

Interprétation du module d'indentation dans le cas des matériaux anisotropes et/ou actifs

P. Delobelle, S. Dali et F. Richard

Institut FEMTO-ST, Départ. DMA, UMR CNRS 6174, Université de Franche Comté, 24 Chemin de l'Épitaphe, 25000 Besançon, France
e-mail : patrick.delobelle@univ-fcomte.fr ; samirdali@live.fr ; fabrice.richard@univ-fcomte.fr

Mots-clés :

Nano-indentation ; module d'indentation ; matériaux anisotropes ; matériaux actifs

Résumé – L'objectif de cette communication réside dans la compréhension et l'analyse des valeurs du module d'indentation $M_{(hkl)}$ déterminé par la méthode de rigidité en continue (CSM) dans le cas de matériaux fortement anisotropes et/ou actifs tels que les ferroélectriques ou les alliages à mémoire de forme. Plusieurs exemples sont présentés ; Ni, W, Zn, Ni₂MnGa et PZT où le module d'indentation diffère assez fortement du module biaxé ($E/1 - \nu^2$). On propose une formulation analytique simple assez conforme aux résultats de simulations 3D par éléments finis de l'indentation Berkovich dans le cas des symétries cubiques et hexagonales. On propose également une interprétation des valeurs des modules d'indentation sous charge ou à charge presque nulle dans le cas des matériaux actifs. Ces valeurs sont à corrélérer aux phénomènes de réorientation des domaines ferroélectriques ou des plaquettes de martensite dans les deux exemples présentés. On montre ainsi que le module d'indentation est loin d'être une grandeur standard sitôt que les matériaux présentent une forte anisotropie ou qu'ils sont potentiellement actifs.

Key words:

Nano-indentation ; indentation modulus ; anisotropic materials ; SMART materials

Abstract – Interpretation of the indentation modulus in the case of anisotropic materials and/or smart materials. The aim of this paper consists in the understanding and in the analysis of the indentation modulus values $M_{(hkl)}$ determined by the continuous stiffness method in the case of anisotropic materials and/or SMART materials as ferroelectric or shape memory alloys. Some examples have been studied ; Ni, W, Zn, Ni₂MnGa and PZT where the indentation modulus values are very different to those given by the biaxial modulus ($E/1 - \nu^2$). A simple analytical formulation which gives results very close to those obtained by 3D finite elements calculations of Berkovich indentation of materials with cubic and hexagonal symmetries has been proposed. An interpretation of the two indentation modulus values of SMART materials under loading or at 90% of unloading has been proposed. These two values are linked to the modification or the reorientation of the ferroelectric domains or of the martensite variants under the pressure of the tip. In conclusion, the indentation modulus is far to be a standard parameter, that is to say the biaxial modulus, when the studied materials present a great anisotropy or behave as SMART materials.

Reçu le 10 novembre 2010
accepté le 23 mars 2011

L'essai de nanoindentation instrumenté n'a cessé de se développer depuis une vingtaine d'années et constitue à présent un important moyen d'investigation des propriétés mécaniques des matériaux à l'échelle locale, qu'ils soient sous forme volumique ou de films minces [1–3]. Les potentialités de cet essai vis-à-vis de la caractérisation des propriétés élastique, viscoélastique, plastique ou viscoplastique sont considérables, cependant l'interprétation des mesures, soit

par des méthodes directes (modèles analytiques recalés), soit par des méthodes inverses (modélisation numérique par éléments finis, E.F.), demeure encore un domaine de recherche actif et ouvert. L'objectif de cette communication réside dans la compréhension et l'analyse des valeurs du module d'indentation $M_{(hkl)}$ déterminé par la méthode de la mesure de la rigidité de contact en continue (CSM) dans le cas de matériaux fortement anisotropes et/ou actifs (ferroélectriques, alliages à mémoire

de forme, ...) [4, 5]. Quelques exemples concrets seront présentés et analysés au regard des simulations 3D par E.F.

1 Méthodes expérimentales et résultats

Différents matériaux ont été caractérisés par nanoindentation instrumentée pour évaluer l'effet de l'anisotropie et des propriétés spécifiques des matériaux actifs sur la valeur du module d'indentation $M_{(hkl)}$. Dans cet article on ne présentera pas de résultats concernant les propriétés inélastiques déterminées par ces mêmes essais d'indentation, à savoir la dureté $H_{b(hkl)}$, la longueur interne $h_{(hkl)}^*$... [6].

1.1 Matériaux et techniques expérimentales et numériques

On étudie en détail le nickel polycristallin à gros et à très petits grains. Le Ni polycristallin de haute pureté à gros grains ($\Phi \sim 160 \mu\text{m}$) est obtenu par un recuit de 3 h à 900 °C d'un lingot élaboré par la société Goodfellow. Le Ni à très petit grains est obtenu par électrodéposition sous différentes conditions et les dépôts de 200 à 300 μm d'épais reposent sur des substrats de Cu ou de $\text{Si}_{(100)}$. Les diamètres des grains, ou plutôt des colonies de nanocristaux, varient de 0,2 à 0,3 μm suivant la densité du courant d'électrodéposition. Les images EBSD (electron back scattering diffraction) fournissent l'orientation des différents grains indentés. Dans le cas du Ni à gros grains on étudie les états recuits et écroui à 30 % en traction.

Pour ce qui concerne les matériaux actifs on étudie successivement une céramique massive polycristalline piézoélectrique douce du type PZT-PIC 255 ($\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$) élaborée par PI Ceramic Allemagne, et un monocristal de $\text{Ni}_2 \text{MnGa}$ orienté $\langle 100 \rangle$, bien connu pour être un alliage magnétique à mémoire de forme.

Les essais d'indentation ont été réalisés à l'aide d'un nanoindenteur II₅. Ils consistent à imposer, selon un trajet de chargement prédéfini et contrôlé, le déplacement d'une pointe en diamant de type Berkovich. De plus, la méthode de mesure de la rigidité

de contact en continue (CSM) permet d'accéder à l'évolution du module d'indentation et de la dureté en fonction de la profondeur d'indentation [2]. Les profondeurs maximales d'indentation ont été fixées entre 100 et 1200 nm suivant les phénomènes recherchés. La forme exacte des indents a été déterminée par microscopie à force atomique (AFM PSIA, XE 150) en mode non contact, ce qui permet de tenir compte dans le calcul du module d'indentation des remontées de matière le long des faces de l'indenteur.

1.2 Calculs numériques

La modélisation numérique des essais d'indentation 3D de solides élastiques anisotropes a été réalisée avec le code éléments finis ANSYS. Les calculs ont été effectués en considérant successivement trois types d'indenteur indéformable, à savoir un indenteur conique dont l'angle d'ouverture est de 70,3° donnant une surface projetée identique à celle d'un indenteur Berkovich, un indenteur à base triangulaire du type Berkovich dont l'angle d'ouverture est de 65,3° et un indenteur circulaire plan de 0,28 μm de rayon. Le massif indenté est un cylindre de 4 μm de rayon pour une hauteur également de 4 μm . La profondeur maximale de pénétration de l'indenteur a été fixée à 0,1 μm , c'est-à-dire 40 fois inférieure à la hauteur et au rayon du massif. Ceci permet de s'affranchir raisonnablement des conditions aux limites imposées au massif, à savoir : aucun déplacement de la surface inférieure du massif et la surface latérale est totalement libre. Pour réellement s'affranchir de ces conditions on réalise pour les matériaux étudiés des simulations axisymétriques 2D avec un cône de 70,3° d'ouverture et l'on cherche par analyse inverse le module d'Young et le coefficient de Poisson du matériau isotrope équivalent. On réalise un maillage très fin au niveau du volume de pénétration de l'indenteur, puis celui ci est progressivement croissant au fur et à mesure que l'on s'en éloigne. Dans tous les calculs on a considéré un coefficient de frottement nul, ce qui est parfaitement justifié pour les grands angles d'ouverture des indenteurs.

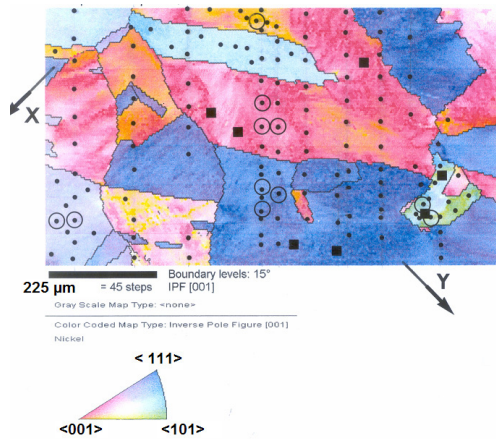


Fig. 1. Image EBSD d'un Ni recuit à gros grains. Positions des points d'indentation. Le diamètre moyen des grains est de l'ordre de 150 μm.

Fig. 1. EBSD picture of an annealed Ni with large grains. Places of the different indentation measurements. The mean grain diameter is of the order of 150 μm.

2 Effets de l'anisotropie et calcul du module d'indentation

2.1 Cas du nickel

Les figures 1 et 2 représentent respectivement les images EBSD de la cartographie et de l'orientation des grains pour deux types de Ni, l'un recuit et l'autre électrodéposé. Entre ces deux matériaux on remarque la très grande différence de la taille des grains. Ainsi, pour les gros grains dont on connaît l'orientation, il est possible d'effectuer plusieurs indentations ($h_{\max} = 900$ nm) représentatives du grain testé et donc de son orientation. Les petits points noirs sur la figure 1 correspondent à la position des différents indents. Les points encadrés sont ceux où des images AFM ont été réalisées pour estimer les hauteurs des remontés de matière selon les flancs de l'indenteur ce qui permet de corriger les valeurs des modules mesurés. Sur la figure 3 on représente pour l'échantillon de Ni recuit l'évolution du module d'indentation $M_{(hkl)}$, dont la définition exacte sera donnée ultérieurement, en fonction de la profondeur d'indentation h pour différentes orientations de grains. Les valeurs ont été corrigées des effets de remontés de matière (pile-up correction). Le nickel étant un matériau anisotrope, son facteur d'anisotropie f est de

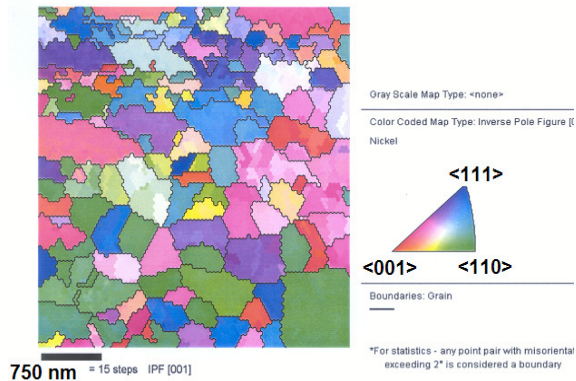


Fig. 2. Image EBSD d'un Ni électrodéposé sur substrat Cu. Le diamètre moyen des grains est de l'ordre de 0,36 μm.

Fig. 2. EBSD picture of an electroplated Ni deposited on a Cu substrate. The mean grain diameter is of the order of 0.36 μm.

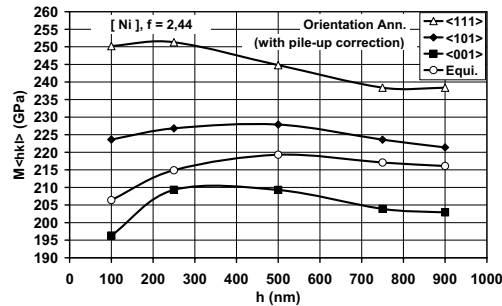


Fig. 3. Évolution du module d'indentation $M_{(hkl)}$ en fonction de la profondeur d'indentation pour différentes orientations de grains.

Fig. 3. Evolution of the indentation modulus $M_{(hkl)}$ as a function of the indentation depth for different orientations of the grains.

2,44, il semble clair que ce module dépend de l'orientation des grains suivant l'inégalité $M_{(111)} > M_{(110)} > M_{(100)}$, c'est-à-dire suivant l'inégalité des modules d'Young $E_{(hkl)}$ fonction de la direction $\langle hkl \rangle$ de traction ou de compression. La figure 4 représente l'évolution du module d'Young du Ni électrodéposé sur deux substrats différents en fonction de la densité J du courant d'électrodéposition. On considère dans ce cas que $E_{(hkl)} = M_{(hkl)}(1 - \nu^2)$ avec $\nu = 0,31$. Ces échantillons ne présentant pas de texture bien définie et le diamètre du champ de contrainte généré durant l'indentation étant bien supérieur au diamètre des grains, l'effet d'orientation est négligeable et le module d'Young mesuré est sensiblement constant, indépendamment

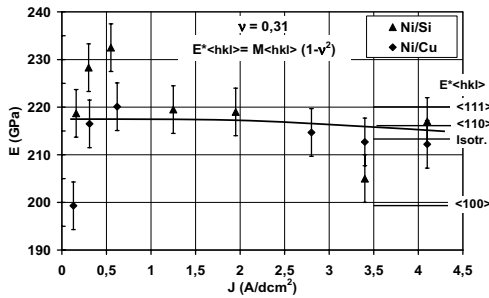


Fig. 4. Module d'Young du Ni électrodéposé en fonction de la densité de courant J pour deux substrats différents.

Fig. 4. Young's modulus of the electroplated Ni as a function of the current density J and for two different substrates; Ni/Si and Ni/Cu.

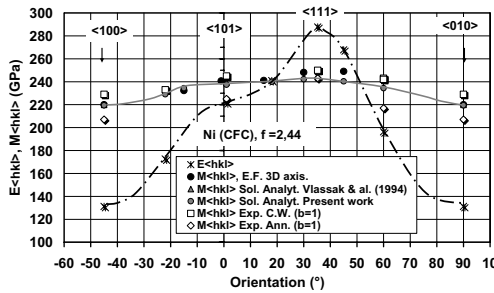


Fig. 5. Variation du module d'Young $E_{\langle hkl \rangle}$ et du module d'indentation $M_{\langle hkl \rangle}$ avec l'orientation. L'indentation moyenne très fortement les effets d'anisotropie.

Fig. 5. Variation of the Young's modulus $E_{\langle hkl \rangle}$ and of the indentation modulus $M_{\langle hkl \rangle}$ as a function of the orientation. The indentation test greatly average the effects of the anisotropy.

des conditions de déposition, et voisin de la valeur du module calculé selon la méthode de Hashin et Shtrikman [7] pour les polycristaux, soit : $E \sim 213$ GPa pour $\nu \sim 0,307$. Par contre, sur les matériaux à gros grains, lorsque la profondeur d'indentation n'est pas trop élevée et que le champ de contrainte est confiné dans un grain, la valeur du module d'indentation $M_{\langle hkl \rangle}$ dépend de l'orientation du grain, du moins pour les matériaux anisotropes.

On reporte sur la figure 5 pour les deux états du Ni, recuit et écroui, les évolutions du module d'Young $E_{\langle hkl \rangle}$ et du module d'indentation $M_{\langle hkl \rangle}$ déterminé expérimentalement pour quelques orientations particulières. Il est visible que l'indentation moyenne très fortement les effets d'orientation calculés à partir du module d'Young $E_{\langle hkl \rangle}$. Par exemple $E_{\langle 111 \rangle} / E_{\langle 100 \rangle} = 2,2$ alors que

$M_{\langle 111 \rangle} / M_{\langle 100 \rangle} \sim 1,10$. On notera que lorsque le coefficient de Poisson $\nu_{\langle hkl \rangle}$ est proche de zéro, c'est-à-dire au voisinage de la direction $\langle 110 \rangle$, on a $E_{\langle hkl \rangle} \sim M_{\langle hkl \rangle}$.

2.2 Calcul du module d'indentation, modèles analytique et numérique. Applications au cas des matériaux à symétrie cubique

2.2.1 Modèle analytique

D'une manière générale le module d'indentation $M_{\langle hkl \rangle}$ mesuré sur un monocristal dont la normale à la surface a pour cosinus directeur α_i est donné par [4] :

$$M_{\langle hkl \rangle} = 16\pi^2 \left[\int_0^{2\pi} \alpha_m \beta_{km}^{-1}(C_{ij}, \gamma) \alpha_k d\gamma \right]^{-1} \text{ avec}$$

$$M_{\langle hkl \rangle} = \left[\frac{1}{M_r} - \left(\frac{1 - \nu^2}{E_{ind}} \right) \right]^{-1}$$

et
$$M_r = \frac{\sqrt{\pi}}{2\delta \sqrt{A}} \left(\frac{dP}{dh} \right)$$

$$A(h_c) = 24,56h_c^2 + \sum_{n=1}^4 (a_n h_c^{1/n}) \text{ et}$$

$$h_c = h - \varepsilon \frac{F}{S_s} \quad (1)$$

Dans ces formules, $A = f(h_c)$ est l'aire de contact projetée, P la charge appliquée à l'indenteur et $S_s = dP/dh$ la rigidité du contact mesurée en continue durant la pénétration de l'indenteur. Les constantes δ et ε dépendent de la forme de l'indenteur et font encore l'objet de quelques controverses [3]; ici $\delta \sim 1,034$ et $\varepsilon \sim 0,72$. $(E/1 - \nu^2)_{ind}$ est le module réduit du diamant de l'indenteur. h est la profondeur d'indentation et γ l'angle dans le plan de la surface de l'échantillon. La matrice $\beta_{mk}(C_{ij}, \gamma)$ est une matrice très compliquée fonction des rigidités élastiques C_{ij} du cristal considéré ainsi que de son orientation par rapport à la direction d'indentation. Il n'existe pas de solution analytique à l'équation (1), mais seulement des approximations fonctions de la symétrie du cristal [4, 5]. Vlassak et Nix [4] ont montré à l'aide d'un modèle numérique d'indentation avec un poinçon triangulaire plan que pour les matériaux à symétrie cubique on

$$\begin{array}{lll}
 \langle 100 \rangle & \langle C_{11}^* \rangle = C_{11} & \langle C_{33}^* \rangle = \frac{3C_{11} + C_{12} + 2C_{44}}{4} \\
 \langle 110 \rangle & \langle C_{11}^* \rangle = \frac{C_{11} + C_{12} + 2C_{44}}{2} & \langle C_{33}^* \rangle = \frac{9C_{11} + 7C_{12} + 14C_{44}}{16} \\
 \langle 111 \rangle & \langle C_{11}^* \rangle = \frac{C_{11} + 2C_{12} + 4C_{44}}{3} & \langle C_{33}^* \rangle = \frac{C_{11} + C_{12} + 2C_{44}}{2} \\
 \left\langle 1 \frac{1}{\sqrt{3}} 0 \right\rangle & \langle C_{11}^* \rangle = \frac{5C_{11} + 3C_{12} + 6C_{44}}{8} & \langle C_{33}^* \rangle = \frac{39C_{11} + 25C_{12} + 50C_{44}}{64} \\
 \left\langle 11 \sqrt{\frac{2}{3}} \right\rangle & \langle C_{11}^* \rangle = \frac{11C_{11} + 21C_{12} + 42C_{44}}{32} & \langle C_{33}^* \rangle = \frac{129C_{11} + 127C_{12} + 254C_{44}}{256} \\
 \langle 11 \sqrt{6} \rangle & \langle C_{11}^* \rangle = \frac{19C_{11} + 13C_{12} + 26C_{44}}{32} & \langle C_{33}^* \rangle = \frac{153C_{11} + 103C_{12} + 206C_{44}}{256} \\
 \langle 11 \sqrt{2} \rangle & \langle C_{11}^* \rangle = \frac{3C_{11} + 5C_{12} + 10C_{44}}{8} & \langle C_{33}^* \rangle = \frac{33C_{11} + 31C_{12} + 62C_{44}}{64} \quad (6)
 \end{array}$$

pouvait écrire :

$$\begin{aligned}
 M_{\langle hkl \rangle} &= \beta_{\langle hkl \rangle} \left(\frac{E}{1 - \nu^2} \right)_{iso} \text{ avec} \\
 \beta_{\langle hkl \rangle} &= a + c(f_{ani} - f_0)^n \text{ et} \\
 f_{ani} &= \frac{2C_{44}}{C_{11} - C_{12}}. \quad (2)
 \end{aligned}$$

Les coefficients a , c , f_0 , et n dépendent du coefficient de Poisson $\nu_{\langle 100 \rangle}$ et de l'orientation $\langle hkl \rangle$. f_{ani} est le facteur d'anisotropie du cristal. Ainsi, $M_{\langle hkl \rangle}$ est fonction du module réduit isotrope $(E/1 - \nu^2)_{iso}$ estimé à partir de l'approximation de Hashin et Shtrikman [7] et de la fonction tabulée $\beta_{\langle hkl \rangle}$. Dans le cas d'un matériau isotrope, par exemple le tungstène $f \sim 1,01$, $\beta_{\langle hkl \rangle} = 1$ et l'on retrouve la formule bien connue et souvent appliquée à tort :

$$M_{\langle hkl \rangle} = \left(\frac{E}{1 - \nu^2} \right)_{iso}. \quad (3)$$

Delafargue et Ulm [5] ont proposé des solutions analytiques approchées et explicites de l'équation (1) dans le cas de matériaux orthotropes indentés avec un poinçon conique. Sans entrer dans les détails de la formulation, le module d'indentation dans la direction x_1 d'un matériau isotrope transverse (les propriétés élastiques selon les directions x_2 et x_3 sont identiques), s'exprime par :

$$\begin{aligned}
 M_{\langle 100 \rangle} &= M_3 \sqrt{\frac{C_{11}}{C_{33}}} \text{ avec} \\
 M_3 &= 2 \sqrt{\frac{C_{11}C_{33} - C_{13}^2}{C_{11}} \left(\frac{1}{C_{55}} + \frac{2}{\sqrt{C_{11}C_{33} + C_{13}}} \right)^{-1}}. \quad (4)
 \end{aligned}$$

Nous proposons une approximation analytique simple de $M_{\langle hkl \rangle}$ s'inspirant de ce résultat et pouvant s'appliquer à toutes les directions d'indentation dans le cas des cristaux à symétrie cubique. L'idée repose sur le calcul du module d'indentation d'un matériau isotrope transverse équivalent fonction de l'orientation du cristal puis d'appliquer l'équation (4). Ainsi on propose :

$$\begin{aligned}
 M_{\langle hkl \rangle} &= M_{iso} \sqrt{\frac{\langle C_{11}^* \rangle}{\langle C_{33}^* \rangle}} \\
 \text{avec } \langle C_{ij}^* \rangle &= \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \alpha_m C_{ij}(\gamma) \alpha_k d\gamma \quad (5)
 \end{aligned}$$

M_{iso} est le module d'indentation isotrope égal à $E_{VRH}/1 - \nu_{VRH}^2$ où E_{VRH} et ν_{VRH} sont calculés avec la méthode de Voigt-Reuss-Hill et qui conduit sensiblement à la moyenne des bornes obtenues avec la formulation de Hashin-Shtrikman [7]. Les $\langle C_{ij}^* \rangle$ représentent donc les valeurs moyennes dans le plan d'indentation des constantes élastiques exprimées dans la direction d'indentation. Dans le cas d'une symétrie cubique les valeurs des rigidités $\langle C_{11}^* \rangle$ et $\langle C_{33}^* \rangle = \langle C_{22}^* \rangle$ pour quelques directions privilégiées $\langle hkl \rangle$ sont rapportées ci-dessous :

Voir equation (6) ci-dessus.

Pour le cas du Ni on reporte respectivement sur les figures 6 et 7 les variations de $M_{\langle hkl \rangle}$ et du rapport $M_{\langle hkl \rangle}/M_{\langle 100 \rangle}$ en fonction de l'orientation du cristal. On rapporte les valeurs expérimentales ainsi que les valeurs calculées avec les relations (5) et (6) en

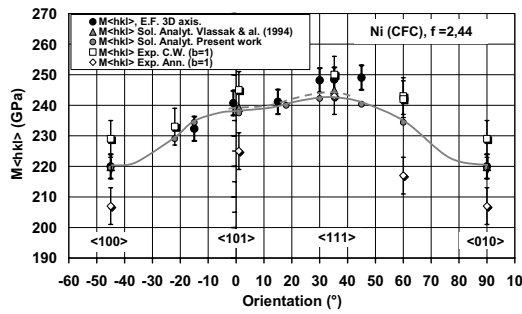


Fig. 6. Variation du module d'indentation $M_{(hkl)}$ avec l'orientation du cristal. Valeurs expérimentales, analytiques calculées avec (5) et (6) et selon la méthode de Vlassak et al. On reporte les valeurs estimées par E.F. 3D pour un indenteur conique.

Fig. 6. Variation of the indentation modulus $M_{(hkl)}$ with the orientation of the crystal. Experimental values, analytical values calculated thanks to the relations (5) and (6) and values following the Vlassak et al. method. The estimated values obtained by 3D F.E. calculations with a conical indenter have also been reported.

prenant : $C_{11} = 248$ GPa, $C_{12} = 153$ GPa, $C_{44} = 116$ GPa, $E_{VRH} = 213,05$ GPa et $\nu_{VRH} = 0,307$. Ces valeurs sont en très bon accord avec celles calculées à partir de la tabulation de Vlassak et Nix [4] pour les directions $\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$ avec $f = 2,44$ pour le Ni. On montre ainsi, en accord avec les résultats expérimentaux, que l'effet d'anisotropie sur le module d'indentation n'excède pas 10 à 12 % pour $f = 2,44$. Les calculs réalisés sur du tungstène ($f = 1,01$) conduisent à une variation maximale de l'ordre de 0,09 %.

Variation of the $M_{(hkl)}/M_{(001)}$ ratio with the crystal orientation. Experimental values, analytical values calculated thanks to the relations (5) and (6) and values calculated following the Vlassak et al. method. The 3D F.E. results with a conical and a Berkovich indenters have also been reported.

Des calculs identiques réalisés sur un matériau à symétrie cubique possédant un très fort coefficient d'anisotropie tel que le laiton β , $f = 8,55$, conduisent aux résultats présentés dans le tableau 1. Les valeurs expérimentales sont empruntées à l'article de Vlassak et Nix [4]. On observe un très bon accord entre ces différentes valeurs, entre autre celles obtenues par Vlassak et al. et la présente étude. Ainsi, l'effet maximal de l'ani-

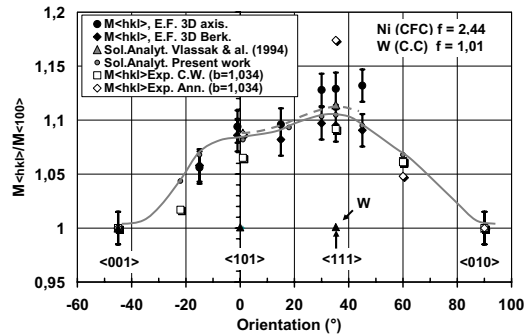


Fig. 7. Variation du rapport $M_{(hkl)}/M_{(001)}$ avec l'orientation du cristal. Valeurs expérimentales, analytiques calculées avec (5) et (6) et selon la méthode de Vlassak et al. On reporte également les valeurs estimées par E.F. 3D pour des poinçons conique et Berkovich.

Fig. 7. Variation of the $M_{(hkl)}/M_{(001)}$ ratio with the crystal orientation. Experimental values, analytical values calculated thanks to the relations (5) and (6) and values calculated following the Vlassak et al. method. The 3D F.E. results with a conical and a Berkovich indenters have also been reported.

sotropie sur $M_{(hkl)}$ pour $f = 8,55$ n'est que d'environ 20 %.

2.2.2 Modèle numérique

Afin de valider ces formulations analytiques approchées on les compare aux solutions numériques issues de calculs E.F. 3D pour trois types d'indenteur, à savoir : conique, Berkovich et circulaire plan. On étudie donc les réponses numériques, réaction des forces sur la surface supérieure plane de l'indenteur en fonction du déplacement imposé : $P_{(hkl)} = f(h)$. Pour un cône d'ouverture α telle que sa surface projetée soit identique à celle d'une pointe Berkovich (ou Vickers) une pointe Berkovich et un indenteur circulaire plan de rayon r , cette relation s'écrit respectivement selon :

$$P_{(hkl)} = M_{(hkl)} \frac{2 \operatorname{tg} \alpha}{\pi} h^2,$$

$$P_{(hkl)} = \delta_{(hkl)} M_{(hkl)} \frac{2 \operatorname{tg} \alpha}{\pi} h^2$$

et $P_{(hkl)} = M_{(hkl)} 2 r h.$ (7)

Pour un indenteur Berkovich $\alpha = 70,3^\circ$ et $\delta_{(hkl)}$ est un facteur d'ajustement dont la valeur exacte est encore sujette à discussion.

Tableau 1. Cas du laiton β possédant un facteur d'anisotropie $f = 8,55$.

Table 1. Case of the β brass. The factor f of the anisotropy is equal to 8.55.

$\langle hkl \rangle$	$E_{\langle hkl \rangle}$	$M_{\langle hkl \rangle}$ Vlassak et Nix [4]	$M_{\langle hkl \rangle}$ présente étude	M expérimental
$\langle 100 \rangle$	27,4	95	97,2	104
$\langle 110 \rangle$	77,2	112	112,5	121
$\langle 111 \rangle$	195,1	117	116,4	130

Généralement, en accord avec les travaux de King [8] on prend $\delta = 1,034$. En fait pour les deux indentateurs conique et Berkovich les relations (7) ne sont pas parfaitement vérifiées et l'exposant n'est pas tout à fait égal à 2 et dépend très légèrement de l'orientation (l'écart à l'exposant 2 est inférieur à 1 %). Cependant, ceci peut avoir une répercussion significative sur les valeurs estimées de $M_{\langle hkl \rangle}$. Pour l'indentateur circulaire la relation linéaire (7) est bien vérifiée. Il semble donc que cet écart soit plus lié à la géométrie de l'indentateur, éventuellement au maillage ou à la gestion du contact, qu'aux conditions aux limites du modèle numérique. Pour s'affranchir de cet effet et évaluer le rapport $M_{\langle hkl \rangle}/M_{\langle 100 \rangle}$ on trace $P_{\langle hkl \rangle}/P_{\langle 100 \rangle} = (M_{\langle hkl \rangle}/M_{\langle 100 \rangle}) [g(\langle hkl \rangle, h)]$ en fonction de h , où $g(\langle hkl \rangle, h)$ dépend des écarts à la puissance 2 entre les directions $\langle hkl \rangle$ et $\langle 100 \rangle$, et l'on extrapole cette représentation quasi linéaire en $h = 0$, $g(\langle hkl \rangle, 0) = 1$. Ainsi, $(P_{\langle hkl \rangle}/P_{\langle 100 \rangle})_{h=0} = M_{\langle hkl \rangle}/M_{\langle 100 \rangle}$. Les rapports ainsi calculés sont reportés sur la figure 7 pour les indentateurs conique et Berkovich. Les résultats sont tout à fait cohérents avec le modèle présenté (relations (5) et (6)) ainsi que celui de Vlassak et al. [4]. Pour obtenir les valeurs de $M_{\langle hkl \rangle}$ et non plus celles du rapport $M_{\langle hkl \rangle}/M_{\langle 100 \rangle}$ on identifie $M_{\langle 100 \rangle}$ par analyse inverse en comparant la solution 3D du matériau anisotrope à celle obtenue par modélisation E.F. 2D axisymétrique d'un matériau isotrope équivalent. Les inconnues sont donc $E_{\langle 100 \rangle}$ et $\nu_{\langle 100 \rangle}$ d'où $M_{\langle 100 \rangle}$. Les valeurs obtenues avec un indentateur conique sont reportées sur la figure 6 et semblent en assez bon accord avec les valeurs expérimentales ainsi que celles évaluées avec les modèles analytiques.

On peut évaluer l'influence de la forme de l'indentateur sur l'effet de l'anisotropie en calculant $M_{\langle hkl \rangle}/M_{\langle 100 \rangle}$ pour les trois types d'indentateur considérés. Les résultats sont

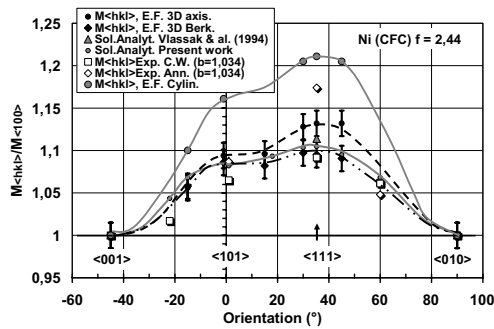


Fig. 8. Influence de la forme de l'indentateur sur le rapport $M_{\langle hkl \rangle}/M_{\langle 100 \rangle}$. Les effets sont plus marqués avec un indentateur circulaire plan. De même ce rapport est sensiblement plus élevé avec un indentateur conique qu'avec un indentateur Berkovich.

Fig. 8. Effect of the shape of the indenter on the $M_{\langle hkl \rangle}/M_{\langle 100 \rangle}$ ratio. Greater effect is observed with a circular plane indenter. Moreover, with a conical indenter this ratio is appreciably greater than those obtained with a Berkovich tip.

reportés sur la figure 8 et montrent que l'indentateur circulaire plan conduit à un effet de l'anisotropie beaucoup plus marqué qu'avec les deux autres indentateurs 3D. De plus, on peut évaluer le coefficient $\delta_{\langle hkl \rangle}$ (Éq. (7)) en calculant pour une même orientation $\langle hkl \rangle$ et pour deux indentateurs différents les rapports $(P_{\langle hkl \rangle})_{\text{Berko}}/(P_{\langle hkl \rangle})_{\text{Conique}}$ et $(P_{\langle hkl \rangle})_{\text{Circulaire}}/(P_{\langle hkl \rangle})_{\text{Conique}}$. Conformément à la littérature ces rapports dépendent du coefficient de Poisson et l'on reporte sur la figure 9 les valeurs de $\delta_{\langle hkl \rangle}$ en fonction d'un coefficient de Poisson du matériau isotrope $\nu_{\text{iso}} = \nu_{\text{VRH}}$ calculé selon les méthodes citées précédemment. Ce paramètre dépend donc de l'anisotropie du matériau. On reporte également sur cette figure les valeurs issues des travaux de Larson et al. [9] pour un indentateur 3D Berkovich et de Hay et al. [10] pour un indentateur rigide conique. Clairement ces valeurs sont supérieures à l'unité

$$\begin{array}{lll}
 \langle 100 \rangle (\theta = 90^\circ) & \langle C_{11}^* \rangle = C_{11} & \langle C_{33}^* \rangle = \frac{3C_{11} + 2C_{13} + 3C_{33} + 4C_{44}}{8} \\
 \langle 001 \rangle (\theta = 0^\circ) & \langle C_{11}^* \rangle = C_{33} & \langle C_{33}^* \rangle = C_{11} \\
 \langle 101 \rangle (\theta = 45^\circ) & \langle C_{11}^* \rangle = \frac{C_{11} + 2C_{13} + C_{33} + 4C_{44}}{4} & \langle C_{33}^* \rangle = \frac{19C_{11} + 10C_{13} + 3C_{33} + 20C_{44}}{32} \\
 \langle 10\sqrt{3} \rangle (\theta = 30^\circ) & \langle C_{11}^* \rangle = \frac{C_{11} + 6C_{13} + 9C_{33} + 12C_{44}}{16} & \langle C_{33}^* \rangle = \frac{99C_{11} + 26C_{13} + 3C_{33} + 52C_{44}}{128} \\
 \left\langle 10\frac{1}{\sqrt{3}} \right\rangle (\theta = 60^\circ) & \langle C_{11}^* \rangle = \frac{9C_{11} + 6C_{13} + C_{33} + 12C_{44}}{16} & \langle C_{33}^* \rangle = \frac{59C_{11} + 42C_{13} + 27C_{33} + 84C_{44}}{128}
 \end{array} \quad (8)$$

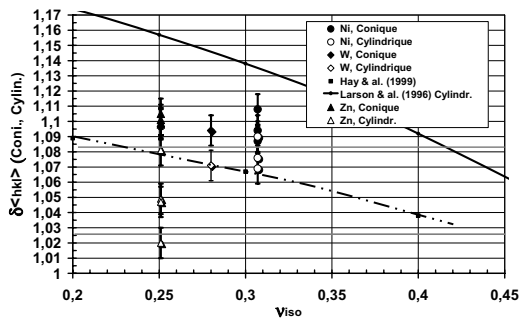


Fig. 9. Evaluation du facteur correctif $\delta_{(hkl)}$ et comparaison avec les modèles existants.

Fig. 9. Evaluation of the corrective factor $\delta_{(hkl)}$ and comparison with the existing models.

et nos valeurs s’approchent de celles obtenues par Hay et al. [10], tout particulièrement pour l’indenteur circulaire plan. De plus, pour $\nu_{iso} \sim 0,3$ les valeurs sont plus proches de 1,07 à 1,11 que de 1,034, valeur couramment utilisée dans les calculs de $M_{(hkl)}$ [8]. Oliver et Pharr [3] rapportent une valeur de 1,07 avec un indenteur conique sur différents matériaux isotropes. Cependant, il s’agit d’un calcul purement élastique ne tenant pas compte de la plasticité qui peut affecter la forme exacte de l’empreinte et conduire à des valeurs légèrement plus faibles. En conclusion, en accord avec Oliver et Pharr [3] des valeurs comprises entre 1,023 et 1,085 semblent tout à fait réalistes.

2.3 Application à la symétrie hexagonale

Des calculs identiques à ceux présentés précédemment pour le Nickel ont été réalisés

sur un matériau à symétrie hexagonale à savoir le Zinc. Les cristaux à symétrie hexagonale présentent très souvent une très forte anisotropie entre les directions c $\langle 001 \rangle$ et a $\langle 100 \rangle$. Il semble donc intéressant de comparer les différents modèles d’indentation et en particulier la relation (5) sur ce type de symétrie. Les valeurs des rigidités élastiques du cristal de Zn ont été prises dans l’article de Vlassak et al. [4] : $C_{11} = 161,1$ GPa, $C_{12} = 34,2$ GPa, $C_{13} = 50,3$ GPa, $C_{33} = 61,1$ GPa, $C_{44} = C_{55} = 38,3$ GPa et $C_{66} = (C_{11} - C_{12})/2 = 63,45$ GPa. Le calcul de $M_{iso} = (C_{11} - C_{12})/2 = 63,45$ GPa de la relation (5) dans le cas d’une symétrie hexagonale à été réalisé selon la formulation de Watt et Peselnick [11]. On arrive ainsi à $E_{iso} = 98,2$ GPa, $\nu_{iso} = 0,251$ donc $M_{iso} = 104,8$ GPa. Comme précédemment pour la symétrie cubique quelques valeurs de $\langle C_{11}^* \rangle$ et $\langle C_{33}^* \rangle = \langle C_{22}^* \rangle$ pour des orientations caractéristiques $\langle hkl \rangle$ dans un plan prismatique (angle θ) sont données ci-dessous dans les relations (8) :

Voir equation (8) ci-dessus.

On représente sur la figure 10 les évolutions de $E_{(hkl)}$ et de $M_{(hkl)}$ en fonction de l’orientation θ dans un plan prismatique. Les valeurs expérimentales de $M_{(hkl)}$ issues de l’article de Vlassak et Nix [4] sont également reportées. Les valeurs obtenues avec les modèles de Vlassak et al. [4], Delafargue et al. [5] et issues des équations (5) et (8) sont en très bon accord ce qui conforte la dernière approche. Les résultats des calculs E.F. 3D avec un indenteur conique accréditent les différentes approches analytiques. Sur la figure 11 on représente l’évolution du rapport $M_{(hkl)}/M_{(001)}$ en fonction de l’orientation. Contrairement

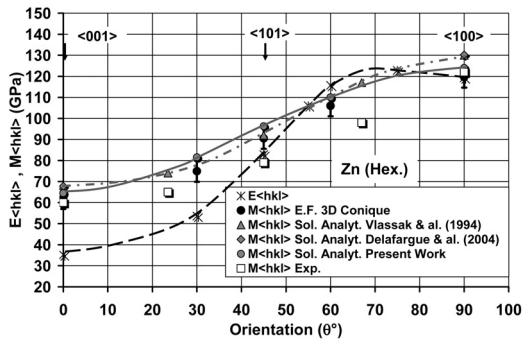


Fig. 10. Cas du Zn. Evolutions du module d'Young $E_{(hkl)}$ et des modules d'indentation $M_{(hkl)}$: valeurs expérimentales, valeurs calculées avec les méthodes de Vlassak et al., Delafargue et al. et selon les relations (5) et (8). Les résultats E.F.3D avec un poinçon conique sont également reportés.

Fig. 10. Case of the Zn material. Evolution of the Young's modulus $E_{(hkl)}$ and of the indentation modulus $M_{(hkl)}$: experimental values, calculated values according to the Vlassak et al. and Delafargue et al. methods and according to the relations (5) and (8). The 3D F.E. results with a conical indenter have also been reported.

aux matériaux cubiques, même avec un fort coefficient d'anisotropie f (cas du laiton) et qui conduisent à des variations de rapports au plus égales à 25 %, sur les matériaux hexagonaux on enregistre des variations de l'ordre de 100 %, soit un facteur deux sur le module d'indentation. Ceci peut conduire à de grosses erreurs d'interprétation du module d'indentation si l'on considère ces matériaux hexagonaux comme isotropes en prenant la relation (3) : $M = E/1 - \nu^2$.

3 Interpretation du module d'indentation des matériaux actifs

3.1 Cas d'un monocristal d'alliage magnétique à mémoire de forme $Ni_2 MnGa$ de symétrie tétraгонаle

On réalise les mêmes exercices que précédemment sur un monocristal d'alliage à mémoire de forme magnétique du type $Ni_2 MnGa$ dans l'état martensitique. La direction d'indentation est $\langle 100 \rangle$. La valeur de $M_{(hkl)}$ déterminée selon la méthode dynamique classique est de 95 ± 5 GPa. On détermine analytiquement les valeurs de $E_{(hkl)}$

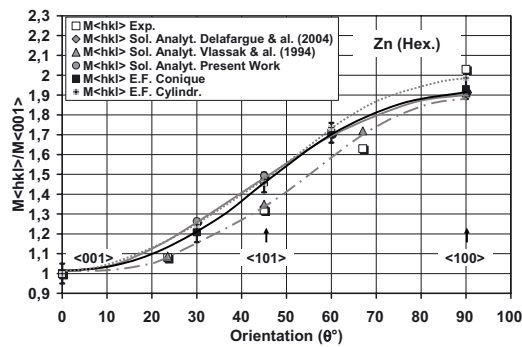


Fig. 11. Variation du rapport $M_{(hkl)}/M_{(001)}$ avec l'orientation θ et calculée selon les différents modèles analytiques et numérique.

Fig. 11. Variation of the $M_{(hkl)}/M_{(001)}$ ratio as a function of the orientation θ and calculated according to the different analytical and numerical models.

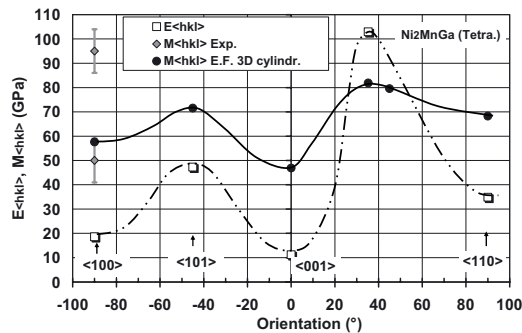


Fig. 12. Évolution de $E_{(hkl)}$ et de $M_{(hkl)}$ en fonction de l'orientation pour un cristal de $Ni_2 MnGa$. Point expérimental et résultats de calculs E.F. 3D avec un indenteur plan.

Fig. 12. Evolutions of $E_{(hkl)}$ and of $M_{(hkl)}$ as a function of the orientation of the $Ni_2 MnGa$ crystal. Experimental result and 3D F.E. results with a circular plane indenter.

puis celles de $M_{(hkl)}$ par simulation E.F. 3D avec un indenteur conique et circulaire plan. Les valeurs des rigidités élastiques utilisées dans les calculs sont celles rapportées par Dai et al. [12] : $C_{11} = 156$ GPa, $C_{12} = 140$ GPa, $C_{13} = 142,8$ GPa, $C_{33} = 149$ GPa, $C_{44} = C_{55} = 36$ GPa et $C_{66} = 40$ GPa. Les figures 12 et 13 représentent respectivement les évolutions de $E_{(hkl)}$, $M_{(hkl)}$ et du rapport $M_{(hkl)}/M_{(100)}$ en fonction de l'orientation. On peut observer une très grande anisotropie puisqu'il existe sensiblement un facteur 10 entre $E_{\langle 001 \rangle} = 11,2$ GPa et $E_{\langle 111 \rangle} = 103$ GPa. Comme montré précédemment l'essai d'indentation moyenne très fortement cette

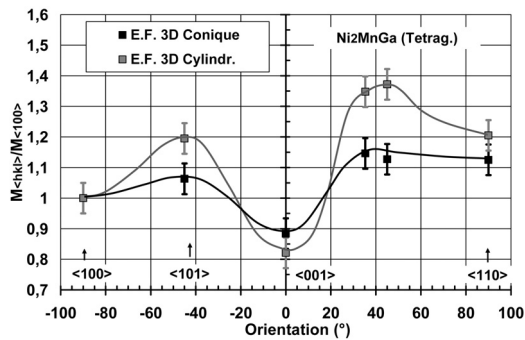


Fig. 13. Variation du rapport $M_{(hkl)}/M_{(100)}$ en fonction de l'orientation du cristal. On note la forte anisotropie du cristal.

Fig. 13. Variation of the $M_{(hkl)}/M_{(100)}$ ratio as a function of the orientation of the crystal. The great anisotropy of this material can be observed.

variation puisque $M_{(001)} = 42$ GPa et $M_{(111)} = 76$ GPa (indenteur conique), soit un rapport de 1,8. La confrontation du modèle analytique proposé avec les résultats du modèle numérique reste à faire. La valeur mesurée expérimentalement est en total désaccord avec celle obtenue numériquement puisqu'il existe sensiblement un rapport de 2,2 entre ces déterminations.

En fait, le comportement mécanique fortement non linéaire en traction (ou compression) de ces alliages à mémoire de forme a été attribué à une réorientation plus ou moins réversible des plaquettes de martensite sous l'action de la contrainte de traction (ou de compression). Il en est de même pour l'indentation, les plaquettes se réorientent dans le champ de contrainte généré par l'indenteur. Ainsi, sous chargement on mesure le module d'indentation de la martensite réorientée par la contrainte et non le module de la martensite initiale. La détermination de ce module doit donc s'effectuer sous très faible charge et afin de suivre en continu l'évolution du module on réalise le trajet de chargement représenté sur la figure 14. Les décharges sont de 90 % des charges pics. De manière à comparer la réponse de cet alliage à celle d'un matériau inerte pour un trajet de chargement similaire on réalise des essais sur de la silice fondue. Les résultats sont donnés sur la figure 15 où l'on représente pour ces deux matériaux les évolutions continues du module d'indenta-

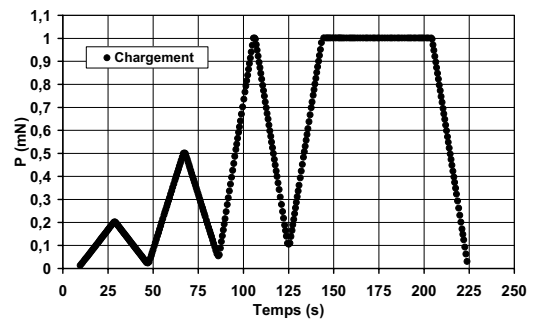


Fig. 14. Trajet périodique de charge – décharge en force appliquée par l'indenteur.

Fig. 14. Periodic loading – unloading path applied by the indenter.

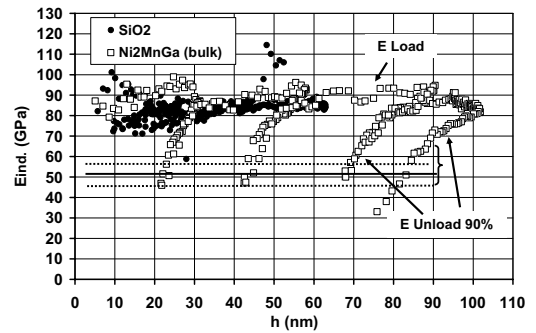


Fig. 15. Valeur du module d'indentation déterminé par la mesure dynamique durant les phases de chargement déchargement. Cas de la silice et de $Ni_2 MnGa$.

Fig. 15. Value of the indentation modulus determined by the CSM method during the loading – unloading paths. Cases of the fused Silica and of the Ni_2MnGa alloy.

tion ($E_{ind} = M(1 - \nu^2)$ avec $\nu = 0,25$) pour l'ensemble du trajet de chargement. Le module mesuré sur la silice ne subit pratiquement aucune variation lors des phases de décharge à 90 %. À l'inverse sur $Ni_2 MnGa$ on observe une variation instantanée dès le début du déchargement, ce qui pourrait s'expliquer par le phénomène de réorientation réversible des plaquettes de martensite. À 90 % de déchargement l'indenteur semble toujours être en contact avec l'échantillon. Bien qu'incertaine la valeur déterminée à charge presque nulle ($P < 0,1$ mN) est de 50 ± 5 GPa d'où $M = 54$ GPa, ce qui correspond assez bien à la valeur calculée de $M_{(100)} = 51$ GPa.

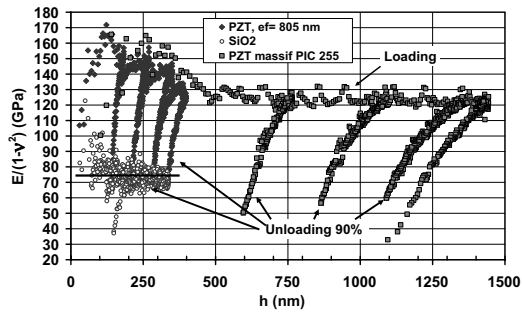


Fig. 16. Évolution du module d'indentation d'une céramique ferroélectrique massive PIC 255, d'un film mince de PZT et de la silice fondue durant une séquence de chargement déchargement du type de celle présentée sur la figure 14.

Fig. 16. Evolution of the indentation modulus of a ferroelectric bulk ceramic PIC255, of a thin film of PZT, and of the fused silica during the loading-unloading path as those presented in figure 14.

Nous allons montrer dans le paragraphe suivant que cette interprétation semble pouvoir se transposer au cas des matériaux ferroélectriques.

3.2 Cas d'une céramique ferroélectrique du type PZT

Si l'on réalise le même type de séquence de chargement que celui reporté sur la figure 14 sur une céramique ferroélectrique massive (PIC 255) ou sur un film mince de PZT qui sont des matériaux actifs et dont l'état de polarisation dépend très fortement des contraintes appliquées, du moins au-delà des contraintes coercitives, on montre figure 16 que les réponses sont qualitativement identiques à celles obtenues sur l'alliage martensitique Ni₂ MnGa. Dès le début du déchargement le module d'indentation chute rapidement contrairement à ce qui est observé sur SiO₂ (Figs. 15 et 16). En fait ce comportement peut être imputé au mouvement plus ou moins réversible des parois des domaines ferroélectriques sous l'action des contraintes appliquées. Notons que l'on peut même dépolariiser complètement le matériau avec des niveaux de contrainte élevés. Ainsi, le module biaxé ($E/1 - \nu^2$ avec $\nu = 0,3$) sous charge est de l'ordre de 120 à 130 GPa, soit deux fois supérieur à la valeur constructeur souvent évaluée par mesure dynamique, alors que le module sous

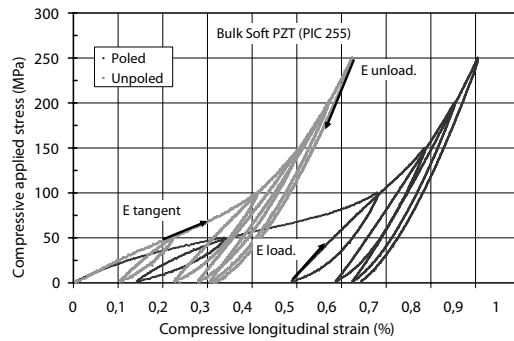


Fig. 17. Comportement en compression d'une céramique massive polarisée ou non polarisée. Définition des modules à la charge, à la décharge et tangent.

Fig. 17. Compressive behaviour of a poled or unpoled bulk ceramic. Definition of the loading modulus, of the unloading modulus and of the tangent modulus.

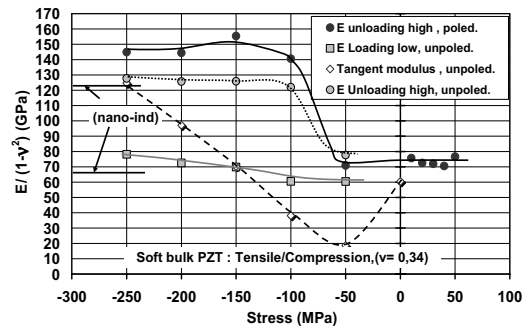


Fig. 18. Évolution des différents modules au cours des essais de compression et de traction. Comparaison avec les modules d'indentation durant le chargement ou le déchargement.

Fig. 18. Evolution of the different modulus calculated along the compressive and the tensile tests. Comparison with the indentation modulus measured during the loading or the unloading paths.

très faibles charges n'est que de 50 à 60 GPa, valeur couramment admise pour ce type de céramique.

Afin d'éclaircir plus précisément le lien entre module d'indentation et module d'Young dans ce type de matériau actif, on reprend les essais mécaniques de traction et de compression réalisés par Guillon [13] sur cette même céramique polarisée ou non. La séquence est du type chargement cyclique progressif répété (50 MPa par incrément), similaire à celle réalisée en nanoindentation et présentée sur la figure 14. La figure 17 représente la réponse en compression alternée

de cette céramique. Son comportement fortement non linéaire est clairement mis en évidence et l'on peut en déduire, voir définir, trois types de modules : le module sous chargement croissant pour les faibles niveaux de contrainte (définition classique du module d'Young et mentionné par E_{Load} sur Fig. 17), le module tangent (définition classique de ce module, E_{tangent}) et le module à la décharge au maxima de chacun des cycles (noté E_{unload}). Les valeurs de ces trois modules à chaque cycle en contrainte, soit tous les 50 MPa, sont reportées sur la figure 18 ainsi que les valeurs déterminées en nanoindentation d'après la figure 16. Ainsi, on montre que les deux modules d'indentation déterminés sous charge ou à charge presque nulle correspondent respectivement sensiblement au module à la décharge au maximum des chargements (E_{unload}) et au module à la charge au minimum des chargements. Le vrai module d'indentation est donc celui mesuré à charge presque nulle c'est-à-dire à 90 % de déchargement lors du cyclage en force. Le module d'indentation sous charge correspond au module lorsque les domaines ferroélectriques sont totalement réorientés par le champ de contrainte et ne correspond donc pas au vrai module d'Young tel que l'on peut le déterminer de manières classiques.

À l'aide des deux exemples présentés précédemment, alliage à mémoire de forme et céramique ferroélectrique, nous avons tenté de montrer que le module mesuré de manière classique en nanoindentation ne correspond pas au module biaxé du matériau mais au module lorsque le matériau s'est totalement réorganisé sous l'action des contraintes générées par l'indenteur. À l'opposé, il semblerait que le module mesuré par la technique CSM lors de décharge presque totale, avant la perte de contact de l'indenteur, corresponde effectivement au module biaxé du matériau vierge non contraint.

4 Conclusions

Dans cet article nous avons tenté d'éclaircir la compréhension et l'analyse des valeurs du module d'indentation $M_{\langle hkl \rangle}$ déterminé par la méthode de rigidité en continue (CSM) dans le cas de matériaux fortement

anisotropes et/ou actifs tels que les ferroélectriques ou les alliages à mémoire de forme. Plusieurs exemples de matériaux ont été étudiés dans notre propos ; Ni, W, Zn, PZT et Ni_2MnGa où le module d'indentation diffère assez fortement du module biaxé ($E/1 - \nu^2$) classiquement déterminé. On propose une formulation analytique simple assez conforme aux résultats de simulation 3D par éléments finis de l'indentation Berkovich dans le cas des symétries cubiques et hexagonales. On propose également une interprétation des valeurs des modules d'indentation sous charge ou à charge presque nulle dans le cas de deux types de matériaux actifs. Celles ci sont à corréluer aux phénomènes de réorientation des domaines ferroélectriques ou des plaquettes de martensite dans les deux cas présentés. D'une manière générale on montre que le module d'indentation est loin d'être une grandeur standard sitôt que les matériaux présentent une forte anisotropie ou qu'ils sont potentiellement actifs, ce qui est particulièrement vrai pour les films minces obtenus par différentes techniques de déposition.

Références

- [1] J.L. Loubet, J.M. Georges, O. Marchesini, G. Meille, *J. Tribology ASME* **106** (1984) 43-48
- [2] W.C. Oliver, G.M. Pharr, *J. Mater. Res.* **7** (1992) 1564-1582
- [3] W.C. Oliver, G.M. Pharr, *J. Mater. Res.* **19** (2004) 3-20
- [4] J.J. Vlassak, W.D. Nix, *J. Mech. Phys. Solids* **42** (1994) 1223-1245
- [5] A. Delafargue, F.J. Ulm, *Int. J. Solids Struct.* **41** (2004) 7351-7360
- [6] P. Delobelle, F. Richard, M. Qasmi, *Matériaux & Techniques* **96** (2008) 83-94
- [7] Z. Hashin, S. Shtrikman, *J. Mech. Phys. Solids* **10** (1962) 343-352
- [8] R.B. King, *Int. J. Solids Struct.* **13** (1987) 1657-1664
- [9] P.L. Larson, A.E. Giannakopoulos, E. Soderlund, D.J. Rowcliffe, R. Vesterggard, *Int. J. Solids Struct.* **33** (1996) 221-248
- [10] J.C. Hay, A. Bolshakov, G.M. Pharr, *J. Mater. Res.* **14** (1999) 2296-2305
- [11] J.P. Watt, L. Peselnick, *J. Appl. Phys.* **51** (1980) 1525-1531
- [12] L. Dai, J. Cullen, M. Wuttig, *J. Appl. Phys.* **95** (2004) 6957-6959
- [13] O. Guillon, Caractérisation électromécanique et modélisation de céramiques ferroélectriques de type PZT, Ph.D. Thesis, Univ. Franche-Comté, France, 2003