZHENG, Y. HUANG, B. PANG, AND J. SHEN, *Hypervelocity impact on Zr₅₁Ti₅Ni₁₀Cu₂₅Al₉ bulk metallic glass*, Materials Science and Engineering : A, 529 (2011), pp. 352–360.
- [178] S. ZHUANG, J. LU, AND G. RAVICHANDRAN, *Shock wave response of a zirconium-based bulk metallic glass and its composite*, Applied Physics Letters, 80 (2002), p. 4522.

Titre : Étude du comportement dynamique sous choc des verres métalliques massifs

Mots clés : Verres métalliques, choc-laser, impact hyper-vélocité, équation d'état, endommagement, rupture dynamique.

Résumé : Pour prémunir les structures spatiales d'impacts hyper-véloces, le secteur aérospatial est continuellement à la recherche de matériaux toujours plus performants. Dans cette optique, les verres métalliques massifs se présentent comme de potentiels éléments de blindages spatiaux. De récentes études ont mis en exergue une meilleure résistance à la pénétration de ces matériaux comparativement aux blindages actuels.

Les impacts par lanceurs permettent d'étudier et caractériser le comportement sous chocs des matériaux. Cependant, les vitesses des projectiles se retrouvent actuellement limitées à 10 km/s, correspondant aux niveaux d'impacts hyper-véloces les plus modérés. Pour s'affranchir de cette limitation, il est possible de se tourner vers les lasers de puissance.

Ces dispositifs permettent de générer des ondes de choc dont les niveaux de pression et de vitesse de déformation sont supérieurs aux lanceurs.

Les travaux menés ont permis d'étudier et de caractériser le comportement et l'endommagement dynamique de plusieurs verres métalliques ternaires ZrCuAl sous choc laser. Plusieurs campagnes expérimentales ont été réalisées sur les installations du Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses. De par l'exploitation de ces expériences, une partie de l'équation d'état des nuances étudiées a pu être obtenue à la fois par choc laser et par compression isentropique. Les processus d'endommagement, l'influence des vitesses de déformation et de composition sur la rupture ont aussi été étudiés. En particuliers, pour des régimes de vitesse de déformation supérieurs de trois ordres de grandeur à ceux disponibles dans la littérature, il a été mis en évidence que les verres métalliques étudiés présentaient une limite à la rupture cinq à dix fois supérieure.

Title : Study of the dynamic behaviour of bulk metallic glasses under shock loading.

Keywords : Bulk metallic glasses, laser-shock, hypervelocity impact, equation of state, damage, dynamic fracture.

Abstract : Space industry is always searching for efficient materials to protect space structures from hypervelocity impacts. In this context, bulk metallic glasses appear as suitable elements of space debris shielding assemblies. Recent studies revealed a higher tolerance of metallic glasses to impact compared to materials currently used in shield assemblies.

Gas-gun and powder launchers are usually used to study and characterize the dynamic and shock behaviour of materials. However, projectile velocities are currently limited to 10 km/s, corresponding to the lowest high-velocity impact levels. To overcome this limitation, one may consider shock waves induced by high-power laser facilities, whose pressure and strain rate levels can exceed those induced by canons.

Hence, this work enabled to study and to characterize the dynamic behaviour and damage processes of several compositions of ternary ZrCuAl bulk metallic glasses subjected to shock waves induced by laser irradiation. Several experimental campaigns have been conducted on various laser facilities of the Laboratoire pour l'Utilisation des Lasers Intenses. As a result, a part of the equation of state of studied compositions was established using both shock waves and quasi-isentropic compressions. Damage processes and the effect of composition and strain rate on fracture were also studied. More precisely, for strain rate levels higher of three or more orders of magnitude than those available in the literature, it was shown that studied bulk metallic glasses displayed a five to ten times higher dynamic tensile limit.