

## ***Résumé des activités de recherche de Matteo CICCOTTI***

### **Thèse de Doctorat à l'Université de Bologne (Novembre 1996 – Mars 2000)**

**Titre :** "An exhaustive analysis of the Double Torsion method for sub-critical fracture propagation in lava rocks and its implications for the understanding of earthquake physics"

Le but de la thèse est d'étudier la propagation de fissures de façon contrôlée dans des matériaux hétérogènes. En fait, dans les matériaux fragiles, en présence d'une fissure préexistante, on peut observer une propagation lente même pour des valeurs du facteur d'intensité des contraintes ( $K$ ) qui sont inférieures à la valeur critique (correspondante à une propagation instable d'une fracture à haute vitesse). Ceci est dû à un mécanisme coopératif entre la concentration des contraintes mécaniques et l'affaiblissement des liaisons cohésives à la pointe de fissure en raison de l'interaction chimique avec l'humidité ambiante (corrosion sous contraintes).

La méthode de Torsion Double est une des plus adaptées pour la mesure des paramètres de fracture lente (sous-critique) des matériaux hétérogènes et fragiles. Nous avons construit une machine très rigide et développé les techniques pour mesurer ces paramètres de fracture dans des matériaux hétérogènes tels que des roches volcaniques provenant des volcans italiens : Etna, Stromboli et Vulcano. La méthode classique a été révisée dans le but de réduire la grande variabilité qui subsiste entre les résultats des laboratoires différents [2][3]. En particulier, une simulation aux éléments finis de l'éprouvette a permis de déterminer des coefficients correctifs qui permettent de réduire considérablement les effets de bord et de contrôler l'influence de la géométrie.

Les paramètres mesurés [1][4] sont d'importance fondamentale dans l'application de modèles de fonctionnement des volcans. En particulier, concernant la possibilité que des montées de magma par avancement de fractures (« dykes ») puissent briser les couches de roches volcaniques externes en donnant lieu à des éruptions avec coulées laviques.

[1] Ciccotti M., Negri N., Sassi L., Gonzato G. and Mulargia F., 2000. Elastic and fracture parameters of Etna, Stromboli and Vulcano lava rocks. *Journal of Volcanology and Geothermal Research*. 98, pp. 209-217.

[2] Ciccotti M., 2000. A realistic finite element study of the Double Torsion loading configuration. *Journal of the American Ceramic Society*. 83 [11], pp. 2737-44.

[3] Ciccotti M., Gonzato G., and Mulargia F., 2000. The double torsion loading configuration for fracture propagation: an improved methodology for the load-relaxation at constant displacement. *Int. J. of Rock Mech. and Mining Sciences*. 37/7, pp. 1103-1113.

[4] Ciccotti M., Negri N., Gonzato G., Mulargia F., 2001. Practical application of an improved methodology for the Double Torsion load relaxation method. *Int. J. of Rocks Mech. and Mining Sciences*, 38, pp. 569-576.

### **Post-doc à l'Université de Bologne (Septembre 2000 - Août 2003)**

**Titre :** "Etude des tremblements de terre en laboratoire"

Le postdoc a comporté plusieurs lignes d'activités :

#### **1) Etude du processus de fracturation des roches sous l'action d'un taux de déformation très faible.**

A présent, il reste une différence cruciale entre les expériences de rupture en laboratoire et le processus sismique dans la croûte terrestre. Celle-ci concerne le taux de déformation en cause (de l'ordre de  $10^{-15} \text{ s}^{-1}$  dans les zones sismiquement actives), qui au laboratoire est encore trop grand de plusieurs ordres de grandeur. Pour pouvoir étudier l'influence de ce facteur, j'ai développé une nouvelle technique expérimentale qui permet de réduire le taux de déformation de deux ordres de grandeur par rapport aux techniques habituelles. La technique est basée sur la machine de Torsion Double utilisée dans ma thèse. La machine est équipée d'un moteur servo-contrôlé qui permet d'atteindre des taux de déformation de  $10^{-8} \text{ s}^{-1}$ . La nouvelle technique consiste en une première étape où l'échantillon est chargé avec le moteur près des conditions de propagation critique. La seconde étape consiste à bloquer le moteur et à induire dans la cave thermostatée une diminution très lente de la température. Ceci a l'effet de produire une dilatation différentielle de la machine,

construite avec deux différents alliages avec des coefficients de dilatation calibrés. De cette façon, on arrive à obtenir un taux de déformation de l'ordre de  $10^{-11} \text{ s}^{-1}$ .

Pour suivre le processus de rupture lente, j'ai mis au point un système de mesure des émissions ultrasoniques produites par les événements de microfracture. Les émissions sont mesurées avec un système de 4 capteurs piézoélectriques et échantillonnées à une fréquence de 3 MHz. Un réseau neuronal a été entraîné pour reconnaître les vrais événements de microfracture, qui peuvent ensuite être localisés avec une précision de l'ordre de 1 mm (la taille des échantillons est de l'ordre de 20 cm). Des résultats préliminaires ont confirmé l'observation d'une loi d'échelle pour l'énergie des événements de microfracture. Des séries de mesures sont en projet sur des échantillons de Calcare Massiccio (une des roches typiques de la zone focale pour la sismicité des Apennins en Italie) par le biais de stagiaires de Tesi di Laurea que je compte co-encadrer en Italie.

## **2) Etude de la différence entre les modules élastiques dynamiques et statiques des roches**

Les modules élastiques des roches sont mesurés principalement par la méthode « statique » (basée sur la mesure des déformations induites par l'application d'une charge connue) ou « dynamique » (basée sur la mesure de la vitesse de propagation des ondes élastiques dans le matériau). En raison des phénomènes inélastiques et de l'hétérogénéité de ces matériaux, il n'est pas évident que ces deux valeurs soient les mêmes. Ceci est très important dans le cas des mesures des propriétés élastiques de la croûte terrestre, pour lesquelles souvent il n'existe que des mesures sismiques (dans le domaine de fréquence de 1 à 10 Hz).

Les roches étudiées sont des roches volcaniques provenant de Mount Etna (Italie) pour leur importance dans la modélisation du volcan et le Calcare Massiccio (une des roches typiques de la zone focale pour la sismicité des Apennins en Italie).

Les modules élastiques sont mesurés en fonction de la fréquence sur neuf ordres de grandeur, en utilisant trois différentes techniques standard : (1) le test de compression uniaxiale ('statique', voire 0.001 Hz) ; (2) la mesure des oscillations forcées avec une machine Dual Cantilever (de 0.01 à 20 Hz) ; (3) la mesure de la vitesse des ondes ultrasoniques longitudinales et transversales (à 75 kHz et à 1 MHz).

Le Calcare Massiccio a montré un comportement assez linéaire et une rupture fragile soudaine. La différence entre les modules statiques et dynamiques n'est pas significative [1]. Au contraire, la roche volcanique provenant de Mount Etna présente un comportement très dissipatif, et est capable d'accepter une déformation importante avant de se briser. La différence entre les modules statiques et dynamiques est significative. En tout cas, pour les deux roches on n'observe pas de dépendances significatives de la fréquence en dessous du domaine sismique [2].

[1] Ciccotti M., Almagro R. and Mulargia F., 2004. Static and dynamic moduli of the seismogenic layer in Italy. *Rock Mech. and Rock Eng.* 37[3], pp. 229-238.

[2] Ciccotti M., Mulargia F., 2004. Differences between static and dynamic measurements of the elastic moduli in a typical seismogenic rock. *Geophys. J. Int.* 157[1], pp. 474-477.

## **3) Collaboration en tant qu'éditeur associé à l'écriture d'un livre résumant l'état d'avancement des connaissances dans la physique des tremblements de terre [1].**

Le livre naît d'un Advanced Research Workshop et il comprend des contributions de premier niveau dans tous les aspects liés à la physique des tremblements de terre et à son impact sur la vie humaine. Nous n'avons pas fait une simple collection d'articles, mais un effort considérable afin de lui donner la structure d'un vrai livre qui puisse servir de référence actuelle dans le domaine. En particulier, je me suis chargé d'écrire plusieurs sections couvrant des sujets de caractère général non traités au cours du Workshop, ainsi qu'un chapitre sur l'application des concepts de la physique des systèmes complexes à la compréhension des tremblements de terre.

[1] *Earthquake Science and Seismic Risk Reduction. NATO SCIENCE SERIES: IV: Earth and Environmental Sciences Volume 32.* Edité par F. Mulargia et R. Geller. Kluwer. 2003.

#### **4) Développement d'un nouveau modèle pour expliquer la physique des tremblements de terre**

L'activité de rédaction du livre ci-dessus mentionnée nous a amené à une profonde connaissance de la phénoménologie liée aux tremblements de terre et des problèmes ouverts. En particulier, on n'a pas encore une équation qui décrit l'énergie d'un tremblement de terre de façon satisfaisante, ce qui est normalement le premier pas dans le développement d'un modèle physique. Pour les tremblements de terre ceci est particulièrement difficile à cause de leur inaccessibilité directe et de leur phénoménologie complexe. Il existe des modèles satisfaisants pour ce qui concerne la radiation élastique en champs éloigné, mais ils n'arrivent pas à décrire les récurrences des événements. La prévision des événements individuels reste donc un but inaccessible. En outre, même le phénomène de base, soit le stick-slip de deux blocs de roches crustales, apparaît incompatible avec les mesures de flux de chaleur sur des systèmes de failles actifs, qui sont bien inférieures aux valeurs prévues.

On a développé un modèle qui propose une fonction approximative pour l'énergie d'un tremblement de terre, ne s'appuyant que sur l'analyse dimensionnelle et sur la constatation des différentes échelles de temps concernées [1]. Le modèle suppose l'autosimilarité du phénomène sur une gamme d'échelles comparable avec les observations et en conséquence il considère comme cellule de base un couple de blocs de 10 m d'arête. Le modèle divise le processus sismique en trois phases. Dans la première phase un bloc commence à glisser lentement avec un coefficient de frottement élevé typique, ce qui produit une augmentation rapide de la température sur la surface de faille. Dans la deuxième phase, l'onde thermique produite se propage sur l'épaisseur de la zone de cisaillement dans un temps caractéristique de 100 s. En raison de la faiblesse de la perméabilité devant la conductibilité thermique, une augmentation de la pression de pore est induite, jusqu'à rejoindre la pression lithostatique. Ceci déclenche la troisième phase, dans laquelle la faille glisse à une vitesse très élevée avec un coefficient de frottement presque nul, en convertissant la presque totalité de l'énergie en radiation élastique. Comme le slip nécessaire pour démarrer la deuxième phase est très petit par rapport au slip de la troisième phase, le modèle explique le paradoxe du flux de chaleur [1]. La taille globale du tremblement de terre est donnée par le nombre de cellules qui rentrent dans la phase 2 en même temps. Le modèle reconduit à la distribution de magnitudes de Gutenberg-Richter par des calculs statistiques. La petite valeur de la contrainte de déclenchement du modèle peut aussi expliquer l'évidence que des tremblements de terre soient stimulés par les petites variations de contraintes suite à d'autres événements sismiques [2].

[1] Mulargia F., Castellaro S. and Ciccotti M.. Earthquakes as three stage processes. *Geophys. J. Int.* 158[1], pp. 98-108.

[2] Mulargia F., Castellaro S. and Ciccotti M.. Ignition threshold and self-similarity allow earthquakes to be triggered by tiny stresses. *Geophys. Res. Lett.*. Submitted.

#### **Projets de recherche parallèles à la thèse de doctorat et au postdoc à Bologne:**

##### **1) La dynamique de stick-slip dans la propagation d'un front de fissure sur une interface adhésive**

Le décollement d'un ruban adhésif constitue un prototype très simple de propagation bidimensionnelle d'une fissure entre deux milieux dissemblables, la colle étant un système viscoélastique fortement dissipatif. En fonction d'un paramètre de contrôle (la vitesse de traction) la dynamique de propagation est stable dans une première branche de la courbe caractéristique (force-vitesse), instable dans une deuxième branche avec propagation saccadée (stick-slip), et en fin à nouveau stable, mais très rapide, dans une troisième branche.

Je me suis intéressé à la dynamique de stick-slip qui devient de plus en plus irrégulière avec l'augmentation du paramètre de contrôle et qui montre des comportements différents, notamment des transitions entre des régimes périodiques, aperiodiques et désordonnés.

Dans le cadre de ma Tesi di Laurea (1996, titre : « Etude d'une modèle de la dynamique de la ligne de fissure dans un ruban adhésif ») j'ai développé des techniques de mesure des intervalles temporels basées sur l'analyse des émissions acoustiques et lumineuses associées aux événements

de slip. J'ai mis en évidence une nouvelle instabilité de stick-slip dans le déroulement sous l'action d'un poids constant, avec la propriété de maintenir la vitesse de chute constante pour des valeurs très différentes de la masse accrochée [1][2]. Ensuite j'ai analysé et développé des modèles dynamiques pour expliquer la dynamique complexe observée [3].

En parallèle à ma thèse de doctorat et de mon postdoc à Bologne, j'ai développé au laboratoire PMMH de l'ESPCI des nouvelles techniques pour mesurer les variables dynamiques dans le régime de stick-slip à vitesse de traction imposée et les comparer avec des simulations numériques [4]. Une nouvelle méthode d'analyse automatisée des émissions acoustiques m'a permis de mettre en évidence l'émergence de structures hiérarchiques sur plusieurs échelles temporelles dans une région spécifique du régime de stick-slip. Les différents modèles dynamiques que l'on peut proposer permettent difficilement de rendre compte de ces observations [5][6].

En 2006 j'ai repris cette activité par le biais de deux collaborations respectivement avec l'Indian Institute of Science (Bangalore, India) et avec le Laboratoire de Physique de l'ENS-Lyon. Dans la première nous avons appliqué des techniques avancées d'analyse des émissions acoustiques produites lors du stick-slip pour extraire des informations sur l'organisation temporelle complexe de la dynamique [6]. Dans la deuxième nous avons appliqué des techniques d'imagerie ultrarapide et de corrélation digitale d'images pour obtenir une reconstruction complète de la dynamique du front de pelage dans le régime de stick-slip [7]. Cette approche novatrice permettra pour la première fois de pouvoir combiner les informations spatiales et acoustiques pour tester de façon plus efficace les modèles sur l'origine de la complexité de la dynamique de pelage.

[1] Barquins M., Boilot A., Ciccotti M., Varotto A., 1995. Sur la cinétique de décollement d'un ruban adhésif sous l'action d'un poids mort. C. R. Acad. Sci. Paris., t. 321, Série II b, p. 393-399.

[2] Barquins M., Ciccotti M., 1997. On the kinetics of peeling of an adhesive tape under a constant imposed load. Int. J. Adhesion and Adhesives. 17, 65-68.

[3] Ciccotti M., Giorgini B., Barquins M., 1998. Stick-slip in the peeling of an adhesive tape : evolution of theoretical model. Int. J. Adhesion and Adhesives. 18, pp. 35-40.

[4] Ciccotti M. and Giorgini B. The emergence of complexity in a common scotch roller. Dans: New interactions of mathematics with natural science and the humanities. Edité par L. Boi. Springer. pp.283-309. 2003.

[5] Ciccotti M., Giorgini B., Vallet D. and Barquins M., 2004. Complex dynamics in the peeling of an adhesive tape. Int. J. Adhes. Adhes.. 24/2, pp. 143-151..

[6] Kumar J., Ciccotti M. and Ananthakrishna G., 2008. Hidden Order in Crackling Noise during Peeling of an Adhesive Tape. Physical Review E. 77, Art N. 045202.

[7] Cortet P.-P., Ciccotti M. and Vanel L., 2007. Imaging the stick-slip peeling of an adhesive tape under a constant load.. J. Stat. Mech.. Art No. P03005.

## **2) Invariance d'échelle et biais dans l'analyse fractale des images naturelles**

Depuis la formalisation de la géométrie fractale par Mandelbrot dans les années 70, des évidences de fractales ont parues par centaines dans tous les domaines de la science, invoquant des lois d'invariance d'échelle pour tout expliquer. En opposition aux études théoriques basées sur la présence de limites asymptotiques, et aux études numériques qui peuvent simuler des fractales sur une gamme d'échelles très importante, les analyses des données empiriques (notamment des images naturelles), se sont toujours limitées à une gamme d'échelles restreinte, constituée la plupart du temps par une seule décade, voire deux. Dans ces conditions, l'analyse fractale est gravement affectée par plusieurs causes de biais qui sont souvent négligées [1]. Pour s'affranchir de certaines d'entre elles, on a développé le logiciel d'analyse VSBC2 [1] disponible en ligne sur le serveur <ftp://ibogeo.df.unibo.it/pub/vsbc>.

Des études plus avancées m'ont ensuite amené à montrer que pour des types d'images tout à fait généraux et pour plusieurs méthodes d'analyse, l'omniprésence de cutoffs physiques produit l'apparence de fausses fractales, si l'on se limite à vérifier la loi d'échelle sur un ou deux ordres de grandeur [2]. Ceci dit, la plupart des attributions de fractalité est remise en cause, avec les exceptions notables de quelques travaux qui ont en commun l'utilisation combinée de plusieurs techniques pour obtenir une résolution et une statistique suffisantes sur une gamme d'échelles suffisantes [3].

- [1] Gonzato G., Mulargia F., Ciccotti M., 2000. Measuring the fractal dimension of ideal and actual objects: implications for application in geology and geophysics. *Geophys. J. Int.* 142, pp. 108-116.
- [2] Ciccotti M. and Mulargia F., 2002. Pernicious effect of physical cutoffs in fractal analysis. *Physical Review E.* 65, pp. 37201-04.
- [3] Mulargia F. and Ciccotti M.. Ingredients for sound (multi)fractal attribution. Soumis à *Phys. A.*

## **Post-doc à l'ENS-Lyon (Juillet 2003 – Juillet 2004)**

**Titre :** "Dynamics and statics of glasses and spin glasses"

Pour mon postdoc à l'ENS j'ai fait le choix de m'occuper d'un nouveau sujet tel que l'étude des propriétés de vieillissement des matériaux vitreux pour élargir ma perspective sur les systèmes hors équilibre et apprendre de nouvelles techniques de mesure.

Mon projet de recherche portait sur une étude du bruit thermique dans une suspension colloïdale (Laponite) pendant sa transition d'un état plutôt fluide à un état plutôt solide, que l'on peut appeler un verre colloïdal en raison de sa structure amorphe.

En particulier, je me suis occupé des mesures de bruit diélectrique aux bords d'une cellule remplie de Laponite et du bruit de la fonction de corrélation dans la diffusion dynamique de la lumière dans la même substance, afin de mieux comprendre l'origine des phénomènes d'intermittence liés au processus de vieillissement.

L'expérience a pour but de mettre en relation les intermittences dans la fonction de corrélation de la lumière diffusée avec les intermittences dans des mesures du bruit diélectrique pour comprendre si elles sont liées au même processus et si l'on peut identifier une dynamique hétérogène au sein du milieu.

De premiers résultats concernant les mesures diélectriques montrent que les intermittences sont plus intenses lorsqu'on augmente la concentration de Laponite dans l'eau, en analogie à ce que l'on obtient en augmentant la vitesse de trempe thermique dans un verre de polymère [1]. D'autres mesures sur la diffusion dynamique de lumière sont encore en cours en collaboration avec Luca Cipelletti du LCVN.

En outre, en mettant en œuvre de mesures du bruit diélectrique en DC, j'ai mis en évidence la présence de marches dans le signal et des alternances de zones de calme et d'activité intermittente présentes sur toute la gamme d'échelles temporelles mesurées [1,2].

[1] Buisson L., Ciccotti M., Bellon L. and Ciliberto S.. Electrical noise properties in aging materials. In: *Fluctuations and Noise in Materials*, edited by D. Popovic, M.B. Weissman and Z.A. Racz. Proceedings of SPIE Vol. 5469 (SPIE, Bellingham, WA, 2004). Invited paper. pp. 150-163

[2] Bellon L., Buisson L., Ciccotti M., Ciliberto S. and Douarche F.. Thermal noise properties of two ageing materials. In: Proceedings of the XIX Sitges (June 2004) Conference on "Jamming, Yielding, and Irreversible Deformation in Condensed Matter", M.C. Miguel and M. Rubí eds. (Springer Verlag, Berlin, 2006). pp. 23-51. cond-mat/0501324.

## **ATER au LCVN – Université de Montpellier 2 (Septembre 2004 – Août 2005)**

**Poste de CR1 au LCVN – Université de Montpellier 2 (depuis Octobre 2005)**

**Titre :** "Etude par AFM de la propagation lente des fissures dans les matériaux vitreux"

Mes activités présentes au LCVN visent à une synthèse entre ma longue expérience dans la mécanique des fractures et mes plus récentes connaissances sur les matériaux amorphes.

En 2004 j'ai rejoint l'équipe Nanomécanique formé par Christian Marlière au LCVN qui s'occupait de l'étude par AFM de la propagation lente de fissures par corrosion sous contrainte dans les verres d'oxyde. Grâce à la réalisation d'un montage original combinant un dispositif d'application de contraintes assez astucieux à un microscope à force atomique dans une atmosphère contrôlée, Christian Marlière avait effectué des observations expérimentales très novatrices mettant en évidence un phénomène de nanoductilité : la propagation de la fissure à des vitesses très faibles prenait l'apparence d'un processus de nucléation et coalescence de cavités de taille nanométrique. Des premières observations permettaient aussi de visualiser la manifestation en surface d'un

important phénomène de diffusion locale d'ions alcalins sous l'action des forts gradients de contraintes présents aux alentours de la tête de fissure.

Suite au départ de Marlière en 2005, j'ai repris jusqu'à présent la direction de cette équipe, renforcée par l'embauche de Matthieu George. J'ai donc cherché des financements et renouvelé tout le système AFM grâce à l'obtention en tant que porteur de crédits ANR (Projet CORCOSIL, 300 k€), CNRS et CPER. En outre j'ai obtenu deux bourses de thèse et le financement de deux bourses postdoctorales pour arriver à former progressivement une bonne équipe de travail, tout en restant en bonne collaboration avec Marlière. Le succès de cette équipe a motivé la fusion en 2009 avec une autre équipe qui s'occupe des verres d'un point de vue de structure et de spectroscopie. Je suis à présent à la tête de cette plus grande équipe de Physique des Verres avec sept permanents et des nombreux étudiants.

Pour pouvoir transformer les observations novatrices fournies par l'AFM en une vraie avancée dans la compréhension de la physico-chimie de la corrosion sous contraintes, j'ai d'abord entrepris un processus d'analyse quantitative des techniques de mesure AFM d'un point de vue de la métrologie et surtout de l'imagerie de phase qui permet des investigations sur les propriétés nanomécaniques des surfaces (telles que l'adhésion, le frottement ou le mouillage). Ceci m'a conduit à développer une nouvelle technique originale fondée sur l'analyse des variations d'énergie dissipée lors de la formation et de la rupture des ponts capillaires entre la pointe AFM et la surface pendant l'imagerie en mode 'tapping'. Grâce à cette technique, j'ai pu mettre en évidence la présence d'une condensation capillaire dans l'ouverture confinée constituée par la pointe de fissure dans un verre de silice [1,2]. La procédure de mesure a ensuite été développée pour permettre une étude quantitative du comportement de la condensation capillaire, qui a permis de mettre en évidence la condition d'équilibre thermodynamique du condensat, ainsi que de mesurer la distance de condensation capillaire et sa variation avec l'humidité [3]. Des développements récents de ces études ont montré que les propriétés de mouillage du liquide condensé sont différentes de celles de l'eau et présentent une évolution très lente (sur des semaines ou mois) quand la fissure est maintenue sous un niveau de contrainte suffisant [4]. Ceci permet de clarifier le rôle des produits de corrosion sur la composition du condensat et d'investiguer sur l'importance de cette composition sur le taux de réaction de la corrosion sous contrainte, qui contrôle la vitesse de propagation lente des fissures.

Par le biais de la combinaison de mesures d'interférométrie optique et de simulations aux éléments finis, je me suis dédié à la modélisation des profils d'ouverture de la fissure dans notre géométrie de test de type DCDC (Double Cleavage Drilled Compression) [5] pour pouvoir à la fois améliorer l'analyse quantitative de la condensation capillaire et modéliser l'effet mécanique causé par la pression de Laplace [6] dans le but d'utiliser les mesures AFM pour mesurer directement cette pression et ses évolutions pendant la propagation de la fissure.

L'observation de la condensation capillaire était reconduite aussi sur les verres alcalins où l'application de l'imagerie de phase a permis d'obtenir une interprétation physico-chimique des motifs de plots qui décorent la pointe de fissure en relation au phénomène de diffusion ionique sous gradient de contrainte, mais aussi en relation à l'évolution des propriétés de mouillage dans les films d'eau condensés à la surface du verre [7].

Une approche complémentaire au suivi 'in-situ' de la propagation des fissures est donnée par l'analyse 'post-mortem' des surfaces de fracture par AFM. L'analyse des fonctions de corrélation spatiale de la rugosité permet d'identifier des longueurs caractéristiques liées au processus de propagation de fracture. En raison de la très faible rugosité des surfaces de fracture du verre ces mesures sont susceptibles de présenter différents artefacts. J'ai donc décidé de commencer cette étude par une modélisation avancée du processus de mesure AFM sur un substrat auto-affine, ce qui nous a permis de mettre en évidence de subtils artefacts résultants de la non-linéarité intrinsèque au processus de mesure et de la richesse d'échelles spatiales présentes dans ces substrats [8]. Forts de cette maîtrise accrue dans l'interprétation des mesures, nous avons ensuite conduit une étude du rôle de l'humidité ambiante sur les longueurs caractéristiques des surfaces de fracture d'un verre de silice [9] en collaboration avec Elisabeth Bouchaud du CEA-Saclay.

L'interaction avec Stéphane Roux (ENS-Cachan), dans les deux dernières années, nous a conduit à développer une adaptation de la technique de corrélation digitale d'images (DIC) à l'estimation des paramètres de fissure pendant le suivi in-situ par AFM de la propagation de fissure. En combinant

les notions mécaniques sur la déformation (dans le plan et hors le plan !) de la surface de l'échantillon en proximité de la pointe de fissure on a pu développer une technique de DIC intégrée qui permet à la fois de corriger les dérives typiques de l'AFM, de mesurer le facteur d'intensité des contraintes local et de vérifier les écarts à la linéarité du champ de déformation [10]. Nous traitons à présent l'extension de la technique à la mesure de la pression de Laplace du condensat capillaire en pointe de fissure par le biais de son effet sur la déformation du verre [11].

La collaboration scientifique avec E. Charlaix dans les deux dernières années est issue d'un effort de modélisation quantitative du comportement des forces capillaires à différentes échelles. C'est ainsi qu'en combinant ses connaissances sur le contact sphère-plan à l'échelle millimétriques par les biais de la machine de force et nos explorations au niveau de la pointe AFM on a entrepris une démarche pour estimer et mesurer le rôle de différents paramètres tels que la rugosité, les distorsions de forme et l'humidité quand la taille de la sonde descend vers l'échelle nanométrique. Pour permettre de combiner un niveau suffisant de contrôle de forme et une taille réduite à l'ordre micrométrique, on est en train de conduire des études sur des sondes colloïdales bien maîtrisées et collés sur une pointe AFM. Pour donner une voie de départ solide dans une littérature parsemée d'artefacts et d'interprétations audacieuses, on a écrit une synthèse critique de la problématique pour le Handbook of Nanophysics à paraître en 2010 [12].

La fusion récente de l'équipe Nanomécanique avec l'équipe 'Physique de Verres et Spectroscopie' du LCVN est fondée sur l'effort de combiner les outils d'analyse structurale et vibrationnelle des spectroscopies optiques à la compréhension des phénomènes d'endommagement, plasticité et diffusion ionique des verres. Ceci s'appuie sur l'effort d'augmenter la résolution des sondes optiques pour fournir une imagerie des contraintes et des altérations en volume du verre à l'échelle micrométrique et pour pouvoir tirer le meilleur parti de nos capacités dans le contrôle de la propagation de fissures et d'autres formes d'endommagement localisé telles que la nanoindentation. La visibilité de l'équipe nous a conduit à animer un gros projet européen (EFONGA) et de ma part à mettre en place le Comité Technique TC09 : Glass Nanomechanics dans le cadre de l'International Commission on Glass (<http://w3.lcvn.univ-montp2.fr/~ciccotti/TC09/TC09.html>). C'est dans le but d'animer cette communauté que cette année j'ai organisé le workshop d'experts «Glass surfaces and stress corrosion mechanisms at the nanoscale» (<http://w3.lcvn.univ-montp2.fr/~ciccotti/TC09/EFONGAWorkShop2009.html>) et que j'ai écrit un article de revue [13] faisant la synthèse des progrès apportés par les développements récents, ainsi que les points à résoudre dans cette discipline par le biais de collaborations interdisciplinaires. Cet effort m'a valu cette année l'invitation à plusieurs conférences internationales pour exprimer mes points de vue ainsi qu'une synthèse sur les conséquences de nos résultats.

- [1] Wondraczek L., Ciccotti M., Dittmar A., Oelgardt C., Célarié F. and Marlière C., 2006. Real-time observation of non-equilibrium liquid condensate confined at tensile crack tips in oxide glasses. *J. Am. Cer. Soc.*. 89[2], pp. 746-749. cond-mat/0509209
- [2] Ciccotti M., George M., Ranieri V., Wondraczek L. and Marlière C., 2008. Dynamic condensation of water at crack tips in fused silica glass. *J. Non-Crist. Solids.* 354, pp. 564-568.
- [3] Grimaldi A., George M., Pallares G., Marlière C. and Ciccotti M., 2008. The crack tip: a nanolab for studying confined liquids. *Physical Review Letters*. 100, Art N. 165505.
- [4] Grimaldi A., Pallares G., George M., and Ciccotti M., 2009. Aging properties of the capillary condensation at the crack tip of a silica glass. *J. Non-Cryst. Solids*. En cours de soumission.
- [5] Pallares G., Ponson L., Grimaldi A., George M., Prevot G. and Ciccotti M., 2009. Crack opening profile in DCDC specimen. *Int. J. Fracture*. 156, pp. 11–20.
- [6] Pallares G., Ponson L., Grimaldi A., George M. and Ciccotti M., 2009. Mechanical effect of capillary forces in the crack tip of a DCDC specimen. *Int. J. Fracture*. 156, pp. 11–20.
- [7] Célarié F., Ciccotti M. and Marlière C., 2007. Stress-enhanced ion diffusion at the vicinity of a crack tip as evidenced by atomic force microscopy in silicate glasses. *J. Non-Crist. Solids.* 353, pp. 51-68.
- [8] Lechenault F., Pallares G., George M., Rountree M., Bouchaud E. and Ciccotti M. Effects of finite probe size on self-affine roughness measurements. *Soumis à Phys. Rev. Lett.* en aout 2009.
- [9] Pallares G., Lechenault F., George M., Rountree M., Bouchaud E. and Ciccotti M. Effects of humidity on the roughness properties of fracture surfaces in silica glass. *J. Am. Ceram. Soc.* En cours de soumission.
- [10] Han K, Ciccotti M. and S. Roux, 2009. Measuring Toughness with an Atomic Force Microscope. *Soumis à Phys. Rev. Lett.* en aout 2009.

- [11] Ciccotti M. and S. Roux, 2009. AFM-Measurement of a Capillary Fracture Process Zone in Glass. En préparation.
- [12] Charlaix E. and Ciccotti M.. Capillary condensation in confined media. Invited chapter for the Handbook of Nanophysics in March 2009. Ed. Klaus Sattler. In press.
- [13] Ciccotti M. Stress-corrosion mechanisms in silicate glasses. Invited review article submitted to Journal of Physics D: Applied Physics. Vol 42. In press.

## Bilan des travaux de recherche des cinq dernières années

### Introduction

Mes activités de recherche s'articulent autour de la mécanique de la rupture dans différentes classes de matériaux (roches, verres, polymères, adhésifs) et à différentes échelles (tectonique, nanomécanique, lien propriétés macro-micro, rôle de la mésoéchelle). Le lien entre ces activités est l'investigation et la modélisation des échelles d'espace et de temps des mécanismes d'endommagement et de dissipation d'énergie associés à la propagation d'une fissure dans la matière, qu'il s'agisse de plasticité, de viscoélasticité, de fracture fragile de milieux hétérogènes ou d'organisation spatiale et temporelle des événements d'endommagement.

Mes activités dans les derniers 5 ans au laboratoire SIMM de l'ESPCI se focalisent sur l'étude des propriétés de rupture et d'adhésion des matériaux à la fois très déformables et très dissipatifs, surtout lorsqu'ils sont confinés entre des matériaux plus rigides, comme c'est le cas dans la plupart des applications. Plusieurs projets alliant science et application se côtoient, portant sur l'étude des adhésifs PSA avec 3M, des verres laminés avec Saint Gobain, des composites à bases de fibres de carbone et polymères vitreux avec Airbus. Par le biais de ces différentes applications, j'essaie de dégager des problématiques communes au comportement à rupture des matériaux très déformables et dissipatifs dans des régimes confinés pour lesquels la mécanique de la rupture traditionnelle ne s'applique pas.

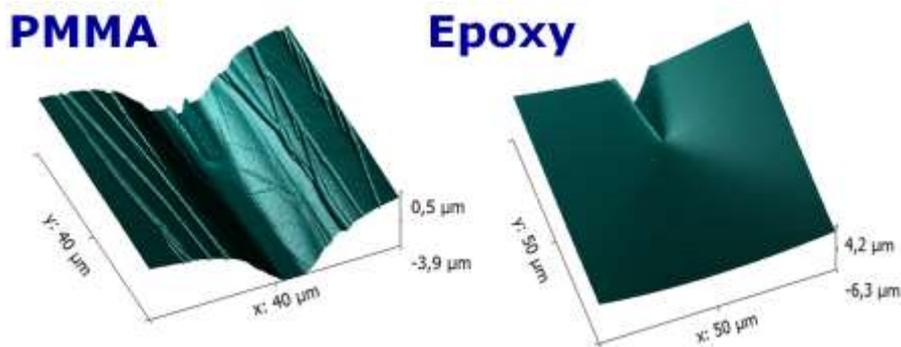
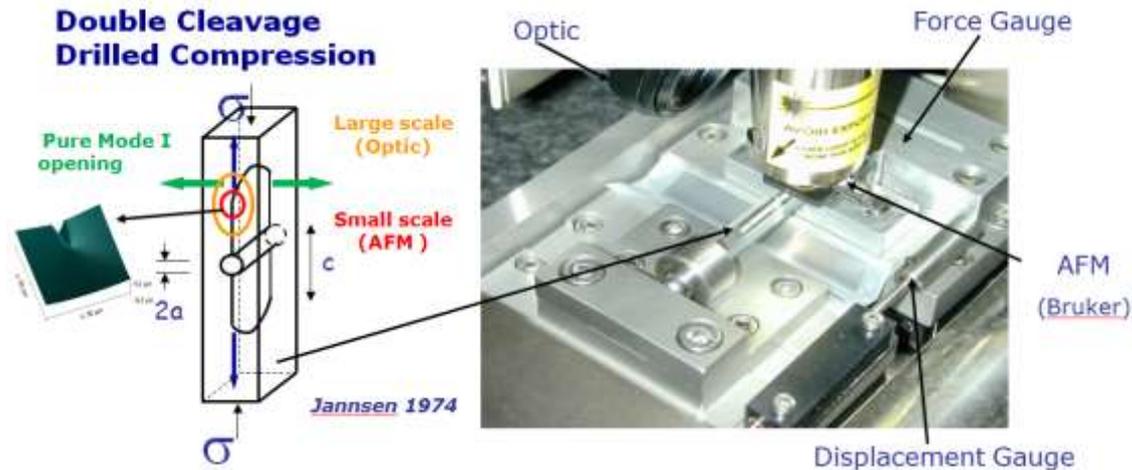
Cette démarche a abouti à la publication d'une importante revue en collaboration avec Costantino Creton [1] et à ma contribution au projet ERC CHEMECH porté par Costantino Creton et financé en 2016.

Ces thèmes ont d'importantes applications industrielles visant à combler l'absence d'outils pour transposer la performance de ces matériaux mous et dissipatifs entre différents types de tests et sollicitations. Mais ils ont aussi d'importantes conséquences sur l'enseignement de la mécanique des matériaux mous, dans lequel je me suis investi en organisant les Ecoles d'Été Internationales PHASME 2016 et MEPHISTO 2018 à Cargèse et en préparant un nouveau module d'enseignement Soft Solids commencé en janvier 2017 dans le cadre du master ICFP de PSL.

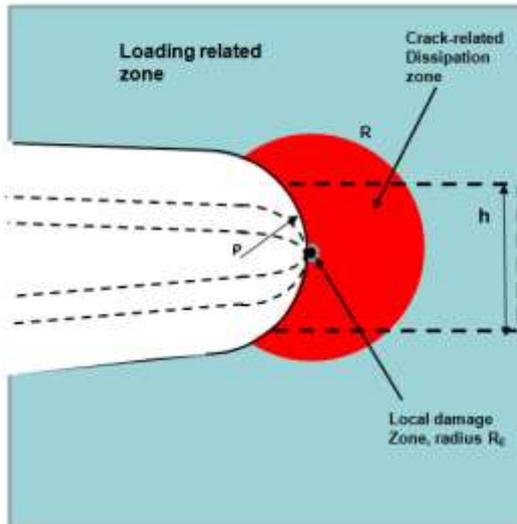
### Etude in-situ par AFM de la propagation de fissures dans les polymères vitreux

Les polymères vitreux sont des matériaux rigides, mais avec un seuil de plasticité faible ; la zone inélastique à la pointe de fissure est donc essentiellement dominée par la plasticité, sa taille typique est de l'ordre de 10 microns. Ils sont donc bien adaptés à l'application des techniques d'investigation in-situ par AFM que j'ai développées précédemment sur les verres d'oxyde en obtenant des importants résultats sur les mécanismes de corrosion sous contrainte. Pour rendre possible la transposition de la technique aux polymères vitreux, un important développement a été nécessaire afin d'initier et de propager des fractures très lentes et bien maîtrisées dans les petits échantillons DCDC qui peuvent fissurer en compression in-situ sous AFM (sans flamber ou plastifier l'échantillon).

Les composantes principales de la technique sont illustrées dans la figure suivante, ainsi que sur les deux images suivantes typiques qu'on peut obtenir lors de la propagation lente de fissures dans deux polymères vitreux différents : un thermoplastique tel que le PMMA (en bas à gauche), et un thermodur comme la résine époxy (en bas à droite).



Nous avons ensuite développé des techniques de Corrélation Digitale d'Images adaptées à l'AFM (en collaboration avec Stéphane Roux de l'ENS-Cachan) pour mesurer l'évolution des champs de déformation plastique en proximité de la pointe de fissure pendant une propagation en mode stationnaire lent dans des conditions de mode ouvrant très bien définies. Bien que les polymères vitreux présentent un comportement fragile à l'échelle macroscopique, caractérisé par des extensions maximales d'environ 5% avant la rupture catastrophique, nous avons pu mettre en évidence le développement de grandes déformations en extension à la pointe de fissure (respectivement de 80% et 30% pour les deux polymères en figure), que l'on peut mettre en relation avec les extensions maximales permises par les réseaux d'enchevêtrements ou de réticulation présents dans les deux polymères. Nous avons ainsi formulé une modélisation des courbes  $\Gamma(V)$  de ténacité de la fissure pour une propagation stationnaire à vitesse  $V$ , fondée sur la combinaison des mesures du comportement mécanique non-linéaire des matériaux et des mesures des champs de déformation plastiques par notre technique in-situ AFM. L'argument principal de la modélisation est résumé dans la figure suivante: suite à la présence de grandes déformations et d'une forte dissipation dans la zone de process (en rouge), l'énergie de fracture peut être estimée en multipliant la taille  $R_{ZP}$  (mesurée) de la zone de process par la densité volumique de travail fourni pour déformer le matériau jusqu'à la déformation maximale  $\epsilon_C$  (mesurée) correspondant au taux de déformation identifié par le temps de nécessaire pour traverser la zone de process (mesuré). Il s'agit donc d'une estimation mais sans paramètres ajustables.



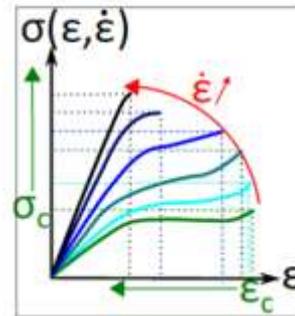
**Fracture energy in the bulk:**

$$\Gamma \sim R_{ZP} \mathcal{W}(\varepsilon_c) = R_{ZP} \int_0^{\varepsilon_c} \sigma(\varepsilon, \dot{\varepsilon}) d\varepsilon$$

$$\dot{\varepsilon} \sim \frac{\varepsilon_{max}}{t_{ZP}} \sim \frac{\varepsilon_{max} v}{R_{ZP}} \quad \text{steady-state propagation}$$

**Adherence of confined layer:**

$$\Gamma \sim h \mathcal{W}(\varepsilon_c)$$



L'observation novatrice d'un régime de propagation stationnaire de fissures lentes dans les résines époxy (qui en général présentent uniquement un régime de propagation saccadée en stick-slip) a permis en outre de formuler un scénario unificateur qui permet de relier les courbes de propagation stationnaire de type  $\Gamma(V)$  (typiques des thermoplastiques) aux courbes qui caractérisent la propagation en stick-slip par le biais de la l'amplitude de l'instabilité en fonction de la vitesse de chargement de l'échantillon.

Ce projet, financé par l'ANR PROMORPH en collaboration avec Jean-Louis Halary a eu d'importantes applications dans le cadre de à l'étude des polymères confinés dans la matrice d'un composite pour aéronautique. L'application de la technique novatrice d'AFM in-situ a permis ici de comprendre la modification des mécanismes d'endommagement par le confinement de la matrice à des échelles comparables à la taille des zones non-linéaires (voir l'effet du confinement  $h$  dans la figure ci haut) en fournissant ainsi des pistes importantes vers la compréhension du renforcement mécanique des composites dans les pièces d'avion à fonction structurale.

L'ensemble de ces travaux sont rapportés sur la thèse de Y. Nziakou (2015). Un premier article sur l'application au PMMA est paru en 2018 (M. George et al, JMPS, 2018). Deux autres sont en cours d'écriture: l'un sur les résines époxy et l'autre sur la modélisation de l'énergie de fracture des polymères vitreux.

**Etude multi-échelle des mécanismes de dissipation dans le pelage des adhésifs**

L'investigation de la fracture dans les polymères mous conduit à étudier des échelles différentes (du micron au millimètre) et des vitesses de propagation plus élevées, donc les techniques optiques sont mieux adaptées. La philosophie d'approche reste similaire : effectuer une analyse multi-échelle du processus de fracture, permettant de séparer et de maîtriser les différents ingrédients qui contribuent à l'énergie de fracture. On vise notamment une identification claire des échelles spatiales et temporelles des mécanismes de dissipation (viscoélasticité linéaire et non-linéaire, grandes déformations, cavitation, fibrillation, effets thermiques) et un lien avec l'architecture moléculaire du polymère.

J'ai repris pour cela la thématique du pelage des adhésifs (un thème que j'ai poursuivi depuis les débuts de ma carrière, mais avec d'objectifs différents), en lançant une nouvelle ANR STICKSLIP en collaboration avec Costantino Creton, ainsi qu'avec l'ENS-Lyon et le Laboratoire FAST. Pour pouvoir étudier le processus de pelage des adhésifs sur une vaste

gamme de vitesses de traction (couvrant 6 décades) et d'angles de pelage, nous avons développé trois différents équipement expérimentaux, représentés dans la figure suivante: (1) pour les vitesses les plus lentes, le ruban est appliqué sur une barre inclinée et décollé à l'aide de l'application d'un poids; (2) pour les vitesses intermédiaires, le ruban est tiré par une machine Instron à partir d'un substrat incliné et en translation; (3) pour atteindre les vitesses plus élevées le ruban est décollé à partir d'un rail de 6 m pouvant atteindre des vitesses de translation de 4 m/s et rembobiné sur un rouleau grâce à un moteur asservi.

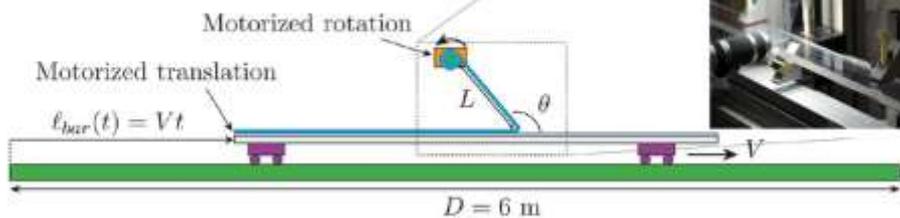
## 1) Low velocity (1-100 $\mu\text{m/s}$ ) Imposed force and angle



## 2) Intermediate velocity (10-1500 $\mu\text{m/s}$ ) Imposed velocity and angle



## 3) High velocity (1 mm/s - 4 m/s) Imposed velocity and angle



Pour réaliser une analyse multi-échelle convenable, chacune des expériences est équipée de plusieurs caméras lentes ou rapides pouvant imager soit la cinématique locale de l'instabilité de stick-slip (Dalbe et al, 2016; Dalbe et al 2015; Cortet et al 2013), soit les détails des mécanismes de fibrillation dans la zone de décollement (Villey et al, 2015). La figure suivante illustre les différentes échelles de description du phénomène, ainsi que deux images typiques à l'échelle de la centaine de microns, qui se révèle être l'échelle pertinente pour identifier et modéliser les mécanismes de déformation et dissipation d'énergie qui sont responsables des excellentes propriétés d'adhérence des PSA (Pressure Sensitive Adhesives).

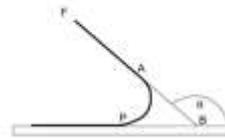
**10 cm – 1 m**

Straight string model (Kendall)



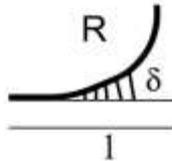
**100 μm – 1 mm**

Curved knee model (Bending)



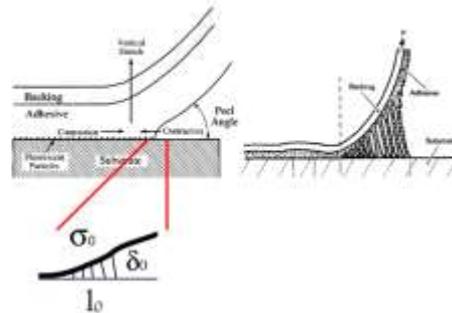
**20 μm – 100 μm**

Viscoelastic cohesive zone



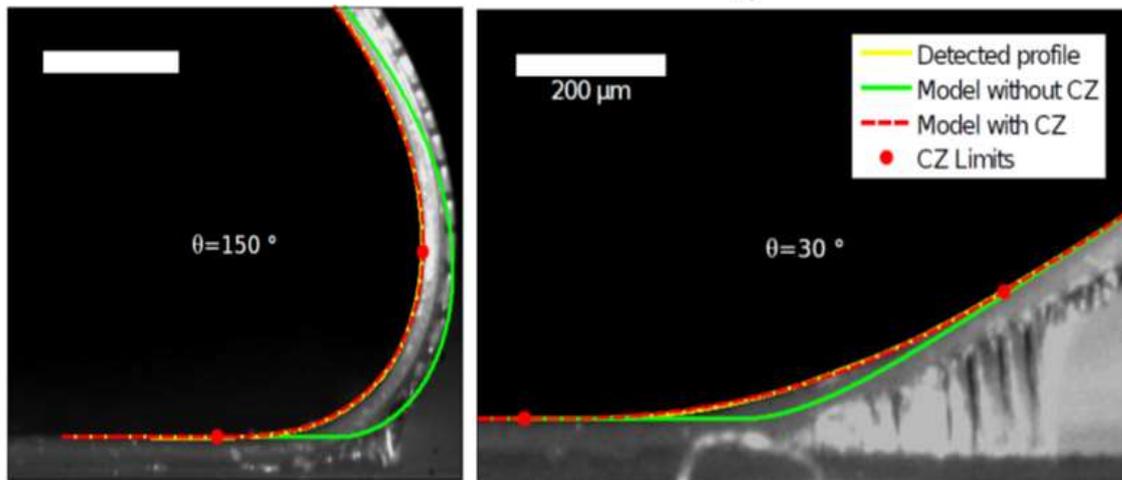
**100 nm – 20 μm**

Soft viscoelastic adhesive layer  
Fracture mechanisms (shear + fibrils)

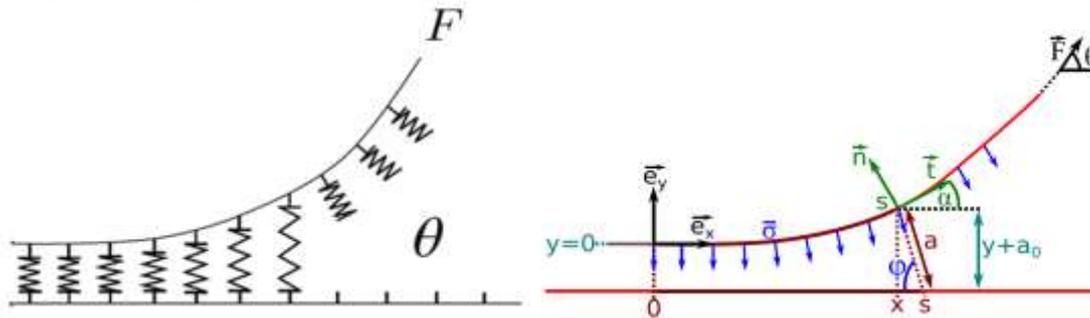


**1 Å – 100 nm**

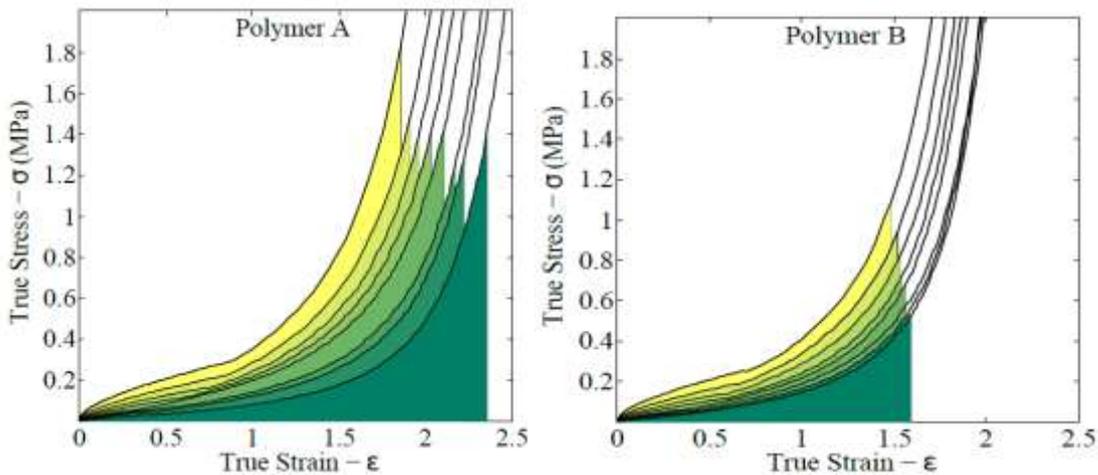
Intermolecular cohesive zone (VdW)

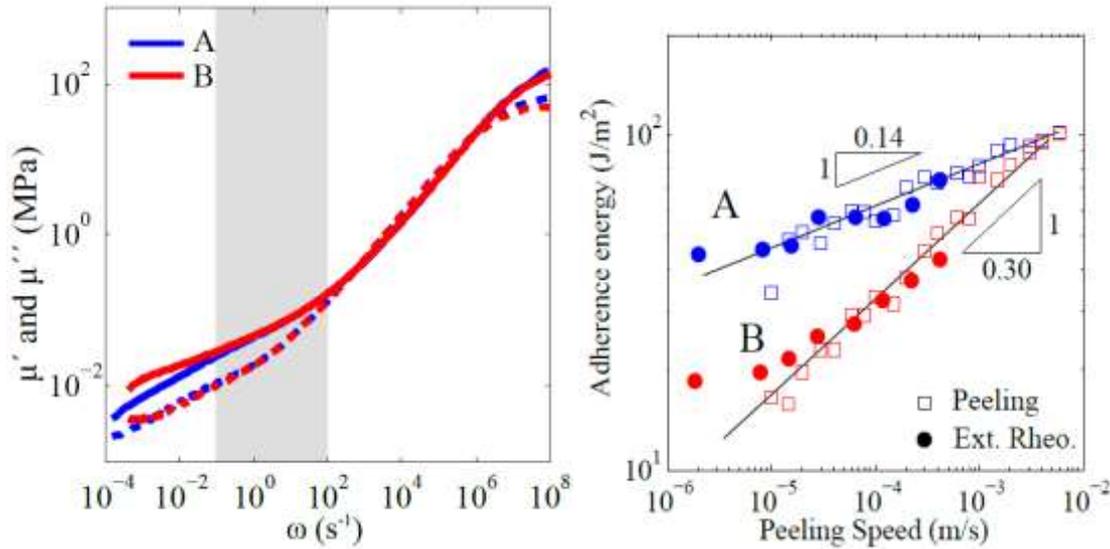


Notamment, la couche d'adhésif très molle et dissipative se trouvant étirée entre le renfort et le substrat plus rigides vient caviter à cause de son incompressibilité et donne naissance à des fibrilles très étirables. L'énergie utilisée pour étirer les fibrilles jusqu'à leur décollement adhésif du substrat est perdue et ce mécanisme de chargement hystérétique, très sensible à la vitesse d'étirement, est identifié comme ingrédient principal de la modélisation des courbes d'adhérence  $\Gamma(V)$ . La logique suivie est similaire à celle illustrée dans la figure pour les polymères vitreux, mais en situation systématiquement confinée, où l'énergie d'adhérence se trouve être proportionnelle à l'épaisseur de la couche adhésive (Villey et al 2015).

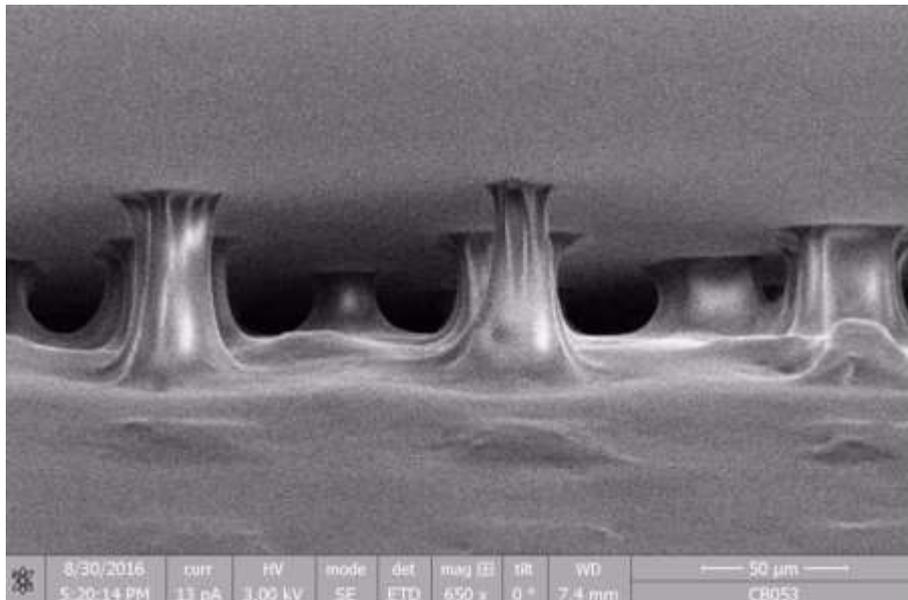


A partir de ce niveau de compréhension des mécanismes en jeu dans la région de décollement, nous avons ensuite développé une modélisation du couplage entre l'étirement des fibrilles et la flexion du renfort de l'adhésif (Villey et al 2017). C'est ainsi qu'à partir d'une mesure du profil de flexion du renfort de l'adhésif sur les images montrées précédemment (en jaune), on peut ajuster des profils théoriques (en rouge) permettant d'extraire à la fois la contrainte moyenne  $\bar{\sigma}$  appliquée par les fibrilles, ainsi que leur extension maximale  $a_f - a_0$ , sachant que leur produit correspond à l'énergie d'adhérence  $\Gamma(V)$ . En combinant des mesures systématiques de ces grandeurs à des mesures de rhéologie non-linéaire de nos adhésifs (étirement à taux de déformation constant), nous pouvons accéder à une vérification plus quantitative de nos modélisations. La figure suivante illustre le résultat le plus remarquable: en considérant deux adhésifs formulés sur mesure par 3M, possédant la même rhéologie linéaire, mais une rhéologie non-linéaire différente (grâce à une modification du faible taux de réticulation de l'adhésif), la figure en bas à droite montre que les courbes d'adhérence mesurées (symboles vides) dépendent fortement des propriétés non-linéaires des adhésifs. En outre, notre modélisation, fondée sur l'intégration des courbes d'étirement jusqu'aux extensions maximales mesurées pendant le pelage, fournit une très bonne description de la différence entre les courbes d'adhérence de ces deux adhésifs (Chopin et al, Macromol, 2018).





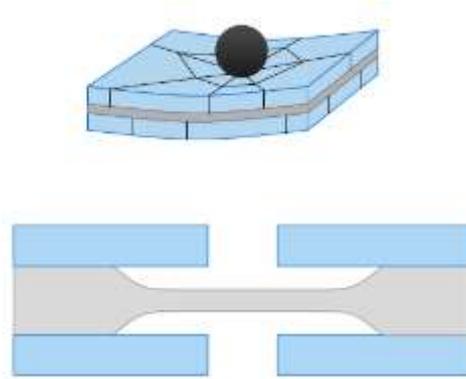
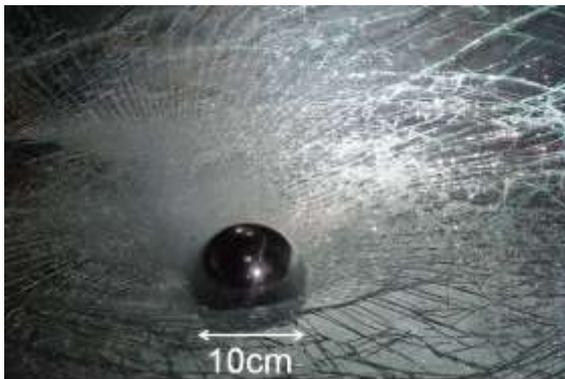
On comprend ainsi que les courbes d'adhérence  $\Gamma(V)$  sont déterminées par la rhéologie non-linéaire selon deux mécanismes indépendants. En premier lieu l'augmentation de la contrainte d'étirement avec la vitesse de pelage et en deuxième lieu la diminution de l'extension maximale des fibrilles avec la vitesse de pelage. Ces mesures très précieuses, ouvrent la voie à une modélisation à plus petite échelle visant à comprendre la physique du décollement des pieds de fibrilles sur le substrat, dernier ingrédient manquant pour prédire les performances d'un adhésif à partir de sa rhéologie non-linéaire, ainsi que la nature du substrat sur le quel il est collé. La figure suivante illustre une image préliminaire d'imagerie MEB résolue dans le temps pendant le décollement des fibrilles. On peut remarquer les instabilités en forme de franges liées aux très grandes déformations des fibrilles (Chopin et al, 2019, en cours d'écriture).



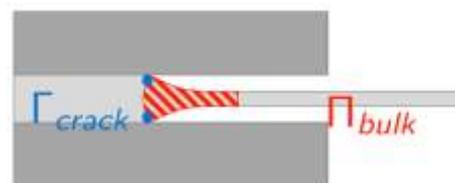
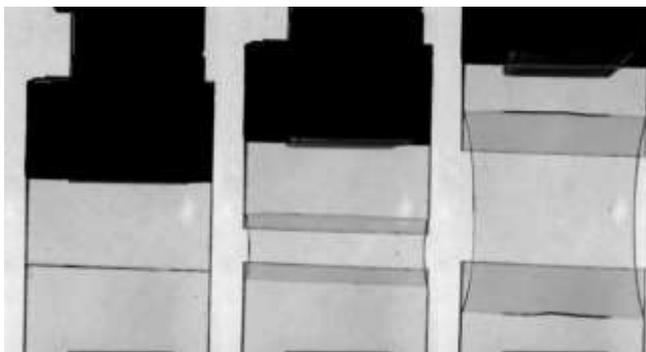
Grace au développements du pelage instrumenté il a été récemment possible de faire une étude comparée entre les performance et pelage et tack d'une famille d'adhésifs bien maîtrisée. Il a ainsi été possible de relier la performance d'un adhésif dans les deux sollicitations dans l'hypothèse d'avoir un confinement latéral comparable et de solliciter les fibrilles avec un taux d'étirement comparable (Pandey et al. Soumis à Soft Matter en 2019).

### Rupture dynamique d'adhésion dans les verres laminés

Un autre volet de l'étude des propriétés de rupture et d'adhésion des matériaux très étirables et dissipatifs concerne l'étude des capacités dissipatives d'un film de polymère en sandwich entre deux plaques de verres dans un pare-brise soumis à un fort impact. Comme illustré dans la figure ci bas lors de l'impact, les plaques de verres sont fléchies et se fragmentent rapidement selon un double motif de fissures radiales puis circulaires. Néanmoins l'intégrité structurale du pare-brise est préservée tant que l'intercalaire en polymère mou et dissipatif reste intact et en bonne adhésion avec les fragments de verre. Ceci permet de protéger le passager à la fois de l'impacteur et des projections de débris de verre.



Il est bien connu dans le milieu industriel que la bonne performance d'un pare-brise laminé à l'impact tient à une délicate optimisation du niveau d'adhésion entre verre et intercalaire, cette optimisation étant réalisée sur chaque produit sans réelle compréhension des échelles d'actions des mécanismes dissipatifs pertinents ni vraie capacité à définir pertinemment l'adhérence interfaciale entre le polymère mou et dissipatif et le verre. Cette problématique est précisément au centre de mes projets et de mes compétences. En collaboration avec Etienne Barthel et Costantino Creton au Laboratoire SIMM nous avons dans un premier temps identifié le mécanisme principal responsable de la dissipation d'énergie: le couplage entre la cinétique de délaminage d'une portion d'intercalaire et la forte dissipation liée à son étirement à des grandes déformations de l'ordre de 300% (c.f. schéma en bas à droite dans la figure ci-dessus). Dans un deuxième temps, nous avons mené une campagne d'investigation systématique autour d'un test simplifié (TCTT : Trough Crack Tensile Test) qui reproduit ce mécanisme fondamental de délaminage/étirement sur une portion de verre laminé préfissuré, comme illustré dans la figure suivante.



$$G_m = 2\Gamma_{crack} + \Pi_{bulk}h$$

Il est ainsi possible d'établir les conditions d'existence d'un état de délaminage/étirement stationnaire et d'étudier le travail  $G_m$  nécessaire au décollement d'une portion unitaire

d'interface en fonction de la vitesse d'écartement imposée ainsi que de la température. La mise en évidence d'un régime de croissance affine du travail  $G_m$  en fonction de l'épaisseur  $h$  de l'intercalaire, a permis d'identifier et de séparer deux mécanismes de dissipation d'énergie dominants (voir encadré en rouge dans la figure ci haut). Le premier terme est associé à l'énergie de rupture  $\Gamma_{crack}$  des interfaces verre/intercalaire. Le deuxième terme est associé à la densité volumique d'énergie  $\Pi_{bulk}$  nécessaire au fort étirement en volume de l'intercalaire (Elzière et al, 2017). Alors que le terme volumique était quantitativement relié aux mesures de rhéologie non-linéaire de l'intercalaire (Elzière et al, 2019), le terme local fait à présent l'objet d'une étude plus fine par modélisation numérique aux éléments finis.