



**HAL**  
open science

# La caractérisation mécanique de systèmes film-substrat par indentation instrumentée (nanoindentation) en géométrie sphère-plan

Noura Oumarou

► **To cite this version:**

Noura Oumarou. La caractérisation mécanique de systèmes film-substrat par indentation instrumentée (nanoindentation) en géométrie sphère-plan. Autre. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2009. Français. NNT : 2009INPL001N . tel-01748749

**HAL Id: tel-01748749**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01748749v1>**

Submitted on 29 Mar 2018

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

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



## AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : [ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr](mailto:ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr)

## LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

[http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg\\_droi.php](http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>



Nancy-Université  
INPL



INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Ecole doctorale Energie, Mécanique, Matériaux (ED 409)

Ecole National Supérieure des Mines de Nancy

Laboratoire de science et génie des surfaces – CNRS UMR7570

Docteur de L'INPL

Science et Ingénierie des Matériaux

Thèse présentée par

**Noura OUMAROU**

## Caractérisation mécanique de systèmes film-substrat par indentation instrumentée (nanoindentation) en géométrie sphère-plan

Thèse dirigée par Richard KOUITAT NJIWA

Soutenue publiquement le 06 Janvier 2009 devant la commission d'examen

Membres du Jury :

Rapporteurs	H. ZAIDI M. GOMINA	Professeur des Universités, Université de Poitiers Chargé de Recherche CNRS, ENSICAEN
Examineurs	A. BILLARD D. HERTZ Ph. STEMPELLE R. KOUITAT NJIWA	Professeur des Universités, Belfort – Montbéliard Professeur Associé, INPL – EEIGM de Nancy Maître de Conférences, ENS2M de Besançon Maître de Conférences HDR, Nancy – Université UHP Nancy1, ENSMN (Directeur de thèse)
Invités	J. von STEBUT J. M. LAGACHE	Directeur de Recherche CNRS, INPL – ENSMN Ingénieur de Recherche PSA Peugeot – Citroën La Garenne-Colombes

## Remerciements

*Ce travail a été réalisé au sein du Laboratoire de Science et Génie des surfaces (LSGS) de l'école des mines de Nancy (INPL). Je tiens à remercier d'abord Mrs H. MICHEL et J.P. BAUER directeurs successifs du LSGS de m'avoir accueilli au sein du laboratoire.*

*Je suis sincèrement reconnaissant envers Mr R. KOUITAT NIJWA pour avoir dirigé ma thèse. Qu'il trouve ici toute l'expression de ma reconnaissance pour l'entrain qu'il a manifesté durant les travaux de ma thèse. Sa haute compétence scientifique, son enthousiasme, ses nombreux conseils et les nombreuses discussions que nous avons eues, ont été un soutien permanent et ont largement contribué à l'enrichissement de ces travaux.*

*Je tiens à remercier Mrs M. GOMINA et H. ZAIDI d'avoir accepté d'être les rapporteurs. Mes remerciements à Mr D. HERTZ d'avoir accepté d'être le président de jury.*

*Je remercie également Mr J. von STEBUT pour ses conseils, ses encouragements, les discussions que nous avons eues et pour avoir accepté de participer au jury de cette thèse.*

*Je tiens aussi à remercier Mrs A. BILLARD, J. M. LAGACHE et Ph. STEMPFLE de m'avoir fait l'honneur d'être membre du jury et pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail.*

*Mes sincères remerciements à Mrs D. HORWAT et J. F. PIERSON pour la réalisation des dépôts utilisés dans mes expériences.*

*L'état dans lequel on achève une thèse dépend aussi largement de l'ambiance dans laquelle on travaille. Je tiens ainsi à remercier l'ensemble des personnels du laboratoire (LSGS) pour le climat très chaleureux qu'ils savent créer au sein du laboratoire. Merci donc à Tony, Aurore, Nicolas, Maud, Cyril, Carine, Xiaochuan, Nolwen, Martine, Abdelkrim Redjaimia, Rondolfo, Valérie, André, Laure, Francis, Grégory, Jean-pierre Arnould, Bérenger, Fabien, Aurélie, Sylvie Colina, Thierry, Isabelle, Abbas, Christian, Régis, Franck, Elisabeth, Silvère, Eric, Taha, Jean Philippe, Djamel et à tous les autres.....*

*Enfin les mots me manquent pour exprimer ma gratitude et mes remerciements à Angélique LAZARTIGUES pour m'avoir soutenu, supporté mes humeurs et encouragé pendant ces deux dernières années. Merci ma femme.*

*Dédicaces :*

*A ma femme*

*A mes parents*

*A mes frères et Sœurs*

*A toute ma famille*

*A mes amis*

*« Je n'ai pas échoué, j'ai trouvé dix milles moyens qui ne fonctionnent pas » :*

*Albert Einstein*

*« Fais-moi profiter de tout ce que j'espère dans mes recherches. Rends-moi  
généreux avec désintéressement » :*

*Cheikh Amadou Bamba*

---

# Table des matières

<i>Table des matières</i> .....	3
<i>Introduction générale</i> .....	7
<i>Chapitre 1. Synthèse bibliographique</i> .....	9
<b>1.1. Introduction</b> .....	9
<b>1.2. Propriétés mécaniques des matériaux massifs et revêtus sous sollicitation mécanique de contact : Indentation</b> .....	9
1.2.1. Rappels de mécanique des milieux continus solides.....	10
1.2.1.1. Déformation élastique .....	10
1.2.1.2. Comportement plastique .....	11
1.2.2. Contact entre deux solides élastiques.....	13
1.2.3. Contact entre deux solides élastiques : théorie de Hertz.....	15
1.2.4. L'indentation instrumentée (nanoindentation) de matériaux massifs élastoplastiques.....	18
1.2.4.1. Dispositif expérimental .....	19
1.2.4.2. Analyse des courbes charge/déplacement d'indentation instrumentée .....	21
1.2.4.2.1 La méthode de Doener et Nix .....	22
1.2.4.2.2 . La méthode de Oliver et Pharr .....	24
1.2.4.2.3 . La méthode de Field et Swain .....	27
1.2.4.3. Correction des données issues d'indentation instrumentée.....	30
1.2.4.3.1 La profondeur initiale d'indentation .....	30
1.2.4.3.2 La complaisance du bâti de nanoindentation instrumentée :.....	31
1.2.4.3.3 La nature de l'indenteur .....	32
1.2.4.4. Limitations des méthodes d'analyse d'indentation .....	33
1.2.4.4.1 Limitation de la méthode de Oliver et Pharr .....	33
1.2.4.4.2 Limitation de la méthode de Field et Swain.....	34
1.2.5. L'indentation instrumentée (nanoindentation) des matériaux revêtus .....	35
<b>1.3. Conclusion</b> .....	37

<b>Chapitre 2. Simulation numérique d'indentation axisymétrique avec une pointe sphérique</b>	<b>43</b>
.....	
<b>2.1. Introduction</b>	<b>43</b>
<b>2.2. Définition du problème et méthode de résolution</b>	<b>44</b>
2.2.1. Définition du problème	44
2.2.2. Stratégie de résolution	46
<b>2.3. Réponses élastique et élastoplastique d'un milieu homogène</b>	<b>48</b>
2.3.1. Réponse élastique	48
2.3.2. Réponse élastoplastique	49
2.3.3. Conclusion	63
<b>Chapitre 3. Etude numérique de l'indentation de substrats élastoplastiques revêtus de films durs</b>	<b>65</b>
.....	
<b>3.1. Introduction</b>	<b>65</b>
<b>3.2. Analyse de l'indentation sphérique élastoplastique d'un substrat revêtu</b>	<b>67</b>
3.2.1. La pression de contact	69
3.2.2. Evolution du volume plastique dans le substrat durant l'indentation sphérique d'un système film-substrat	74
3.2.3. Distribution de contraintes pendant la charge	77
3.2.3.1. Contraintes radiales surfaciques :	77
3.2.3.2. Contraintes radiales le long de l'axe de symétrie Z :	81
3.2.4. Profil de la surface à la charge et après la décharge totale	82
3.2.5. Distribution des contraintes résiduelles	87
3.2.5.1. Contrainte résiduelle radiale le long de l'axe d'indentation (ou de symétrie) Z	87
3.2.5.2. Contrainte résiduelle axiale le long de l'axe d'indentation Z	90
3.2.5.3. Contrainte résiduelle axiale à l'interface film-substrat	92
3.2.6. Distribution de contraintes de von Mises durant la décharge	96
<b>3.3. Exploitation des courbes d'indentation des systèmes film-substrats obtenues numériquement</b>	<b>99</b>

---

<b>3.4. Système film-substrat : Relation entre le rapprochement <math>\delta</math> et le rapport <math>\frac{a^2}{R}</math> ...</b>	<b>105</b>
<b>3.5. Conclusion.....</b>	<b>111</b>
<b><i>Chapitre 4. Procédure d'analyse des courbes d'indentation sphérique : validation numérique et expérimentale.....</i></b>	
<b>4.1. Introduction .....</b>	<b>113</b>
<b>4.2. Rappel des équation de Hertz .....</b>	<b>114</b>
<b>4.3. Relation entre la charge appliquée et le déplacement élastique.....</b>	<b>115</b>
<b>4.4. Validation numérique .....</b>	<b>125</b>
4.4.1. Cas des matériaux massifs homogènes .....	125
4.4.1.1. Régime de déformation élastique .....	125
4.4.1.2. Domaine élastoplastique d'indentation sphérique.....	126
4.4.2. Cas des systèmes film-substrat.....	129
4.4.2.1. Indentation élastique des systèmes film-substrat .....	129
4.4.2.2. Indentation élastoplastique du substrat revêtu .....	130
<b>4.5. Validation expérimentale.....</b>	<b>138</b>
4.5.1. Dispositif expérimental de la nanoindentation.....	138
4.5.2. Les échantillons (matériaux massifs et revêtus) étudiés .....	139
4.5.2.1. Matériaux massifs (substrats nus) .....	139
4.5.2.2. Matériaux revêtus (système film-substrat).....	139
4.5.3. Application aux substrats massifs .....	140
4.5.4. Application aux substrats revêtus (système film-substrat).....	150
4.5.4.1. Exploitation des données d'indentation instrumentée des substrats revêtus (film-substrat) : méthode de Oliver et Pharr .....	150
4.5.4.2. Exploitation des données d'indentation instrumentée des substrats revêtus (film-substrat) : méthode basée sur les équations 4-11 et 4-12.....	159
<b>4.6. Conclusion.....</b>	<b>167</b>
<b>Conclusion générale .....</b>	<b>169</b>





## Introduction générale

La technologie des films minces devient de plus en plus importante. En effet, les films rigides d'épaisseur micrométrique sont extensivement employés pour protéger les substrats doux des environnements. Cependant, il existe des risques de défaillance dus aux légères fractures en réponse à un chargement mécanique. La compréhension du comportement d'un substrat revêtu est ainsi impérative afin d'augmenter sa performance et d'assurer l'intégrité du film durant l'application. Dans ce contexte, la caractérisation des propriétés mécaniques par nanoindentation des composants revêtus (dureté, module de Young...) apparaît indispensable mais reste malgré tout compliquée pour des films de faible épaisseur.

L'essai de l'indentation instrumentée (en particulier la nanoindentation) consiste à appliquer progressivement une charge sur la surface d'un matériau par le biais d'une pointe rigide (de type Vickers, Berkovich, sphérique etc...). L'avantage de cette technique est de pouvoir mesurer simultanément la pénétration de cette pointe dans le matériau, en fonction de la charge appliquée, et de déterminer localement quelques propriétés mécaniques telles que le module de Young ou la dureté du matériau. Ainsi, l'indentation instrumentée est devenue aujourd'hui une technique capitale dans la caractérisation mécanique des matériaux qu'ils soient massifs ou revêtus d'un film mince. Néanmoins, si le principe de la nanoindentation est simple, l'exploitation des données expérimentales en termes des paramètres intrinsèques reste complexe. En effet, les modèles de dépouillement des données sont généralement établis pour des matériaux massifs, avec des hypothèses de décharge purement élastique et d'indenteur rigide parfait. Ces modèles, appliqués aux matériaux revêtus de films minces, se trouvent confrontés à de sérieux problèmes, comme la contribution du substrat due au développement croissant du volume plastique dans celui-ci. Nous avons donc pour objectif de trouver une stratégie, relativement simple, permettant de déterminer avec plus de précision les caractéristiques du matériau massif et du film quelle que soit la configuration film-substrat. Dans cette optique, la compréhension du processus de déformation lors de l'indentation d'un matériau revêtu d'un film mince avec une sphère rigide s'avère capitale.

Tout d'abord, une synthèse bibliographique, sur l'avancé de la technique de l'indentation instrumentée, sera présentée dans le premier chapitre. Un rappel sur la mécanique de contact

et des milieux continus solides sera brièvement fait. Ensuite, la technique expérimentale de la nanoindentation sera décrite ainsi que son avantage par rapport « aux tests conventionnels tels que l'essai de traction, l'essai de compression, l'essai de la maroindentation etc. » Nous présenterons les techniques d'analyse des données de la nanoindentation des matériaux massifs. L'application de ces techniques aux systèmes film-substrat sera discutée.

Le deuxième chapitre sera consacré à la simulation numérique d'indentation sphérique des matériaux massifs élastoplastiques. Ainsi, pour la validation du code de calcul, les résultats numériques obtenus seront confrontés aux solutions analytiques. Ensuite, les courbes charge-déplacement, obtenues numériques, seront analysées par la méthode d'Oliver et Pharr. Nous essayerons d'expliquer (ou de relier) les comportements du module de Young  $E$  et de la dureté  $H$  obtenus par l'évolution de la pression de contact durant respectivement la charge et la décharge. Enfin une analyse des données d'indentation sera proposée.

Malgré une compatibilité physico-chimique, le système film-substrat réalisé peut s'avérer défaillant en condition d'utilisation sous sollicitations mécaniques. La compréhension et la caractérisation des processus de déformation d'un système film-substrat (la flexion du film, le développement d'un volume plastique dans le substrat), sont donc indispensables pour apporter des solutions à ces défaillances. Afin d'éclaircir certains aspects de la déformation en indentation sphérique de système film-substrat élastoplastique, le chapitre 3 est consacré à l'étude numérique (par la méthode des éléments de frontière) de ce genre de problème. Les évolutions du volume plastique, des contraintes internes et résiduelles, de profil de surface (à la charge comme à la décharge) seront analysées. Les résultats numériques issus de l'indentation des systèmes film-substrat seront également analysés par la technique classique de Oliver et Pharr. Enfin, la possibilité d'accéder aux propriétés mécaniques du film et du substrat respectivement à la charge et à la décharge sera explorée.

Dans le quatrième et dernier chapitre, une relation (qui dépend des caractéristiques de la pointe et du matériau indenté) entre le rapprochement de deux solides en contact et le déplacement de l'indenteur sera établie. Une procédure d'exploitation des données d'indentation instrumentée sera aussi établie. Elle sera par la suite validée numériquement dans un premier temps puis expérimentalement dans un second temps.

# Chapitre 1. Synthèse bibliographique

## 1.1. Introduction

Dans ce chapitre, nous introduisons la technique de l'indentation de matériaux massifs et revêtus, en mettant l'accent sur le cas du poinçon sphérique (indentation sphérique). Nous présentons d'abord les principes du contact élastique issus des travaux fondamentaux de Hertz. Nous introduisons ensuite les méthodologies d'analyse des courbes d'indentation de matériaux massifs, en particulier celles dites de Doener et Nix, de Oliver et Pharr, et de Field et Swain. Les insuffisances liées à ces diverses méthodes d'analyse ont conduit à la proposition de diverses méthodes d'amélioration dont quelques unes seront présentées. Nous terminons le chapitre par une étude sur l'effet de l'ajout d'un film sur les propriétés mécaniques de matériaux obtenues par la technique d'indentation.

## 1.2. Propriétés mécaniques des matériaux massifs et revêtus sous sollicitation mécanique de contact : Indentation

Lorsque les dimensions des échantillons s'y prêtent, les caractéristiques mécaniques des matériaux solides sont souvent déterminées à l'aide de tests conventionnels tels que l'essai de traction, l'essai de compression. Ces essais uniaxiaux sont très souvent destructeurs. Dans d'autres situations, ces essais de référence ne sont pas applicables. On peut alors utiliser avantageusement le test d'indentation. Cette technique est simple à mettre en œuvre, rapide d'exécution et ne nécessite pas de préparation particulière de l'échantillon. Les dommages engendrés ne concernent qu'un faible volume surfacique de l'échantillon. La méthode peut même être considérée comme non destructive si l'essai est effectué à faible charge.

Au début du 20<sup>e</sup> siècle, J.A. Brinell, ingénieur suédois, eut l'idée pour la première fois d'utiliser cet essai pour un contrôle qualité des aciers sur une échelle de production [1]. Il plaça une bille entre deux échantillons en acier et pressa le tout dans un étau. L'acier le plus dur était celui pour lequel l'empreinte rémanente était la plus petite. Cet essai constitua une des premières mesures de la dureté statique. Pour mieux appréhender le concept de dureté, il convient de rappeler quelques notions de comportement des solides.

### 1.2.1. Rappels de mécanique des milieux continus solides

La mécanique des milieux continus solides étudie et modélise le comportement de la matière en prenant en compte sa déformabilité, contrairement à la Mécanique Rationnelle (encore connue sous le vocable de mécanique du solide indéformable). Les lois gouvernant la déformation sont loin d'être simples. En effet, si on applique une sollicitation mécanique (par exemple une sollicitation de traction simple) à un matériau isotrope et homogène, il est possible d'observer deux étapes de comportement : élastique et plastique (figure 1-1).

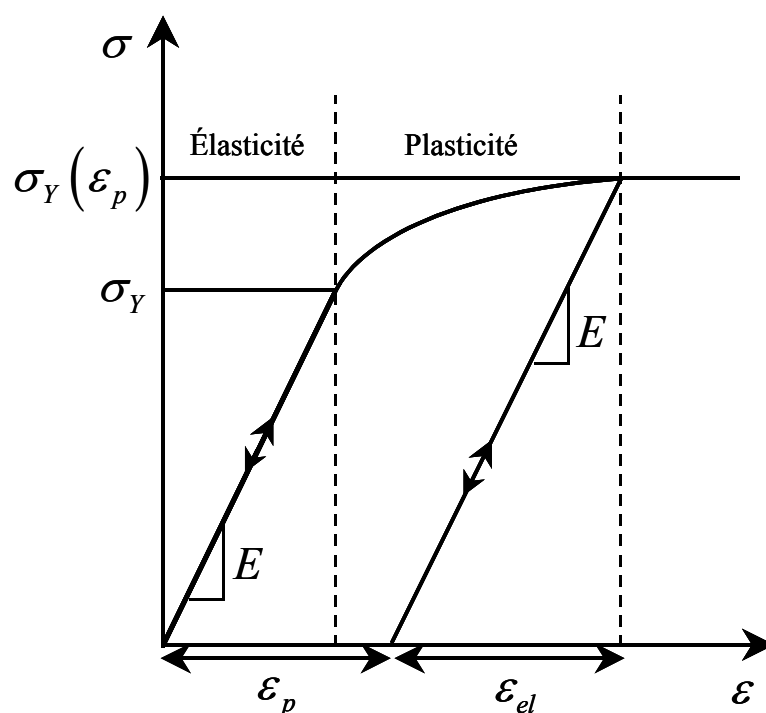


Figure 1-1 : courbe contrainte-déformation caractéristique du comportement d'un matériau à l'issu d'un essai de traction.

#### 1.2.1.1. Déformation élastique

Pour la plupart des matériaux métalliques, ces déformations subies par le solide sont en général petites et disparaissent totalement lorsque les efforts extérieurs qui les ont engendrées sont supprimés. Dans cette plage, la déformation du matériau est réversible et en général proportionnelle à la contrainte appliquée : on parle alors d'élasticité linéaire (cf. figure 1-1). Le modèle de comportement associé à cette phase de déformation est connu sous le nom de loi de Hooke généralisée. Il établit pour chaque point matériel une relation linéaire entre la

contrainte ( $\sigma$ ) et la déformation ( $\varepsilon$ ). Dans un repère cartésien, si on adopte la notation indicielle avec la convention de l'indice muet, cette relation de comportement s'écrit :

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl} \varepsilon_{kl} \quad 1-1$$

Pour un milieu homogène et isotrope, le tenseur des modules élastiques  $C_{ijkl}$ , ne dépend que des deux constantes de Lamé  $\lambda$  et  $G$  et s'écrit :

$$C_{ijkl} = \lambda \delta_{ij} \delta_{kl} + G(\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk}). \text{ Soit encore : } C_{ijkl} = G \left[ \frac{2\nu}{1-2\nu} \delta_{ij} \delta_{kl} + \delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk} \right] \text{ où } \nu$$

désigne le coefficient de Poisson du matériau.

Le module de cisaillement du matériau  $G$  est relié à son module de Young  $E$  et son coefficient de Poisson  $\nu$  par :  $G = \frac{E}{2(1+\nu)}$ . Le module  $E$  (introduit par Young en 1800) a la même dimension qu'une contrainte et se mesure généralement en Giga Pascal ( $1\text{GPa} = 10^9 \text{ N/m}^2$ ). Il représente la contrainte qu'il faudrait appliquer pour obtenir une déformation unité (100%) soit doubler la longueur initiale d'un barreau cylindre en traction simple. A ce jour, il n'existe pas de matériau pouvant subir linéairement une telle déformation. Très souvent, la ruine du matériau survient pour des niveaux de déformation bien plus faibles. Le coefficient de Poisson est un nombre positif sans dimension dont la valeur est comprise entre 0 et  $\frac{1}{2}$ . Dans une sollicitation de traction simple, c'est à un signe près le coefficient de proportionnalité entre les déformations perpendiculaire et parallèle à la direction de sollicitation.

### 1.2.1.2. Comportement plastique

Ce comportement se manifeste par une modification de la géométrie initiale de la pièce après suppression des efforts. On dit alors qu'une part de la déformation subie est irréversible ou plastique et on la note  $\varepsilon^p$ . L'expérience montre que ce mode de déformation ne survient que si la contrainte appliquée dépasse un seuil que l'on nomme limite d'élasticité ou seuil de plasticité du matériau noté  $\sigma_y$ . Lorsque avec la charge appliquée, la déformation augmente à une contrainte constante et égale à ce seuil : on parle de la plasticité parfaite. Pour de nombreux métaux, cette valeur limite de contrainte évolue avec le niveau de déformation plastique ( $\sigma_y = \sigma_y(\varepsilon^p)$ ). Il s'agit du phénomène d'écrouissage qui représente un

durcissement si dans le domaine plastique la courbe contrainte-déformation a une pente positive et un adoucissement sinon (figure 1-1).

D'une manière générale, dans le domaine des petits déplacements et petites déformations, le comportement du matériau sera décrit par une loi du type :  $\sigma_{ij} = C_{ijkl} (\varepsilon_{kl} - \varepsilon_{kl}^p)$  où  $\varepsilon^p$  représente le tenseur des déformations plastiques.

Pour les sollicitations multiaxiales, il faut définir une contrainte de comparaison à la contrainte limite obtenue en sollicitation uniaxiale. On utilise très souvent les contraintes équivalentes de von Mises ou de Tresca. Elles peuvent être calculées à partir des contraintes principales  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$  et  $\sigma_3$  (avec  $\sigma_1 \geq \sigma_2 \geq \sigma_3$ ).

En effet, effectuant des expériences sur le plomb, Tresca constate en 1870 que la déformation plastique s'initie en un point lorsque sur une facette passant par ce point, la cission (contrainte de cisaillement  $(\tau_0)_{\max} = \frac{1}{2}(\sigma_1 - \sigma_3)$ ) atteint une valeur limite caractéristique du matériau.

L'utilisation de cette contrainte de comparaison est bien adaptée à l'étude du comportement des métaux purs et de certains alliages. Cependant de nombreux essais ont souligné le rôle de la contrainte principale  $\sigma_2$  pour beaucoup de matériaux. La contrainte équivalente de von Mises prend en compte cette dernière et est définie par :

$$\sigma_{VM} = \frac{1}{\sqrt{2}} \sqrt{(\sigma_1 - \sigma_2)^2 + (\sigma_2 - \sigma_3)^2 + (\sigma_3 - \sigma_1)^2}$$

Après la suppression de l'effort à l'origine de la déformation plastique  $\varepsilon^p$  (figure 1-1), le matériau ne reprend pas sa forme initiale. Ce comportement plastique du matériau se manifeste aussi lors d'un essai de mesure de la dureté (indentation). Il s'agit d'appliquer par le biais d'une pointe supposée indéformable (rigide) et de géométrie connue, une charge  $F$  à la surface du matériau à étudier. Les différentes géométries de pointe d'indenteur couramment utilisées dans la caractérisation des matériaux, sont présentées dans la figure 1-2. La résistance à l'enfoncement du matériau encore appelée dureté et notée  $H$  est mathématiquement exprimée par le rapport de la charge appliquée  $F$  à l'aire projetée  $A$  de l'empreinte résiduelle obtenue, soit :

$$H = \frac{F}{A} \tag{1-2}$$

L'aire projetée  $A$  (par la suite  $H$ ) dépend de la géométrie de la pointe utilisée, donc du contact réalisé. Ainsi le problème du contact nécessite d'être élucidé.

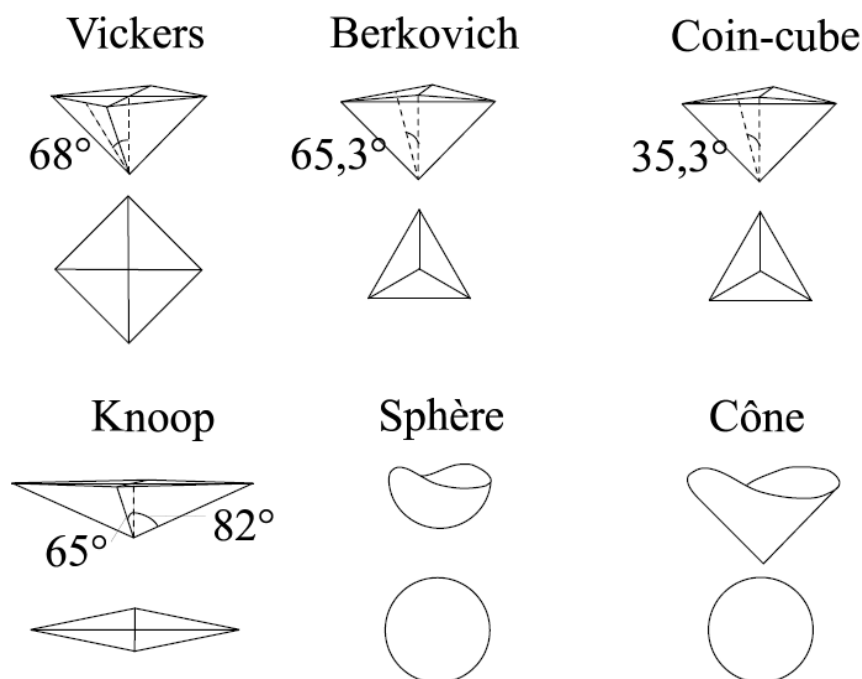


Figure 1-2 : les différentes géométries de la pointe d'indenteur couramment utilisées en indentation

### 1.2.2. Contact entre deux solides élastiques

Considérons deux solides occupant respectivement les domaines géométriques  $\Omega_1$  (de frontière  $\Gamma_1$ ) et  $\Omega_2$  (de frontière  $\Gamma_2$ ) (figure 1-3). Sous l'action de sollicitations extérieures, l'état d'équilibre du système constitué des deux solides est modifié. Dans cette nouvelle configuration, l'équilibre de chacun des solides est décrit de manière classique par :

$$\left\{ \begin{array}{ll} \sigma_{ij,j} = 0 & \text{dans } \Omega_a \ (a=1,2) \\ t_i = t_i^d & \text{sur } \Gamma_{ti} \\ u_i = u_i^d & \text{sur } \Gamma_{ui} \\ \text{contact} & \text{sur } \Gamma_c \end{array} \right. \quad 1-3$$

$\Gamma_{ti}$  et  $\Gamma_{ui}$  représentent respectivement les parties des frontières où les vecteurs contraintes et les déplacements sont imposés.  $\Gamma_c$  est le morceau de frontière du domaine courant dont les points sont susceptibles de rentrer en contact avec ceux du domaine en vis à vis.



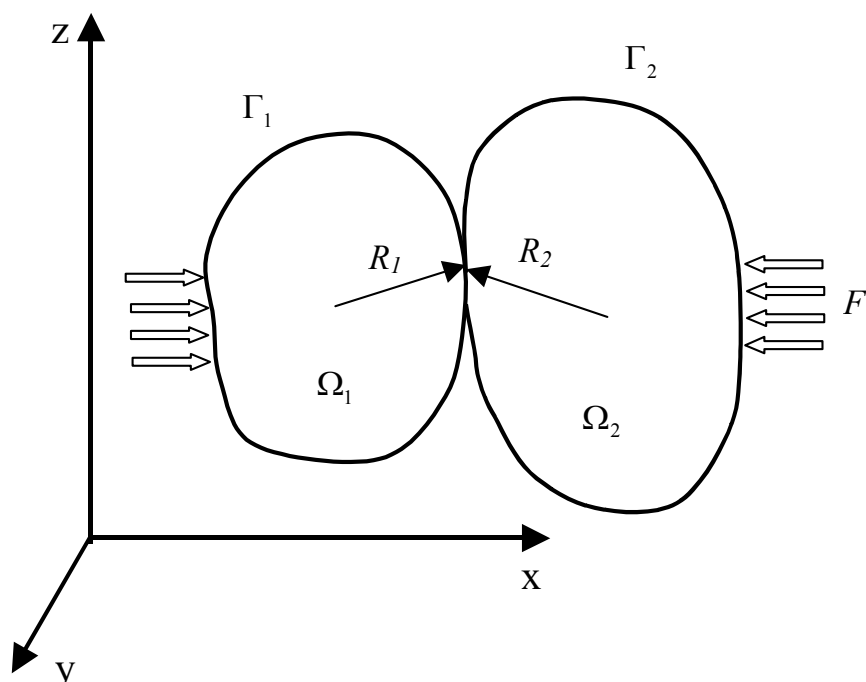


Figure 1-3 : Contact entre deux solides dans un repère cartésien.

Lorsque les deux solides entrent en contact sous l'application d'une sollicitation mécanique extérieure, ils se déforment localement pour créer une surface de contact sur laquelle se répartit l'effort dit de contact. La dimension caractéristique «  $a$  » de l'aire de contact est petite devant les rayons de courbure des deux corps. Soient  $\bar{F}$  la densité de charge à l'origine du contact et  $\bar{U}$  le champ de déplacement créé en un point de la surface de contact. L'équilibre du contact élastique se traduit par :

$$\text{grad}(\text{div}\bar{U}) + (1 - 2\nu)\Delta\bar{U} = 0 \quad 1-4$$

$$\sigma_{iz} = -F_i \text{ sur le plan } z = 0$$

Dans le domaine des petites déformations engendrées par le contact, le tenseur des contraintes ( $\sigma$ ) est donné par la loi de Hooke (Eq. 1-1) et celui des déformations  $\varepsilon$  par :

$$\varepsilon = \frac{1}{2} \left( \text{grad}\bar{U} + (\text{grad}\bar{U})^T \right) \quad 1-5$$

La solution analytique du problème défini ci-dessus a été initialement proposée par Hertz, dans le cas de deux sphères élastiques subissant de petites déformations. D'autres cas ont été considérés par Sneddon. Les solutions relatives aux divers cas pratiques sont consignées dans

le livre de KL Johnson [2]. Nous ne rappelons ci-après que les formules essentielles pour l'analyse du contact élastique entre deux solides de révolution (théorie de Hertz).

### 1.2.3. Contact entre deux solides élastiques : théorie de Hertz

Le problème de contact normal entre deux solides (de révolution) élastiques isotropes fut étudié par Hertz en 1882 [3] en observant l'évolution des franges d'interférences optiques (de Newton) de deux lentilles transparentes pressées l'une contre l'autre. Le détail de ces travaux peut être consulté dans de nombreux ouvrages (K.L. Johnson [2], Zaoui, Pineau et François [4]). Dans ce qui suit, nous ne rappelons que les résultats essentiels.

A) les hypothèses de la théorie de Hertz : On considère deux solides pressés l'un contre l'autre par une force normale  $F$ . Soient  $2a$  la largeur (diamètre) de la zone de contact,  $R_1$  et  $R_2$  les rayons de courbure respectifs des solides 1 et 2. Hertz fit les hypothèses suivantes :

1. Les surfaces de deux solides sont continues (suffisamment régulières) et non conformes.
2. Les déformations (déplacements) sont petites devant les dimensions des solides:  $a \ll R$
3. les solides sont considérés comme des demi espaces élastiques, linéaires et isotropes
4. Le frottement au contact entre les deux solides est négligé.

B) les équations de Hertz : Dans le cas de deux solides de révolution (figure 1-4), la surface de contact formée, sous l'application d'une charge normale  $F$ , est circulaire de rayon  $a$ . Ainsi, en coordonnées cylindriques classiques, le déplacement normal dans cette zone de contact est tel que :

$$U_z(r) = U_{z1}(r) + U_{z2}(r) = \delta - \frac{r^2}{2R} \quad 1-6$$

Avec  $r = x^2 + y^2$ ,  $U_{z1}(r)$  et  $U_{z2}(r)$  les déplacements normaux respectifs des solides 1 et 2 ;

$$\frac{1}{R} = \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \quad (R \text{ est le rayon de courbure équivalent des deux solides 1 et 2) \text{ et}$$

$\delta = U_{z1}(0) + U_{z2}(0)$  est le déplacement normal sur l'axe de symétrie.

Le champ de pression compatible avec ce profil de déplacement est donné par [2]:

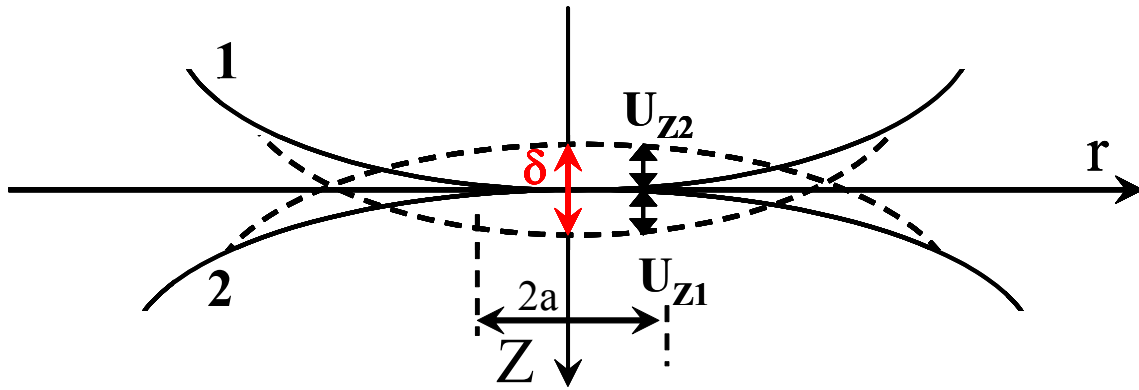


Figure 1-4 : contact entre deux solides de révolution (contact de Hertz).

$$p(r) = p_0 \left( 1 - \left( \frac{r}{a} \right)^2 \right)^{1/2} \quad 1-7$$

Où  $p_0$  est la pression maximale de contact.

Les expressions des déplacements et des contraintes résultant du contact élastique de Hertz sont rappelées en annexe. Les paramètres essentiels du problème qui sont la pression maximale, le rayon du disque de contact et le rapprochement relatif des deux solides sont donnés par :

$$p_0 = \left( \frac{6FE^{*2}}{\pi^3 R^2} \right)^{1/3}, \quad a = \left( \frac{3FR}{4E^*} \right)^{1/3} \quad \text{et} \quad \delta = \left( \frac{9F^2}{16RE^{*2}} \right)^{1/3} \quad 1-8$$

$E^*$  est le module équivalent et est tel que  $(1/E^* = 1 - \nu_1^2/E_1 + 1 - \nu_2^2/E_2)$ ,  $E_1$  (Resp.  $E_2$ ) et  $\nu_1$  (Resp.  $\nu_2$ ) sont respectivement le module élastique et coefficient du poisson du solide 1 (Resp. du solide 2) ;  $F$  la charge appliquée et  $R$  le rayon de la pointe sphérique.

Dans le cadre de l'élasticité linéaire infinitésimale, Hertz démontra que le problème du contact Sphère/Plan (figure 1-5) est un cas particulier de celui de deux solides paraboloidaux dont le rayon de l'un tend vers l'infini. Ainsi les équations de Hertz (1-6), (1-7) et (1-8) sont applicables dans le cas de l'indentation d'un massif homogène avec une sphère rigide. Dans ce cas, le module équivalent est donné par :

$$\frac{1}{E^*} = \frac{1-\nu_m^2}{E_m} + \frac{1-\nu_i^2}{E_i} \quad 1-9$$

Où  $E_m$ ,  $E_i$  et  $\nu_m$ ,  $\nu_i$  sont les modules élastiques et coefficient du poisson respectifs du matériau et de l'indenteur.

Introduisons  $h_e$  la pénétration élastique de la sphère dans le demi-espace, définie comme le déplacement élastique normal sur l'axe d'indentation ( $\delta = U_z(0)$ ). Pour des faibles déformations ( $a \ll R$ ), la pénétration élastique  $h_e$  et la charge normale appliquée au matériau ont pour expressions respectives :

$$h_e = \delta = \frac{a^2}{R} \quad 1-10$$

$$F = \frac{4}{3} \frac{E^*}{R} a^3 = \frac{4}{3} E^* R^{1/2} \delta^{3/2} \quad 1-11$$

La pression moyenne est définie comme le rapport de la charge appliquée  $F$  sur l'aire projetée de contact  $A$ . Ainsi, la pression moyenne résultant de la charge appliquée  $F$  (Eq.11-1) sur le matériau massif (demi-espace) par le biais d'une sphère rigide, évolue linéairement avec le rapport  $\frac{a}{R}$  dans le régime élastique comme suit :

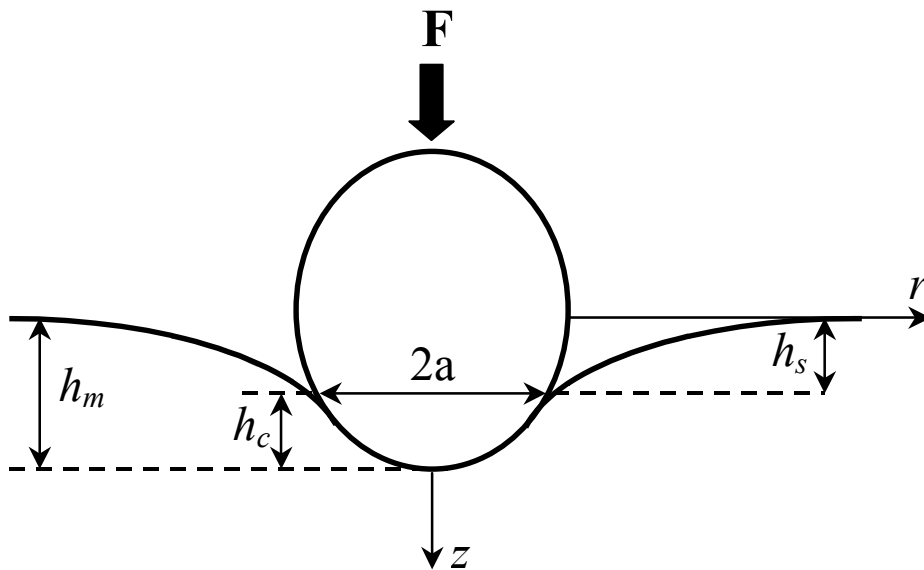


Figure 1-5 : Représentation schématique d'un contact Sphère rigide/plan (cas particulier du contact de Hertz).

$$P_m = \frac{F}{\pi a^2} = \frac{4}{3\pi} E^* \frac{a}{R} \quad 1-12$$

Au delà du domaine de déformation élastique, l'expression 1-12 n'est plus valable. On nomme dureté la valeur de la pression moyenne. L'utilisation des équations 1-10 et 1-11 donne aussi la possibilité de déterminer le module équivalent  $E^*$  du matériau à partir de la courbe charge/déplacement, à condition que celle-ci reste élastique. Ce dernier point constitue une limite conséquente à l'application des relations établies par Hertz. Dans le but de dépasser cette limitation et pouvoir extraire les propriétés mécaniques du matériau ayant subi une déformation plastique, des méthodes ont été établies en indentation instrumentée, comme celles de Loubet et al, de Doener et Nix, de Oliver et Pharr, de Field et Swain...

#### 1.2.4. L'indentation instrumentée (nanoindentation) de matériaux massifs élastoplastiques

L'essai d'indentation est utilisé depuis fort longtemps pour appréhender la résistance locale à la déformation d'un solide. Traditionnellement, il consiste à enfoncer un poinçon de géométrie parfaitement connue dans le milieu en appliquant une force normale  $F$ . Après suppression de la charge, il existe à la surface de l'échantillon une empreinte résiduelle dont l'aire  $A$  est utilisée dans la définition de la dureté  $H = F/A$ . Il faut remarquer que  $A$  peut désigner soit l'aire réelle de l'empreinte résiduelle, soit l'aire projetée. Dans l'approche traditionnelle, le point délicat de l'expérience est la détermination de  $A$ . Quelle que soit la géométrie du poinçon, on utilise la microscopie optique pour mesurer les dimensions de l'empreinte. Ainsi, aux inévitables erreurs expérimentales liées aux divers dispositifs de mesure s'ajoutent les erreurs de parallaxe liées au manipulateur. Une autre difficulté survient lorsque la taille de l'empreinte résiduelle est tellement petite que toute mesure de ses dimensions par microscopie optique est aberrante. Afin de palier ces inconvénients, d'autres méthodes d'analyse sont apparues dans les années 80 [5], [6] et [7]. Elles mettent à profit les avancées technologiques qui permettent un enregistrement en continu de l'évolution de la profondeur d'indentation en fonction de la charge appliquée. La courbe obtenue dans un cycle charge-décharge est en général appelée courbe d'indentation. La dureté et le module d'élasticité du matériau sont alors déterminés à partir de la courbe de décharge du matériau. Après une présentation du dispositif expérimental, nous rappelons ci-après les grandes lignes de la méthodologie d'analyse de l'essai.

## 1.2.4.1. Dispositif expérimental

La figure 1-6 est une représentation schématique d'un dispositif d'indentation instrumentée. Son principe est assez simple. Le poinçon (indenteur) repose sous une colonne d'indentation solidaire d'une bobine parcourue par un courant  $I$ . En faisant varier le courant  $I$ , on génère à l'intérieur de la bobine un champ magnétique qui interagit avec le champ magnétique de l'aimant permanent [8]. Ainsi la force  $F$  est appliquée par induction, ce qui permet de suivre sa valeur par le biais du courant circulant dans la bobine. Un capteur capacitif permet d'accéder à la mesure du déplacement absolu de la tête d'indentation au bout de laquelle se situe la pointe d'indentation. La colonne d'indentation est reliée au bâti par deux lamelles flexibles (ressorts) afin de faciliter le déplacement de la pointe d'indentation. Expérimentalement, on a accès à la charge appliquée  $F$  et à la pénétration d'indentation  $h$ .

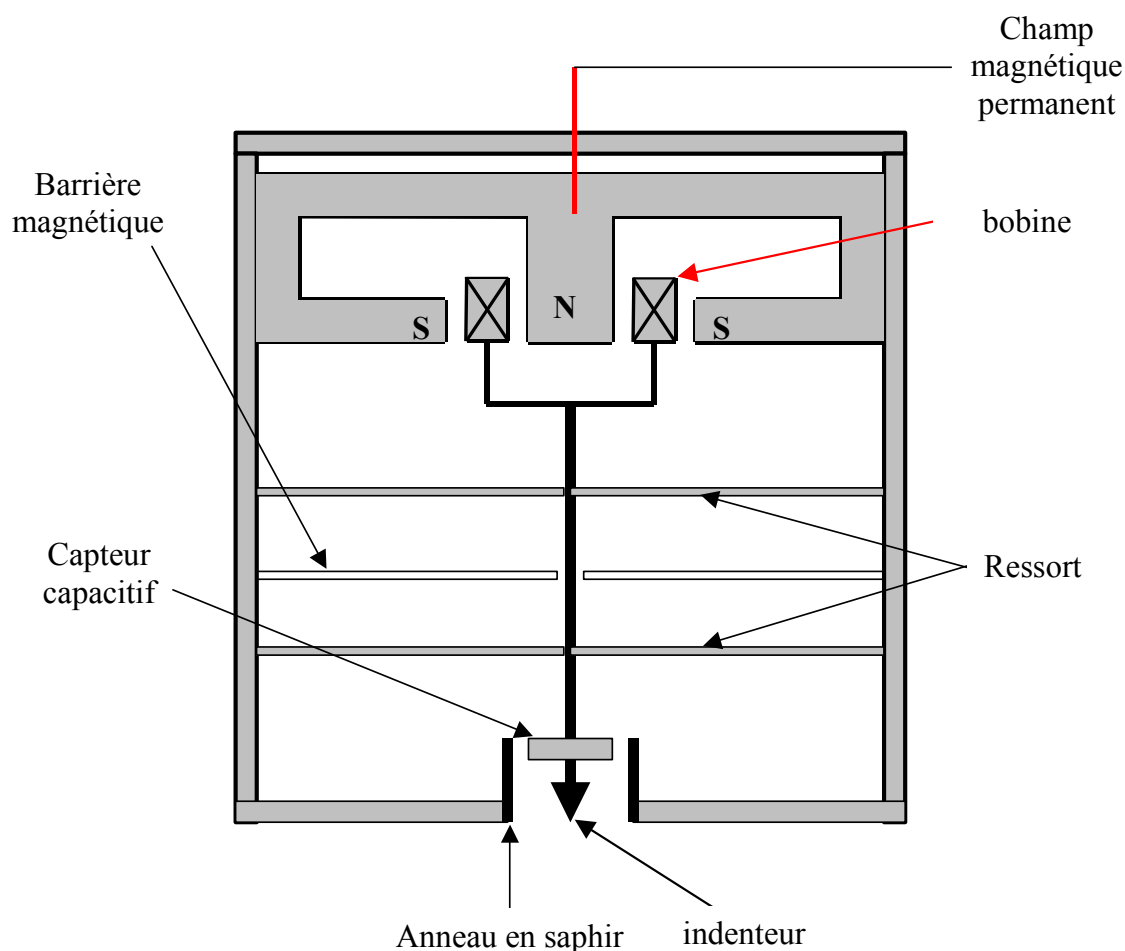


Figure 1-6 : Représentation schématique du dispositif expérimentale de la nanoindentation (ou indentation instrumentée).

Les essais d'indentation instrumentée réalisés au cours de ce travail de thèse ont été effectués à l'aide du Nano Hardness Tester (NHT) développé par la société CSM-Instrument (Centre Suisse de Microtechnique). Les résolutions annoncées pour ce dispositif sont de l'ordre de 0,3 nm en déplacement pour des déplacements ne pouvant dépasser 20  $\mu\text{m}$  et de 1  $\mu\text{N}$  en force pour des forces comprises entre 0,08 et 300 mN. Un inconvénient majeur de ces dispositifs serait la dérive thermique créée par le passage du courant dans la bobine.

Le NHT est posé sur une table anti-vibratoire qui permet d'amortir efficacement les vibrations extérieures. Il est muni aussi d'une table motorisée qui permet de déplacer l'échantillon sous un microscope optique ou sous un microscope à force atomique (AFM). Le microscope optique est muni de deux objectifs permettant deux agrandissements x50 et x1000. Il permet d'imager la zone à indenter de manière à la choisir la plus propre possible et également d'imager l'échantillon après indentation pour assurer une reconnaissance optique des empreintes les plus grosses. Le mouvement en X-Y étant assuré par une table motorisée, il est possible de programmer des réseaux de plusieurs centaines d'indentations à différentes charges sur des aires de plusieurs  $\text{mm}^2$ . L'AFM permet un relevé topographique de l'empreinte résiduelle. Une analyse fine de cette image topographique permet de préciser les mécanismes réels (déformation plastique, fissuration ou délaminage) qui se produisent à l'échelle nanométrique dans l'échantillon [9] et [10].

Lors de l'indentation, la tête de mesure est amenée au contact de l'échantillon. Le contact entre la tête et l'échantillon est assuré par une bague d'environ 8 mm (figure 1-5) de diamètre qui sert de référence au déplacement. L'indenteur est ensuite lentement amené au contact à des vitesses comprises entre 500 et 3000 nm/min. Lorsque le système détecte une variation de pente de la courbe déplacement-temps, l'indentation commence. On acquiert alors une série de couples force-profondeur de pénétration permettant de construire la courbe d'indentation dont l'allure générale est représentée sur la figure 1-7.

De cette courbe, on extrait la dureté et le module d'élasticité en indentation du matériau. Ces grandeurs sont déterminées à partir de la phase de décharge de la courbe d'indentation. On considère que cette décharge est élastique et on applique les résultats du contact élastique entre deux solides. Cet avantage de pouvoir accéder aux propriétés élastiques et plastiques du matériau sans recourir à l'image de l'empreinte résiduelle, a suscité un engouement particulier dans le monde scientifique. Ainsi de nouveaux modèles ont vu le jour dans la littérature.

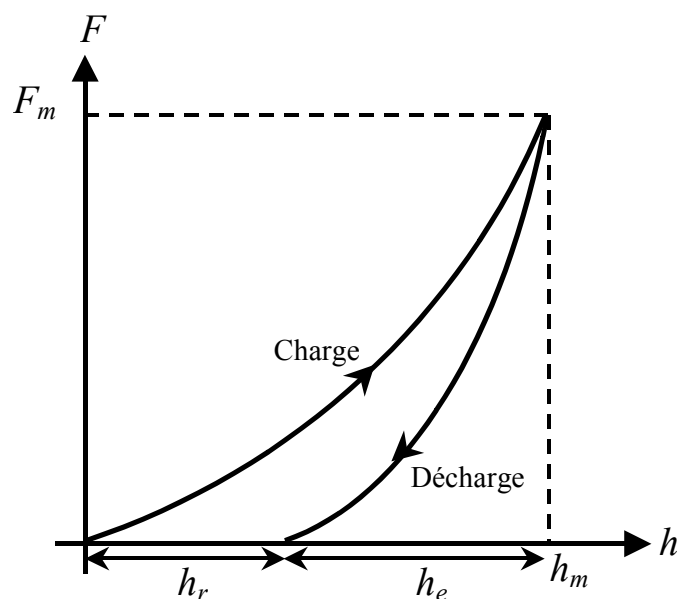


Figure 1-7 : Courbe charge/décharge typique issue d'indentation :  $F_m$  est la charge maximale appliquée et  $h_e$ ,  $h_m$  et  $h_r$  sont respectivement les profondeurs élastique, maximale et résiduelle.

#### 1.2.4.2. Analyse des courbes charge/déplacement d'indentation instrumentée

L'analyse des courbes charge-décharge (figure 1-7) d'indentation instrumentée repose sur la bonne détermination de l'aire de la surface de contact  $A$ . Les méthodes de détermination de l'aire de contact  $A$ , par conséquent de la dureté et l'extraction du module d'élasticité du matériau indenté à partir de la courbe de décharge, sont fondées sur les équations de contact de Sneddon [2] et de Hertz [11, 12]. L'objectif principal consiste à pouvoir séparer les contributions élastique et plastique de la réponse du système afin de rendre possible le traitement de la partie élastique à l'aide des équations analytiques fournies par Hertz et Sneddon. La validité des résultats pour la dureté et le module de Young dépendent largement de la procédure utilisée. Ainsi dans cette partie, trois méthodes d'analyse des courbes d'indentation seront présentées : la méthode de Doerner et Nix, ainsi que les plus récentes en occurrence la méthode de Oliver et Pharr et celle de Field et Swain. Nous présentons ensuite les méthodes de corrections des données d'indentation. Enfin nous énumérons quelques limitations des méthodes d'analyse suivies des modifications suggérées pour contourner les problèmes qui y sont associés.



## 1.2.4.2.1 La méthode de Doener et Nix

Durant l'essai d'indentation, le déplacement instantané de l'indenteur (pénétration  $h$ ) est la somme du déplacement plastique et du déplacement élastique de l'échantillon. Dans le calcul de l'aire de contact, assimilé la profondeur d'indentation finale  $h_F$  (appelée aussi profondeur d'indentation résiduelle  $h_r$ ) à la profondeur de contact  $h_p$  entraîne une sous-estimation systématique de la dureté. Afin d'obtenir le déplacement plastique seul, la contribution élastique au déplacement doit être estimée, puis soustraite du déplacement total observé à cette même charge. L'observation des courbes expérimentales montre que la courbe de décharge est linéaire [13]. Ainsi, ces auteurs supposent que le comportement élastique du contact d'indentation est similaire à celui du contact entre un poinçon cylindrique plat et un demi espace élastique durant toute la décharge (figure 1-8). Dans ce cas l'aire de contact reste

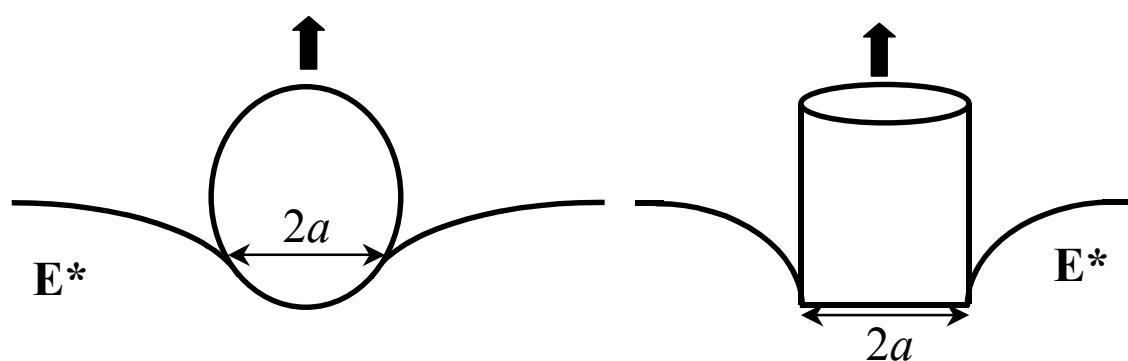


Figure 1-8 : L'équivalence entre la décharge d'un indenteur de géométrie quelconque et celle d'un poinçon plat de même rayon de contact.

constante durant toute la décharge de l'indenteur. La décharge étant supposée linéaire dans cette gamme de profondeur, il suffit de tracer une droite tangente à la portion linéaire de la courbe de décharge à partir de la charge maximale appliquée. L'intersection de cette droite avec l'axe horizontal correspond alors à la profondeur plastique  $h_p$  (appelé aussi profondeur de contact  $h_c$ ) (figure 1-9). Par convention, la droite sera ajustée sur le premier tiers de la courbe de décharge.

A partir de la pente de cette droite, il est donc possible d'estimer le module de retour élastique correspondant à l'essai effectué. En effet si l'aire de contact reste effectivement constante au début de la décharge, le déplacement élastique peut être estimé à partir des solutions analytiques de Sneddon, pour un indenteur de type poinçon plat [14,15]. La pente  $S$  de la droite de décharge pour un indenteur quelconque est ainsi donnée par l'expression suivante :

$$S = \frac{dF}{dh} = 2aE^* = \frac{2}{\sqrt{\pi}} E^* \sqrt{A} \quad 1-13$$

Où  $E^*$  est le module équivalent relié au module élastique du matériau indenté par l'expression 1-9,  $a$  (resp.  $A$ ) est le rayon (resp. l'aire) du contact.

Remarquons que, dans le cas d'un indenteur sphérique, la dérivation de l'équation 1-11 (théorie de Hertz) donne aussi l'expression 1-13.

En supposant que la géométrie de l'indenteur soit connue avec précision, il est alors possible de déterminer l'aire de la surface de contact  $A$  à partir de  $h_p$  et de s'affranchir ainsi de l'observation directe de l'empreinte résiduelle.

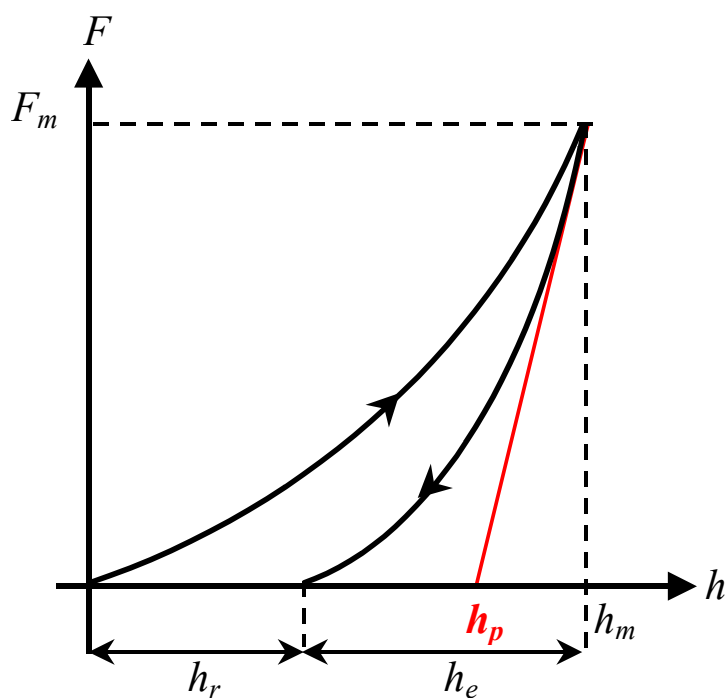


Figure 1-9 : Courbe charge/décharge typique issue d'indentation : méthode de Doerner et Nix

Néanmoins, l'approximation utilisée par Doerner et Nix concernant le calcul de l'aire de contact n'est pas satisfaisante pour de nombreux matériaux élastoplastiques écrouissables, viscoélastoplastiques où la courbe de décharge n'est pas totalement linéaire. D'où la nécessité d'une bonne modélisation de la courbe de décharge afin de formuler une expression décrivant l'aire de contact de façon plus précise.

## 1.2.4.2.2. La méthode de Oliver et Pharr

En observant des données expérimentales d'indentation menées sur un grand nombre de matériaux, Oliver et Pharr [16] montrent que les courbes d'indentation sont rarement linéaires même au stade initial de la décharge. Ils proposent alors d'ajuster la courbe de décharge par une loi de type puissance [16]:

$$F = B(h - h_r)^m \quad 1-14$$

Où  $F$  est la charge instantanée,  $h$  le déplacement de l'indenteur (profondeur d'indentation),  $h_r$  profondeur résiduelle d'indentation,  $B$  et  $m$  sont des constantes ajustables en fonction des données expérimentales. L'idée d'utiliser ce type de loi, est de se donner la possibilité d'accéder à la raideur de contact à la décharge c'est-à-dire la pente  $S$  de la courbe de décharge à la charge maximale (figure 1-10). Ainsi, un simple calcul de dérivation permet d'évaluer la raideur de contact  $S$  au point de la charge maximale par :

$$S = \left( \frac{dF}{dh} \right)_{h=h_m} = Bm(h_m - h_r)^{(m-1)} \quad 1-15$$

$h_m$  et  $h_r$  sont respectivement des profondeurs d'indentation maximale et résiduelle.

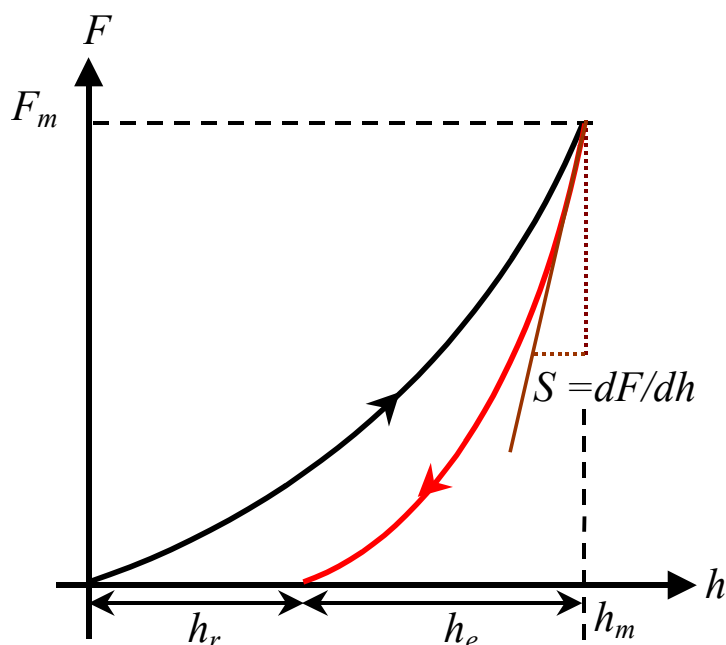


Figure 1-10 : Courbe charge/décharge typique issue d'indentation : méthode de Oliver et Pharr.

Il est donc possible d'accéder à partir des données expérimentales aux trois paramètres  $F_m$ ,  $h_m$  et  $S$ . L'importante limitation de cette méthode est liée au fait que finalement un seul point de la courbe est utilisé. Si l'on cherche à obtenir des mesures à différentes profondeurs, il faut réaliser plusieurs essais successifs. Connaissant la raideur de contact  $S$ , l'étape suivante est la détermination du rayon de contact. Oliver et Pharr introduisent la profondeur de contact  $h_p$  sur laquelle l'indenteur est en contact avec la surface du matériau et la hauteur  $h_s$  qui traduit la déflexion élastique du matériau. Par définition de ces deux grandeurs et de la pénétration  $h_m$  (figure 1-5), ils écrivent :

$$h_s = h_m - h_p \quad 1-16$$

Dans cette équation, seul  $h_m$  est mesurable expérimentalement. Ainsi pour résoudre le problème Oliver et Pharr font l'hypothèse suivante : La déflexion  $h_s$  de la surface à l'extérieur de la zone de contact est supposée de nature purement élastique (figure 1-5). Evidemment valide dans le cas d'un contact purement élastique, cette hypothèse n'est vraie, dans le cas d'un contact élastoplastique, que si l'on considère un point de la surface éloigné de la zone plastique. Sinon, cela revient à supposer que la déformation plastique est confinée sous le contact. Oliver et Pharr se placent donc dans le cas d'un matériau homogène, élastoplastique linéaire et font l'hypothèse que le comportement plastique du matériau indenté est de type « sink-in ». A partir des solutions de Sneddon, ils établissent la formule suivante [16]:

$$h_p = h_m - \alpha \frac{F_m}{S} \quad 1-17$$

Où  $\alpha$  est un paramètre traduisant la géométrie de la pointe :  $\alpha = \frac{2}{\pi}(\pi - 2)$  pour une cône,  $\alpha = 0,75$  pour une sphère (et tout indenteur paraboloidal de révolution pouvant être approximé par une sphère aux faibles profondeurs) et  $\alpha = 1$  pour un poinçon plat [14]. Des observations empiriques de meilleures approximations de courbes de décharge pour un indenteur paraboloidal, montrent que  $\alpha = 0,75$  est une valeur standard et recommandée dans les analyses d'indentation. Récemment des travaux analytiques [17 18 19 20] ont prouvé ces observations. Si la profondeur plastique  $h_p$  est bien calculée, connaissant la géométrie de la pointe, il est alors facile d'évaluer l'aire de la surface de contact et par la suite de déterminer les propriétés mécaniques du matériau (module élastique et dureté).

Faisant l'hypothèse que la décharge infinitésimale d'un indenteur axisymétrique quelconque est décrite par les mêmes équations que la décharge d'un poinçon plat de même aire de contact (figure 1-8), le module élastique réduit  $E^*$  peut être donné par l'expression 1-13. Ensuite Oliver et Pharr montrent que cette expression 1-13 peut être appliquée pour n'importe quel type d'indenteur (Sphère, Vickers, Berkovich...). Ainsi ils proposent l'équation suivante :

$$E^* = \frac{1}{2\beta} \sqrt{\pi} \frac{S}{\sqrt{A}} \quad 1-18$$

Où  $A = 24,5h_p^2$  est l'aire de contact pour un Berkovich parfait (indéformable) 1-19

$A = \pi a^2 = \pi(2Rh_p - h_p^2)$  est l'aire de contact pour une sphère parfaite (indéformable) 1-20

$\beta$  est un coefficient correcteur qui compense la non axisymétrie de l'indenteur et  $S$  la raideur de contact donnée par l'équation 1-15.

Le facteur  $\beta$  a fait l'objet de plusieurs études. En effet, King [21] a montré par méthode des éléments finis que le facteur  $\beta = 1,012$  et  $1.034$  respectivement pour un indenteur de Berkovich et de Vickers. Tout récemment, Woirgard et al [20] ont prouvé que  $\beta = 1.0615$  pour un indenteur de Berkovich et  $\beta = 1.0215$  pour celui de Vickers.

Connaissant la forme exacte de la pointe, Oliver et Pharr expriment la dureté par :

$$H = \frac{F}{A} \quad 1-21$$

Avec  $F$  la charge appliquée et  $A$  l'aire de la surface de contact projetée. La dureté ainsi définie peut fournir une valeur différente de celle obtenue par la méthode classique d'indentation qui repose sur le rapport entre la force appliquée et la surface de l'empreinte résiduelle. En effet, cette définition de la dureté prend en compte à la fois la déformation plastique et la déformation élastique. De ce fait, la dureté de Oliver et Pharr tient plus de la pression élastoplastique moyenne dans le contact que de la dureté au sens classique (définie en indentation macroscopique).

## 1.2.4.2.3. La méthode de Field et Swain

Nous avons vu que la méthode de Oliver et pharr utilise la pente à la charge maximale de la portion de la décharge pour déterminer la profondeur de déflexion  $h_s$  et par la suite la profondeur plastique  $h_p$  (appelée aussi profondeur de contact  $h_c$ ). Introduite pour l'indentation sphérique, la méthode d'analyse de Field et Swain [22] privilégie la décharge partielle durant toute la phase du chargement au lieu d'une seule décharge totale à partir de la charge maximale. En effet l'approche de Field et Swain vise aussi à découpler les contributions élastique et plastique, de façon à se placer dans les conditions où l'approximation du comportement élastique est possible afin d'utiliser les équations de Hertz et calculer la profondeur plastique.

Considérons l'application instantanée d'une charge normale  $F$  à un matériau  $(E_m, \nu_m)$  initialement plat par le biais d'un indenteur sphérique. Durant le chargement, il peut avoir une réponse élastique aux faibles charges suivie de déformations élastoplastiques aux charges élevées. Soit  $h_m$  la profondeur de pénétration de l'indenteur sphérique rigide dans le matériau ayant subi une déformation élastoplastique à la charge maximale  $F_m$  (figure 1-11). Lorsque la charge est enlevée, s'il n'y a aucune relaxation plastique durant la décharge, cette dernière est élastique et une empreinte de profondeur  $h_r$  demeure après la décharge complète (figure 1-11 (A) et (B)). Si la charge  $F_m$  est réappliquée, le chargement est élastique avec une profondeur élastique :

$$h_e = h_m - h_r . \quad 1-22$$

Field et Swain font l'hypothèse suivante : une décharge partielle à partir d'une charge  $F_m$  (de profondeur correspondante  $h_m$ ) jusqu'à une charge partielle  $F_d$  (de profondeur correspondante  $h_d$ ) équivaut à un chargement élastique de  $F_d$  à  $F_m$ . Ainsi en utilisant les résultats de Hertz (expressions 1-10 et 1-11), ils établissent l'expression suivante :

$$E^* = \frac{3}{4} \frac{F}{a(h_m - h_r)} \quad 1-23$$

Où  $E^*$  est le module élastique équivalent,  $F$  la charge appliquée,  $a$  le rayon du cercle de contact et  $h_m$  et  $h_r$  sont les profondeurs d'indentation respectivement maximale et résiduelle correspondantes.

Par définition de la déflexion  $h_s$ , la profondeur plastique  $h_p$ , et de la profondeur de pénétration  $h_m$  (figure 1-11 B), Field et Swain écrivent la relation suivante:

$$h_p = h_m - h_s \quad 1-24$$

Où on considère que la décharge à partir de la profondeur  $h_m$  jusqu'à la profondeur résiduelle  $h_r$  est purement élastique. Les équations de Hertz pour un indenteur sphérique, montrent que la distance séparant la surface libre du matériau au cercle de contact (appelé déflexion  $h_s$ ) est égale à la moitié de la profondeur élastique  $h_e$ .

$$h_s = \frac{h_e}{2} \quad 1-25$$

Des expressions 1-22, 1-23 et 1-25, Field et Swain établissent la relation :

$$h_p = \frac{h_m + h_r}{2} \quad 1-26$$

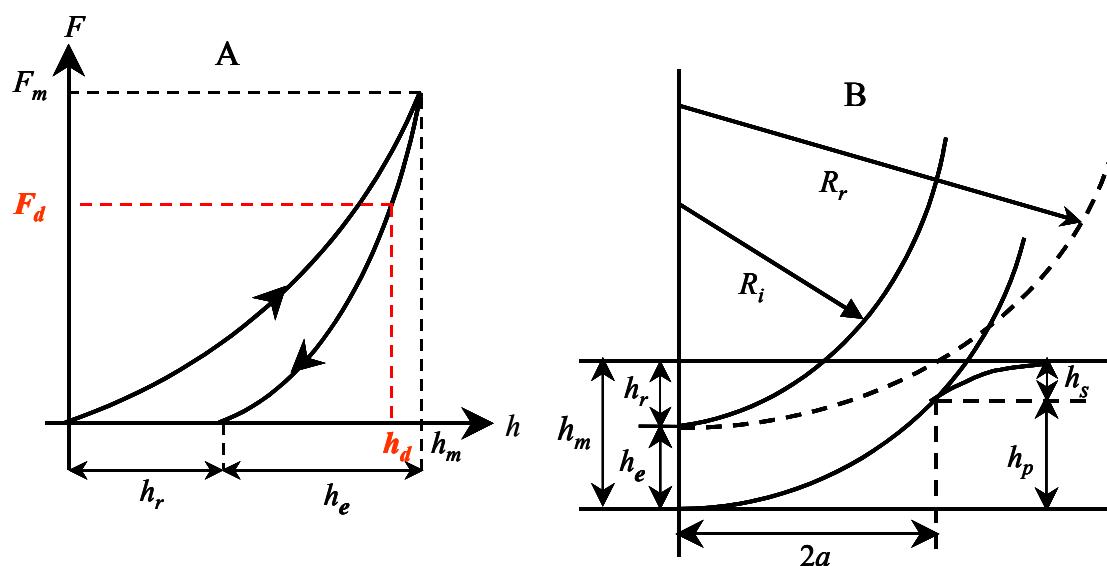


Figure 1-11 : (A) courbe charge décharge d'un matériau élastoplastique indenté à l'aide d'une pointe sphérique de rayon  $R$  et (B) l'empreinte résiduelle correspondante.

Une fois que  $h_p$  est déterminée, il est facile, dans le cas d'une pointe sphérique, de calculer le rayon de contact  $a$  et l'aire de contact  $A$ .

$$A = \pi a^2 \quad \text{Avec } a = (2Rh_p - h_p^2)^{1/2} \quad 1-27$$

La profondeur  $h_m$  est une quantité mesurable expérimentalement. Si  $h_r$  est connue, alors il devient facile, d'une part de calculer  $h_e$  (Eq. 1-22) conduisant à la détermination de la valeur de  $E^*$  (Eq. 1-23) et d'autre part obtenir  $h_p$  (Eq. 1-26) permettant d'accéder à la pression moyenne de contact (ou dureté  $H$ ) par le biais des équations 1-21 et 1-27. Lorsque l'indenteur est totalement déchargé, la mesure expérimentale de  $h_r$  consiste à prendre la profondeur d'indentation à laquelle la charge s'annule. Cette procédure ne garantit pas une réponse purement élastique du fait que les contraintes résiduelles peuvent entraîner des relaxations plastiques dans le matériau. L'alternative de la mesure directe de  $h_r$  à la charge nulle (après la décharge totale), est donc l'hypothèse de la décharge partielle de l'indenteur à partir de la charge totale  $F_m$  jusqu'à la charge  $F_d$ . L'essai d'indentation instrumentée donne directement les valeurs de charge appliquée  $F$  et profondeur correspondante  $h$ . Ainsi,  $F_m$ ,  $h_m$ ,  $F_d$  et  $h_d$  sont des quantités mesurables. La profondeur résiduelle  $h_r$  est obtenue par Field et Swain en faisant le rapport du déplacement élastique calculé à  $F_m$  sur celui évalué à  $F_d$  comme suit :

$$h_e = h_m - h_r = \left[ \left( \frac{3}{4E^*} \right)^{2/3} \frac{1}{R^{1/3}} \right] F_m^{2/3}$$

$$h_d - h_r = \left[ \left( \frac{3}{4E^*} \right)^{2/3} \frac{1}{R^{1/3}} \right] F_d^{2/3}$$

$$\frac{h_m - h_r}{h_d - h_r} = \left( \frac{F_m}{F_d} \right)^{2/3} \quad 1-28$$

$$h_r = \frac{h_d (F_m/F_d)^{2/3} - h_m}{(F_m/F_d)^{2/3} - 1}$$

Particulièrement pour des pointes sphériques, les deux méthodes précédentes de Field et Swain et Oliver et Pharr sont toutes issues de l'équation de contact élastique de Hertz (Eq. 1-11). En effet, pour ce type de pointe, il a été récemment montré l'équivalence entre les deux méthodes [18 23]. La différence entre les deux méthodes est que : Field et Swain modélisent une paire de données (charge maximale et quelque pourcentage de la décharge) avec l'équation de Hertz ; alors que Oliver et Pharr modélisent la pente à la décharge initiale avec la dérivée de l'équation de Hertz. Ainsi le choix de l'utilisation d'une des deux méthodes dépend des circonstances de tests.



## 1.2.4.3. Correction des données issues d'indentation instrumentée

La validité des valeurs de dureté et module de Young résultant des précédentes méthodes, dépend largement des corrections apportées aux erreurs systématiques identifiées pour le test d'indentation instrumentée. Ainsi quatre facteurs (les plus significatifs) peuvent être considérés.

## 1.2.4.3.1 La profondeur initiale d'indentation

Le point important de la procédure d'analyse du test d'indentation instrumentée est la détermination du premier point de contact (donc de la pénétration initiale de contact  $h_i$ ) entre la pointe et le matériau. La signification de la profondeur initiale de contact (relative du niveau de la charge initiale de contact) dépend du niveau de la charge maximale appliquée. En effet la plus faible charge qui peut être détectée par un nanoindenteur est de l'ordre de 2 à 10  $\mu\text{N}$ . A un tel niveau de charge, correspond déjà une pénétration de quelques nanomètres. Cette dernière doit être évaluée et ajoutée aux valeurs du déplacement. Dans le cas d'une pointe sphérique, il suffit d'utiliser les équations de Hertz pour modéliser la portion initiale de la courbe de charge résultant de la déformation purement élastique. L'intersection de l'extrapolation de cette portion modélisée avec l'axe horizontal ( $F = 0$ ), donne la valeur de la profondeur initiale  $h_i$  (figure 1-11). La profondeur d'indentation  $h$  doit être corrigée en ajoutant à toutes les données expérimentales la profondeur  $h_i$  comme suit :

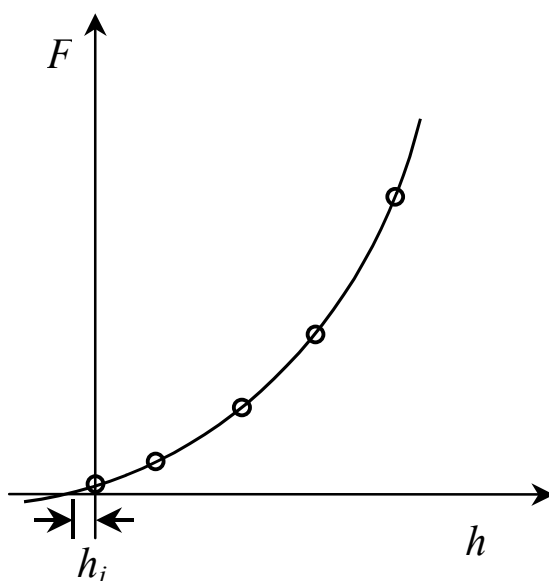


Figure 1-12 : Détermination de la profondeur initiale de pénétration par extrapolation de la courbe de charge à  $F$  égale à zéro.

$$h' = h + h_i. \quad 1-29$$

Où  $h'$  est la valeur corrigée de la profondeur d'indentation ;  $h$  la profondeur d'indentation donnée directement par l'instrument de mesure d'indentation.

#### 1.2.4.3.2 La complaisance du bâti de nanoindentation instrumentée :

La complaisance du contact (l'inverse de la raideur de contact  $S$ ) mesurée sur une courbe d'indentation, contient à la fois la contribution des réponses élastiques du matériau et l'instrument de mesure. Elle s'écrit ainsi comme la somme de la complaisance élastique du matériau et de celle de la machine par :

$$\frac{dh}{dF} = \frac{1}{S} + C_m \quad 1-30$$

Avec  $\frac{1}{S}$  la complaisance du matériau donnée par l'inverse de la raideur de contact et  $C_m$  la complaisance du bâti qui contient toutes les contributions issues de la charge du bâti, de la tige de l'indenteur et du support de l'échantillon. Pour corriger l'effet du bâti, la complaisance  $C_m$  doit être mesurée et soustraire de  $\frac{dh}{dF}$  (l'inverse de la pente décharge à charge maximale).

Si on prend une pointe parfaite de type Berkovich, la complaisance élastique du matériau est donnée comme suit :

$$\frac{1}{S} = \left[ \sqrt{\frac{\pi}{24,5}} \frac{1}{E^*} \right] \frac{1}{2h_p} \quad 1-31$$

La mesure de la complaisance du bâti revient à tracer  $\frac{dh}{dF}$  en fonction de  $\frac{1}{h_p}$  (pour une pointe

de Berkovich) ou en fonction de  $\frac{1}{h_p^{1/2}}$  (pour une pointe sphérique). D'après l'équation 1-18, ce

tracé est linéaire (avec une pente proportionnelle à  $1/E^*$ ) dont l'intersection avec l'axe horizontale donne directement la valeur de la complaisance du bâti  $C_m$ . La meilleure façon de mesurer et vérifier la valeur  $C_m$  est de mener une série de tests aux différentes charges sur un matériau assez rigide (par exemple du Saphir). La complaisance typique  $C_m$  d'un

nanointendeur comme le NHT (Nano Hardness Tester) est bien calibrée et égale à 0,2 nm/mN.

#### 1.2.4.3.3 La nature de l'indenteur

En pratique, les indenteurs sont en diamant afin qu'ils soient plus durs que le matériau d'essai. Dans le cas inverse (matériau plus dur que la pointe), la déformation plastique peut se produire dans l'indenteur plutôt que dans le matériau. Or l'aire projetée de contact est exprimée (Eq. 1-9 et 1-20) en considérant que la géométrie de l'indenteur est idéale, chose impossible à atteindre en pratique, particulièrement avec un indenteur sphérique de rayon inférieur à 10  $\mu\text{m}$  [23]. D'où la nécessité d'ajouter des facteurs correctifs aux équations 1-9 et 1-20 afin de prendre en compte l'imperfection de la géométrie des pointes. La fonction d'aire de contact corrigée pour un Berkovich non parfait est donnée par :

$$A = C_1 h_p^2 + C_2 h + C_3 h_p^{1/2} + C_4 h_p^{1/4} + \dots + C_8 h_p^{1/128} \quad 1-32$$

Où  $C_1 = 24,5$  et les coefficients  $C_2$  à  $C_8$  sont des corrections dues à la déviation à la forme parfaite de l'indenteur.

Une méthode indirecte de correction de la fonction d'aire de contact  $A$  consiste à faire une série d'indentations (à différentes charges maximales) sur un matériau standard dont le module élastique et le coefficient de poisson sont connus. Si  $E^*$  est connu, l'aire de contact actuelle à chaque charge est donnée pour une pointe sphérique par :

$$A = \pi \left[ \frac{3}{4} \frac{F}{E^* (h_m - h_r)} \right]^2 \quad 1-33$$

A chaque test du matériau de référence,  $A$  et  $h_p$  sont calculées et la fonction d'aire de contact est exprimée comme le rapport de l'aire actuelle  $A$  de contact sur l'aire idéale d'indentation  $A_i$  (Eq. 1-27). Ainsi, la dureté et le module de Young du matériau testé peuvent être corrigés par :

$$H = \frac{F}{\pi a^2} \frac{A_i}{A} \quad 1-34$$

$$E^* = \frac{3}{4} \frac{F}{a(h_m - h_r)} \sqrt{\frac{A_i}{A}} \quad 1-35$$

Où  $a$  est le rayon de contact,  $h_m$  la profondeur d'indentation à la charge maximale  $F_m$  et  $h_r$  est la profondeur résiduelle donnée par l'expression 1-28. La valeur  $A/A_i$  supérieure à 1 indique que l'indenteur a un rayon plus large que sa valeur nominale. De même la valeur  $A/A_i$  inférieure à l'unité indique que l'aire de contact est inférieure à celle idéale par conséquent l'indenteur a un rayon plus petit que sa valeur nominale.

#### 1.2.4.4. Limitations des méthodes d'analyse d'indentation

Les méthodes de Oliver et Pharr, de Field et Swain, permettent de déterminer le module élastique et la dureté des matériaux testés. Cependant toutes les deux considèrent une décharge purement élastique en négligeant toute relaxation plastique.

##### 1.2.4.4.1 Limitation de la méthode de Oliver et Pharr

a) Problème de pile-up : Le paramètre clé de tout le contact sur un matériau massif est le rayon de la zone de contact  $a$ . Oliver et Pharr évaluent  $a$  sous l'hypothèse de la déflexion élastique du matériau indenté (seul le comportement en « sink-in » est considéré), alors qu'on rencontre couramment dans la pratique le phénomène de pile-up (formation de bourrelets plastique autour de la pointe) lorsqu'on s'intéresse à des matériaux très mous. Ainsi le rayon de contact  $a$  est sous évalué (figure 1-13). Cela induit une surestimation conséquente de la valeur de module de Young  $E^*$  (proportionnel à  $a$ ) et surtout de la dureté  $H$  (proportionnelle à  $a^2$ ) [24]. Néanmoins, dans le cas de l'indentation avec un cône, Bolshakov et Pharr ont montré par la méthode des éléments finis que si le retour élastique reste supérieur à 30% ou si un phénomène non-négligeable d'écrouissage a lieu, le phénomène de pile-up reste négligeable [25]. Une alternative, dans le cas où le phénomène de pile-up n'est pas négligeable, est la possibilité d'évaluer l'aire de contact à la charge maximale en imageant l'empreinte résiduelle de l'indent après décharge. De telles approches rencontrent le même problème de la mesure de la raideur de contact par la méthode de décharge. Un point unique de mesure est fourni par une courbe d'indentation. Afin de pouvoir effectuer des mesures tout au long du chargement, diverses pistes de recherche sont actuellement explorées [26 27 28]. Une autre difficulté survient lorsque la taille de l'empreinte résiduelle est tellement petite que toute mesure de ses dimensions par microscopie optique est aberrante.

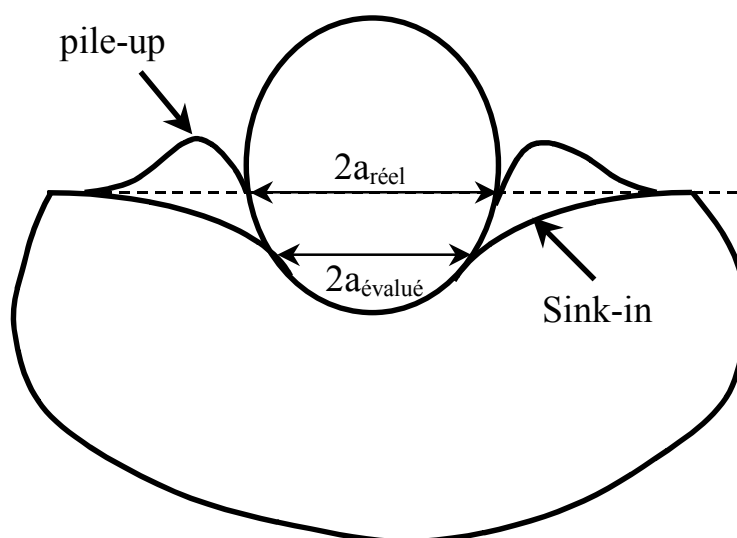


Figure 1-13 : Représentation schématique de la sous estimation de rayon de contact en présence du pile-up.

**b) la non axisymétrie de l'indenteur :** L'autre limitation de l'approche de Oliver et Pharr est la généralisation de l'équation 1-13 (formulée pour les indenteurs axisymétriques) aux indenteurs qui ne sont pas parfaitement axisymétriques (Berkovich, Vickers...). Pour corriger ce phénomène, Oliver et Pharr ont introduit un coefficient correctif  $\beta$  (Eq. 1-18). Cependant les valeurs qu'ils proposent dans la publication décrivant leur méthode [16] sont tirées des travaux de King [21] où elles sont évaluées au moyen de simulations par la méthode des éléments finis d'indentation élastique. Depuis, de nombreux auteurs portent une attention particulière à l'évaluation de ce coefficient [29 30]. Leurs travaux ont montré une certaine dépendance de la valeur  $\beta$  au coefficient de Poisson du matériau indenté. D'après une étude récente de Oliver et Pharr,  $\beta$  est compris entre 1,02 et 1,08 pour un indenteur de type Berkovich [18].

#### 1.2.4.4.2 Limitation de la méthode de Field et Swain

Dans l'approche de Field et Swain, les équations de Hertz sont appliquées à la décharge élastique afin d'extraire les propriétés mécaniques. D'un côté, les équations de Hertz sont basées sur les hypothèses où la profondeur d'indentation doit être très petite devant le rayon du cercle de contact ( $h \ll a$ ). Ainsi les valeurs de  $E^*$  déduites de ces équations (Eq. 1-10 et 1-11) deviennent invalides lorsque le rapport de la profondeur d'indentation sur le rayon de contact augmente. L'expression 1-28 est valide si seulement les valeurs de  $E^*$  et de  $R$  sont constantes et indépendantes de la charge appliquée ou de la profondeur de pénétration.

L'erreur introduite est plus sévère pour les matériaux ayant un large recouvrement élastique. Pour les métaux où le recouvrement élastique ( $h_m - h_r$ ) est petit comparé à la profondeur totale d'indentation  $h_m$ , l'erreur est si petite qu'elle peut être insignifiante. De l'autre côté, l'approche de Field et Swain est fondée sur l'hypothèse d'une décharge partielle purement élastique. En effet si la décharge partielle est large au point de provoquer à nouveau la plasticité dans le matériau, la valeur de  $h_r$  (Eq. 1-28) devient aussi imprécise. Prenons la différence ( $F_m - F_d$ ) entre la charge totale  $F_m$  et la charge partielle  $F_d$ , la plus petit possible. Cela minimise les erreurs affectant les analyses résultant des équations de Hertz telles que les variations de l'aire de contact et du module élastique avec  $h$ , la relaxation plastique lors de la décharge. Par contre prendre la valeur ( $F_m - F_d$ ) petite, augmente les erreurs dans les résultats finaux du fait de l'augmentation de l'incertitude associée aux instruments de mesure.

### 1.2.5. L'indentation instrumentée (nanoindentation) des matériaux revêtus

L'essai d'indentation instrumentée met en jeu des déplacements de l'indenteur de l'ordre de quelques nanomètres à quelques centaines de nanomètres seulement. Cette technique couplée avec une méthode de correction des données expérimentales, permettrait une caractérisation des propriétés mécanique d'un matériau massif. Du fait de la sollicitation d'un faible volume, l'indentation instrumentée devient capitale pour la caractérisation des propriétés mécaniques de films minces déposés sur un substrat. On est alors confronté à la difficulté liée à l'influence du substrat sur les propriétés mesurées. Ainsi, la réponse en indentation instrumentée de matériaux revêtus devient une fonction complexe des propriétés élastique et plastique du film et du substrat.

Il est alors usuel d'avoir recours à la règle de Bückle [31]. Cette règle postule qu'afin de minimiser l'effet du substrat sur les propriétés mesurées du film, la profondeur d'indentation  $h$  ne doit pas dépasser 10% de l'épaisseur du film  $t_f$ . Largement et souvent mal employée, cette règle est basée sur la détermination de la dureté avec l'intention de restreindre l'étendue de la zone plastique dans le film. Sans aucune base physique, elle est appliquée à la détermination du module élastique. Plus tard, Doerner et Nix [13] ont obtenu une évolution du module équivalent (appelé aussi module réduit) d'un système revêtu d'un film mince (verre sodocalcique revêtu d'un film de silanes). Cette étude a montré que l'ensemble film-substrat se comporte aux faibles pénétrations comme le film, aux fortes pénétrations comme le

substrat tout en faisant une transition (aux pénétrations intermédiaires) entre la zone « film massif » et la zone « substrat massif ».

Des études expérimentales et numériques (par la méthode des éléments frontières) [32 33] faites sur des matériaux revêtus ont montré l'inadéquation de la règle de Bückle [31] pour déterminer le module élastique du film. D'après ces travaux, bien qu'on reste en déformation élastique, la réponse du système film-substrat correspond à celle du film uniquement pour des profondeurs d'indentation inférieure à 1% de l'épaisseur du film ( $h < 1\% t_F$ ).

Les propriétés mécaniques ( $E$  et  $H$ ) d'un système film-substrat sont également mesurées avec la méthode de Oliver et Pharr [34]. La figure 1-14 montre les évolutions, avec la profondeur d'indentation, du module élastique et de la dureté (Oliver et Pharr) issues d'indentation sphérique d'un film nanocomposite de nc-TiN/a-BN déposé sur un substrat en acier [34].

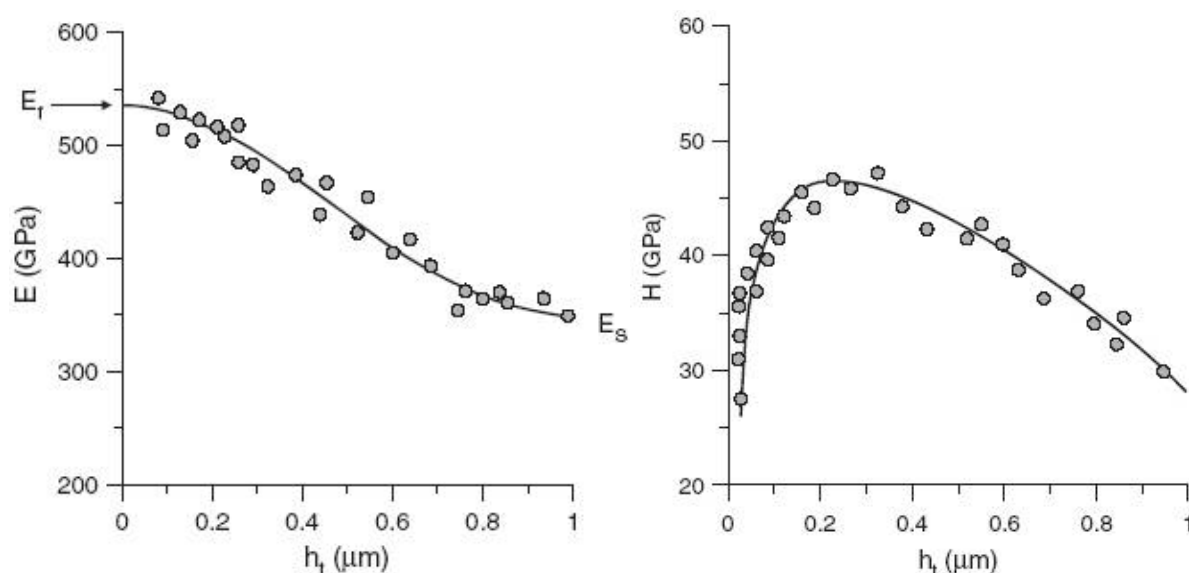


Figure 1-14 : (A) Estimation du module élastique du film nanocomposite (nc-TiN/a-BN) déposé sur un substrat en acier. Le module composite tend aux larges profondeurs d'indentation vers celui du substrat  $E_s$  et aux faibles profondeurs à celui du film. (B) La dureté mesurée du film de nc-TiN/a-BN ( $5\mu\text{m}$ ) sur un substrat en acier. Trois régimes croissance, plateau et décroissance) sont identifiés [34].

L'extrapolation du  $E$  (composite) aux charges nulle et élevée donne les réponses élastiques approximatives respectivement du film et du substrat. En effet, la dureté  $H$  présente trois domaines de variation avec la profondeur d'indentation : croissance (aux faibles charges),

plateau et décroissance pour les grandes profondeurs d'indentation. La valeur de  $H$  au plateau est attribuée au film [34].

D'autres investigations ont notamment montré que le module d'élasticité d'un système film-substrat présente lui aussi trois stades de variation [35 36 37] avec la charge appliquée : croissance (aux faibles charges), palier et décroissance (aux charges élevées). Ainsi, toute attribution au film de la valeur de  $E$  (composite) extrapolée à la charge nulle, serait aberrante. Dans ce sens, la mise en place d'une procédure permettent d'accéder aisément aux propriétés mécaniques du film à partir d'indentation d'un système film-substrat est cruciale. Cela exige une étude spécifique pour la compréhension de l'indentation d'un système film-substrat. Ainsi dans la suite un modèle numérique des éléments frontières sera utilisé pour étudier et comprendre le comportement des substrats revêtus sous indentation sphérique. Cela, pour établir dans un premier temps une méthode de mesure du module d'élasticité du film et ensuite la valider avec des données expérimentales.

### 1.3. Conclusion

Nous avons présenté succinctement l'indentation instrumentée et les différentes méthodes d'analyse des données expérimentales. Si les techniques d'analyse des données expérimentales d'indentation donnent des résultats acceptables pour des matériaux massifs, leurs applications aux matériaux revêtus en vu de mesurer uniquement les propriétés du film in situ restent à démontrer. Récemment il a été démontré par la méthode des éléments frontières [32, 33] que pour une profondeur d'indentation au delà de 2% de l'épaisseur du film la réponse élastique du substrat revêtu diffère de celle du film et peut représenter 10% de la contribution du substrat à 90%. L'utilisation de la règle du  $1/10^{\text{ème}}$  n'est donc pas applicable pour la détermination du module élastique du film quelque soit la rigidité du substrat. Une étude expérimentale [34] a récemment montré qu'en restant bien dans le domaine de  $1/10^{\text{ème}}$  de l'épaisseur du film, la contribution du substrat sur le module élastique du film est considérable.

Maintenant appliquons la méthode de Oliver et Pharr sur nos données expérimentales d'indentation sphérique d'un substrat massif (acier inoxydable AISI430). Les résultats obtenus sont représentés sur les figures 1-15 et 1-16. En effet, les caractéristiques (la dureté  $H$  et le module de Young  $E$ ) de l'acier inoxydable AISI 430 varient avec la charge maximale appliquée, pour une pointe de rayon  $R = 10 \mu\text{m}$ . Ils dépendent (surtout  $E$ ) aussi du



pourcentage de la courbe de décharge modélisée (figure 1-15) par la loi puissance (Eq. 1-14 page 24). En plus, lorsqu'on utilise une portion de 90% de la courbe de décharge, la variation

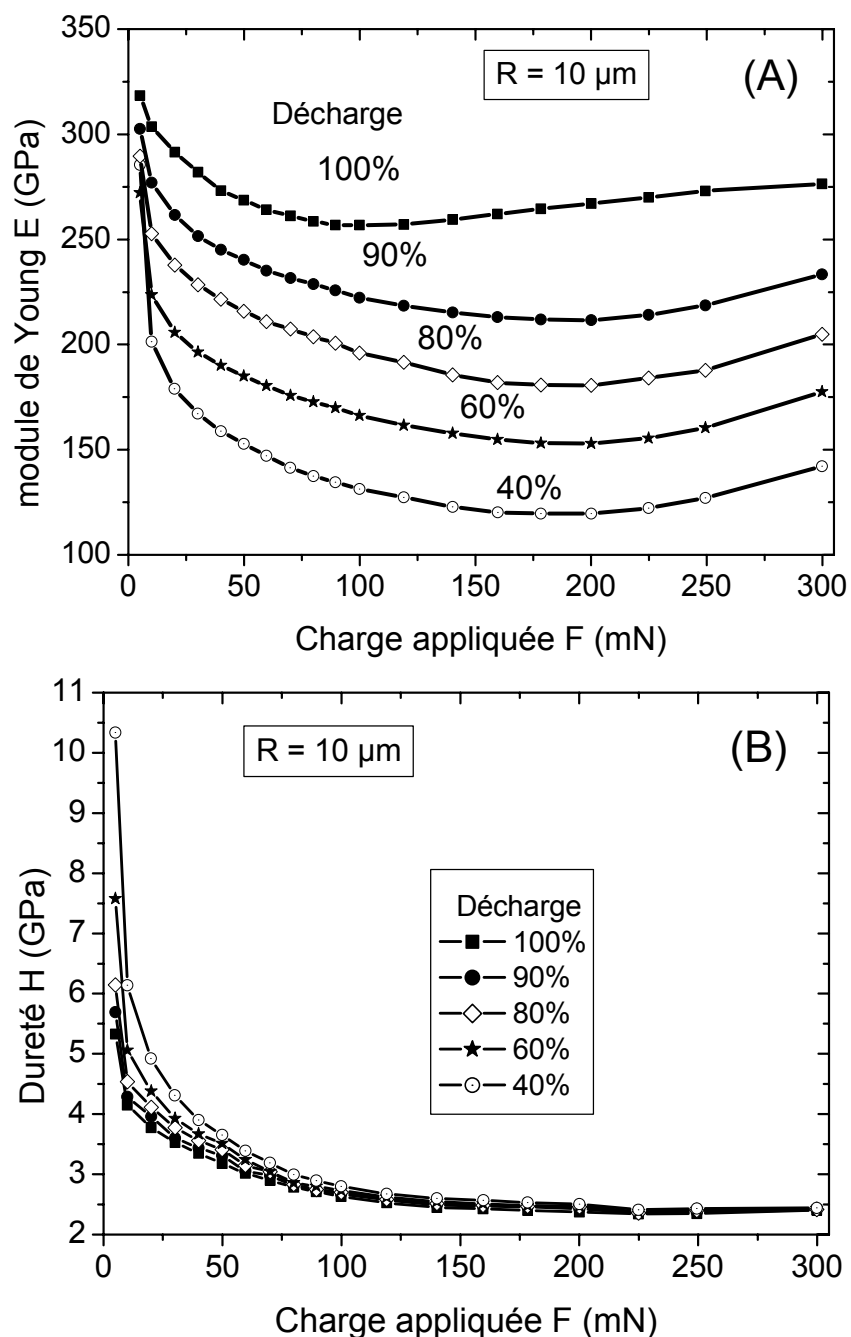


Figure 1-15 : Evolution avec la charge appliquée, selon la portion de la courbe de décharge utilisée dans la méthode de Oliver et Pharr, (A) du module de Young et (B) de la dureté du substrat AISI430.

avec la charge appliquée du module de Young  $E$  et de la dureté  $H$  est aussi une fonction du rayon  $R$  de la pointe (Figure 1-16). Nous avons également observé cette tendance pour d'autres matériaux utilisés (AISI304L, AISI316L et HSS652) et quel que soit le rayon de la pointe ( $R$  allant de 5 à 50  $\mu\text{m}$ ).

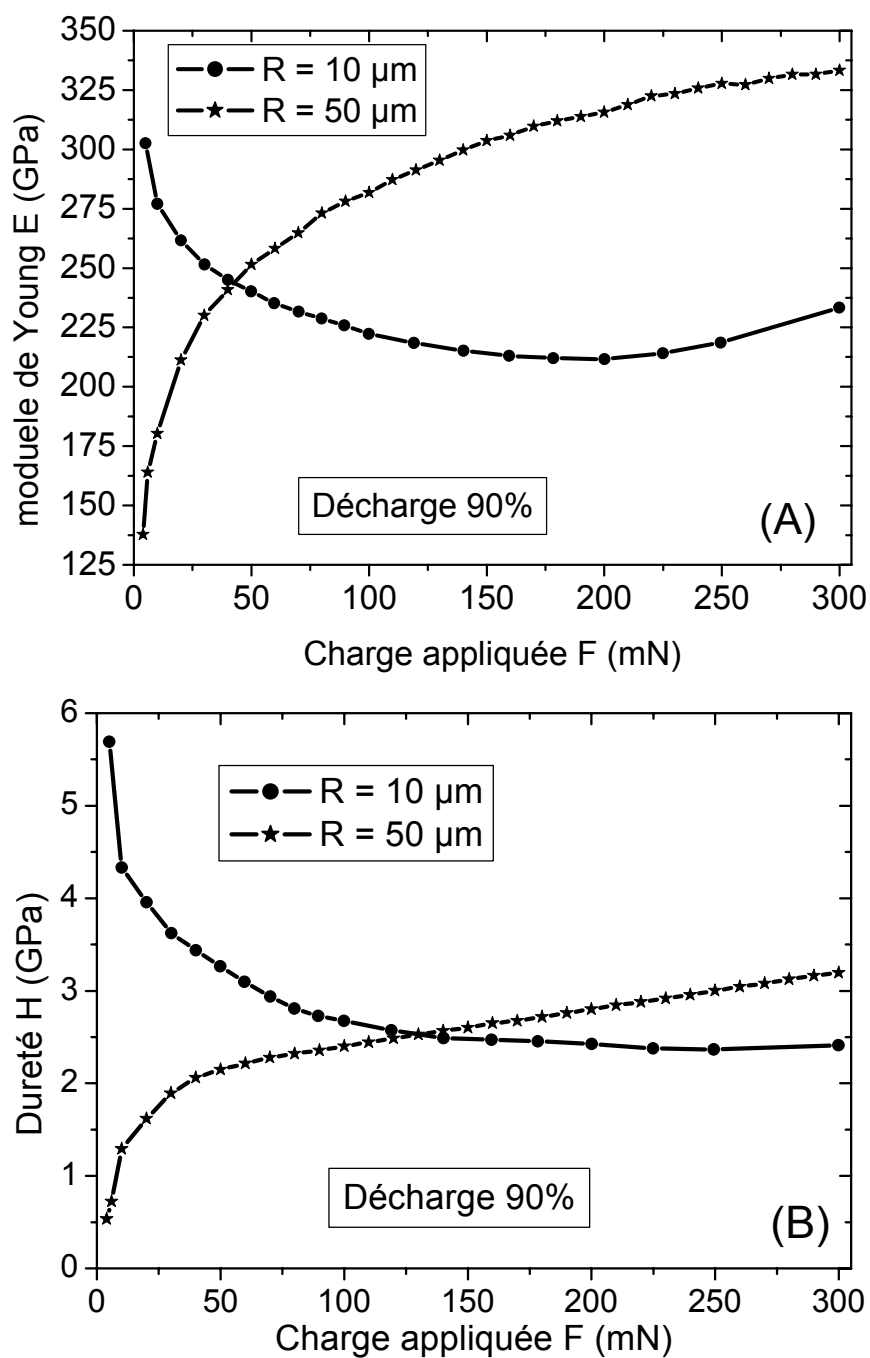


Figure 1-16 : Evolution avec la charge appliquée (A) du module de Young et (B) de la dureté du substrat AISI430 obtenus avec la méthode de Oliver Pharr appliquée à une portion de 90% de la courbe de décharge, pour  $R = 10$  et  $50 \mu\text{m}$ .

Nos investigations expérimentales ont aussi montré que les courbes d'indentation instrumentée de polymère présente une courbure même au stade initiale de la décharge. Cette courbure est d'autant plus importante que la vitesse du chargement est faible. Par conséquent, la pente calculée conformément à la technique de Oliver et Pharr a une valeur négative.

Nous avons aussi remarqué que les propriétés mécaniques d'un système film-substrat (en occurrence le module d'élasticité  $E$  et la dureté  $H$ ), obtenues avec la méthode de Oliver et Pharr, dépendent du pourcentage de la courbe de décharge modélisée avec la loi puissance donnée par l'équation 1-14 (figure 1-17).

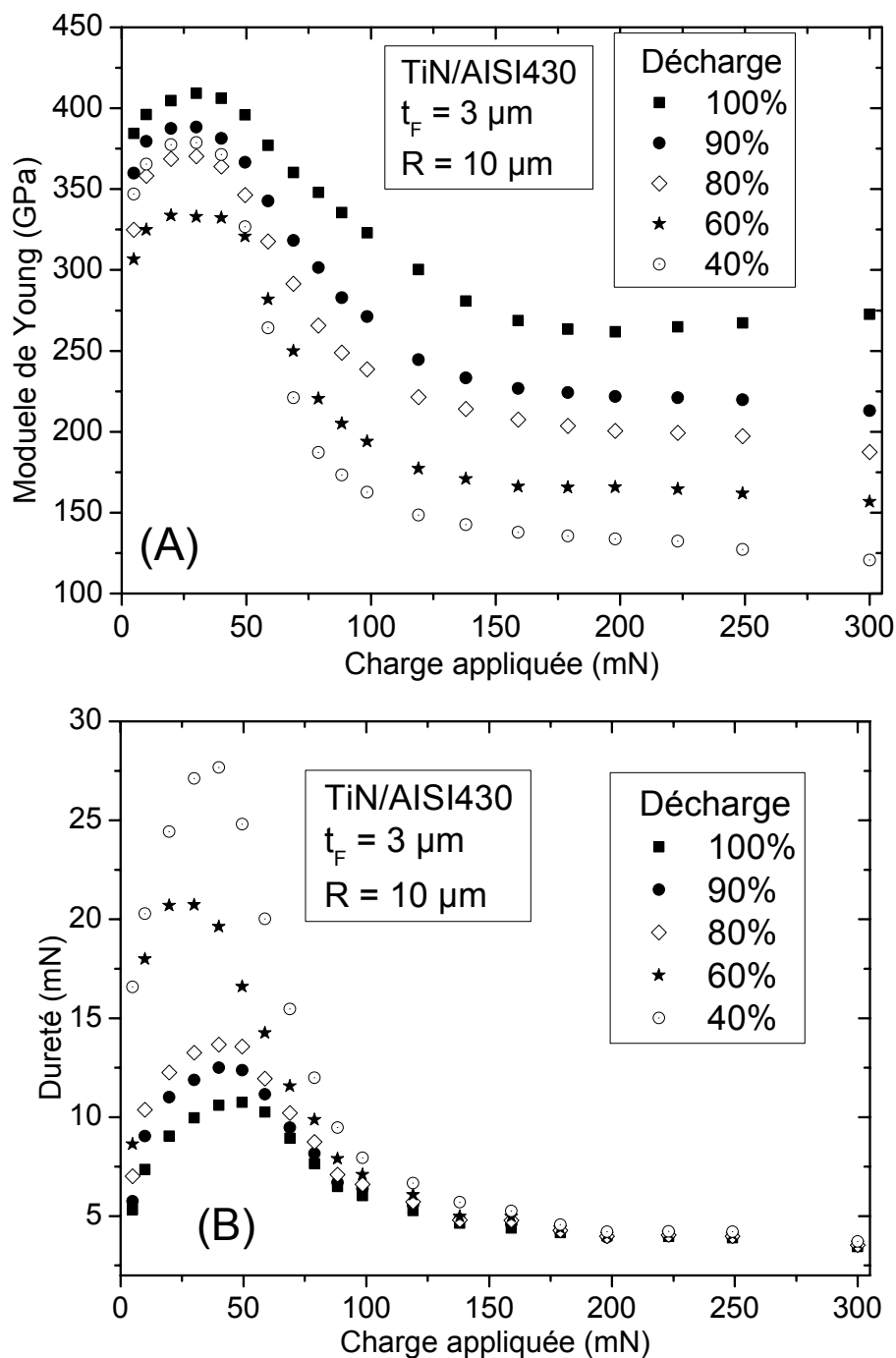


Figure 1-17 : Evolution avec la charge appliquée, selon la portion de la courbe de décharge utilisée dans la méthode de Oliver et Pharr, (A) du module de Young et (B) de la dureté du système film-substrat TiN/AISI430 ( $t_F = 3 \mu\text{m}$  et  $R = 10 \mu\text{m}$ ).

Pour un système film-substrat (TiN/AISI430) et un pourcentage de la courbe de décharge considérés, le module de Young et la dureté (Oliver et Pharr) dépendent non seulement de la charge maximale appliquée, mais du rayon de la pointe sphérique (Figure 1-18).

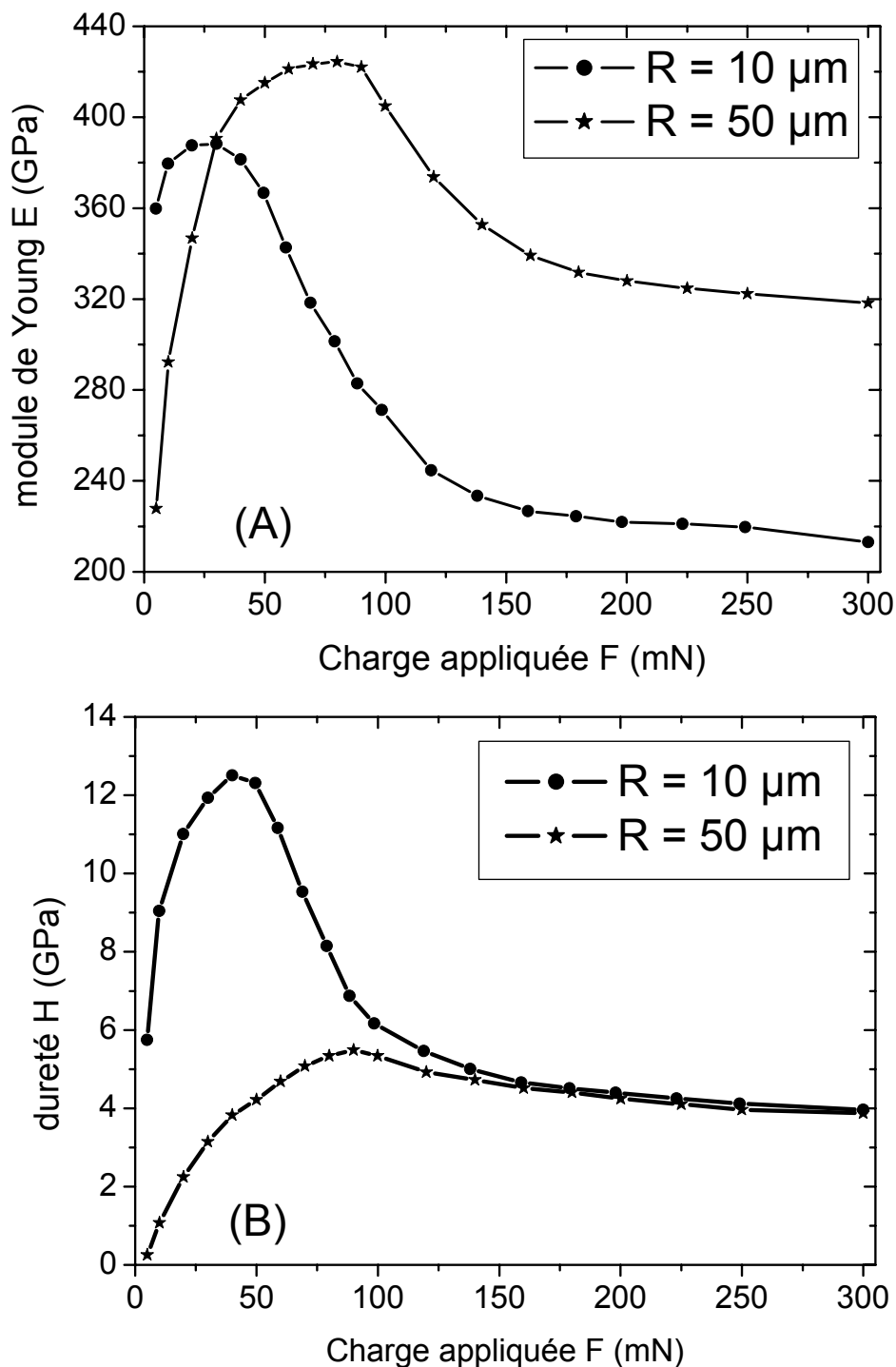


Figure 1-18 : Evolution avec la charge appliquée, pour 90% de la portion de la courbe de décharge utilisée dans la méthode de Oliver et Pharr, (A) du module de Young et (B) de la dureté du système film-substrat TiN/AISI430 ( $t_F = 3 \mu\text{m}$ ), pour  $R = 10$  et  $50 \mu\text{m}$ .

Rappelons que la dérivée de l'équation 1-14 (donc la pente  $S$  de la courbe de décharge) est calculée à la charge maximale appliquée conformément à la méthode de Oliver et Pharr (Cf. Eq. 1-15 page 24). Ainsi, la variation des caractéristiques d'un matériau (massif ou composite) avec le pourcentage de la courbe de décharge et le rayon de la pointe constitue un sérieux problème pour cette méthode.

Nous avons pour objectif de trouver une stratégie relativement simple permettant de déterminer avec plus de précision les caractéristiques du matériau d'une part et de l'autre du film quel que soit le rayon de la pointe sphérique et la configuration film-substrat. Ainsi nous avons cherché à comprendre le processus de déformation lors d'une indentation d'un matériau revêtu avec une sphère rigide. Pour cela un code d'indentation axisymétrique, élastoplastique (développé par Mr Richard Kouitat Njiwa) sera utilisé pour nos simulations numériques. Parmi l'énorme variété de géométries d'indenteur, les pointes sphériques sont utilisées dans nos études. Le choix des pointes sphériques est dû à la simplicité de leur nature et d'interpréter les résultats en utilisant les solutions analytiques de Hertz et l'implication d'une déformation moyenne et croissante durant l'indentation [38].

# Chapitre 2. Simulation numérique d'indentation axisymétrique avec une pointe sphérique

## 2.1. Introduction

L'indentation instrumentée (nanoindentation), du fait du contrôle de la géométrie de contact, de l'acquisition numérique de la charge appliquée ainsi que du déplacement correspondant, fait partie des outils couramment utilisés pour la caractérisation des surfaces, en particulier pour les systèmes film-substrat. Bien que cette technique offre une possibilité d'accéder à la dureté  $H$  et au module d'élasticité  $E$  des matériaux (massifs ou revêtus), les rôles des différents paramètres influençant la déformation induite durant l'indentation ne sont pas complètement explicités. Ces dernières années, la méthode des éléments finis a été utilisée pour apporter les compléments d'information à la caractérisation des matériaux revêtus sous indentation sphérique [39 40].

Une approche plus systémique, intégrant la comparaison de diverses configurations film-substrat, est impérative en vue de dégager des relations générales d'un substrat revêtu sous indentation sphérique. Ainsi, un code basé sur la méthode des éléments frontières [41 32] est établi au sein du laboratoire LSGS (dans l'axe de recherche comportement mécanique des matériaux). Il permet de simuler une indentation axisymétrique et sphérique d'un matériau massif (substrat nu) ou revêtu (système film-substrat).

Afin de mieux comprendre les mécanismes de déformation des matériaux revêtus, nous avons utilisé ce code pour simuler des indentations sphériques de systèmes film-substrat. Dans cette partie nous allons tout d'abord tester notre outil numérique dans le cas des matériaux massifs afin de comparer les solutions numériques avec celles analytiques connus et issues de la théorie de Hertz. L'outil numérique une fois validé, sera par la suite utilisé pour la modélisation numérique de l'indentation sphérique. Enfin une stratégie simple permettant de déterminer les propriétés du film sera proposée.

## 2.2. Définition du problème et méthode de résolution

### 2.2.1. Définition du problème

Nous limitons l'étude au cas où la charge appliquée au poinçon est suffisamment faible pour que le processus d'indentation puisse être traité dans le cadre de l'hypothèse de petites perturbations. Les équations présentées ci-après sont valables avec des simplifications évidentes pour le poinçon qui ne subit que des déformations élastiques.

Désignons par  $\Omega^q$  ( $q$  : substrat (S), film (F) ou indenteur (I)) le domaine géométrique occupé par le solide. Lorsqu'on néglige les forces de volume, les équations locales d'équilibre en coordonnées cartésiennes sont :

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j} = 0 \quad \text{Dans } \Omega^q \quad (i, j = 1, 2, 3) \quad 2-1$$

$\sigma$  désigne le tenseur des contraintes de Cauchy qui est relié au tenseur des déformations totales ( $\varepsilon$ ) et plastiques ( $\varepsilon^P$ ) par l'intermédiaire de la loi de comportement :

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl} (\varepsilon_{kl} - \varepsilon_{kl}^P) \quad 2-2$$

Pour un milieu homogène isotrope, le tenseur des coefficients d'élasticité  $C_{ijkl}$  ne dépend que de deux constantes élastiques et s'écrit :

$$C_{ijkl} = \frac{E}{2(1+\nu)} \left[ \frac{2\nu}{1-2\nu} \delta_{ij} \delta_{kl} + \delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{il} \delta_{jk} \right] \quad 2-3$$

$E$  et  $\nu$  sont respectivement le module de Young et le coefficient de Poisson du matériau.

Les équations de champ (2-1) doivent être complétées par des conditions aux limites. Pour le problème que nous avons en vue, suivant le solide considéré, la frontière du domaine peut être décomposée en parties disjointes  $\Gamma_{ut}^q$ ,  $\Gamma_i^q$  et  $\Gamma_c^q$  (cf. Figure 2-1):

- Sur  $\Gamma_{ut}^q$  les conditions aux limites sont du type classique, à savoir toute combinaison compatible des composantes des vecteurs déplacement et contrainte.

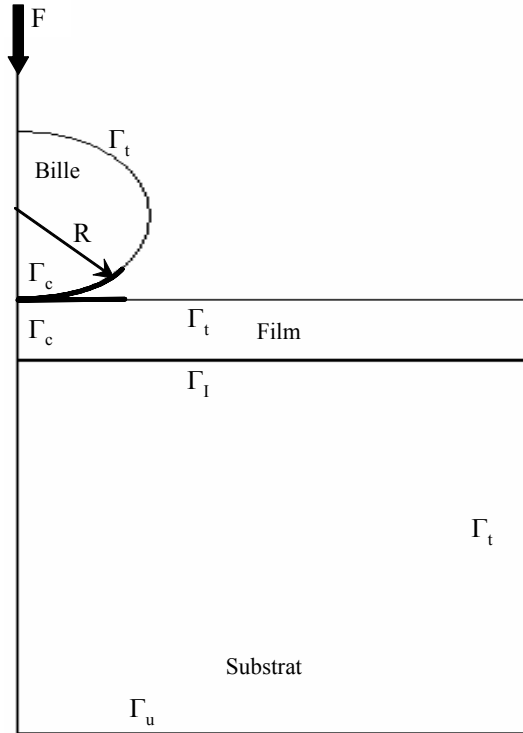


Figure 2-1 : Représentation schématique de l'indentation d'un film déposé sur un substrat.

- $\Gamma_i^q$  est la partie de frontière appartenant à l'interface entre deux solides (par exemple interface film-substrat). Dans le cas d'une interface à liaison parfaite, on doit satisfaire l'équilibre des forces (3<sup>ème</sup> loi de Newton) et la continuité du déplacement, soit :

$$\sigma_{ij}^S n_j^S + \sigma_{ij}^F n_j^F = 0 \text{ et } u_i^S - u_i^F = 0 \quad 2-4$$

- $\Gamma_c^q$  est la surface potentielle de contact qui est postulée a priori. Les points de cette surface sont susceptibles d'entrer en contact au cours du processus d'indentation. On exprime en général les conditions aux limites dans cette zone en termes de grandeurs normales et tangentielles. Considérons alors deux points F et I susceptibles de rentrer en contact durant le chargement. Désignons par  $n_j^F$  et  $n_j^I$  les normales extérieures respectivement aux points F et I. La normale commune  $\bar{n}$  définit le plan tangent de contact entre les deux points et est défini par :

$$n_i = \frac{(n_i^F - n_i^I)}{\left[ (n_j^F - n_j^I)(n_j^F - n_j^I) \right]^{\frac{1}{2}}} \quad 2-5$$



Remarquons qu'il existe d'autres définitions de cette normale commune qui prennent en compte les rigidités respectives des deux milieux. Pour nos études, les diverses définitions ont conduit à des résultats quasiment identiques.

Soit maintenant  $\delta_0$  l'écartement normal initial entre les deux points. A l'incrément de charge  $q$  cet écartement normal devient :

$$d_n = -\Delta u_n^F - \Delta u_n^I + \delta_0 - (u_n^F + u_n^I)_{|q-1} = -\Delta u_n^F - \Delta u_n^I + \delta_{q-1} \quad 2-6$$

Prenant en compte le fait que les corps ne peuvent s'interpénétrer et qu'en tout point de la surface de contact il ne peut exister que des efforts de compression, la condition de contact unilatéral s'écrit :

$$d_n \geq 0, P_n = -t_n^I \geq 0 \text{ et } d_n P_n = 0 \Leftrightarrow \min(P_n, d_n) = 0 \quad 2-7$$

Si on se limite au cas du glissement parfait, la composante tangentielle du vecteur contrainte est identiquement nulle ( $t_\tau = 0$ ). Ces équations doivent être complétées par celles traduisant le principe d'action/réaction à savoir :  $\sigma_{ij}^I n_j^I + \sigma_{ij}^F n_j^F = 0$ .

### 2.2.2. Stratégie de résolution

Pour résoudre numériquement le problème défini ci-dessus, on peut utiliser la méthode des éléments finis au travers de logiciels commerciaux [42 43 44 45 46]. Dans ce cas, il est nécessaire de discrétiser tout le domaine en prenant soin d'affiner le maillage au voisinage de la zone de contact. En indentation, les grandeurs physiques de première importance sont de nature surfacique, et le volume plastique en dessous de l'indenteur a des dimensions faibles comparées à celles de l'échantillon. La méthode numérique des éléments de frontières est donc applicable, malgré la nécessité de discrétiser le volume plastique potentiel.

La méthode des éléments de frontière a déjà prouvé son efficacité dans de nombreux domaines de la physique et en particulier pour la résolution de problèmes de contact et de plasticité [47 48 49 50].

Dans le système de coordonnées cylindriques classiques, les équations intégrales nécessaires à la résolution du problème sont :

L'équation intégrale en déplacement :

$$u_j(y) \int_{\Gamma} D_{ij}(x,y) d\Gamma(x) + \int_{\Gamma} T_{ij}(x,y) (u_j(x) - u_j(y)) r d\Gamma(x) = \int_{\Gamma} U_{ij}(x,y) t_j(x) r d\Gamma(x) + \int_{\Omega} U_{ia,b}(x,y) \sigma_{ab}^p(x) r d\Omega(x) \quad 2-8$$

Avec  $i, j = r, z$  ;  $a, b = r, z, \theta$  et la dérivation en coordonnées cylindriques représentée par une virgule.  $\sigma_{ij}^p(x) = C_{ijkl} \varepsilon_{kl}^p(x)$  ( $i, j = r, \theta, z$ ) est le tenseur des contraintes plastiques.

Les fonctions d'influence apparaissant dans cette expression sont dans la littérature [47-49].

L'équation intégrale en gradient de déplacement :

Pour un point  $y$  du domaine et non situé sur sa frontière, la dérivation de l'équation précédente conduit à :

$$\frac{\partial u_i}{\partial y_l}(y) = \int_{\Gamma} \left[ \frac{\partial U_{ij}}{\partial y_l}(x,y) t_j(x) - \frac{\partial T_{ij}}{\partial y_l}(x,y) u_j(x) \right] r d\Gamma(x) + \frac{\partial}{\partial y_l} \int_{\Omega} U_{ia,b}(x,y) \sigma_{ab}^p(x) r d\Omega(x) \quad 2-9$$

De manière classique, on discrétise ces deux intégrales et on en déduit deux systèmes d'équations de la forme :

$$[H]\{U\} - [G]\{T\} = [B]\{\sigma^P\} \quad 2-10$$

$$\{\varepsilon\} = [\bar{G}]\{T\} - [\bar{H}]\{U\} + [\bar{B}]\{\sigma^P\} \quad 2-11$$

$\{U\}$ ,  $\{T\}$  et  $\{\sigma^P\}$  sont respectivement les vecteurs des déplacements, vecteurs contraintes et contraintes plastiques nodaux.

Dans le domaine des déformations purement élastiques,  $\{\sigma^P\}$  est identiquement nul.

Dans une stratégie de résolution incrémentale, le pseudo code de résolution implémenté dans l'outil utilisé est le suivant :

- 1/ Au début d'un incrément de charge, on suppose le vecteur  $\{\Delta\sigma_g^P\}$  connu.
- 2/ On résout les systèmes (2-10) compte tenu des conditions aux limites
- 3/ On met à jour les incréments de contraintes plastiques en résolvant les équations (2-11).
- 4/ On teste la convergence sur les valeurs consécutives de  $\{\Delta\sigma_g^P\}$

Le code de simulation construit a d'abord été appliqué à l'analyse d'un milieu homogène.

## 2.3. Réponses élastique et élastoplastique d'un milieu homogène

### 2.3.1. Réponse élastique

L'outil numérique a d'abord été validé dans le domaine des déformations élastiques de l'indentation d'un matériau massif homogène et isotrope. Comme on peut le constater sur les figures 2-2 et 2-3, on obtient une excellente concordance entre les résultats numériques et analytiques (théorie de Hertz) aussi bien pour les grandeurs surfaciques que pour les grandeurs internes. En effet, les courbes représentatives des distributions de contraintes en

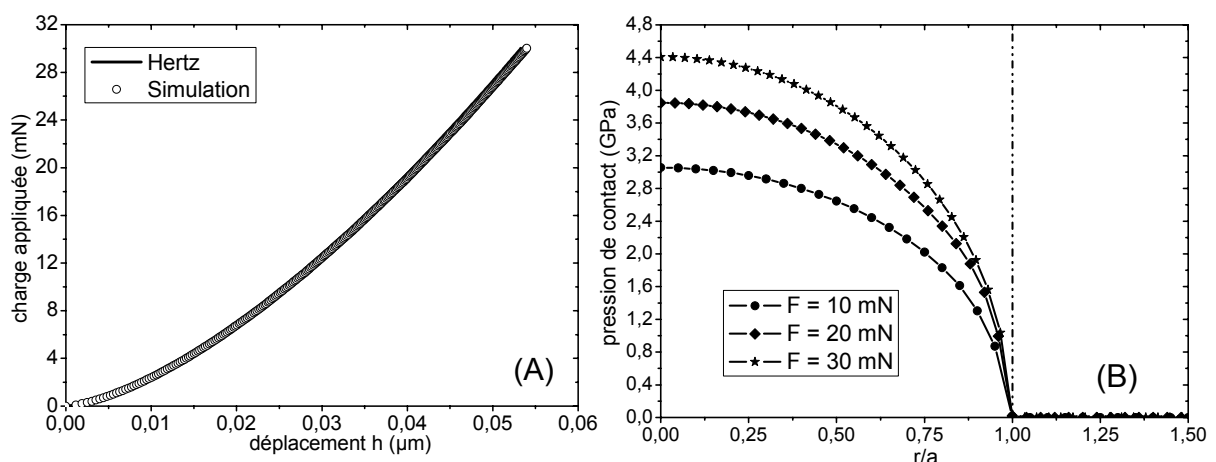


Figure 2-2 : Réponse élastique d'un matériau massif sous indentation sphérique. (a) la courbe charge en fonction du déplacement h et (b) la pression de contact pour trois valeurs de la charge appliquée.

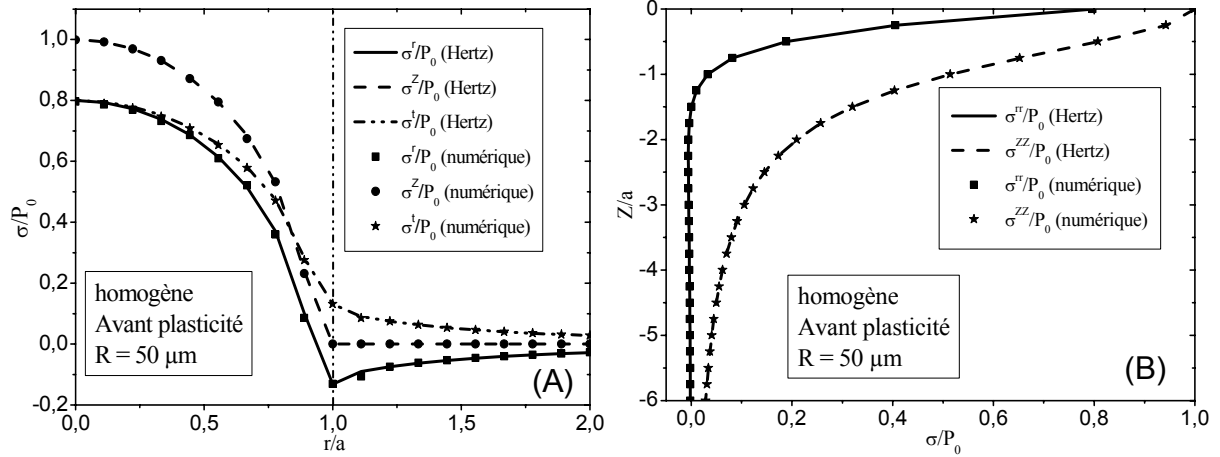


Figure 2-3 : Distribution de contraintes élastiques, (a) à la surface et (b) le long de l'axe d'indentation  $Z$ , induites lors de l'indentation sphérique du matériau massif

surface et en profondeur dans le matériau ( $E_s/\sigma_{YS} = 263$ ,  $\nu_s = 0,3$ ,  $R = 50 \mu\text{m}$ ), obtenues numériquement, sont indiscernables de celles de leurs homologues analytiques issues de la théorie de Hertz [3]. Ainsi sur l'axe de symétrie  $Z$ , les contraintes radiale et orthoradiale sont égales ( $\sigma^{rr}/P_0 = \sigma^{\theta\theta}/P_0 = 0,8$ ) alors que la valeur de la contrainte axiale égale à la pression maximale de contact ( $\sigma^{zz}/P_0 = 1$ ) (figure 2-3 A). En bord du contact (c'est-à-dire à  $r/a = 1$ ), les contrainte radiale et orthoradiale sont aussi égales à un signe prêt ( $\sigma^{rr}/P_0 = -\sigma^{\theta\theta}/P_0 = -0,133$ ) (figure 2-3 A).

De nombreux tests nous ont permis de valider le code dans le domaine des déformations purement élastiques. Considérons maintenant le cas où le chargement est tel qu'une zone de déformation plastique se développe dans le matériau massif.

### 2.3.2. Réponse élastoplastique

Intéressons nous d'abord à l'initiation de la plasticité dans le milieu homogène durant l'indentation sphérique. Soit un matériau massif de module de Young  $E$ , de coefficient de Poisson  $\nu$  et de limite d'élasticité  $\sigma_Y$ , soumis à une indentation par le biais d'une sphère de rayon  $R$ . D'après la théorie de la plasticité, la plasticité s'initie dans le matériau lorsque la valeur maximale de la contrainte de cisaillement  $\tau_{\max}$  atteint la moitié de celle de sa limite d'élasticité. La théorie de Hertz [3] a montré que  $\tau_{\max} = 0,31P_0$ . Théoriquement, la charge nécessaire à l'initiation de la plasticité dans un matériau massif indenté, est ainsi donnée par :

$$F_{th}^* = \frac{\pi^3 R^2}{6E^{*2}} \left( \frac{\sigma_Y}{0,62} \right)^3 \quad 2-12$$

Les valeurs correspondantes issues de notre outil de calcul sont également en parfait accord avec cette prédiction. En effet, avec les conditions utilisées ( $E_S/\sigma_{YS} = 263$  ;  $\nu_s = 0,3$  ;  $R = 50 \mu\text{m}$ ), la charge théorique appliquée nécessaire à la première apparition de la plasticité dans le substrat massif est  $F_{th}^* = 0,752 \text{ mN}$  (exp. 2-12) et la profondeur correspondante est  $Z_{th}^* = 0,253 \mu\text{m}$ . A l'issue de notre investigation numérique, le matériau massif a commencé à se plastifier à une charge appliquée  $F^*$  égale à  $0,750 \text{ mN}$  à une profondeur  $Z^* = 0,250 \mu\text{m}$ . De même la pression moyenne seuil  $P_m^*$ , au début de la nucléation de la plasticité dans le matériau massif peut être déduit de l'expression suivante :  $P_m^* = \frac{F_{th}^*}{\pi a^{*2}}$ . Avec les conditions utilisées dans notre calcul ( $E_S/\sigma_{YS} = 263$ ,  $\nu_s = 0,3$ ,  $R = 50 \mu\text{m}$ ), la valeur théorique de  $P_m^*$  ( $1,075 \sigma_{YS}$ ) est en accord à celle trouvée numériquement ( $1,090 \sigma_{YS}$ ). Des investigations ont montré que lorsque la pression moyenne est égale à  $1,1 \sigma_{YS}$ , la plasticité commence à se développer dans le matériau [51 52]. Récemment, Park et Pharr [53], ont aussi montré, par la méthode des éléments finis, que la pression moyenne seuil était égale à  $1,07 \sigma_{YS}$  pour des matériaux ayant divers rapports  $E_S/\sigma_{YS}$ .

Le profil de déformation plastique résultant de l'indentation de l'échantillon considéré ( $E_S/\sigma_{YS} = 263$ ,  $\nu_s = 0,3$ ,  $R = 50 \mu\text{m}$ ), est représenté sur la figure 2-4. Ce profil est similaire à celui obtenu par Hardy et al. [54 2] en utilisant la méthode des éléments finis. On notera la présence d'une zone superficielle en dessous de l'indenteur où la déformation demeure élastique quel que soit le niveau de chargement.

Considérons maintenant les courbes charge-décharge issues de l'indentation sphérique d'un matériau massif considéré comme un milieu élastique parfaitement plastique ( $E_S/\sigma_{YS} = 263$ ,  $\nu_s = 0,3$ ,  $R = 50 \mu\text{m}$ ). Notons  $F^*$  la charge d'initiation de la plasticité. La figure 2-5 ci-après présente des courbes simulées d'indentation de ce matériau pour diverses valeurs de la charge maximale appliquée.

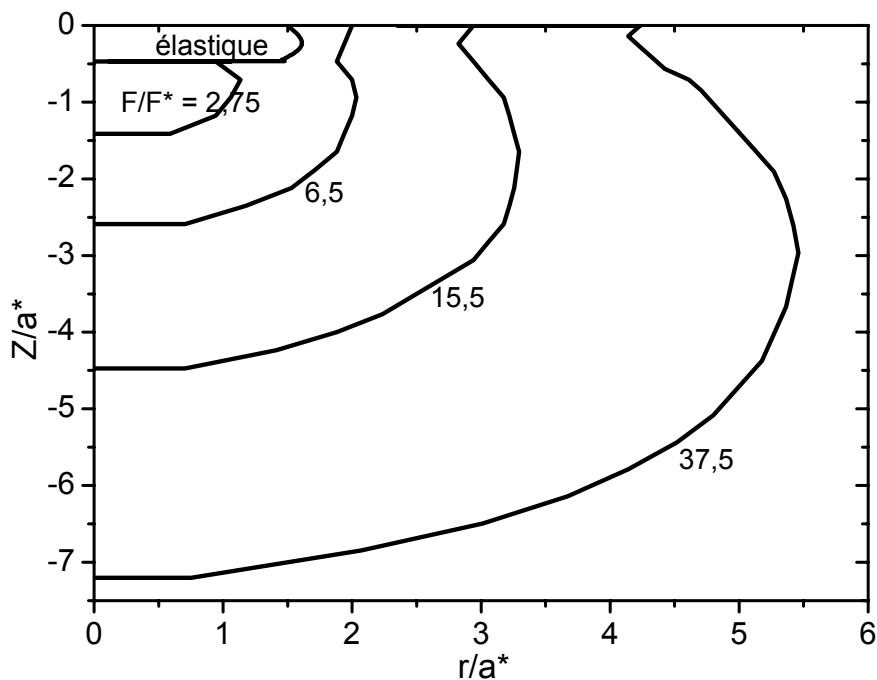


Figure 2-4 : Distribution, lors de l'indentation sphérique, du volume plastique développé dans le matériau massif selon la charge appliquée ;  $a^*$  est le rayon de contact au seuil de la plasticité.

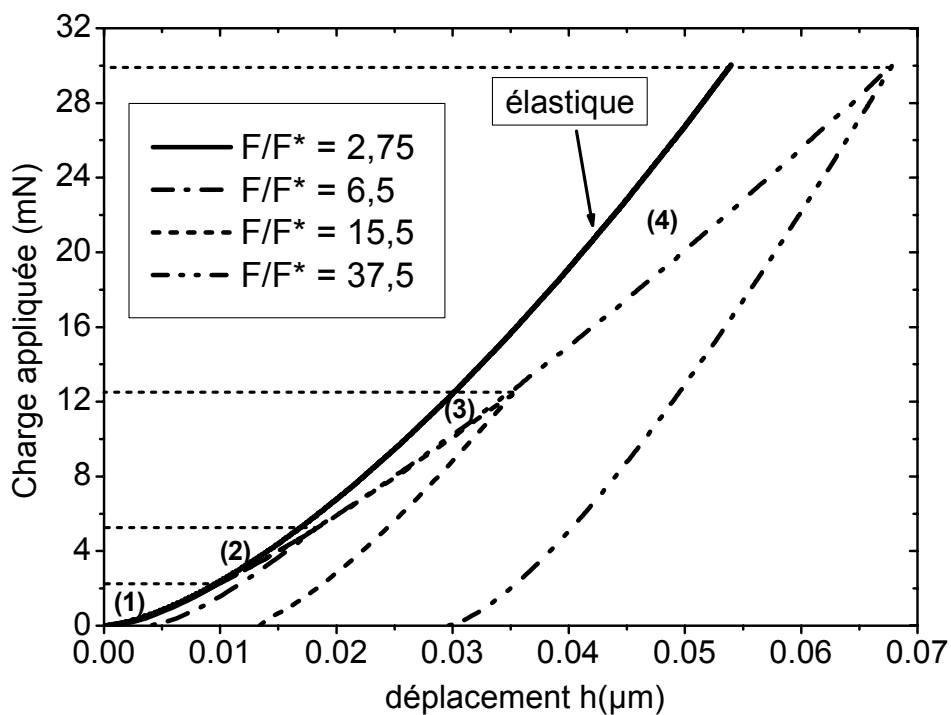
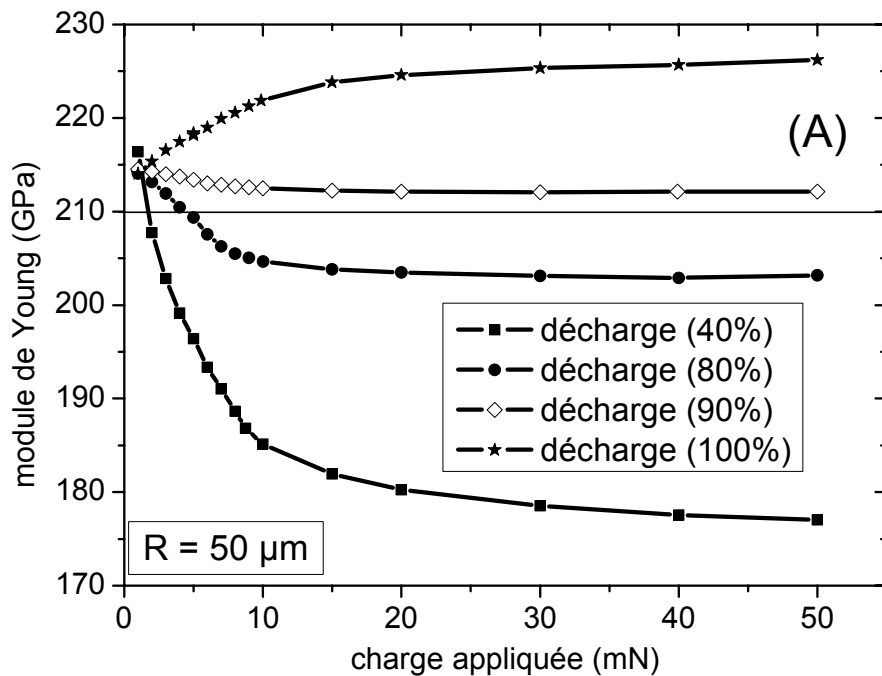


Figure 2-5 : les cycles charge-décharges issus de l'indentation sphérique, élastoplastique d'un matériau massif aux différentes charges maximales appliquées.

Intéressons nous à l'obtention des propriétés mécaniques du milieu à partir de ces courbes par la méthode dite de Oliver et Pharr [16] décrite au chapitre précédent (page 24). Rappelons que la méthode de Oliver et Pharr consiste d'abord à modéliser la courbe de décharge (supposée purement élastique) par une loi puissance (Eq. 1-14 page 24) et puis à calculer sa dérivée à la charge maximale (Eq. 1-15). Pour cela, nous avons modélisé respectivement 40%, 80%, 90% et 100% de la courbe de décharge par la loi puissance décrite par l'équation. 1-14. Le module de Young  $E$  et la dureté  $H$  obtenus, conformément à la procédure de Oliver et Pharr (Cf. chapitre 1 page 24) sont présentés dans la figure 2-6. Les résultats ( $E$  et  $H$ ) obtenus avec cette méthode, dépendent énormément du pourcentage de la courbe de décharge utilisé (figure 2-6). En effet, quel que soit le pourcentage de la courbe de décharge, la dureté présente une variation croissante avec la charge maximale appliquée (figures 2-6 B). Par contre, le module élastique croît pour une portion de 100% et décroît pour les autres pourcentages de la décharge, dans toute la gamme de charge maximale appliquée (figures 2-6 A). La diminution et l'augmentation en fonction de la charge maximale appliquée, du module de Young d'un matériau massif, sont supposées être les résultats de l'effet respectivement du « sink-in » et « du pile-up » [55 56 57].



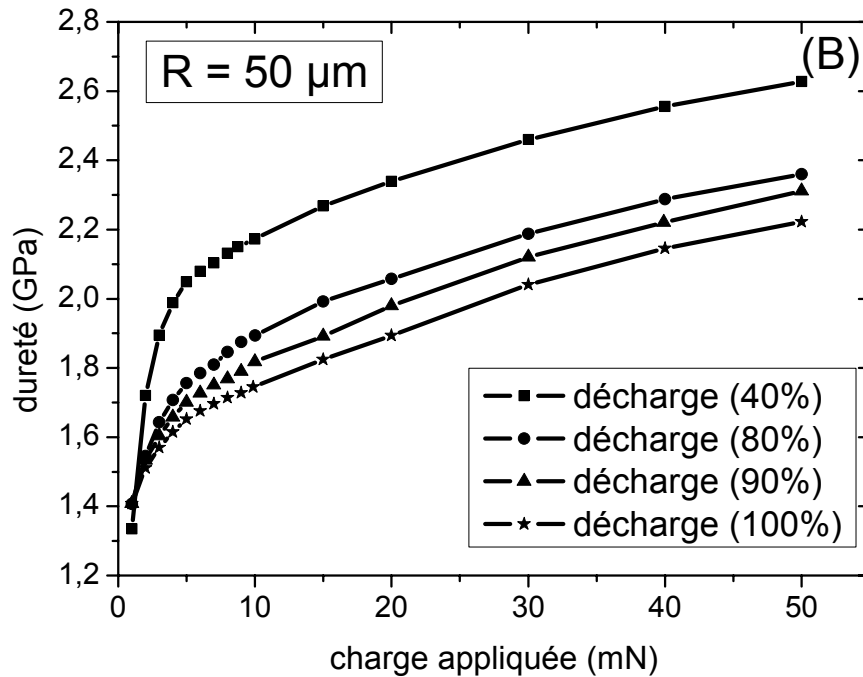


Figure 2-6 : Méthode de Oliver et Pharr : Evolution en fonction de la charge appliquée du module élastique et de la dureté pour diverses portions de la décharge utilisées.

Rappelons que, dans nos investigations seul le « sink-in » est observé durant la phase de chargement (figure 2-7 A). Après la décharge totale, le bourrelet (ou « pile-up ») est observé autour de l'empreinte résiduelle issue de l'application de charge maximale telle que  $F/F^*$  soit supérieur ou égale à 6,5 (figure 2-7 B). Ainsi, le module de Young est plus influencé par le « pile-up » si l'intégralité (100%) de la courbe de décharge est utilisée dans la procédure de Oliver et Pharr (figure 2-6 A et 2-7 B). Plus la portion de décharge modélisée est faible, davantage l'effet du « sink-in » sur le module d'élasticité est important (figure 2-6 A et 2-7 A). Afin de diminuer les contributions du « sink-in » et du « pile-up » sur les résultats issus de la méthode de Oliver et Pharr, 90% de la portion de la courbe de décharge semble être un bon compromis.



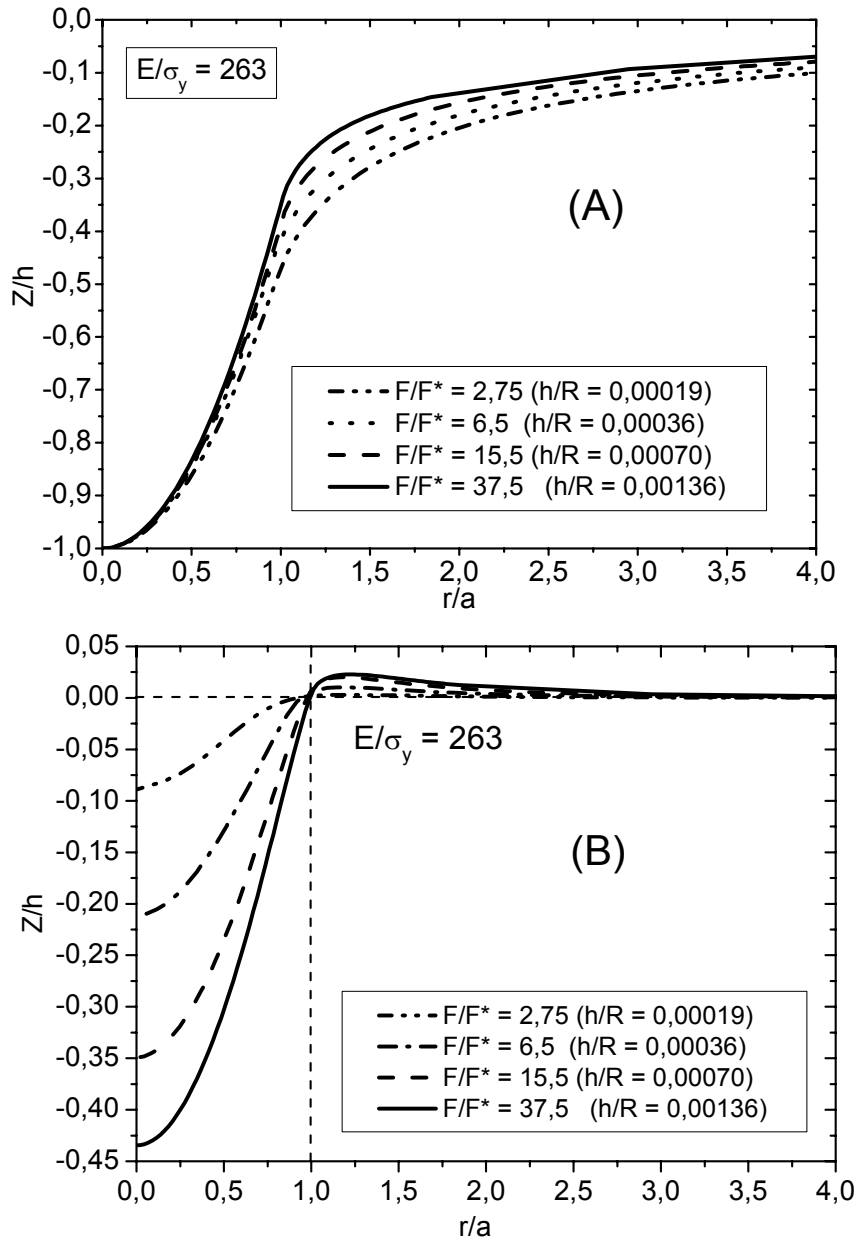


Figure 2-7 : Distribution du profil de la surface (sink-in ou pile-up) suivant le niveau de la charge maximale appliquée : (a) durant le chargement et (b) après la décharge totale.

Les figures 2-8 présentent les évolutions, en fonction de la charge maximale appliquée d'une part et de la déformation ( $a/R$ ) en indentation sphérique d'autre part, du module de Young  $E$  et de la dureté  $H$  (ou pression moyenne). Ces résultats correspondent au cas où on utilise 90% de la courbe de décharge.

Ces courbes montrent que le module de Young  $E$  varie légèrement aux faibles charges appliquées (faibles déformations). Il tend vers une valeur limite de l'ordre de 212 GPa pour

un module de Young de 210 GPa utilisé dans les calculs (figure 2.8 A). La dureté quant à elle croît sur toute la gamme de charge appliquée (figure 2.8 A). L'évolution de la dureté en fonction de  $a/R$  est linéaire dans les plages des valeurs  $a/R > 0,03$ (figure 2.8 B).

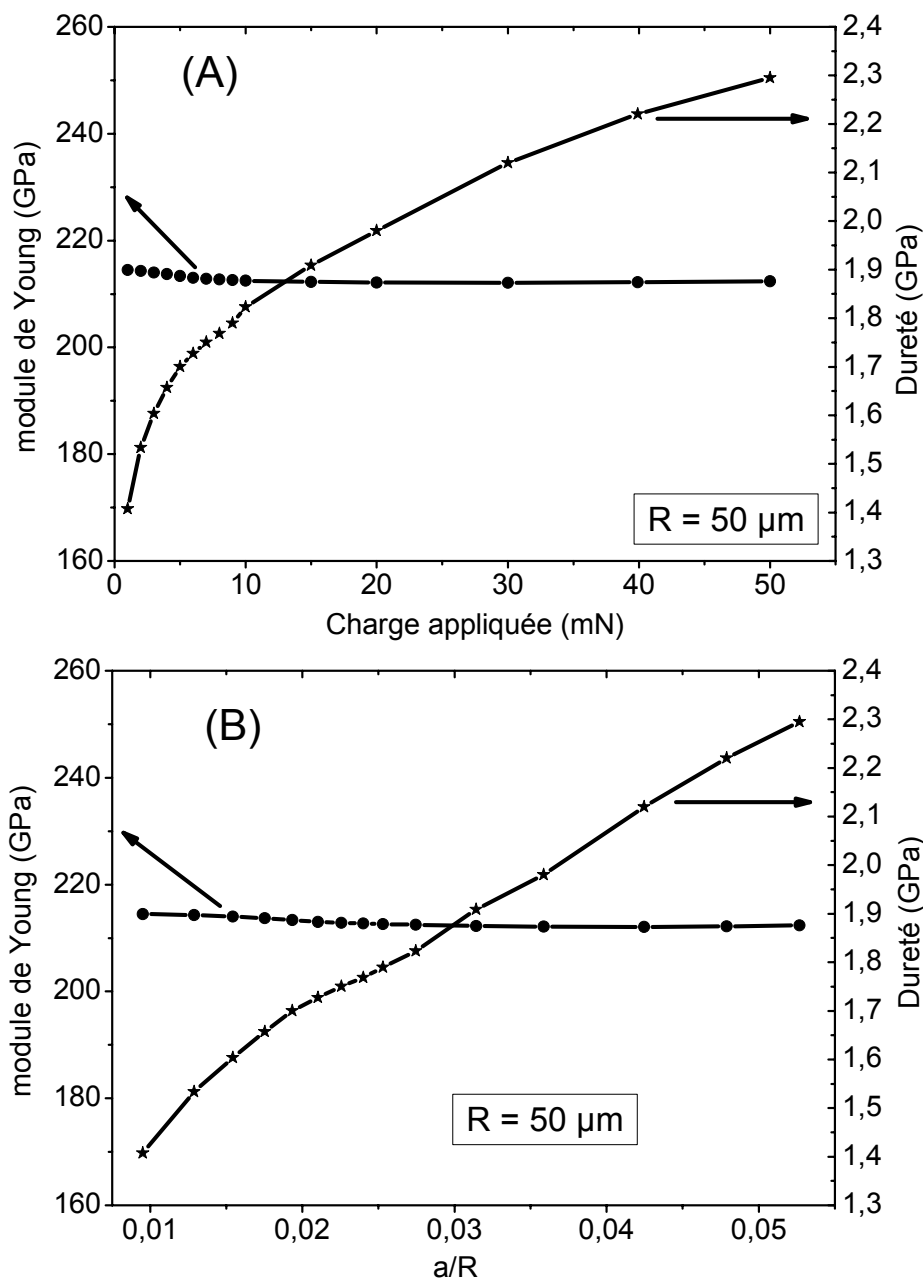


Figure 2-8 : Matériau massif : Evolutions du module de Young et de la dureté pour une pointe de 50  $\mu\text{m}$  de rayon ; (a) avec la charge appliquée et (b) avec  $a/R$  ; pour 90% de décharge.

Certains résultats de la littérature indiquent une évolution croissante du module d'élasticité en indentation sphérique aux faibles et fortes charges [55 56 57]. Dans ces travaux, le comportement de  $E$  est qualifié d'effet « sink-in » lorsque  $E$  est plus faible que la valeur

théorique et « pile-up » pour  $E$  supérieur. Ces deux situations sont en général obtenues respectivement aux petites et grandes charges appliquées. Dans notre cas,  $E$  est quasiment constant et présente une légère diminution dans toute la gamme de la charge appliquée. Ce résultat est conforme aux observations expérimentales de Zhu et al 2008 [58] sur des échantillons de verre et de  $\text{In}_{0,53}\text{Ga}_{0,47}\text{As}$ .

L'évolution de la dureté en fonction de la charge a également fait l'objet de nombreux travaux [59 60]. Les évolutions présentées dans ces études correspondent à celle de la figure 2.8. On dit alors qu'aux faibles charges appliquées le comportement élastique est dominant tandis que le plastique est prépondérant pour les charges les plus élevées [61]. La variation linéaire de la dureté avec  $a/R$  pour les déformations importantes ( $a/R > 0,03$ ) [61], est observée dans les études de Swadener et al [62]. Ces derniers ont également montré que pour une même valeur de déformation  $a/R$ , la dureté mesurée varie avec le rayon de courbure de l'indenteur. C'est ce phénomène qu'ils qualifient « d'effet de taille » en indentation sphérique et non une évolution des propriétés due à la nature chimique de la surface comme le suggèrent d'autres auteurs [63 64].

Nos résultats numériques montrent que, bien qu'elle présente une variation rapide et linéaire avec  $a/R$  respectivement aux faibles et fortes déformations, la dureté reste constante pour une valeur de  $a/R$  donnée, lorsque  $R$  passe de 50 à 100  $\mu\text{m}$  (figure 2-9). Ce résultat nous semble plus en relation avec le concept de déformation et de comportement. Si la variation de la dureté pour une valeur  $a/R$  donnée, pour différents rayons de la pointe, est qualifiée « d'effet de la taille » d'indentation [59 60], notre résultat ne présente pas ce phénomène. Cela est tout à fait évident puisque dans notre simulation numérique, le matériau est considéré homogène et isotrope. Il nous reste cependant à élucider un aspect. Pourquoi obtient-on une évolution de la dureté particulièrement aux faibles charges ? Remarquons que certains auteurs associent cette évolution à la nature de la couche surfacique et traitent le problème à l'aide de loi de comportement intégrant le gradient de la déformation plastique.

La variation de la dureté, aux faibles charges appliquées, trouve son explication dans l'évolution de la pression de contact (figure 2-10). Cette dernière reste de type hertzien jusqu'au seuil de la plasticité. Au delà de cette limite, plus on augmente la charge appliquée, plus la pression de contact dévie du profil Hertzien tout en prenant une forme aplatie

(figure 2-10). Le plateau s'étend sur une distance égale à la moitié du rayon de contact ( $r/a = 0,5$ ) à une charge appliquée  $F/F^* = 6,5$  (soit  $a/R = 0,0195$ ). Egalement la croissance rapide de

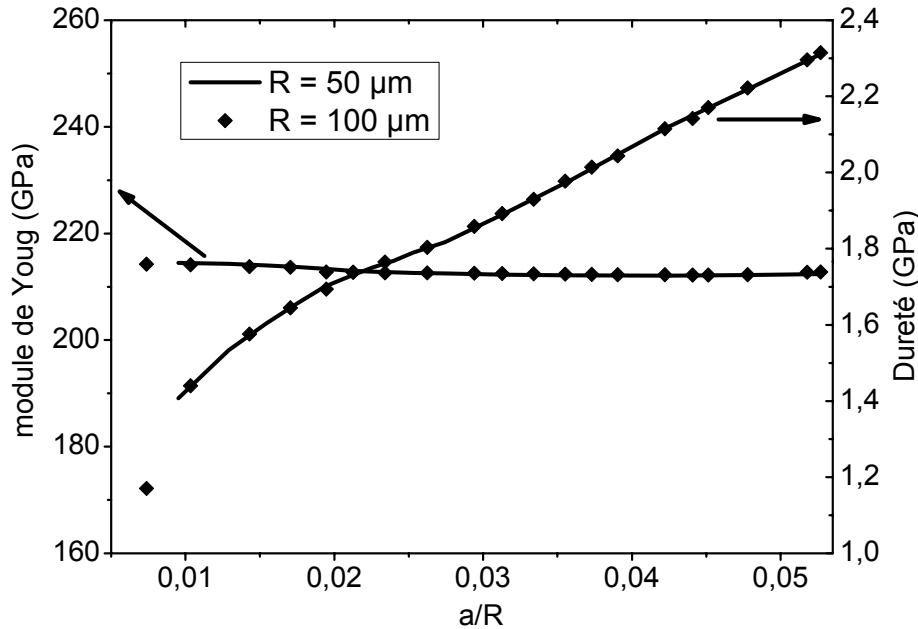


Figure 2-9 : Matériau massif : Evolutions en fonction de  $a/R$  du module de Young et de la dureté pour deux rayons d'indenteur 50 et 100  $\mu\text{m}$

la dureté est observée dans le domaine de chargement tel que  $F/F^* \leq 6,5$  (figure 2-9). En plus, le volume plastique développé durant l'indentation reste confiné au sein de la matrice élastique du matériau pour  $F/F^* < 6,5$  et atteint sa surface libre à  $F/F^* = 6,5$  (figure 2-4). Ainsi, la variation de la dureté aux faibles charges appliquées est due à la transition entre le comportement de type Hertzien (dominée par l'élasticité) et celui gouverné par la plasticité. Remarquons qu'à partir de  $a/R = 0,03$  ( $F/F^* = 12,5$ ), non seulement la forme de la pression de contact reste aplatie, mais aussi son maximum ne se situe plus sur l'axe de symétrie (figure 2-10). Ce dernier se rapproche du bord de contact ( $r/a = 1$ ). Dans ce domaine de chargement ( $a/R > 0,03$ ), est également observée la variation linéaire de la dureté avec  $a/R$  (figure 2-8 B et 2-9). Ainsi la variation linéaire de la dureté et la forme aplatie de la pression de contact sont provoquées par l'arrivée du volume plastique à la surface du matériau.

Le module de Young  $E$  présente une légère diminution dans le domaine de la transition élastoplastique au delà duquel il tend vers une valeur quasiment constante (de l'ordre de 212 GPa) (figure 2-8). Rappelons que l'une des hypothèses d'Oliver et Pharr est l'approximation

de la décharge d'un indenteur de géométrie quelconque à celle d'un poinçon plat de même aire de contact (Cf. chp1. page 22). Autrement dit la pression de contact est conforme à celle du poinçon plat durant la décharge (c'est-à-dire a une forme aplatie). Ainsi, pour comprendre le comportement du module d'élasticité nous avons suivi l'évolution de la pression de contact durant la décharge pour quatre charges maximales appliquées ( $F/F^* = 2,5 ; 6,5 ; 12,5$  et  $37,5$ ). Les résultats obtenus sont présentés dans la figure 2-11.

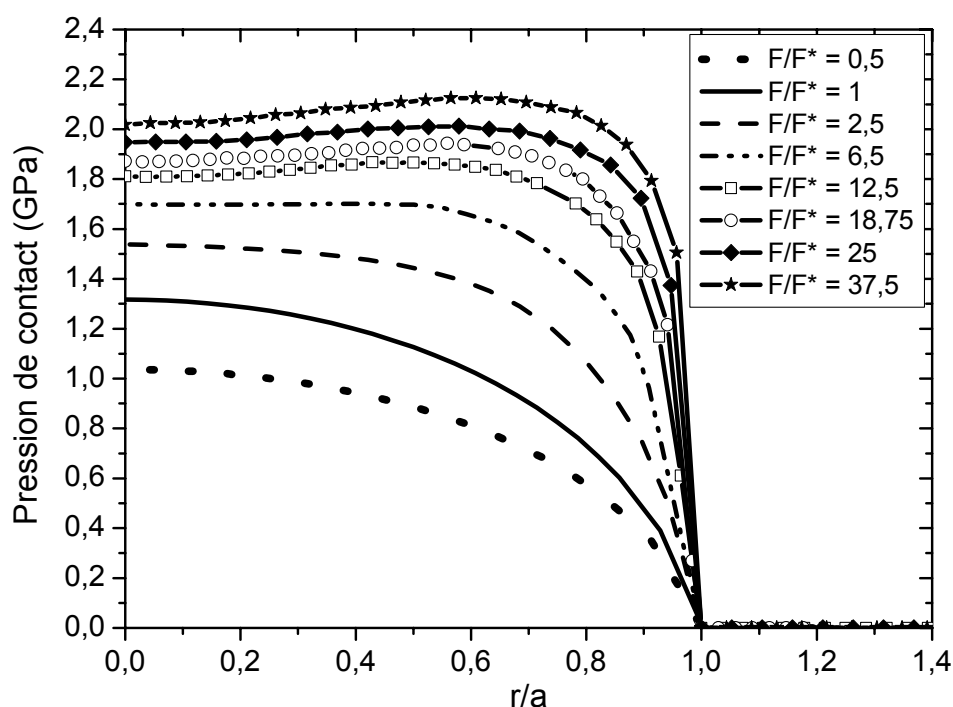


Figure 2-10 : Evolution de la pression de contact en fonction de la distance  $r/a$  pour diverses charges maximales appliquées (rayon de la pointe  $R = 50 \mu\text{m}$ ).

Dans le domaine de la transition élastoplastique, la forme aplatie de la pression de contact, moins prononcée à la charge maximale, diminue progressivement durant la décharge (figure 2-11 A). Ainsi, la variation de  $E$  observée aux charges appliquées ( $F/F^* < 6,5$ ) trouve son explication dans l'approximation de la décharge d'un indenteur sphérique à celle d'un poinçon plat de même aire de contact. Dans le régime dominé par la plasticité ( $F/F^* > 12,5$ ,  $a/R > 0,03$ ), la forme aplatie de la pression de contact est importante à la charge maximale appliquée, aussi bien que durant la décharge (figure 2-11 C et D). Ainsi, dans ce régime de déformation, l'hypothèse d'Oliver et Pharr semble plus correcte. Ce qui explique que le module élastique déterminé ( $E \approx 212 \text{ GPa}$ ) soit très proche de celui utilisé ( $E = 210 \text{ GPa}$ ) dans notre simulation.

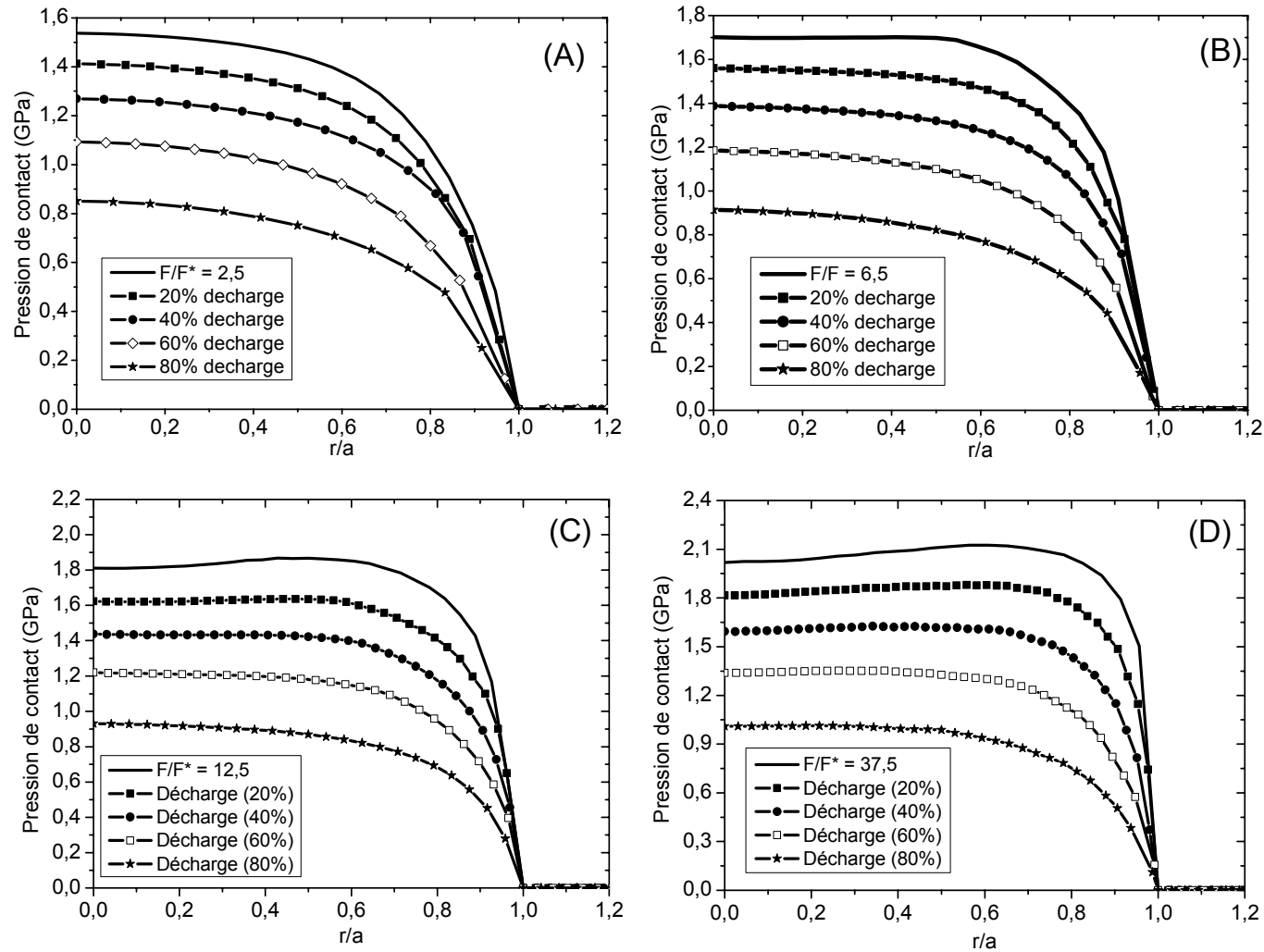


Figure 2-11 : Distribution de la pression de contact à la charge maximale et à quatre portions (20%, 40%, 60%, 80%) de la décharge totale pour  $F/F^*$  égale à :  
(A) 2,5 ; (B) 6,5 ; (C) 12,5 et (D) 37,5

En résumé, la méthode classique d'analyse de l'indentation [16] (Oliver et Pharr 1992) dépend de la portion de la courbe de décharge modélisée par la loi puissance (Eq.1-14, page 24) et de la charge maximale (degré de plastification) atteinte dans le cas où le pile-up (figure 2-7 B) est observé après la décharge totale. Ce dernier n'affecte les résultats d'indentation que si l'intégralité de la courbe de décharge est utilisée dans la procédure d'analyse. La diminution de  $E$ , en fonction de la charge maximale appliquée, devient d'autant plus importante que la portion de la courbe de décharge (modélisée par la loi puissance) est petite. Cela met en évidence dans ce cas une forte contribution du « sink-in ».

Nous rappelons que, d'après la théorie du contact, le déplacement normal de la surface formée lors d'un contact entre deux solides (en particulier contact sphère/plan) est donnée par Hertz [3] (Cf. figure 1-4 chp1 page 16 ):

$$U_z(r) = \delta - \frac{r^2}{2R} \quad 2-13$$

Avec  $\delta = U_z(r=0)$  le déplacement sur l'axe de contact appelé aussi le rapprochement entre les deux corps en contact (noté delta  $\delta$ ).

Dans les domaines des petites déformations induites durant l'indentation sphérique d'un matériau élastique, le déplacement sur l'axe d'indentation, appelé aussi la profondeur de pénétration élastique (notée aussi  $\delta$ ), est égale à  $a^2/R$  [51 3 22]. Dans notre investigation,  $\delta$  obtenue à partir de l'expression 2-13, vérifie cette relation dans le régime de déformation non seulement élastique mais aussi élastoplastique (figure 2-12). D'après ces résultats, qu'il soit dans le régime élastique ou élastoplastique, le déplacement delta  $\delta$  est égale à  $a^2/R$  lorsque on reste en petites déformations. Cela pourrait être une issue pertinente en indentation instrumentée où le souci majeur est la détermination exacte du rayon de la surface de contact. En effet, connaissant la géométrie de l'indenteur et le déplacement  $\delta$ , on peut déduire, à chaque charge appliquée, l'aire de contact  $A$  ( $A = \pi a^2 = \pi R \delta$ ) et par la suite calculer aisément la pression moyenne (ou dureté  $H$ ) par :  $H = F/\pi R \delta$ .

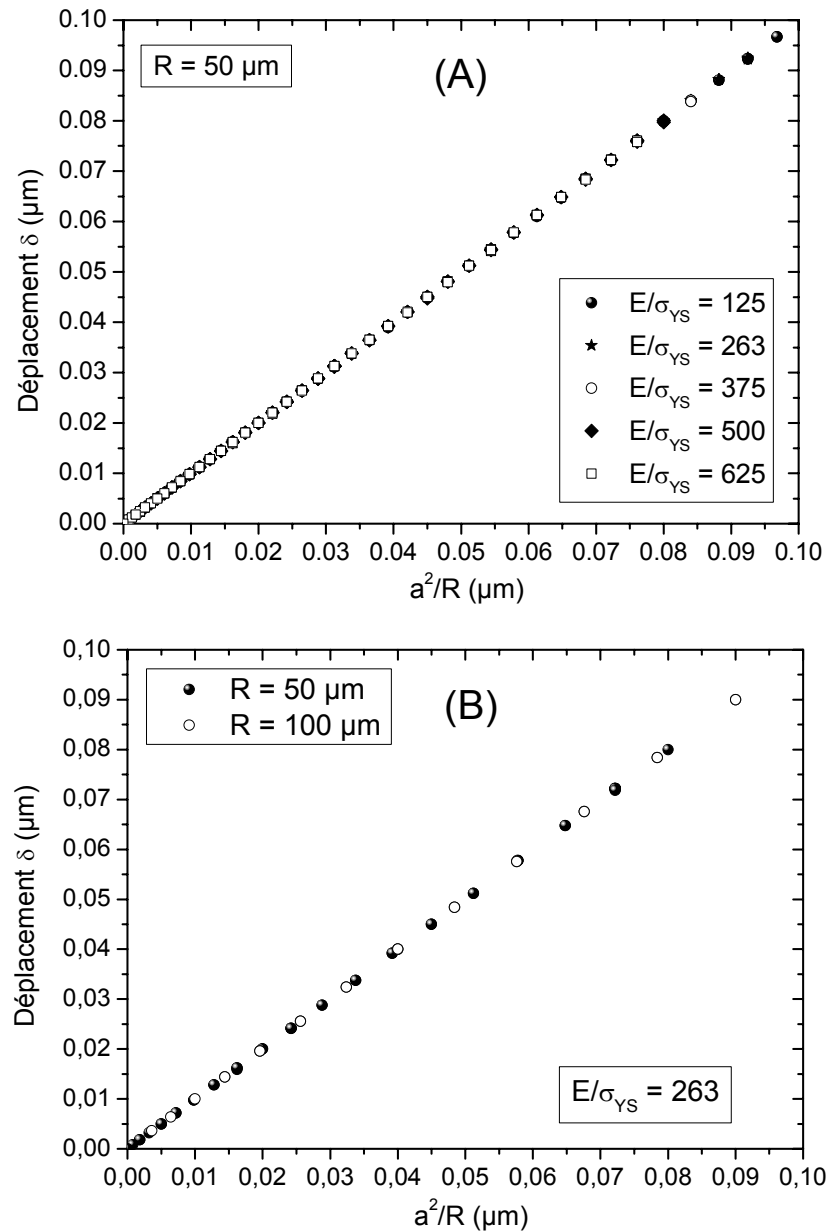


Figure 2-12 : Matériaux massifs : Relation entre le déplacement  $\delta$  issu de l'équation 2-10 et le rapport  $a^2/R$  pour : (A)  $R = 50 \mu\text{m}$  et différents  $E/\sigma_{YS}$  et (B)  $E/\sigma_{YS} = 263$  et  $R = 50 \mu\text{m}$  et  $100 \mu\text{m}$ .

La figure 2.13 représente l'évolution, en fonction de la charge appliquée, de la dureté (Oliver et Pharr) et de la pression moyenne ( $F/\pi R\delta$ ) d'un matériau massif ( $E_s/\sigma_{YS} = 263$  ;  $\nu_s = 0,3$  ;  $R = 50 \mu\text{m}$ ). Pour les charges appliquées telles que  $a/R < 0,03$ , les valeurs de  $F/\pi R\delta$  sont strictement inférieures à celles de la dureté obtenue par la méthode classique de Oliver et Pharr (figure 2-13). Par contre au delà de la déformation induite dans le matériau



telle que  $a/R > 0,03$ , la tendance devient inverse. La valeur exacte de la dureté utilisée dans le calcul numérique est atteinte à  $a/R = 0,05$ . L'alternative de mesure de la dureté d'un matériau consistera donc à représenter  $F/\pi R\delta$  en fonction de  $a/R$  et de relever sa valeur à  $a/R = 0,05$ . Ainsi la dureté d'un matériau est définie comme suit :

$$H = \left( \frac{F}{\pi R\delta} \right)_{\frac{a}{R}=0,05}$$

2-14

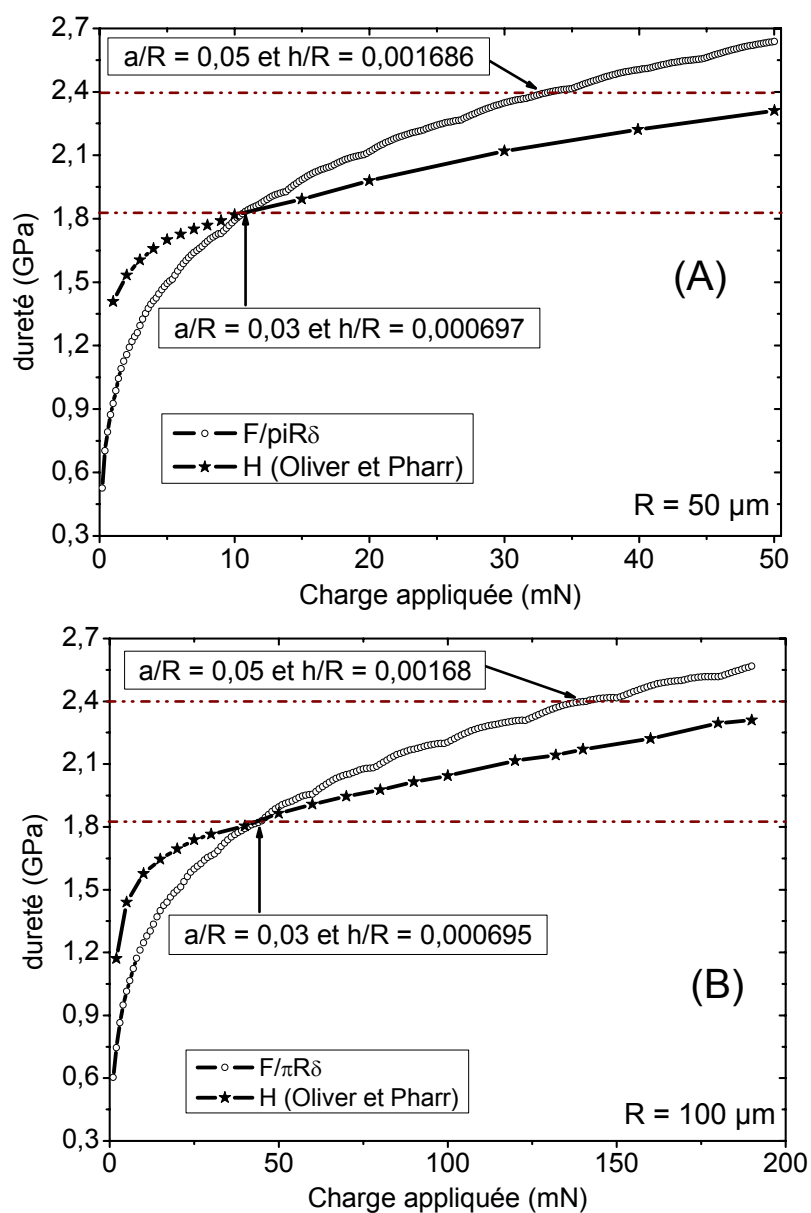


Figure 2-13 : Variation de la dureté en fonction de la charge appliquée

Avec  $F$  la charge appliquée, le déplacement  $\delta$ ,  $R$  et  $a$  sont les rayons respectivement de la pointe et de la zone de contact.

Maintenant, représentons la pression moyenne (ou dureté)  $F/\pi R\delta$  en fonction de la déformation en indentation sphérique  $a/R$ . Cette représentation est illustrée dans la figure 2-14. Aux faibles déformations  $a/R$  (donc faibles charges appliquées ou profondeurs d'indentation), la pression moyenne  $F/\pi R\delta$  varie linéairement avec  $a/R$  d'une part. Et d'autre part, elle coïncide avec les solutions analytiques issues de la théorie de Hertz. Cela offre une possibilité d'utiliser les formules de Hertz, dans la partie linéaire de  $F/\pi R\delta(a/R)$  pour extraire les caractéristiques du matériau.

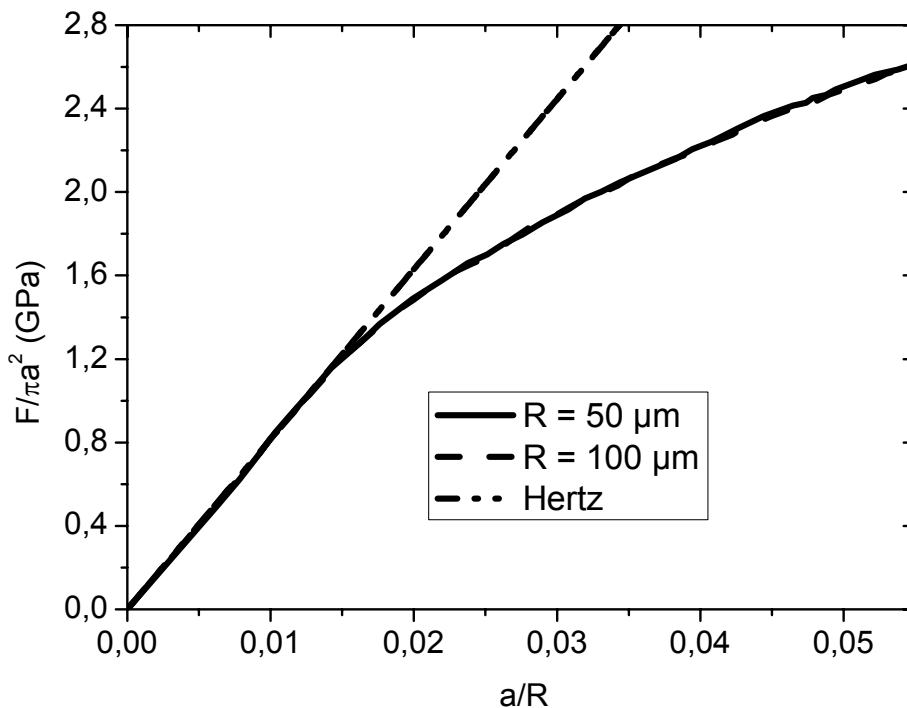


Figure 2-14 : Evolution de la dureté  $F/\pi R\delta$  (pression moyenne) en fonction de la déformation  $a/R$  avec  $(R\delta = a^2)$ .

### 2.3.3. Conclusion

D'abord notre code de simulation est validé en déformations élastique et élastoplastique. Puis, l'étude élastoplastique menée nous a permis de mettre en évidence certaines particularités de

la déformation en indentation sphérique d'un milieu homogène dans le domaine des petites déformations. Elle a aussi permis de conclure que la variation de la dureté aux faibles charges appliquées est liée à la transition entre le comportement dominé par l'élasticité à celui gouverné par la plasticité. En effet, cette variation est observée dans le domaine de charge appliquée ( $a/R < 0,0195$ ) telle que le volume plastique n'a pas encore atteint la surface libre du matériau. La variation linéaire de la dureté avec  $a/R$  (pour  $a/R > 0,03$ ) est liée à la forme aplatie de la pression de contact qui est provoquée par l'arrivée du volume plastique à la surface libre du matériau. L'approximation de la décharge d'un indenteur sphérique à celle d'un poinçon plat ne peut être correcte qu'à partir de  $F/F^* = 12,5$  ( $a/R > 0,03$ ). C'est pourquoi le module d'élasticité obtenu est constant et proche de celui considéré dans le calcul. Par ailleurs, les résultats issus de la méthode de Oliver et Pharr sont fortement affectés par la portion de la courbe de décharge modélisée. Nous avons aussi montré qu'en indentation sphérique, la dureté d'un matériau peut alternativement être calculée à partir de l'expression 2-14 et son module de Young de la représentation pression moyenne-déformation. Néanmoins, en indentation instrumentée, les paramètres directement mesurables sont la charge appliquée  $F$  et le déplacement normal de l'indenteur (appelé profondeur d'indentation). L'application expérimentale de la relation 2-14 est donc conditionnée par le calcul direct de  $\delta$  à partir du déplacement normale  $U_z$  (équation 2-13). Le chapitre 4 sera consacré à cette optique et aussi à l'établissement d'un processus de détermination du module d'élasticité.

Le prochain chapitre est consacré à l'étude de l'indentation sphérique des matériaux revêtus de films minces (systèmes film-substrat) et l'analyse des paramètres les plus influents.

# Chapitre 3. Etude numérique de l'indentation de substrats élastoplastiques revêtus de films durs

## 3.1. Introduction

De nos jours, les films minces, censés conférer des propriétés fonctionnelles aux surfaces, sont de plus en plus utilisés. Malgré une compatibilité physico-chimique, le système film-substrat réalisé peut s'avérer défaillant en condition d'utilisation sous sollicitations mécaniques. Cette dégradation peut se manifester, par exemple, par des fractures qui apparaissent lors d'un chargement mécanique [40 65]. Une étude prévisionnelle de la viabilité du système réalisé est nécessaire et, est en général supportée par une simulation numérique de la pièce en fonctionnement. Il est alors impératif de comprendre et de caractériser les processus de déformation du système afin de pouvoir palier ses défaillances éventuelles.

Pour appréhender le comportement des revêtements, en général physiquement minces, on a recours à l'essai d'indentation instrumentée (ou nanoindentation). Il permet, non seulement de déterminer les propriétés mécaniques (dureté et module de Young) [16 22], mais aussi de comprendre le comportement des systèmes film-substrat lors de sollicitations de contact [65]. L'analyse des résultats expérimentaux des tests d'indentation sphérique de films durs sur substrats mous peut être difficile en raison du développement d'une zone plastique dans le substrat, facteur influant sur la réponse en indentation de ce type de système. Djabella et Arnell [66], Li et Chou [67] (avec la méthode des éléments finis), Kouitat et *al.* [41 68] (avec la méthode des éléments de frontières) ont examiné les contraintes d'origine mécanique lors de l'indentation sphérique de systèmes film-substrat (de modules de Young différents) dans le domaine des déformations élastiques. Ces études ont montré que les contraintes dans le film dépendent dans une large mesure des rapports  $t_F / a$  ( $a/t_F$ ) et  $E_s/E_F$ . Rappelons que  $a$  et  $t_F$  sont respectivement le rayon de contact et l'épaisseur du film. Une approche analytique du problème a été récemment proposée par Miranda [69], en mettant l'accent sur la détermination des profondeurs d'indentation et des rayons de contact. Ces travaux, forts utiles, ne permettent malheureusement pas d'analyser l'influence d'une plastification éventuelle dans le substrat. En effet, l'augmentation du volume plastique dans le substrat

entraîne la flexion du film, qui se comporte comme une plaque reposant sur des fondations inélastiques [70-71]. Ces mêmes études ont montré que la transition entre le comportement du type Hertzien et celui gouverné par la flexion du film (qui se produit à un certain niveau d'indentation) peut être influencée par l'épaisseur du film, la limite d'élasticité du substrat, les contraintes résiduelles etc. A l'aide de la méthode numérique des éléments finis, Fischer Cripps et *al.* [72], Weppelmann et Swain [40], Sriram et *al.* [73] ont étudié les contraintes dans un film déposé sur un substrat élastoplastique. Ces travaux n'ont pas apporté de solutions aux issues pertinentes (comme par exemple le développement du volume plastique et ses conséquences) pour la caractérisation par indentation de ce type de système. Ce n'est qu'en 2006 [39] qu'une étude numérique par la méthode des éléments finis de l'indentation sphérique d'un film rigide déposé sur un substrat élastoplastique a montré que la transition entre le comportement Hertzien et celui gouverné par la flexion du film (accentuée lui aussi par la déformation plastique développée dans le substrat) commence pour une valeur  $a/t_F$  comprise entre 0,2 et 0,3 ( $a$  et  $t_F$  étant respectivement le rayon de contact et l'épaisseur du film).

Toutefois, certains aspects de la déformation en indentation sphérique de système film-substrat élastoplastique restent à éclaircir. Il s'agit, par exemple, de l'influence de la plasticité du substrat et de l'évolution de son volume sur la réponse ; de l'évolution de la distribution des contraintes (dans le film, à l'interface et dans le substrat) et du profil de surface (aussi bien dans la phase du chargement que pendant la décharge); de l'éventuelle réplastification du substrat pendant la décharge.

Notre objectif est de contribuer à éclaircir les points précédents et si possible de proposer une méthode simple permettant d'accéder aux caractéristiques du film. Ainsi des simulations numériques (par la méthode des éléments de frontières) de l'indentation sphérique d'un film dur déposé sur un substrat élastoplastique ont été effectuées. L'indenteur sphérique utilisé est une bille en diamant de rayon de courbure  $R$ , de module élastique  $E_i = 1140$  GPa et de coefficient de Poisson  $\nu_i = 0,07$ .

### 3.2. Analyse de l'indentation sphérique élastoplastique d'un substrat revêtu

Dans cette partie l'indentation sphérique d'un système film-substrat avec une pointe sphérique de rayon  $R = 50 \mu\text{m}$  ( $R/t_F = 16,66$ ), est d'abord considérée. Le substrat est assimilé à un massif semi-infini élastoplastique ayant les mêmes caractéristiques que le milieu homogène utilisé dans la partie 2.3.2 (page 49) ( $E_s = 210 \text{ GPa}$ ,  $\nu_s = 0,3$ ,  $\sigma_{ys} = 0,8 \text{ GPa}$ ). Deux films supposés se déformer dans le domaine élastique, de même épaisseur  $t_F = 3 \mu\text{m}$  et même coefficient de Poisson ( $\nu_F = 0,3$ ), sont d'abord considérés. Les deux films sont respectivement deux fois ( $E_F = 2E_s$ ) et trois fois ( $E_F = 3E_s$ ) plus rigides que le substrat. Le choix du rayon de la pointe  $R = 50 \mu\text{m}$  se justifie par le souci de rester réaliste vis-à-vis de la pratique en indentation instrumentée. Différentes valeurs maximales de la charge appliquée sont considérées. On note  $F^*$  la charge nécessaire à l'apparition de la plasticité dans le substrat. Dans nos investigations numériques, le substrat commence à se plastifier pour l'application de  $F^*$  égale à 21 mN lorsque le système  $E_F = 2E_s$  et 24 mN pour l'autre ( $E_F = 3E_s$ ). La profondeur de plastification initiale est  $Z^* = 3 \mu\text{m}$  (soit l'interface film-substrat) pour les deux combinaisons film-substrat utilisées. Les courbes charge/décharge issues de nos calculs numériques sont représentées dans la figure 3-1. La profondeur d'indentation maximale  $h_m$  (correspondant à la charge maximale appliquée) est bien inférieure à 10% de l'épaisseur du film ( $h_m < 0,3 \mu\text{m}$ ) pour les deux systèmes étudiés (figure 3-1). Il est néanmoins difficile de tirer une conclusion pertinente sur le comportement des systèmes film-substrat à partir de la simple observation de ces courbes charge/décharge.

Afin de mieux comprendre plus précisément les phénomènes physiques qui se produisent durant l'indentation de substrats revêtus, nous avons étudié l'évolution du volume plastique développé dans le substrat, les distributions de pression de contact, de contraintes en différents points internes, et le profil de surface (« sink-in » et « pile-up ») à la charge maximale et après la décharge totale.

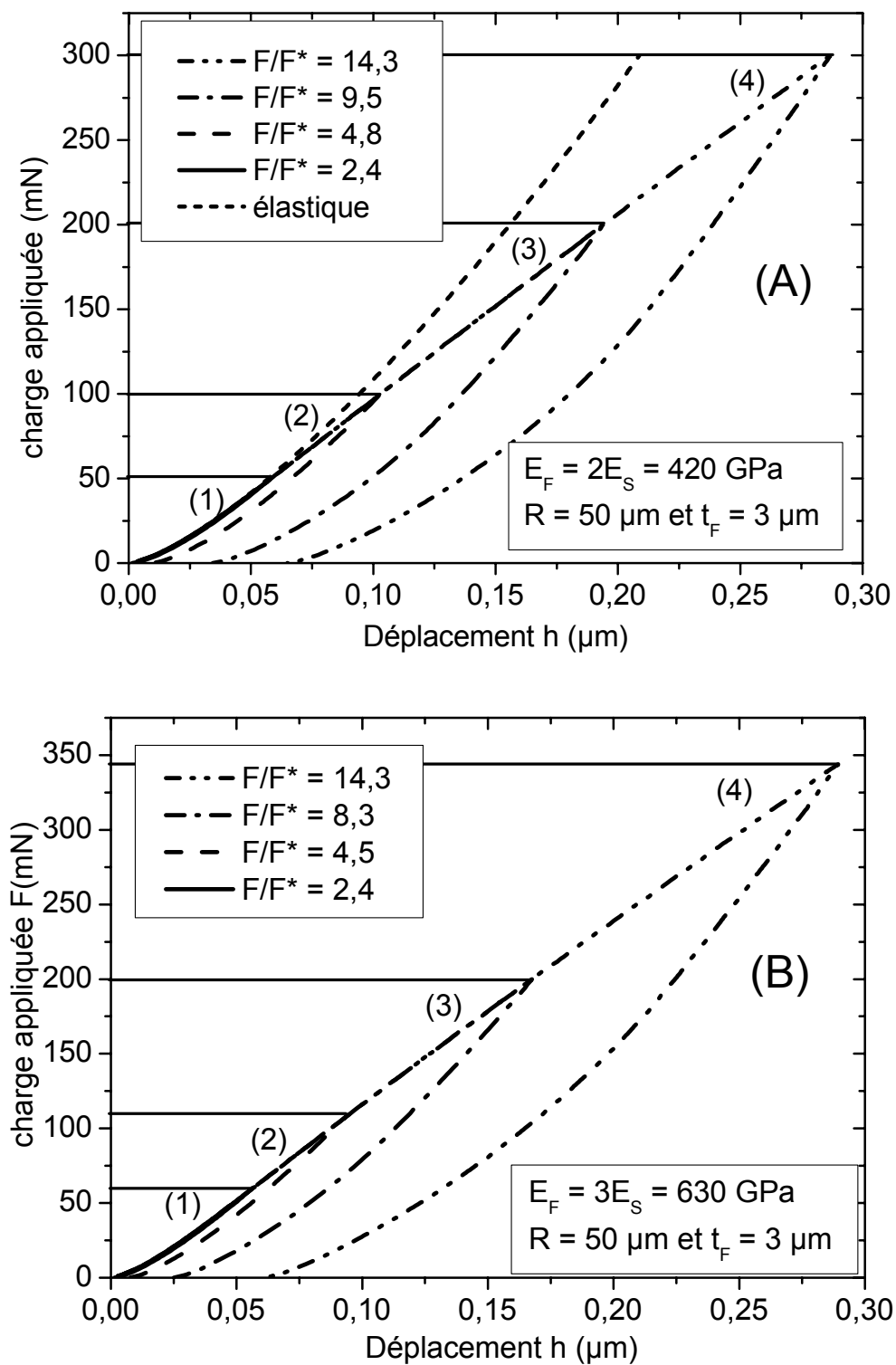


Figure 3-1 : Cycles charge-décharges issus de l'indentation sphérique élastoplastique d'un système film-substrat ( $R = 50 \mu\text{m}$  et  $t_F = 3 \mu\text{m}$ ) aux différentes charges maximales appliquées pour respectivement : (A)  $E_F/E_S = 2$  et (B)  $E_F/E_S = 3$

## 3.2.1. La pression de contact

Aux faibles charges appliquées ( $F/F^*$ ), la distribution de pression de contact en indentation sphérique d'un substrat revêtu d'un film rigide, a une forme elliptique semblable à la distribution de pression de Hertz (figure 3-2). Cette pression augmente avec le rapport  $F/F^*$  jusqu'à atteindre une valeur maximale puis commence à diminuer. La valeur maximale de la

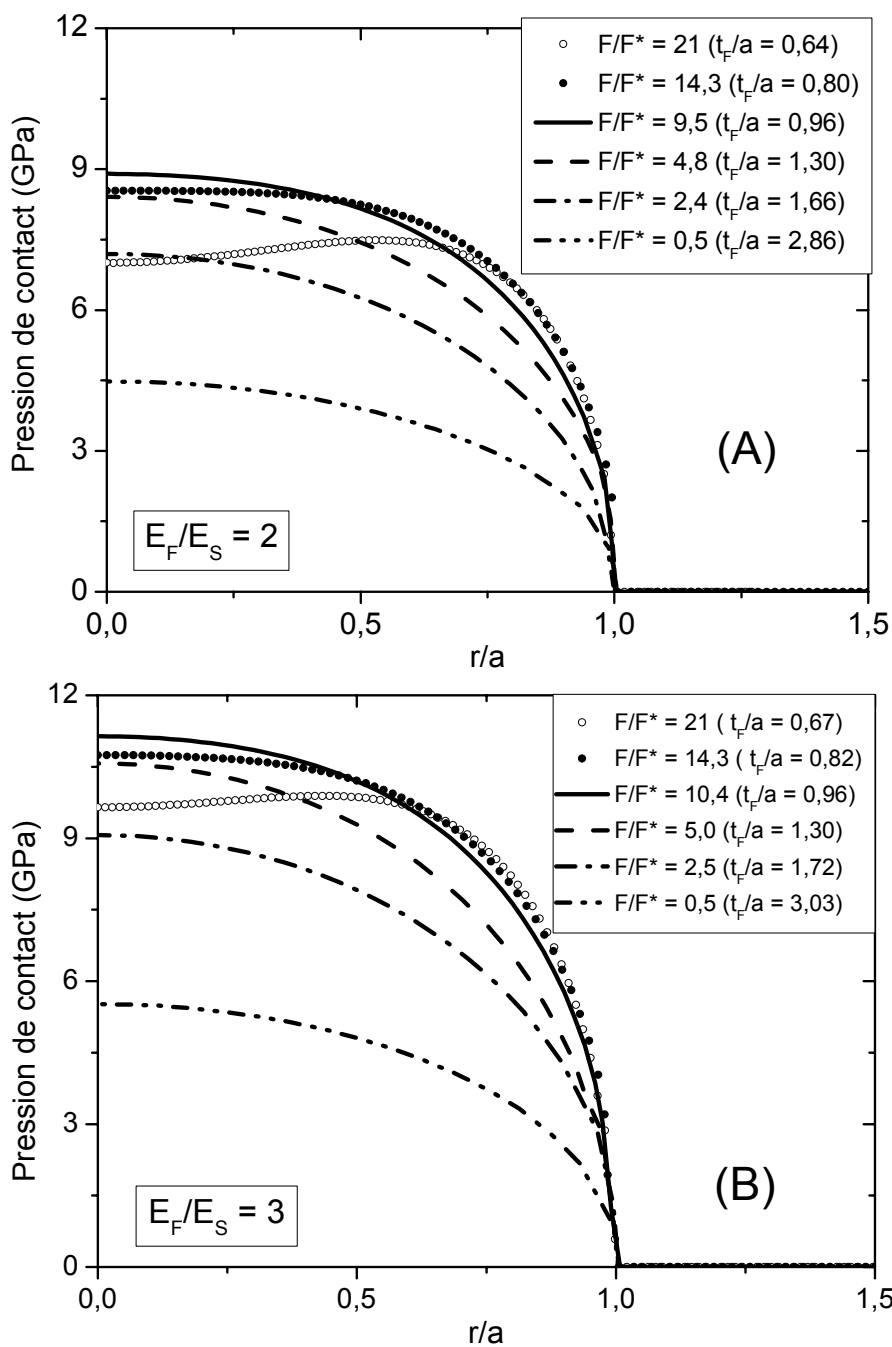


Figure 3-2 Distribution de la pression de contact induite durant l'indentation élastoplastique d'un système film-substrat ( $R/t_F = 16,66$ ) ; (A)  $E_F/E_S = 2$  et (B)  $E_F/E_S = 3$ .



pression de contact est atteinte pour un niveau de chargement  $F/F^* = 7,5$  (soit  $h/R = 0,0035$  et  $t_F/a = 1,06$ ) lorsque le rapport  $E_F/E_s = 2$  (figure 3-2 A) et  $F/F^* = 8,33$  (soit aussi  $h/R = 0,0035$  et  $t_F/a = 1,06$ ) pour le rapport  $E_F/E_s = 3$  (figure 3-2 B). A partir de la profondeur de contact  $h/R = 0,00414$  (soit et  $F/F^* = 9,50$  et  $10,40$  pour respectivement,  $E_F/E_s = 2$  et  $3$ ), la pression commence à décroître avec la charge appliquée. On constate que la pression de contact reste à peu près constante dans une plage du rapport  $t_F/a$ . A notre connaissance, cette « saturation » de la pression de contact durant l'indentation sphérique des systèmes film-substrat n'a jamais été mise en évidence de manière aussi claire. En effet, ce phénomène advient pour les deux systèmes ( $E_F/E_s = 2$  et  $E_F/E_s = 3$ ,  $t_F = 3 \mu\text{m}$ ) aux charges appliquées telles le rapport  $h/R$  soit compris entre  $0,00335$  et  $0,00414$  (soit pour une épaisseur résolue du film  $t_F/a$  comprise entre  $1,06$  et  $0,96$ ). Dans les cas étudiés jusqu'à présent, au delà de la profondeur d'indentation  $h/R = 0,00414$  (soit  $t_F/a < 0,96$ ), la pression de contact diminue lorsque le niveau de chargement maximal  $F/F^*$  augmente.

Etudions maintenant l'influence des rapports  $E_F/E_s$ ,  $E_s/\sigma_{YS}$  et  $R/t_F$  sur la déformation en indentation sphérique. Le choix de ces rapports est justifié par leur large utilisation dans de récents travaux de la bibliographie (par exemple [39 40]). Pour cela, des modélisations numériques de l'indentation sphérique de systèmes film-substrat sont réalisées en faisant varier chacun (pour les deux autres constants) de ces trois paramètres. Les résultats issus de nos investigations numériques sont regroupés dans la figure 3-3 où l'on s'intéresse à la plage de constance du rapport  $t_F/a$ .

Lorsqu'on fixe les rapports  $R/t_F$  et  $E_s/\sigma_{YS}$ , respectivement à  $16,66$  et  $263$ , l'intervalle  $t_F/a$ , dans lequel la pression de contact est quasiment constante, est proche de  $1$  (soient les valeurs  $t_F/a$  comprise entre  $0,96$  et  $1,06$ ) dès que  $E_F/E_s > 1,5$ . Pour les rapports  $E_F/E_s$  inférieurs à  $1,5$  cet intervalle se réduit et se déplace vers les petites valeurs  $t_F/a$  (figure 3-3 A). La figure 3-4 A donne l'évolution de la pression de contact durant l'indentation sphérique d'un système film-substrat pour  $E_F/E_s = 0,5$  (appartenant au domaine où  $E_F/E_s < 1,5$ ). Comme dans les cas où le film est deux ou trois fois plus rigide que le substrat (Cf. figure 3-2), la pression de contact croît, atteint sa valeur maximale et décroît autour de l'axe de symétrie lorsque la charge appliquée augmente. Cette fois ( $E_F/E_s = 0,5$ ), la saturation de la pression

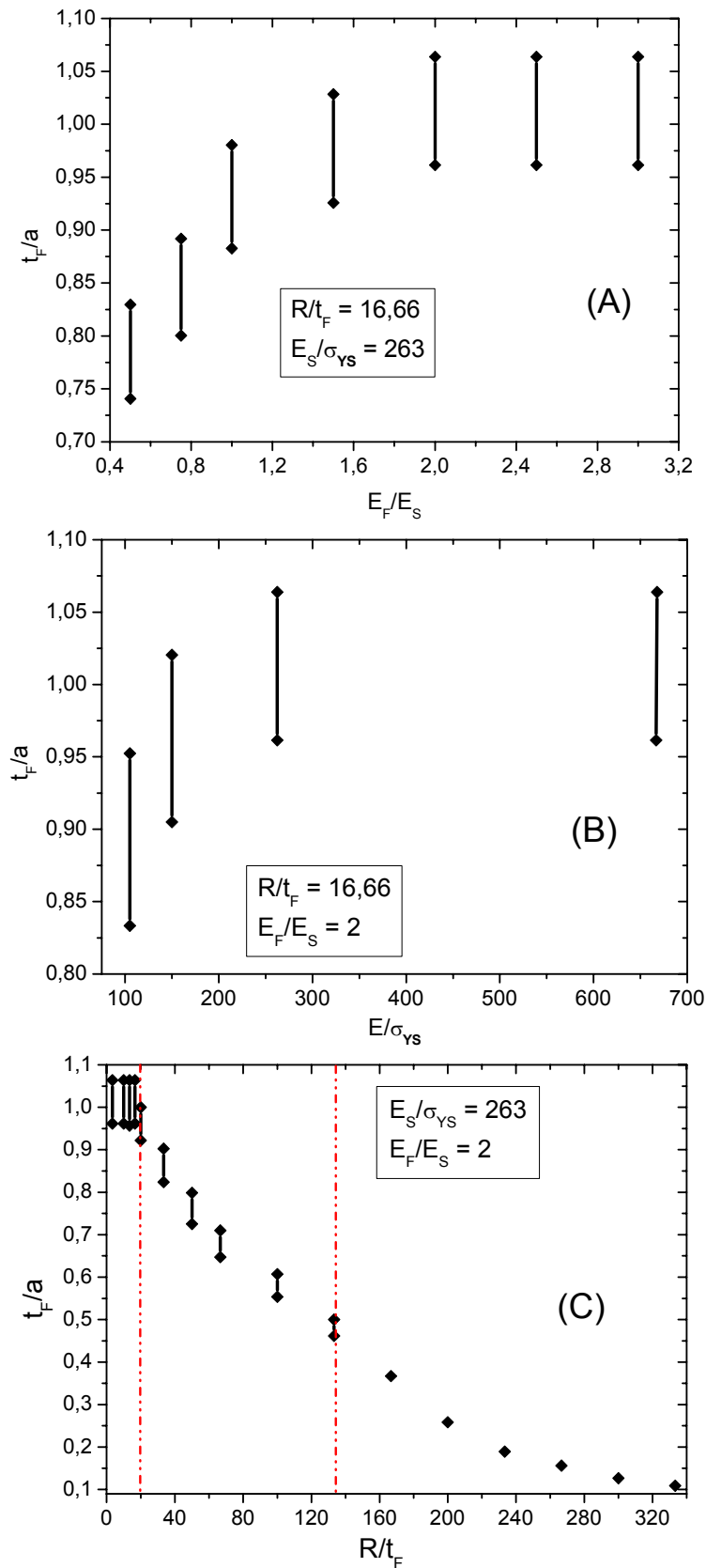


Figure 3-3 : Evolution, durant l'indentation sphérique, du rapport  $t_F/a$  correspondant à la saturation de la pression de contact pour différentes configurations du système film-substrat.

de contact intervient à des petites valeurs de l'épaisseur résolue du film ( $t_F/a$  compris entre 0,74 et 0,83) (figure 3-4 A). De plus, après saturation, la pression de contact décroît autour de l'axe de symétrie, et continue à augmenter à proximité du bord du contact.

Ce type de variation est également observé, avec la décroissance de  $E_S/\sigma_{YS}$  (pour  $E_F/E_S = 2$  et  $R/t_F = 16,66$ ) (figure 3-3 B). En effet, l'intervalle  $t_F/a$ , dans lequel la pression de contact reste à peu près saturée, est quasiment constant et proche de 1 (soient  $t_F/a$  comprise entre 0,96 et 1,06) pour  $E_S/\sigma_{YS} \geq 263$ . Il se déplace, pour  $E_S/\sigma_{YS} < 263$ , vers les faibles épaisseurs résolues du film  $t_F/a$  lorsque  $E_S/\sigma_{YS}$  diminue.

Maintenant, si on maintient constants  $E_F/E_S$  et  $E_S/\sigma_{YS}$  respectivement à 2 et 263 et qu'on fait varier  $R/t_F$ , on distingue trois domaines (figure 3-3 C) qui sont :

- (1) Pour tout  $R/t_F$  strictement inférieur à 20, l'intervalle  $t_F/a$  dans lequel la pression de contact reste « saturée », est quasiment constant et proche de 1 (soient  $t_F/a$  comprise entre 0,96 et 1,06). Dans cette plage de  $R/t_F$ , l'évolution de la pression de contact est similaire à celle décrite dans la figure 3-2. A partir de  $t_F/a = 0,96$ , la pression moyenne de contact diminue lorsque l'épaisseur résolue du film décroît (c'est à dire lorsque le rapport  $F/F^*$  croît).
- (2)  $R/t_F$  allant de 20 à 133,33. Dans cette plage, on observe un rétrécissement progressif de l'intervalle  $t_F/a$  (saturation de la pression de contact) et sa diffusion vers les petites valeurs  $t_F/a$ , lorsque le rapport  $R/t_F$  augmente. Nous avons aussi constaté que pour  $R/t_F$  allant de 20 à 133,33, la pression de contact évolue comme dans le cas décrit dans la figure 3-4 A où  $R/t_F = 16,66$  et  $E_F/E_S = 0,5$ .
- (3) Pour les grands rapports  $R/t_F$  ( $>133,33$ ), la saturation de la pression de contact advient non pas sur un intervalle, mais à une valeur de  $t_F/a$  qui est d'autant plus petite que le rapport  $R/t_F$  est grand. En plus, dans cette plage de  $R/t_F$ , au lieu de diminuer, la pression de contact stagne autour de l'axe de symétrie à sa valeur maximale et continue à augmenter proche de la limite de la zone de contact lorsque le

rapport  $t_F/a$  décroît (c'est-à-dire le rapport  $F/F^*$  croît) (figure 3-4 B). Ce profil de pression de contact est semblable à celui obtenu pour un milieu homogène.

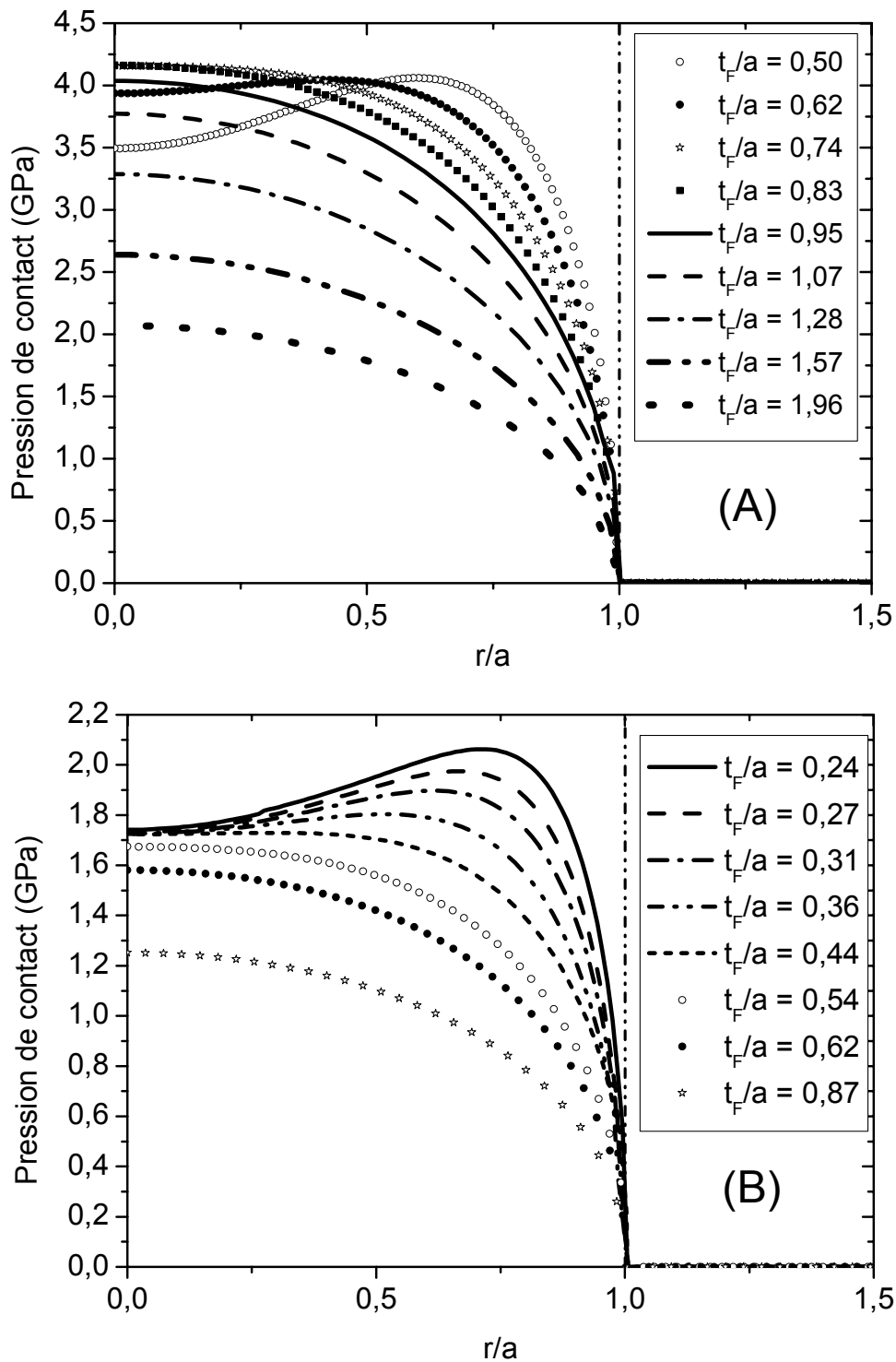


Figure 3-4 : Evolution de la pression de contact durant l'indentation sphérique d'un système film-substrat pour respectivement : (A)  $E_F/E_S = 0,5$  et  $R/t_F = 16,66$  ; (B)  $E_F/E_S = 2$  et  $R/t_F = 166,66$ .

Afin de comprendre les comportements (décrits ci-dessus) de la pression de contact lors de l'indentation sphérique des systèmes film-substrat, nous avons, dans le paragraphe suivant, étudié les évolutions du volume plastique développé dans le substrat.

### 3.2.2. Evolution du volume plastique dans le substrat durant l'indentation sphérique d'un système film-substrat

Durant l'indentation sphérique d'un système film-substrat ( $E_F = 2E_s$ ,  $t_F = 3 \mu\text{m}$ ), la plasticité s'initie à l'interface soit à une profondeur  $Z^* = 3 \mu\text{m}$  et pour une charge appliquée  $F^* = 21 \text{ mN}$ . Quand on augmente le niveau de chargement  $F/F^*$ , la zone plastique s'étend radialement et en profondeur (figure 3-5). Soit  $Z_p = (|Z| - t_F)$  et  $r_p$  respectivement la profondeur et le rayon du volume plastique développé dans le substrat. Aux faibles niveaux de chargement  $F/F^*$ , le rayon du volume plastique ( $r_p$ ) est supérieur à la profondeur ( $Z_p$ ). Lorsque  $F/F^*$  atteint une valeur limite,  $Z_p$  devient égale à  $r_p$ . Cette valeur limite est telle que  $t_F/a = 1,06$  (soit  $h/R = 0,00335$ ). Les dimensions du volume plastique  $r_p$  et  $Z_p$  restent égales, pour les rapports  $F/F^*$  compris entre 7,50 et 9,50 (soit  $t_F/a$  allant de 1,06 à 0,96 et  $h/R$  de 0,00335 à 0,00414). Pour des valeurs élevées de  $F/F^*$  telles que  $t_F/a < 0,96$  (soit  $h/R > 0,00414$ ), la profondeur plastique ( $Z_p$ ) devient supérieure au rayon plastique correspondant ( $r_p$ ) (figure 3-5). Nous avons également observé ce type de comportement pour le cas où  $E_F = 3E_s$  dont les courbes charge-décharge sont représentées dans la figure 3-1 B. Nous analyserons plus loin l'effet de cette évolution particulière de la déformation sur les paramètres mesurés par la méthodologie classique d'analyse de l'indentation instrumentée.

Remarquons qu'avant que soit atteinte la valeur maximale de la pression de contact, le rayon du volume plastique  $r_p$  est inférieur à sa profondeur  $Z_p$  (Cf. figures 3-2 et 3-5). Les dimensions plastiques ( $r_p$  et  $Z_p$ ) restent à peu près égales lorsque la pression de contact est saturée. Enfin la profondeur  $Z_p$  devient supérieure au rayon du volume plastique  $r_p$  pendant la décroissance de la pression de contact (Cf. figures 3-2 et 3-5). Ainsi, durant l'indentation sphérique, le comportement de la pression de contact est fortement lié au développement de la plasticité dans le substrat. Des études ont déjà révélé que la réponse en indentation sphérique de substrats revêtus est fortement influencée, non seulement par le développement de la plasticité dans le substrat, mais aussi par l'épaisseur du film  $t_F$  [70 71 65].

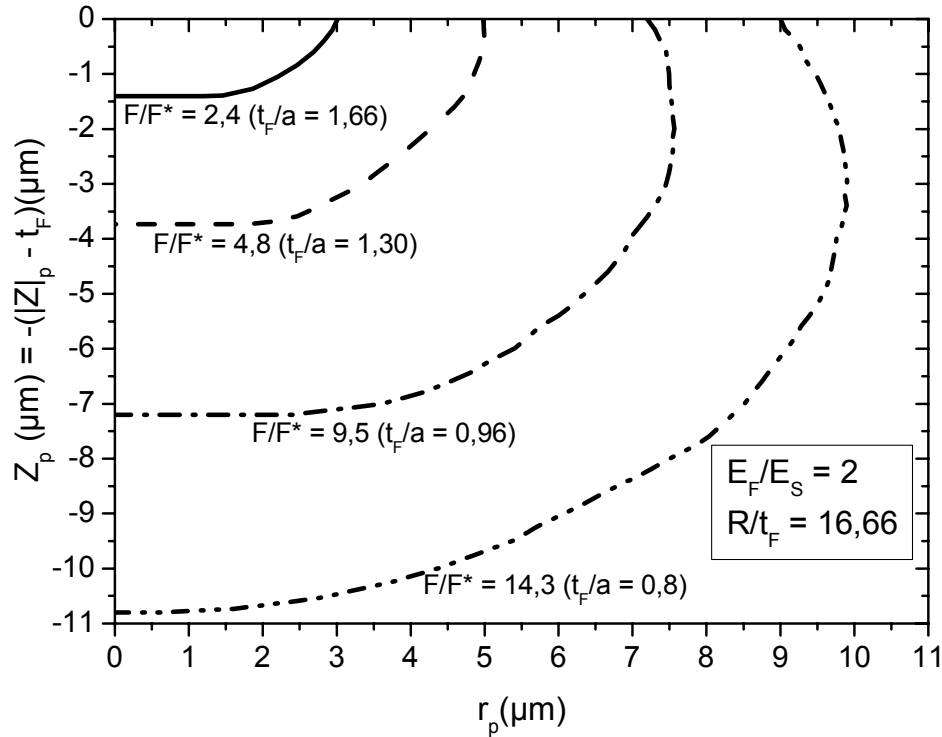


Figure 3-5 : Evolution du volume plastique dans le substrat lors de l'indentation sphérique d'un système film-substrat ( $R/t_F = 16,66$  et  $E_F/E_S = 2$ ).

Les figures 3-6 et 3-7 représentent les évolutions du volume plastique développé dans le substrat respectivement pour les configurations du système film-substrat  $E_F/E_S = 0,5$  (avec  $R/t_F = 16,66$ ) et  $E_F/E_S = 2$  (avec  $R/t_F = 166,66$ ).

Rappelons que pour  $E_F/E_S \leq 1,5$  (avec  $R/t_F = 16,66$ ), l'intervalle  $t_f/a$  dans lequel la pression de contact reste « saturée » se déplace vers les faibles valeurs  $t_f/a$  lorsque le rapport  $E_F/E_S$  décroît (figure 3-3 A). Et après sa saturation, la pression de contact décroît avec la charge appliquée à partir d'une épaisseur résolue de l'ordre de  $t_f/a = 0,74$  si le rapport  $E_F/E_S$  est égal à 0,5 et  $R/t_F = 16,66$  (figure 3-4 A). Remarquons qu'à ce stade de l'indentation ( $t_f/a = 0,74$ ), la profondeur  $Z_p$  du volume plastique est quasiment égale au rayon correspondant  $r_p$  alors que, initialement  $r_p$  est supérieur à  $Z_p$  (figure 3-6). Le profil de pression de contact serait donc lié au niveau de déformation plastique dans le substrat. Pour obtenir un même niveau de déformation plastique dans le substrat, pour les cas où  $E_F/E_S = 0,5$  et  $E_F/E_S = 2$ , il est donc nécessaire que l'épaisseur résolue du film soit moins

importante (donc le rayon de contact «  $a$  » grand) dans le premier cas. C'est pour cette raison que  $t_F/a$  (où la pression reste saturée) est plus faible si  $E_F/E_S$  est petit (figure 3-3 A).

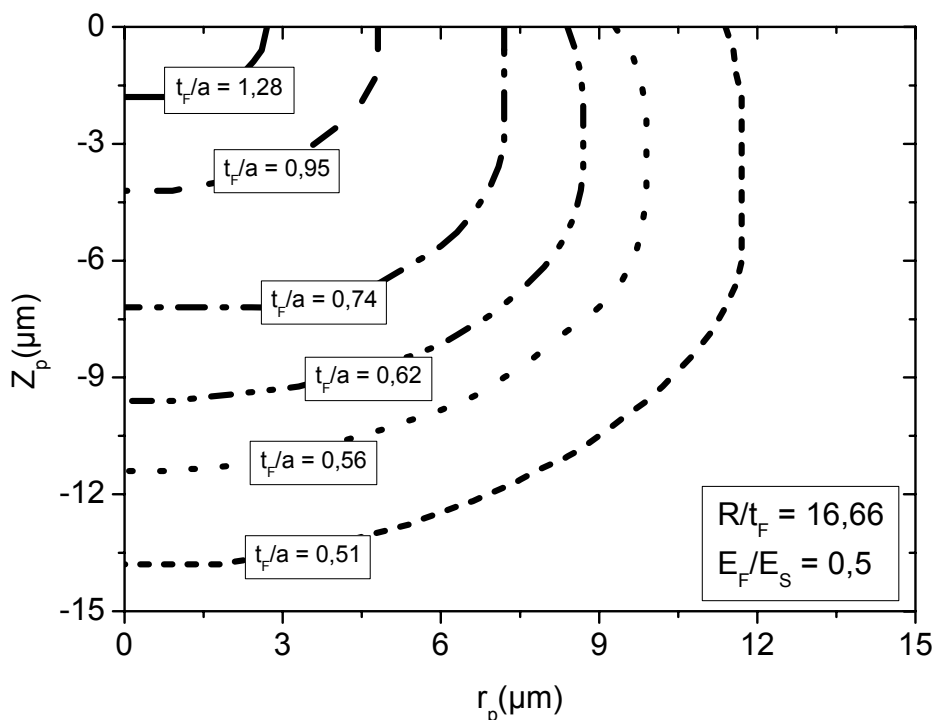


Figure 3-6 : Evolution du volume plastique dans le substrat lors de l'indentation sphérique d'un système film-substrat pour respectivement :  $E_F/E_S = 0,5$  et  $R/t_F = 16,66$ .

Remarquons aussi que, pour  $R/t_F > 133,33$  ( $E_F/E_S = 2$ ), cette saturation intervient non pas dans un intervalle mais pour une valeur de  $t_F/a$  qui diminue progressivement avec la croissance de  $R/t_F$  (figure 3-3 C). L'analyse de l'évolution de la pression de contact montre qu'après sa saturation autour de l'axe de symétrie, au lieu de diminuer, elle stagne lorsque la charge appliquée augmente (figure 3-4 B) ; simultanément, elle continue à augmenter à proximité de la limite de la zone de contact. Cette saturation autour de l'axe de symétrie advient par exemple à  $t_F/a = 0,44$  pour  $R/t_F = 166,66$  (figure 3-4 B). A ce stade de l'indentation, les dimensions ( $Z_p$  et  $r_p$ ) du volume plastique sont à peu près égales (figure 3-7). De plus, dans cette plage  $R/t_F > 133,33$ , nous avons remarqué que, durant le processus d'indentation, la plasticité s'initie au cœur du substrat (figure 3-7) et non à l'interface film-substrat. Ainsi, le comportement de la pression de contact, décrit dans la figure 3-3 C, est lié d'une part à l'initiation de la plasticité au cœur du substrat et d'autre part à son évolution. Par

conséquent le système film-substrat aura tendance à se comporter comme un substrat « nu » (non revêtu) aux larges valeurs de  $R/t_F$ .

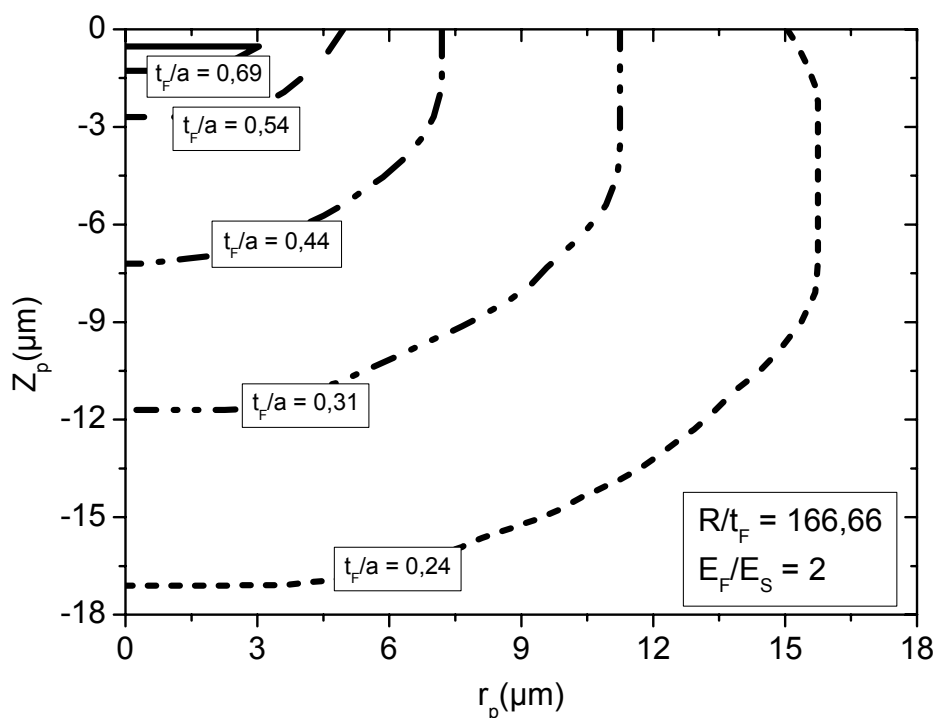


Figure 3-7 : Evolution du volume plastique dans le substrat lors de l'indentation sphérique d'un système film-substrat pour respectivement :  $E_F/E_S = 2$  et  $R/t_F = 166,66$ .

### 3.2.3. Distribution de contraintes pendant la charge

Précédemment, nous avons vu que le comportement de la pression de contact durant l'indentation d'un substrat revêtu est lié à l'évolution des dimensions radiale et axiale du volume plastique développé dans le substrat. Plus les rapports  $E_F/E_S$  ou  $E_S/\sigma_{YS}$  diminuent ou plus  $R/t_F$  augmente, plus la réponse du système film-substrat en indentation sphérique est influencée par la déformation plastique du substrat. Etudions alors l'évolution de cette déformation sur les contraintes en surface et à cœur de l'assemblage film-substrat.

#### 3.2.3.1. Contraintes radiales surfaciques :

Les distributions de contraintes radiales  $\sigma^r/\sigma_{YS}$  à la surface sont représentées, pour différents niveaux de chargement  $F/F^*$  (donc à  $t_F/a$  différents), dans la figure 3-8. Pour de faibles valeurs de  $F/F^*$  (grandes épaisseurs résolues du film  $t_F/a$ ), la variation de la



contrainte radiale normée par la limite d'élasticité du substrat ( $\sigma^r/\sigma_{YS}$ ) est semblable à celle issue de la théorie de Hertz [2 3]. De grandes valeurs négatives de  $\sigma^r/\sigma_{YS}$  sont observées dans la zone de contact. Ces composantes négatives, plus grandes, en valeurs absolues, au niveau de l'axe de symétrie (d'indentation)  $Z$ , diminuent progressivement et deviennent positives pratiquement en  $r/a=1$ . Pour  $F/F^*$  élevé, la contrainte  $\sigma^r/\sigma_{YS}$  atteint son maximum en dehors de la zone de contact ( $r/a > 1$ ). Plus la valeur maximale augmente, plus sa position se déplace légèrement vers le bord de contact (figure 3-8). Ce type de comportement de la contrainte radiale surfacique  $\sigma^r/\sigma_{YS}$  est reporté dans par Weppelmann et Swain [40] et pourrait expliquer la fissuration sous sollicitation d'indentation sphérique.

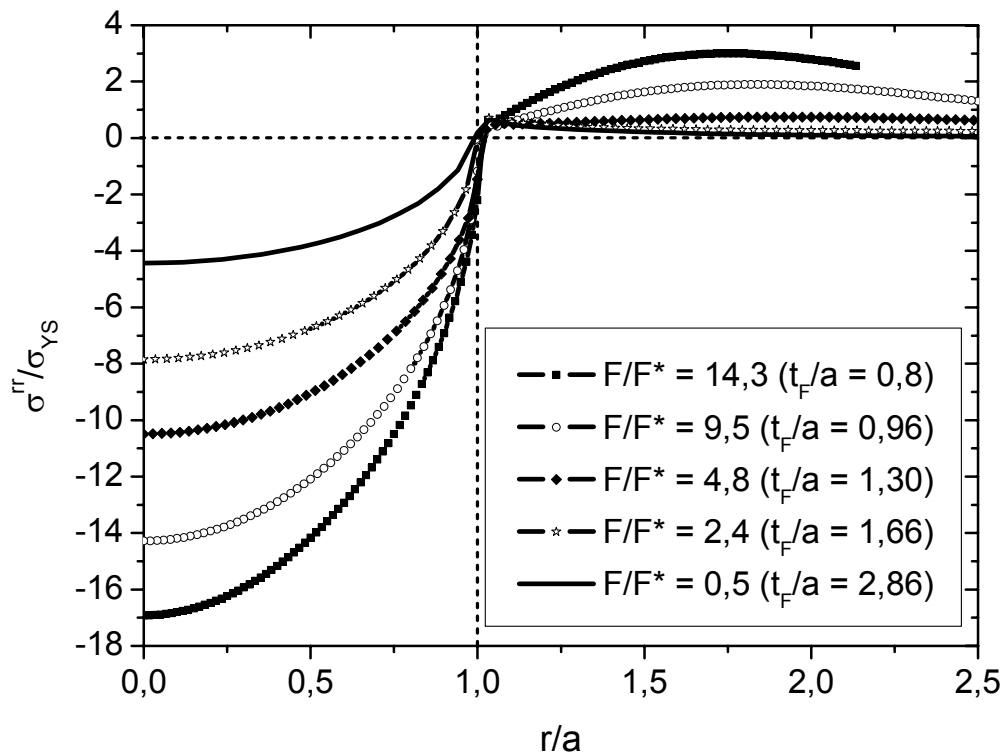


Figure 3-8 : distribution, lors de l'indentation sphérique d'un système film-substrat, de la composante radiale de contrainte  $\sigma^r/\sigma_{YS}$  à la surface.

Nos investigations montrent que, pour obtenir le même profil de contrainte radiale ( $\sigma^r/\sigma_{YS}$ ) à la surface, un rapport  $R/t_F$  constant est insuffisant. Il faudrait en plus que l'épaisseur résolue du film  $t_F/a$  soit la même. En effet, la figure 3-9 représente un exemple pour deux rapports  $R/t_F$  différents. En conclusion, l'amplitude et la position de la contrainte radiale  $\sigma^r/\sigma_{YS}$  ne

dépendent que de l'épaisseur résolue du film  $t_F/a$  pour un rapport  $R/t_F$  constant, quel que soit le rayon de la pointe  $R$  et l'épaisseur du film  $t_F$ .

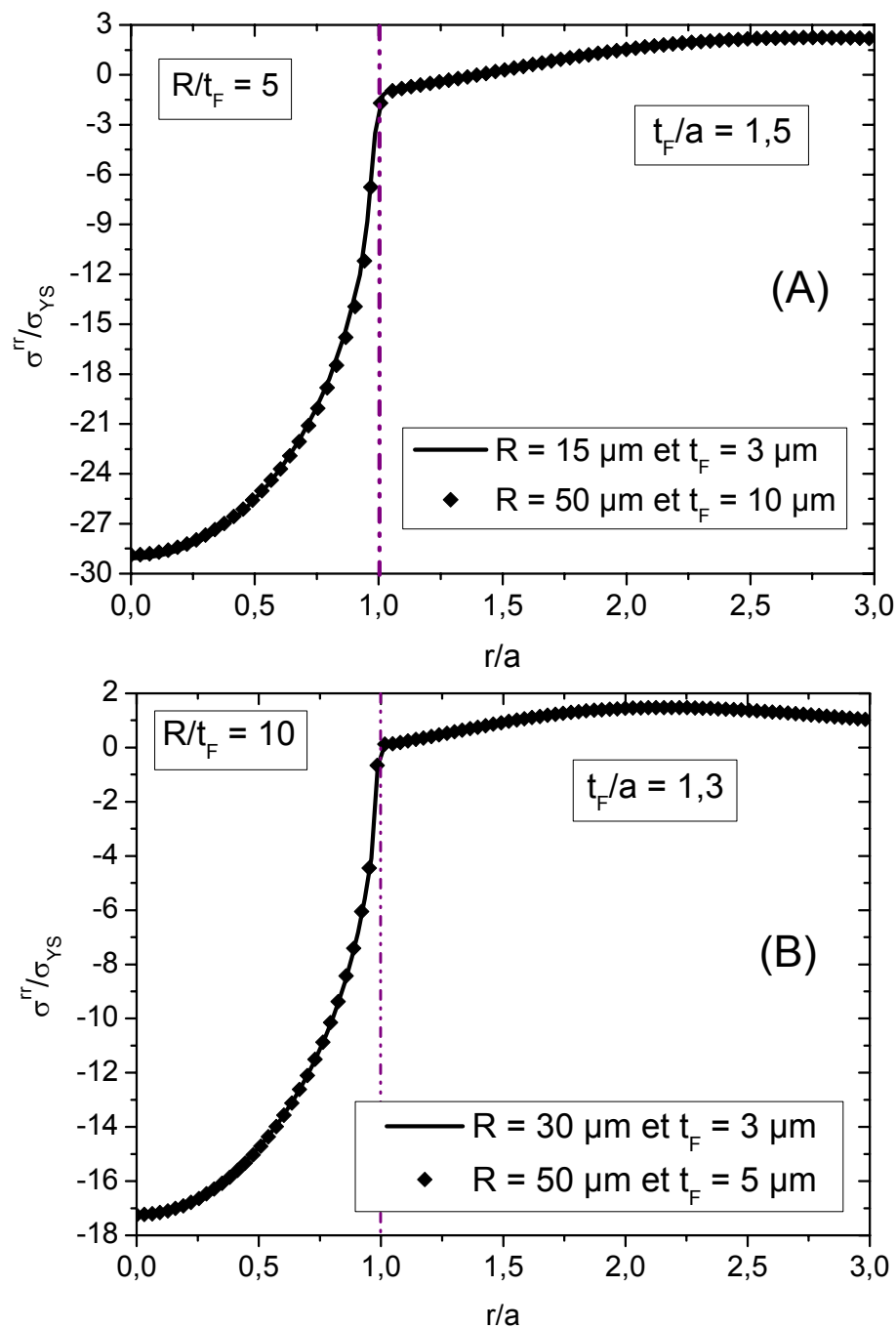


Figure 3-9 : Distributions de la contrainte radiale  $\sigma^r/\sigma_{YS}$  à la surface d'un système film-substrat pour des rapports : (A)  $R/t_F = 5$  et (B)  $R/t_F = 10$ .

Etudions maintenant l'influence du rapport  $R/t_F$  sur les évolutions du maximum de tension de la contrainte radiale  $\sigma^r/\sigma_{YS}$  et de sa position ( $r/a$ ) par rapport au bord de

contact. Pour cela, nous avons fixé le niveau du chargement à  $F/F^* = 14,3$ . Lorsque le rapport  $R/t_F$  augmente, la valeur du maximum de la contrainte radiale  $\sigma^r/\sigma_{YS}$  décroît et sa position ( $r/a$ ) se déplace vers le bord de contact ( $r/a=1$ ) (figure 3-10). En effet, ces variations se répartissent en trois intervalles qui sont :  $R/t_F < 20$  ;  $R/t_F$  allant de 20 à 166,66 et  $R/t_F \geq 166,66$  (figure 3-10). Dans les deux premiers intervalles ( $R/t_F < 20$  et  $R/t_F$  compris entre 20 et 166,66), la décroissance de la valeur du maximum  $\sigma^r/\sigma_{YS}$  et son déplacement vers les faibles  $r/a$  sont observés. Pour les grands rapports  $R/t_F (\geq 166,66)$ , non seulement ce maximum devient constant, mais aussi sa position se situe quasiment au bord de la zone de contact ( $r/a=1$ ) (figure 3-10). Cette situation est similaire à celle d'un

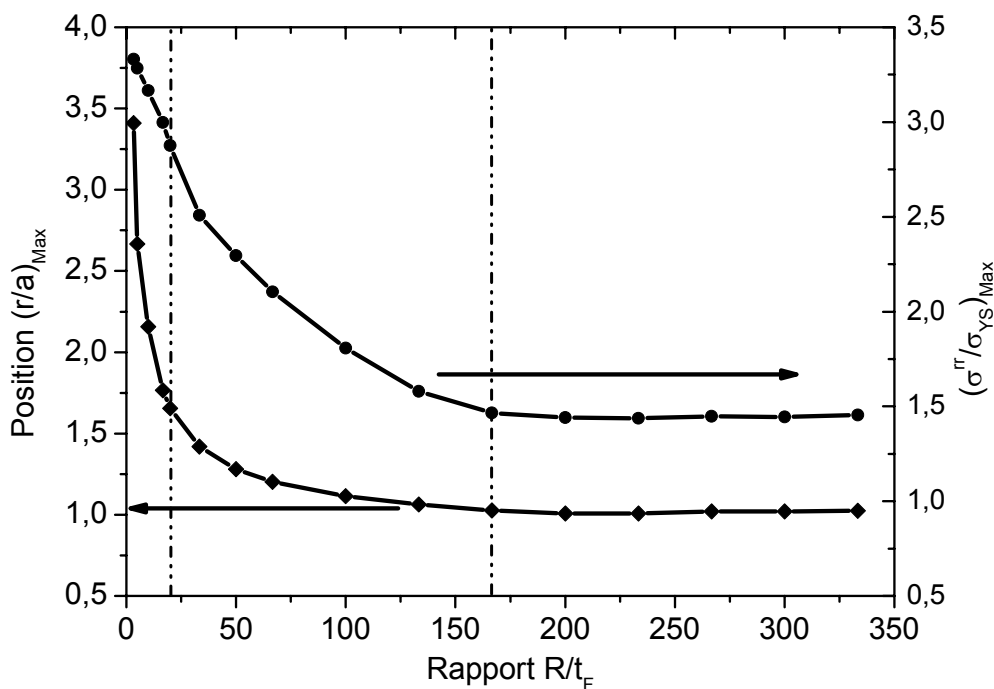


Figure 3-10 : Evolutions du maximum de tension de la contrainte radiale  $\sigma^r/\sigma_{YS}$  et de sa position en fonction du rapport  $R/t_F$ .

matériau massif pour lequel le maximum de  $\sigma^r/\sigma_{YS}$  se trouve pratiquement à la limite du contact. Cela s'explique aussi par l'initiation de la plasticité au cœur du substrat (non pas à l'interface) durant de l'indentation sphérique du système film-substrat. Par conséquent la réponse de l'assemblage film-substrat devient vite dominée par la déformation plastique du substrat.

3.2.3.2. Contraintes radiales le long de l'axe de symétrie  $Z$  :

Lorsqu'on s'intéresse à l'évolution de cette contrainte en profondeur dans le matériau (par exemple le long de l'axe de symétrie  $Z$ ), on retrouve un comportement semblable à celui mis en évidence dans le régime de déformation élastique, aux faibles charges appliquées. En effet, plus l'épaisseur résiduelle du film diminue, plus la déformation de flexion domine dans la réponse du film. Cette déformation se manifeste par un profil de contrainte linéaire dans le film, de compression en extrême surface et de traction à l'interface (figure 3-11). Remarquons qu'à  $F/F^* = 14,3$  (soit  $t_F/a = 0,8$ ),  $\sigma^r/\sigma_{YS}$  est quasiment linéaire et change de signe à une profondeur  $|Z|/t_F = 0,56$  (figure 3-11) conformément à la théorie linéaire de la flexion du film [74] qui prévoit le changement du signe de  $\sigma^r/\sigma_{YS}$  à  $|Z|/t_F = 0,50$ . Donc la flexion du film est importante à  $F/F^* = 14,3$ . Ces observations montrent que plus  $F/F^*$  augmente (plus la déformation plastique développée dans le substrat est grande), plus la réponse du substrat revêtu sous indentation sphérique est influencée par la flexion du film.

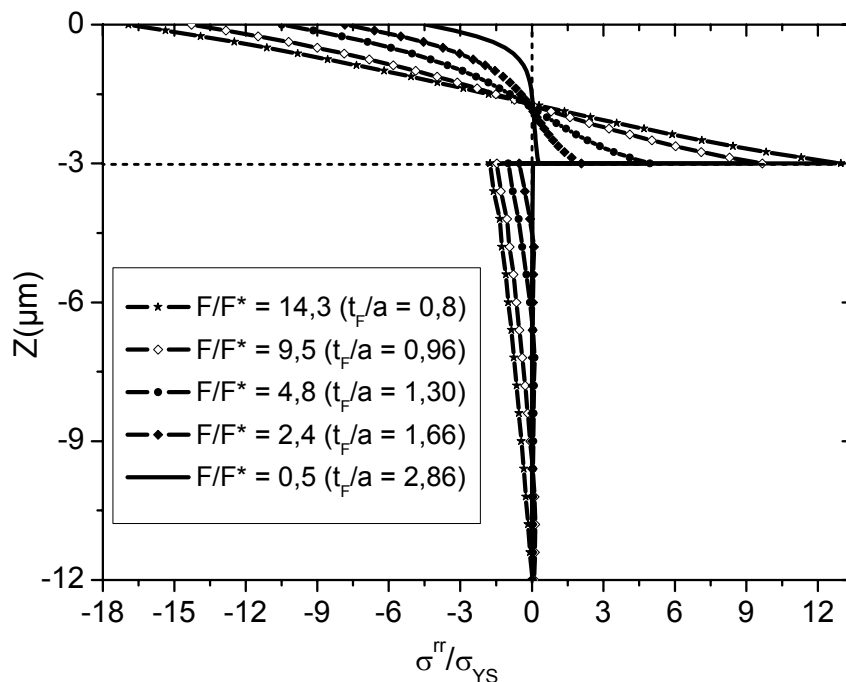


Figure 3-11 : Distribution, lors de l'indentation sphérique d'un système film-substrat, de la composante radiale de contrainte  $\sigma^r/\sigma_{YS}$  le long de l'axe d'indentation  $Z$ , pour divers niveaux du chargement maximal.

Cependant, pour tous les rapports  $R/t_F$  tels que l'initiation de la plasticité se soit effectuée au cœur du substrat, la contrainte radiale le long de l'axe de symétrie (dans le film et le substrat)

est entièrement négative et quasiment constante (figure 3-12). Lorsque le rapport  $R/t_F$  croît, on passe donc de la flexion du film à sa compression respectivement aux faibles et grands rapports  $R/t_F$ . Ces observations montrent une fois de plus que la réponse composite est dominée par la déformation plastique du substrat pour les grands rapports  $R/t_F$ .

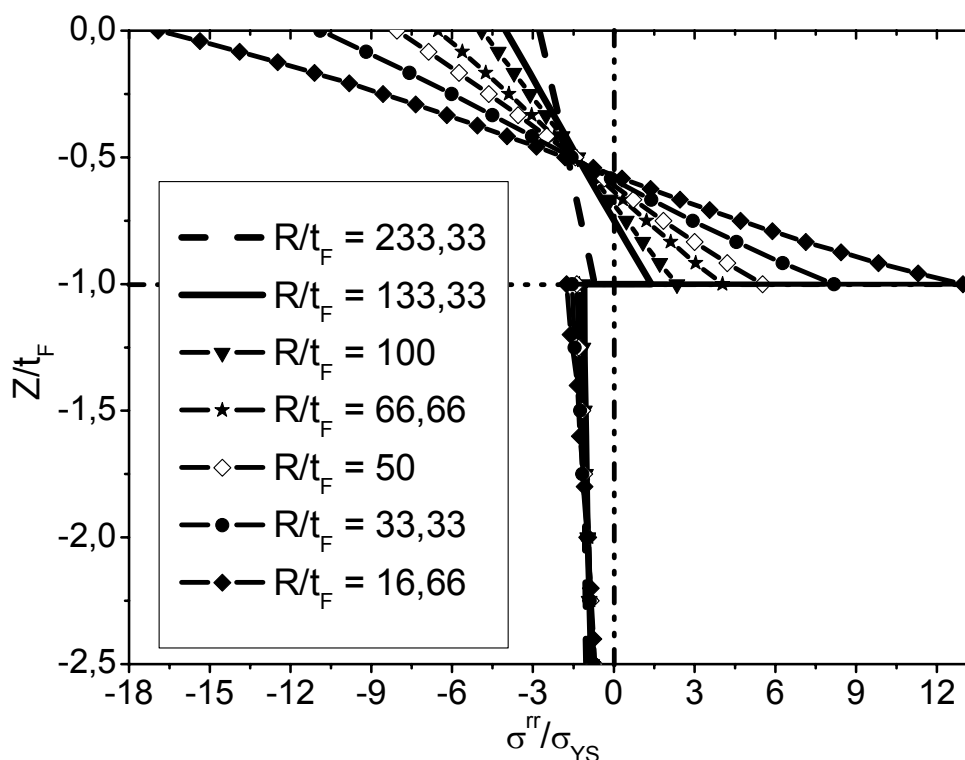


Figure 3-12 : Influence du rapport  $R/t_F$  sur la distribution de la contrainte radiale suivant la direction de l'axe de symétrie  $Z$ .

### 3.2.4. Profil de la surface à la charge et après la décharge totale

Le profil résiduel de la surface de l'échantillon après essai peut contenir des informations utiles à l'analyse du comportement des matériaux. C'est ainsi que de nombreux travaux ont été consacrés à l'influence du bourrelet latéral (« pile-up ») [51 75 76 77 78 25]. Nous nous sommes intéressés à cette question en analysant les profils de surface à la charge maximale et à la fin de décharge. Les courbes de la figures 3-13 correspondent au profil de la surface à la charge et à la décharge pour différents niveaux de charge maximale appliquée ( $E_F = 2E_s$ ,  $t_F = 3 \mu\text{m}$ ) (Cf. figure 3-1 A).

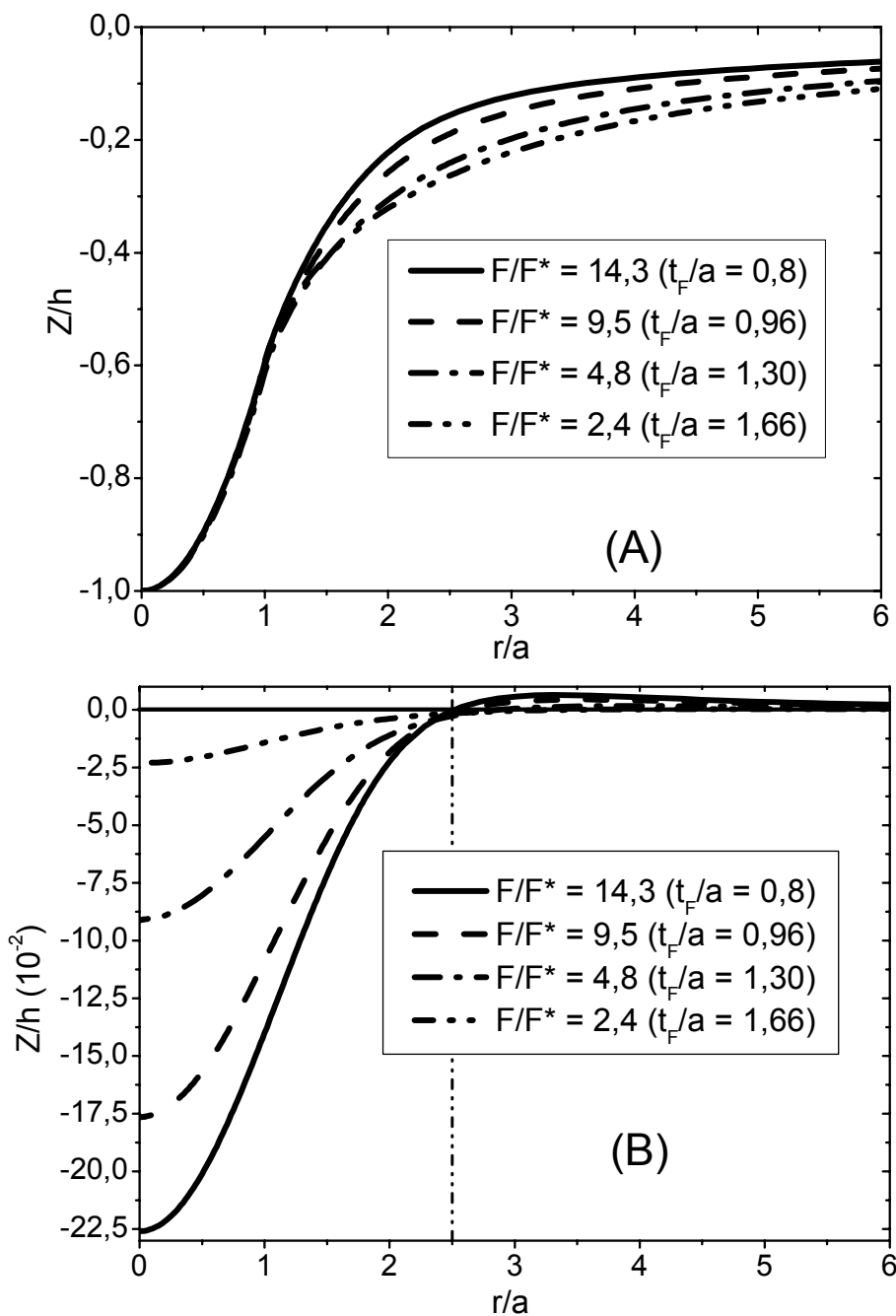


Figure 3-13 : Système film-substrat ( $E_F/E_S = 2$  et  $R/t_F = 16,66$ ) : Profil de surface (« sink-in » ou « pile-up ») : (A) lors du chargement et (B) après la décharge totale pour divers niveaux du chargement maximale ( $h$  est la pénétration de l'indenteur à la charge maximale).

Durant la charge, seul le « sink-in » est observé sur toute la gamme de chargement  $F/F^*$  utilisé. A l'extérieur de la zone de contact, l'enfoncement de la surface du matériau (la hauteur du « sink-in ») diminue lorsque  $F/F^*$  augmente. Ainsi le « sink-in » résultant de l'indentation d'un substrat revêtu avec une pointe sphérique de rayon  $R$ , dépend du niveau de déformation plastique développée dans le substrat (figure 3-13 A). Cette tendance est

conforme aux résultats présentés par Taljat et Pharr [78] qui ont montré que, lors de l'indentation sphérique d'un matériau massif, selon ses caractéristiques, le « sink-in » pourrait même devenir « pile-up » pour les fortes charges appliquées.

Après la décharge complète, il s'est formé, autour de l'empreinte résiduelle, du « sink-in » ou « du pile-up » selon le niveau maximal d'indentation  $F/F^*$  atteint durant la phase de chargement (figure 3-13 B). Autour de l'empreinte résiduelle correspondant à de faibles charges maximales appliquées ( $F/F^* < 4,8$ ), seul le « sink-in » est observé. Pour les charges maximales appliquées élevées ( $F/F^* \geq 4,8$ ), le « pile-up » (bourrelet) est observé autour de l'empreinte résiduelle après la décharge totale (figure 3-13 B). En effet, le recouvrement élastique, la profondeur de l'empreinte résiduelle  $Z/h$  (avec  $h$  la profondeur de pénétration de l'indenteur à la charge maximale appliquée) et la hauteur du « pile-up » évoluent avec le niveau du chargement maximal atteint (figure 3-13 B). Etant donné un système film-substrat indenté ( $E_F = 2E_s$ ,  $t_F = 3 \mu\text{m}$ ), la formation autour de l'empreinte résiduelle du « sink-in » ou « du pile-up » et leurs dimensions dépendent de la profondeur d'indentation  $Z/h$  (donc de la déformation plastique développée dans le substrat) (figure 3-13 B). Quelle que soit la déformation plastique développée dans le substrat, le « pile-up » se forme à une distance  $r \approx 2,5a$  (où  $a$  est le rayon de contact à la charge maximale appliquée) pour le système étudié ( $E_F/E_s = 2$ , et  $R/t_F = 16,66$ ). Ce dernier se forme à une distance  $r \approx a$  dans le cas du substrat non revêtu (Cf. partie 2.3.2 ; figure 2-7 ; page 54). Pour un rapport  $R/t_F$  et  $E_F/E_s$  donnés, le profil de surface (à la charge et après la décharge totale) ne varie qu'avec l'épaisseur résolue du film  $t_F/a$ .

Analysons maintenant l'influence du rapport  $R/t_F$  sur le profil de surface après la décharge totale (particulièrement la hauteur ( $Z/h$ ) et la position  $(r/a)_{pile-up}$  du « pile-up ») pour un système film-substrat ( $E_F/E_s = 2$ ). Lorsque le rapport  $R/t_F$  augmente, la hauteur du « pile-up » ( $Z/h$ ) croît alors que sa position  $(r/a)_{pile-up}$  décroît progressivement tout en convergeant vers l'unité (c'est-à-dire vers le bord du contact) (Figure 3-14). Ce déplacement de  $(r/a)_{pile-up}$  vers le bord de la zone de contact montre une fois de plus que la réponse d'un système film-substrat tend vers celle du substrat « nu » pour les grandes valeurs de  $R/t_F$ .

( $>133,33$ ). Dans cette plage de  $R/t_F$  ( $>133,33$ ), la position du « pile-up »  $(r/a)_{pile-up}$  est à peu près égale à l'unité (figure 3-14).

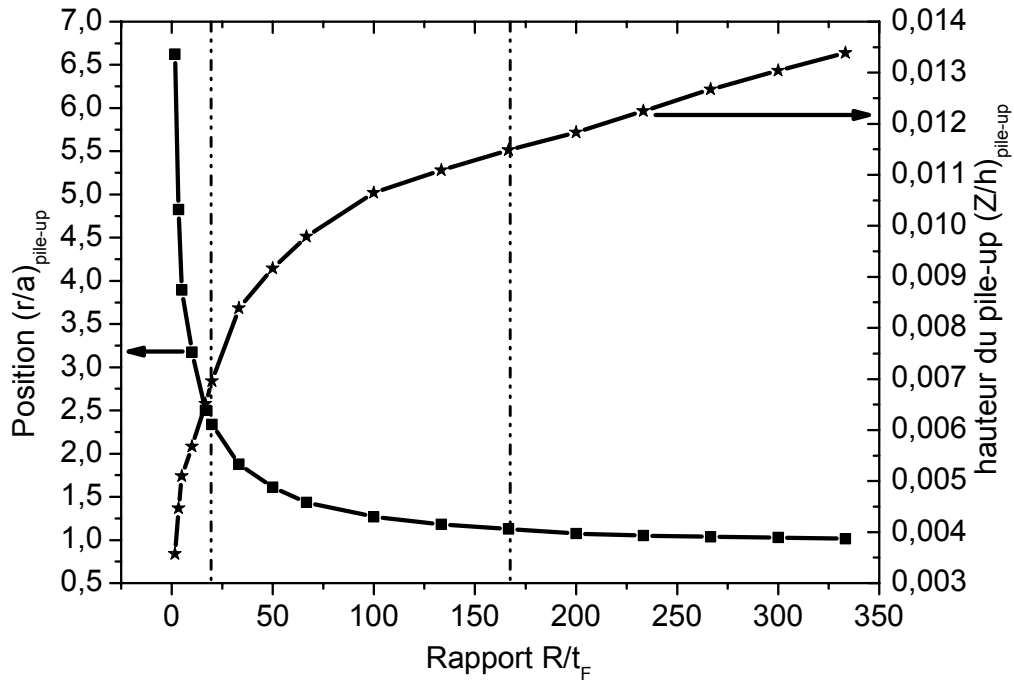


Figure 3-14 : Influence du rapport  $R/t_F$  sur la hauteur  $(Z/h)$  et la position  $(r/a)_{pile-up}$  du pile-up pour un système film-substrat ( $E_F/E_S = 2$ ).

En effet, dans la plage de  $R/t_F \leq 133,33$ , la variation de la position du « pile-up » peut être décrite par une fonction (du rapport  $R/t_F$ ) qui s'écrit :

$$(r/a)_{pile-up} = A(1 + R/t_F)^B \quad \text{Équation 3-1}$$

Avec  $A$  et  $B$  des constantes respectivement positives et négatives. Par exemple, pour le système film-substrat où le film est deux fois plus rigide que le substrat ( $E_F/E_S = 2$ ),  $A = 10,04497 \pm 0,41131$  et  $B = -0,47665 \pm 0,02012$

La relation 3-1 montre une réelle dépendance de la position du « pile-up »  $(r/a)_{pile-up}$  en fonction du rapport  $R/t_F$ .



Les courbes de la figure 3-15, montrent que pour un système film-substrat et un rapport  $R/t_F$ , la position du « pile-up »  $(r/a)_{pile-up}$  dépend dans une large mesure du module de Young du film. En effet, cette position évolue avec le module de Young du film  $E_F$  (figure 3-15 A) tandis qu'elle est constante lorsque c'est  $E_S$  (module de Young du substrat) qui varie (Figure 3-15 B). Ainsi, pour un rapport  $R/t_F$ , la position du « pile-up »  $(r/a)_{pile-up}$  dépend

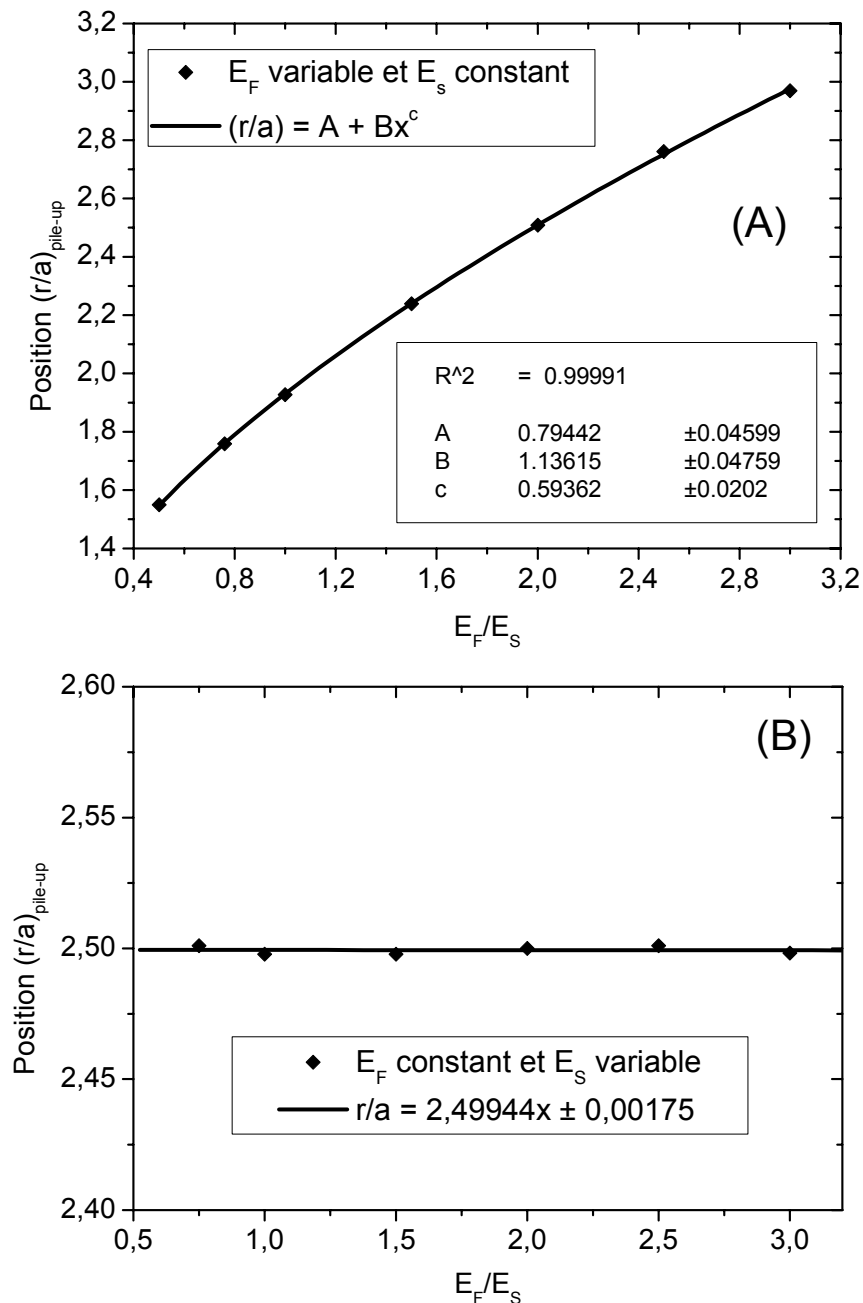


Figure 3-15 : Influence du rapport  $(E_F/E_S)$  sur la position  $(r/a)_{pile-up}$  du pile-up pour un système film-substrat : (A)  $E_F$  variable et  $E_S$  constant (210 GPa) et (B)  $E_F$  constant (420 GPa) et  $E_S$  variable.

exclusivement de la rigidité du film et non de celle du substrat. Ces observations montrent bien que la convergence (aux grands rapports  $R/t_F$ ) de  $(r/a)_{pile-up}$  vers le bord de contact (Cf. Figure 3-14) est due au fait que la déformation plastique du substrat gouverne de plus en plus la réponse du système. Par conséquent, le système film-substrat se comporte comme un substrat massif « nu ».

Dans le cas où le module de Young du substrat est constant, la position du « pile-up »  $(r/a)_{pile-up}$  évolue avec le rapport  $E_F/E_S$  (donc du module élastique du film) de la façon suivante :

$$(r/a)_{pile-up} = A + B(E_F/E_S)^C \quad \text{Équation 3-2}$$

Avec A, B et C des constantes positives qui dépendent du rapport  $R/t_F$ . Par exemple  $A = 0,79442$ ,  $B = 1,13615$  et  $C = 0,59362$  pour le rapport  $R/t_F = 16,66$ .

### 3.2.5. Distribution des contraintes résiduelles

Dans cette partie, les distributions des contraintes résiduelles (radiale et axiale) sont analysées afin de mieux comprendre les mécanismes qui se produisent lors de l'indentation sphérique d'un système film-substrat.

#### 3.2.5.1. Contrainte résiduelle radiale le long de l'axe d'indentation (ou de symétrie) Z

Comme dans le cas de la phase de chargement (Cf. partie 3.2.3.1), nous avons analysé ce qui se passe dans le film, puis dans le substrat.

Dans le film, l'évolution de la contrainte radiale résiduelle  $\sigma_r^{rr}/\sigma_{ys}$  (figure 3-16) le long de l'axe Z est semblable à celle observée à la charge (Cf. figure 3-11). Les contraintes radiales résiduelles qui résultent des faibles charges maximales appliquées présentent des valeurs positives à l'interface. Celles qui correspondent à des niveaux élevés de charge appliquée ( $F/F^* \geq 4,8$ ), varient linéairement suivant la direction d'indentation Z avec des valeurs compressives à la surface et de tension à l'interface. Autrement dit, le film reste en état de flexion après l'essai.

Dans le substrat deux tendances sont observées (figure 3-16). Les contraintes résiduelles radiales résultant des faibles charges appliquées atteignent leurs maxima à l'interface et décroissent rapidement avec la profondeur  $Z$ . Elles s'annulent, par exemple, à partir de  $|Z|/t_F = 1,6$  pour  $F/F^* = 2,4$  (figure 3-16). Celles correspondant aux charges appliquées élevées ( $F/F^* > 4,8$ ) deviennent des contraintes de tension à l'interface et leurs valeurs augmentent avec  $F/F^*$ . En profondeur, dans le substrat, ces contraintes résiduelles radiales (pour  $F/F^* > 4,8$ ) restent compressives où elles atteignent leurs maxima. Non seulement l'amplitude de ces maxima croît, mais aussi leurs positions est plus enfouie lorsque la charge maximale appliquée  $F/F^*$  croît (figure 3-16). L'augmentation de la valeur du maximum de la contrainte de compression et sa diffusion en profondeur lorsque le volume plastique développé dans le substrat augmente, est en accord avec l'évolution de la profondeur de l'empreinte résiduelle avec  $F/F^*$  observée dans la figure 3-13 B. D'après nos investigations, ce maximum aussi bien que sa diffusion en profondeur (ou vers l'interface film-substrat) dépendent exclusivement de la rigidité du film et non de celle du substrat.

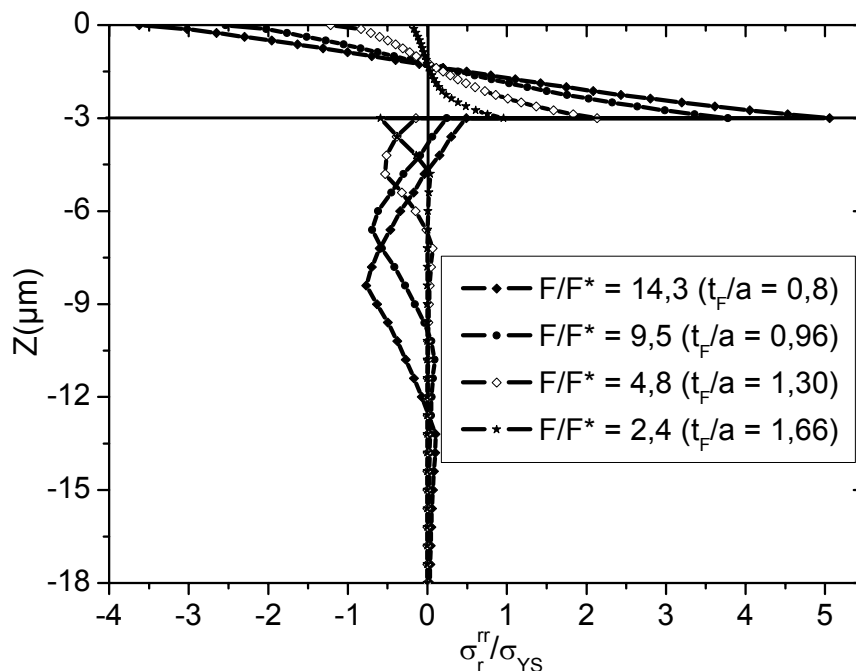


Figure 3-16 : Distribution de la contrainte résiduelle radiale le long de l'axe d'indentation  $Z$  pour différents niveaux du chargement maximal.

Analysons l'effet du rapport  $R/t_F$  sur la valeur du maximum (de compression) de la contrainte radiale résiduelle  $\sigma_r^{rr}/\sigma_{YS}$  et sa position dans le substrat. La figure 3-17 représente

les évolutions par rapport à  $R/t_F$ , de la valeur maximale de  $\sigma_r^{rr}/\sigma_{YS}$  et de la profondeur à laquelle elle est observée. Cette dernière est quasiment constante aux petites valeurs  $R/t_F$  ( $R/t_F < 20$ ). Comme elle ne dépend que des caractéristiques du film, sa constance (figure 3-17) indique que la réponse composite est gouvernée par la contribution du film dans ce domaine ( $R/t_F < 20$ ).

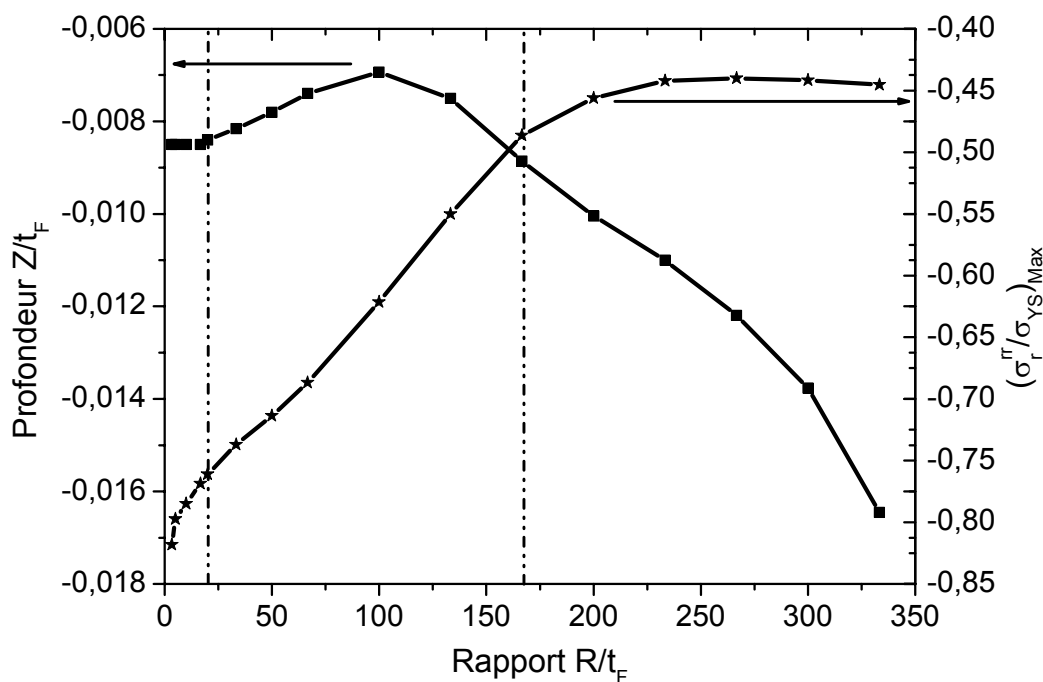


Figure 3-17 : Influence du rapport  $R/t_F$  sur le maximum de compression de la contrainte radiale résiduelle  $\sigma_r^{rr}/\sigma_{YS}$  et sa diffusion dans le substrat, pour un système film-substrat ( $E_F/E_s = 2$ )

La zone de transition ( $20 \leq R/t_F \leq 133,33$ ) est marquée par une légère diminution suivie d'une faible croissance de la position en valeur absolue du maximum de  $\sigma_r^{rr}/\sigma_{YS}$ . Par contre, pour les grandes valeurs  $R/t_F$  ( $R/t_F \geq 166,66$ ), le maximum de  $\sigma_r^{rr}/\sigma_{YS}$  diffuse vers les grandes profondeurs lorsque  $R/t_F$  croît. Quant à la valeur absolue de l'amplitude de ce maximum, elle décroît d'abord et puis tend vers une saturation aux grandes valeurs  $R/t_F$  ( $R/t_F \geq 166,66$ ) (figure 3-17). Dans le substrat, la diffusion en grande profondeur du maximum de la contrainte radiale résiduelle  $\sigma_r^{rr}/\sigma_{YS}$  d'une part et d'autre part sa saturation aux grandes valeurs  $R/t_F$  ( $R/t_F \geq 166,66$ ), signifient physiquement, que, dans cette plage de

$R/t_F$ , le système film-substrat répond une fois de plus comme un substrat « nu » (donc comme si le film n'existait pas).

### 3.2.5.2. Contrainte résiduelle axiale le long de l'axe d'indentation $Z$

Le long de l'axe de symétrie  $Z (r = 0)$ , la distribution de la contrainte axiale résiduelle  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  (normée par la limite d'élasticité du substrat), est représentée dans la figure 3-18. Cette représentation est réalisée pour différentes charges maximales appliquées  $F/F^*$  lors de l'indentation d'un système film-substrat (Cf. figure 3-1 A). Sur l'axe d'indentation  $Z (r = 0)$ , la contrainte axiale résiduelle est de traction aussi bien dans le film que dans le substrat (figure 3-18). Pour le système ( $E_F/E_s = 2$ , et  $R/t_F = 16,66$ ) et les cas étudiés, cette contrainte

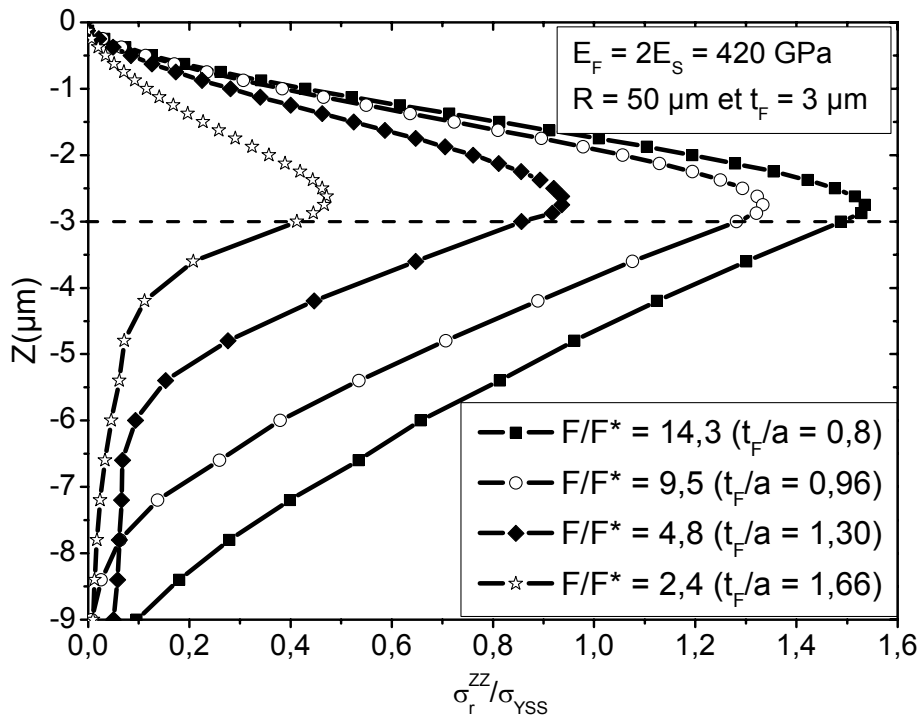
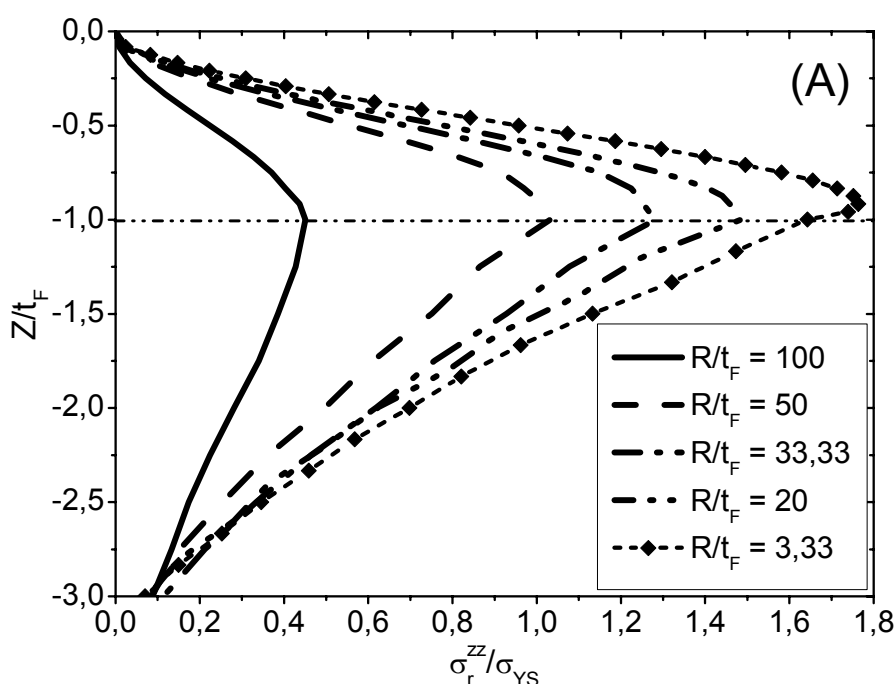


Figure 3-18 : Système film-substrat : Distribution de la contrainte résiduelle axiale  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  suivant la direction de l'axe d'indentation  $Z$ , pour divers niveau du chargement maximal appliqué.

de traction atteint toujours sa valeur maximale dans le revêtement, légèrement au-dessus de l'interface film-substrat. Sa valeur maximale augmente aussi avec le développement de la zone plastique dans le substrat (à travers également  $F/F^*$ ) (figure 3-18). La localisation du maximum de contrainte de traction au voisinage de l'interface pourrait être la raison du délaminage du film. Cette hypothèse trouve son support dans les travaux expérimentaux de

Stebut et al 1999 [79]. Ces derniers ont montré, en utilisant la méthode expérimentale d'indentation couplée à l'émission acoustique, que le processus de délaminage du revêtement se déclenche durant la phase de décharge. Nous avons également vérifié que, quels que soient les rapports  $E_F/E_S$ ,  $E_S/\sigma_{YS}$ , pour le rapport  $R/t_F = 16,66$ , ce maximum de contrainte de traction se situe toujours dans le film légèrement au dessus de l'interface dans le domaine de chargement étudié.

Etudions maintenant l'évolution suivant la direction de l'axe de symétrie  $Z$ , de l'amplitude et la position du maximum de la contrainte résiduelle de traction  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  (vis-à-vis de l'interface) avec le rapport  $R/t_F$ . Dans toute la plage de  $R/t_F$  étudiée, l'amplitude de ce maximum de traction  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  croît lorsque le rapport  $R/t_F$  décroît (Figure 3-19). Quant à sa position  $Z/t_F$  vis-à-vis de l'interface, trois cas sont observés en fonction du rapport  $R/t_F$ . Pour les petites valeurs du rapport  $R/t_F$  ( $< 20$ ), le maximum de la contrainte résiduelle de traction  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  se situe dans le film tout proche de l'interface (Figure 3-19 A). Cependant, aux rapports  $R/t_F$  intermédiaires ( $20 \leq R/t_F \leq 133,33$ ), le maximum de traction de la contrainte résiduelle  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  se situe à l'interface film-substrat (Figure 3-19 A). Et enfin, pour les grands rapports  $R/t_F$  ( $\geq 166,66$ ), ce maximum de traction est observé dans le



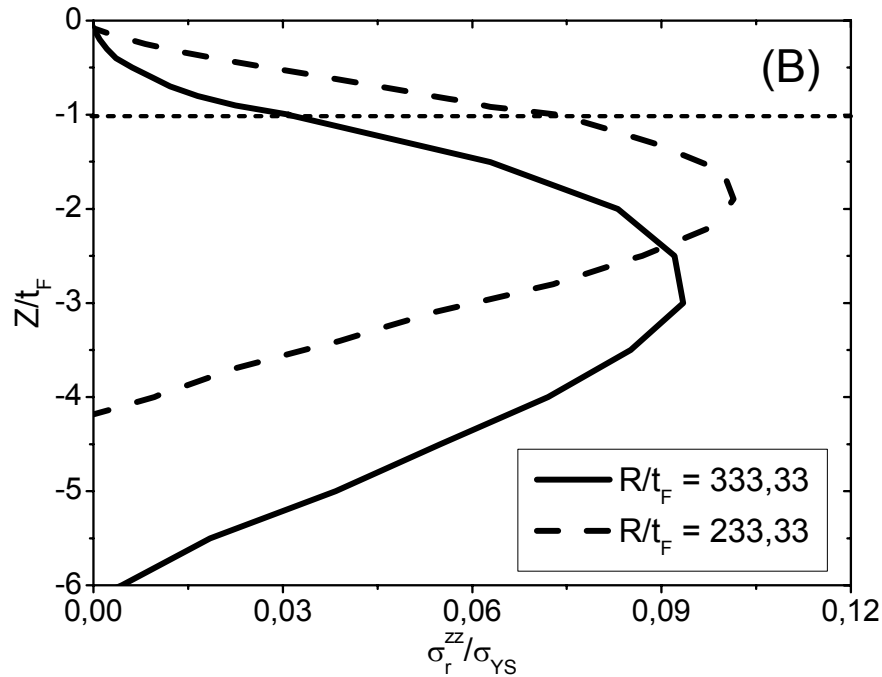


Figure 3-19 : Distribution de la contrainte résiduelle axiale  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  le long de l'axe d'indentation  $Z$  :

Influence du rapport  $R/t_F$  sur son maximum et sa position vis-à-vis de l'interface.

substrat (Figure 3-19 B). L'endommagement résultant de ce maximum de traction se localisera donc soit dans le film, soit à l'interface ou soit dans le substrat, selon le rapport  $R/t_F$  considéré. Ainsi, le délaminage du film sera d'autant plus sévère que le rapport  $R/t_F$  sera compris entre 20 et 133,33.

### 3.2.5.3. Contrainte résiduelle axiale à l'interface film-substrat

A l'interface (du côté substrat), les contraintes résiduelles axiales restent de traction dans toute la zone de contact (figure 3-20). Ces dernières changent de signe proche du bord de contact, deviennent compressives puis négligeables lorsqu'on s'éloigne de la zone de contact ( $r > a$ ). Avec l'augmentation du volume plastique dans le substrat, le lieu du changement de signe de la contrainte résiduelle axiale, s'écarte de plus en plus du bord de contact. En effet, localisé quasiment à  $r/a \approx 1$  pour les faibles charges, ce lieu passe à environ  $r = 1,45a$  (figure 3-20) à partir de  $F/F^* = 7,5$  (soit  $t_F/a = 1,06$  et  $h/R = 0,00335$ ). Après son changement de signe, la contrainte résiduelle axiale  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  atteint un maximum à environ  $r/a = 1,84$  (pour les fortes charges), s'annule de nouveau à  $r/a = 2,68$  et redevient faiblement de tension. Rappelons qu'à  $t_F/a = 1,06$  (durant le chargement), d'une part la pression de contact a atteint sa valeur maximale et de d'autre part les dimensions ( $Z_p$  et  $r_p$ ) du volume

plastique sont devenues égales. Nous avons également vu dans la partie 3.2.4 que le « pile-up » est uniquement observé (Cf. figure 3-13 B) autour de l'empreinte résiduelle qui résulte de l'application des charges élevées ( $F/F^* \geq 4,8$ ) à environ distance  $r = 2,5a$ . La deuxième inversion du signe de  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  se produit à une distance  $r = 2,68a$  au delà de laquelle  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  redevient faiblement de tension. Cette dernière atteint de nouveau un maximum dont l'amplitude augmente avec la charge maximale atteinte. Ainsi, la hauteur du pile-up aussi bien que sa position autour de l'empreinte résiduelle (Cf. figure 3-13 B) pourrait être reliées à la distribution de contrainte résiduelle axiale à l'interface (Cf. figure 3-20). Nous avons également vérifié que, pour un rapport  $R/t_f$ , l'amplitude et la diffusion suivant la direction  $r$  du maximum de compression de la contrainte axiale résiduelle à l'interface ( $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$ ) dépendent du module élastique du film, de la limite d'élasticité du substrat et non de son module de Young.

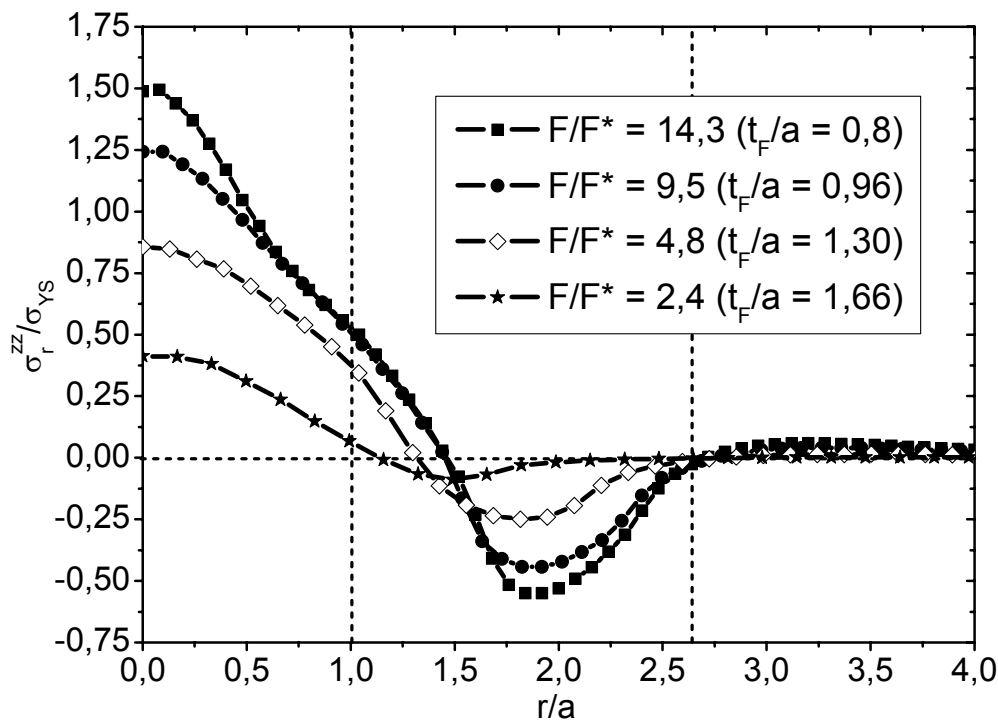


Figure 3-20 : Distribution à l'interface et suivant la direction radiale de la contrainte résiduelle axiale

$$\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}.$$

Intéressons nous à présent à l'éventuelle contribution du rapport  $R/t_f$  sur la répartition à l'interface des contraintes résiduelles axiales ( $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$ ) suivant la direction radiale  $r$ . Comme dans le cas de la position du maximum de la contrainte résiduelle de tension



(Cf. Figure 3.19), les distributions (à l'interface) le long de l'axe radiale  $r$  de  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  sont étudiées pour diverses valeurs  $R/t_F$  et représentées dans la figure 3-21. On remarque que, sur l'axe d'indentation (c'est-à-dire à  $r/a=0$ ), l'amplitude de  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  croît lorsque  $R/t_F$  diminue. On constate également que la valeur maximale de compression de  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  diminue progressivement (en valeur absolue) et sa position diffuse vers le bord de contact, lorsque le rapport  $R/t_F$  croît (figure 3-21).

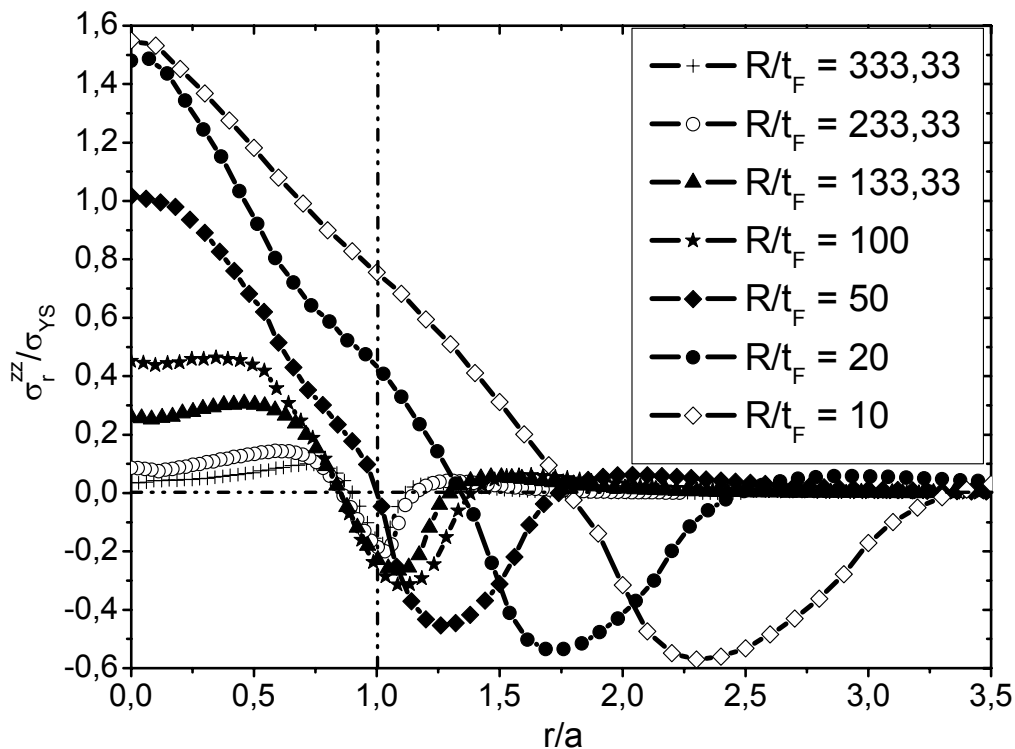


Figure 3-21 : Distribution à l'interface et suivant la direction radiale de la contrainte axiale résiduelle

$$\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS} \text{ aux différentes valeurs du rapport } R/t_F.$$

Pour y voir plus clair, nous avons analysé le comportement du maximum de compression de la contrainte résiduelle axiale  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  aussi bien que sa position, en fonction du rapport  $R/t_F$ . Les résultats obtenus sont représentés dans la figure 3-22. L'évolution de l'amplitude du maximum de compression de la contrainte résiduelle axiale  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  et sa diffusion (suivant la direction radiale) sont similaires respectivement aux comportements de la position et de la hauteur du « pile-up » (Figure 3-14). Cela suggère que la hauteur et la position du « pile-up » autour de l'empreinte résiduelle, pourraient être liées respectivement à l'amplitude du maximum de compression de  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  (à l'interface) et à sa diffusion suivant

la direction radiale. En effet, pour les grands rapports  $R/t_F$  ( $R/t_F \geq 166,66$ ), une légère diminution (en valeur absolue) de son amplitude et une diffusion de sa position vers la limite de la zone de contact sont observées (Figure 3-22). Par contre, lorsque  $R/t_F$  décroît en restant strictement inférieur à 166,66, l'amplitude de ce maximum augmente en valeur absolue et sa position s'éloigne de la zone de contact (Figure 3-22). Enfin, pour  $R/t_F < 20$ , la variation de l'amplitude du maximum de compression de la contrainte résiduelle axiale  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  devient faible avec  $R/t_F$  (Figure 3-22). Cela pourrait être expliqué par le fait que la réponse composite est dominée par la contribution du film plutôt que par celle du substrat aux faibles  $R/t_F$ .

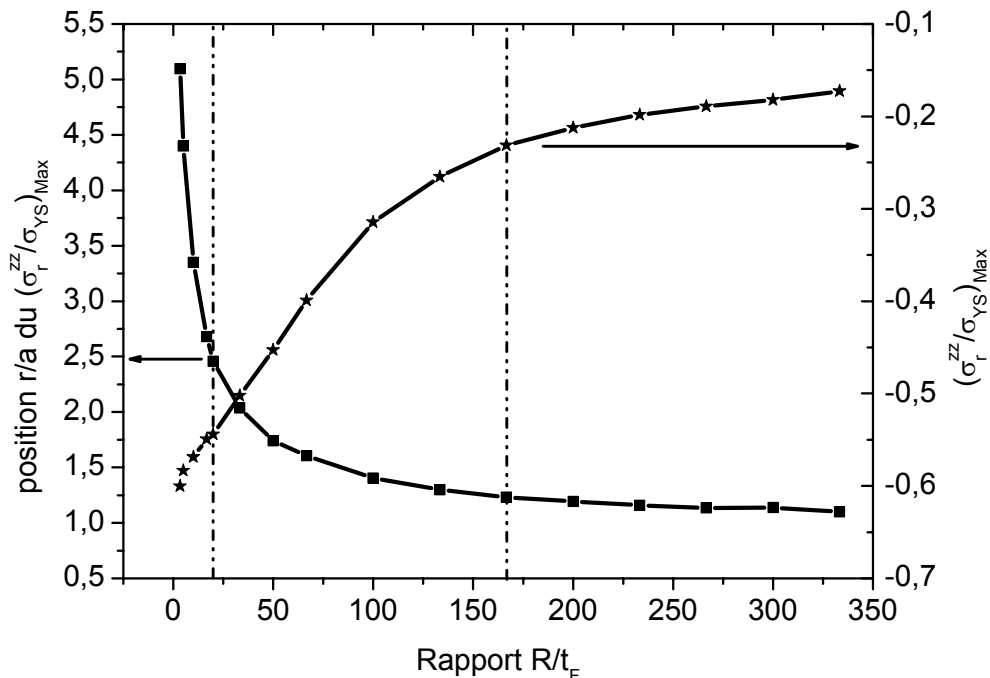


Figure 3-22 : Influence de l'épaisseur résolue du film ( $t_F/a$ ) sur le maximum de la contrainte résiduelle axiale  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  et son positionnement vis à vis de l'interface.

Quelles conséquences, les états de contraintes internes (axiales et radiales) étudiés dans la phase de chargement, auront sur la nature de la décharge ? Afin de répondre à cette question, nous avons analysé les distributions de la contrainte de von Mises durant toute la phase de la décharge.

### 3.2.6. Distribution de contraintes de von Mises durant la décharge

Pour tous les niveaux du chargement maximal appliqué (figure 3-1 A), la distribution de contraintes de von Mises normée par la limite d'élasticité du substrat,  $\sigma_{vM}/\sigma_{YS}$  est étudiée à chaque niveau de décharge dans cette partie. Nous avons remarqué que pour toutes les charges maximales appliquées  $F/F^*$  inférieures à 4,8 (soit  $t_F/a > 1,30$ ), le rapport  $\sigma_{vM}/\sigma_{YS}$  reste inférieur à 1 durant la décharge indiquant un processus purement élastique. A partir d'une charge maximale appliquée  $F/F^* = 4,8$  (soit  $t_F/a = 1,30$ ), on observe un processus de réplastification du substrat lors de la décharge. Comme on peut le constater dans la figure 3-23, après la décharge totale de  $F/F^* = 4,8$  (soit  $t_F/a = 1,30$ ), il existe une zone dans le substrat où  $\sigma_{vM}/\sigma_{YS}$  est égal à 1. Rappelons que pour le maximum de la contrainte radiale surfacique  $\sigma^{rr}/\sigma_{YS}$ , la quasi linéarité de cette dernière dans le film et la formation du « pile-up » autour de l'empreinte résiduelle, sont tous observés pour des charges appliquées telles  $t_F/a \leq 1,30$  (soit  $F/F^* \geq 4,8$ ). Ainsi, lors de l'indentation sphérique d'un substrat revêtu,

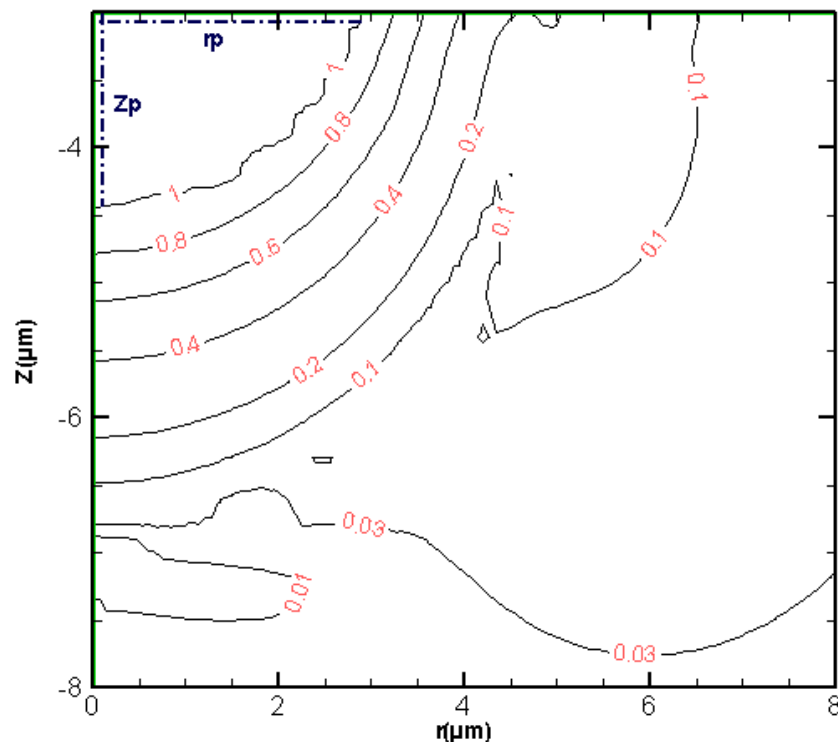


Figure 3-23 : Distribution de contrainte résiduelle de von Mises (dans le substrat) correspondant à l'application d'une charge maximale  $F/F^* = 4,8$  (soit  $t_F/a = 1,30$ ).

la charge maximale appliquée limite permettant l'observation de la plasticité dans la phase de décharge est telle que  $t_F/a \leq 1,30$  (figure 3-23).

A la décharge, la réplastification affecte elle aussi la distribution de contrainte résiduelle entraînant l'apparition d'un niveau maximum de contraintes résiduelles de compression, d'une part radiale  $\sigma_r^{rr}/\sigma_{YS}$  dans le substrat sur l'axe  $Z$  (figure 3-16) et d'autre part axiale  $\sigma_r^{zz}/\sigma_{YS}$  à l'interface suivant la direction radiale  $r$  (figure 3-20). Cela a pour conséquence la formation du pile-up autour de l'empreinte résiduelle et l'augmentation accentuée de la profondeur de cette dernière. Néanmoins, la méthode classique d'analyse de l'essai d'indentation considère la décharge purement élastique. Il est donc important de déterminer le stade à partir duquel le système commence à se plastifier de nouveau (seuil de réplastification à la décharge) et sa position. Pour cela, les distributions de contraintes de von Mises à la charge maximale  $F/F^* = 14,3$  (soit  $t_F/a = 0,8$ ) et aux différents niveaux de décharge correspondants à 10% ; 50% ; 52% ; 75% et 100% de la décharge totale sont par la suite analysées (figure 3-24). Au début de la décharge, le rapport entre la contrainte de von Mises et le seuil de plasticité du substrat  $\sigma_{vM}/\sigma_{YS}$  est inférieur à 1, partout dans le substrat (figure 3-24 B). Par conséquent, la décharge reste purement élastique. A la moitié de la décharge (50%), la plasticité commence à apparaître de nouveau dans le substrat (figure 3-24 C). Contrairement au cas de la charge où la plasticité s'initie sur l'axe d'indentation, à la décharge celle-ci réapparaît à peu près à  $r/a = 0,65$  (figure 3-24 C). Au delà de 50% de décharge (figure 3-24 D à 3-24 F), plus on continue à décharger, plus la plasticité se développe dans le substrat dans les directions radiale (en se dirigeant à la fois vers et hors l'axe de symétrie) et axiale avec toujours son rayon  $r_p$  supérieur à sa profondeur  $Z_p$ .

Remarquons aussi, qu'autour d'une distance  $r$  égale au rayon du volume plastique  $r_p$  maximal développé dans le substrat à la charge maximale appliquée (figure 3-24 A), se concentrent des valeurs élevées  $\sigma_{vM}/\sigma_{YS}$  inférieures à 1, durant toute la phase de décharge. Au début de la décharge (c'est-à-dire avant la réplastification du substrat), ces valeurs représentent un maximum absolu (figure 3-24 B) qui diminue progressivement avec le pourcentage croissant de la décharge. Après la réapparition de la plasticité dans le substrat (à partir de 50% de la décharge), ces valeurs représentent un maximum relatif qui diminue encore progressivement avec le pourcentage croissant de la décharge (figure 3-24 C à 3-24 F). La plasticité durant la décharge aussi bien que la formation du pile-up (après décharge complète) autour de

l'empreinte résiduelle sont toutes observées suite à l'application des charges normales telles que  $t_F/a \leq 1,30$ . Dans ce domaine d'indentation, la contrainte radiale surfacique (à la charge)

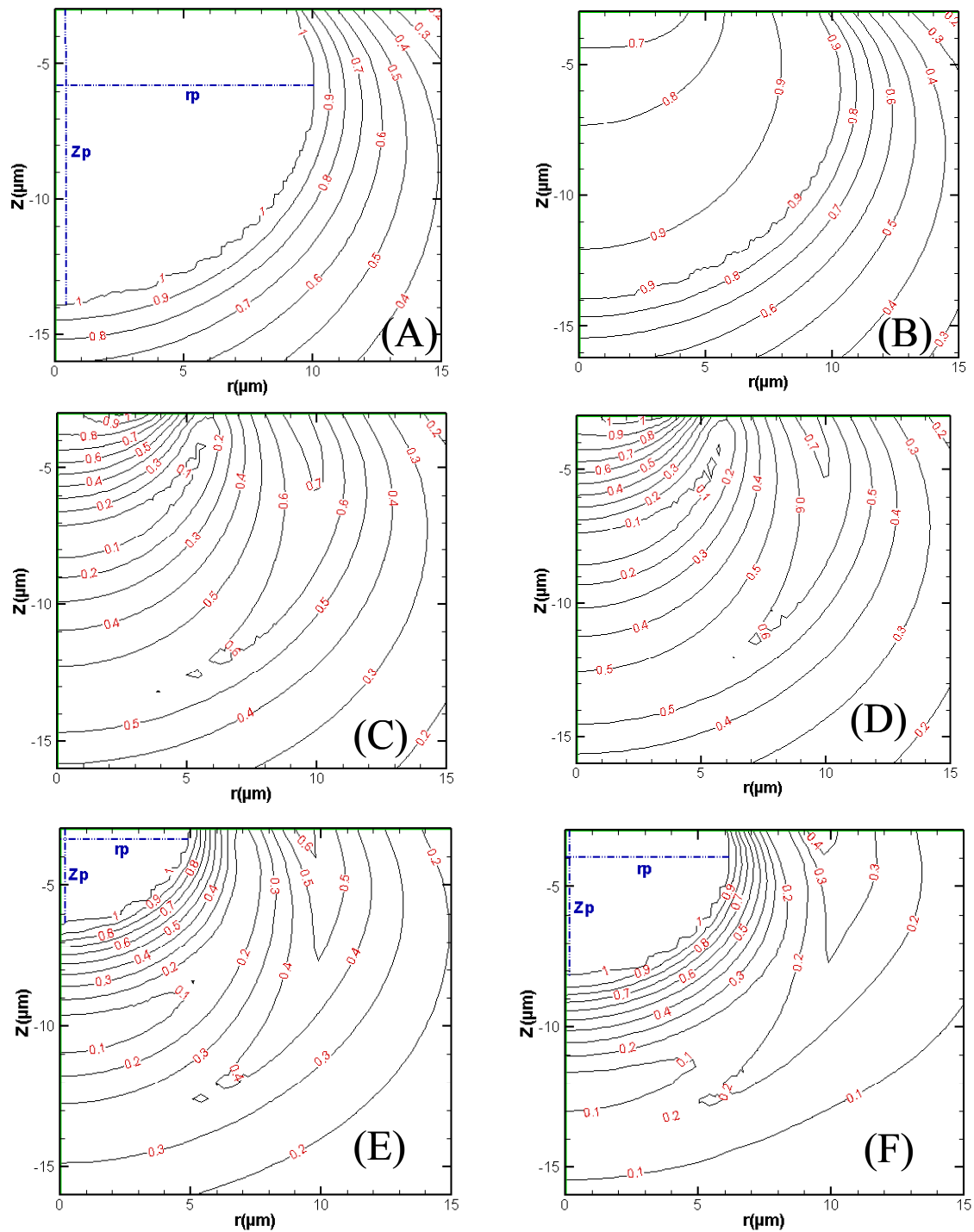


Figure 3-24 : Distribution de la contrainte de von Mises (A) à la charge maximale appliquée  $F/F^* = 14,3$  et à une décharge : (B) de 10% ; (C) de 50% ; (D) de 52% ; (E) de 75% et (F) de 100% de la décharge totale.

présente à l'extérieur de la zone de contact, un maximum de tension dont l'amplitude augmente et la position se déplace avec le développement du volume plastique dans le substrat (Cf. figure 3-8 dans la partie 3.2.3.1 page 76).

En résumé, l'étude ci-dessus nous a permis de comprendre quelques aspects du comportement d'un système film-substrat soumis à une indentation sphérique. La réponse d'un système film-substrat est fortement affectée par le développement croissant du volume plastique dans le substrat. En effet, l'apparition à l'extérieur de la zone de contact et la diffusion du maximum de tension de la contrainte radiale  $\sigma^{rr}/\sigma_{YS}$  à la surface, la linéarité et le changement de signe de la contrainte radiale  $\sigma^{rr}/\sigma_{YS}$  dans le film, la replastification du substrat durant la décharge et la formation du pile-up autour de l'empreinte résiduelle (tous observés à partir de l'application d'une charge appliquée telle que  $t_F/a = 1,30$ ) évoluent avec la déformation plastique dans le substrat.

La position du « pile-up »  $(r/a)_{pile-up}$  autour de l'empreinte résiduelle est une fonction des rapports  $R/t_F$  (équation 3-1) et  $E_F/E_S$  (équation 3-2). D'après ces deux relations, plus  $R/t_F$  diminue et ou  $E_F/E_S$  augmente, plus le « pile-up » se forme loin de la zone de contact.

Quelles conséquences pourraient alors engendrer tous ces phénomènes (volume plastique développé, état de contraintes internes à la charge et résiduelles, profil de surface, replastification du substrat durant la décharge) sur l'analyse des courbes issues de l'indentation sphérique d'un système film-substrat par les méthodologies classiques (d'analyse des données de l'essai d'indentation) telles que celle de Oliver et Pharr où la décharge est supposée purement élastique ?

### 3.3. Exploitation des courbes d'indentation des systèmes film-substrats obtenues numériquement

Les courbes d'indentation issues des études ci-dessus sont analysées par la méthode de Oliver et Pharr (voire chapitre 1 page 24).

On constate que la dureté composite croît d'abord aux faibles charges, puis se stabilise avant de décroître pour de fortes charges (figure 3-25). Dans le domaine d'augmentation de la dureté ( $t_F/a \geq 1,66$  soit  $F/F^* \leq 2,4$ ), le pseudo comportement de Hertz est observé dans les

distributions de la pression de contact (Figure 3-2 A), de contraintes radiale et axiale (Cf. Figure 3-8 et 3-11). Donc, cette variation n'est autre que le résultat de la transition entre la réponse dominée par le champ élastique et celle gouvernée par la flexion du film (elle aussi accentuée par la plasticité du substrat). La chute de la dureté est marquée à partir de  $t_F/a = 1,30$  soit  $F/F^* = 4,8$  (figure 3-25). A ce niveau de chargement, le maximum de

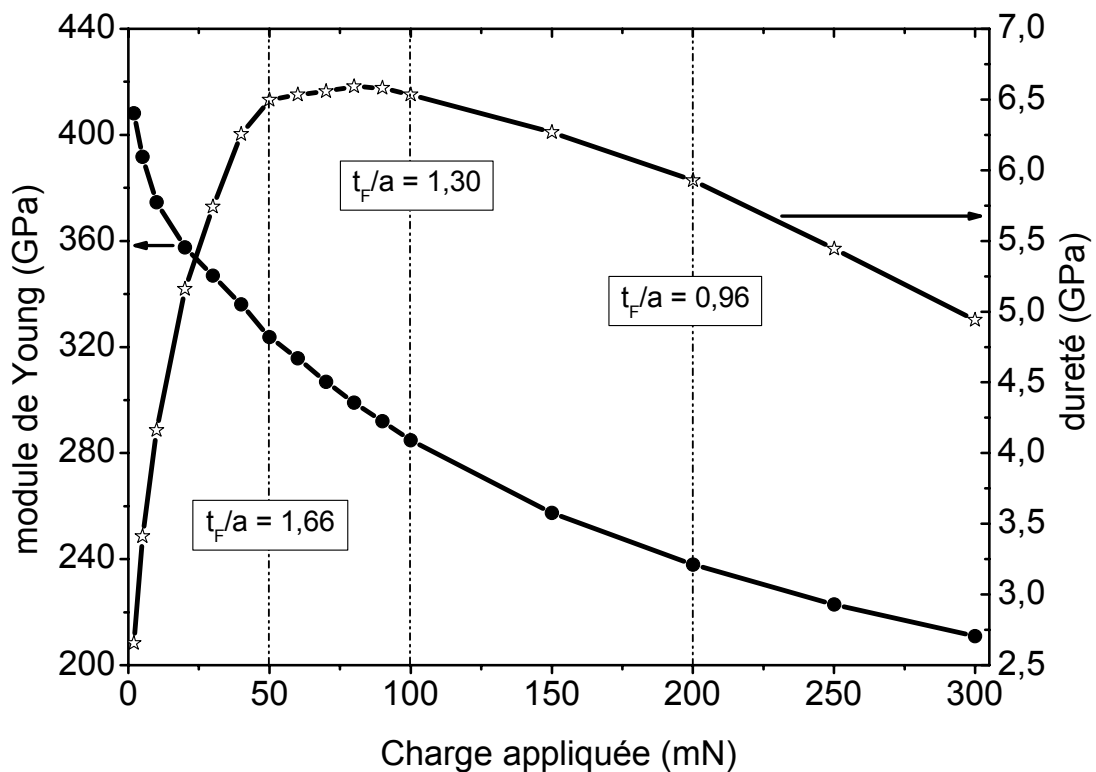


Figure 3-25 : Evolution en fonction de la charge appliquée, de la dureté et du module de Young d'un système film-substrat, obtenus avec la méthode de Oliver et Pharr.

tension de la contrainte radiale  $\sigma^{rr}/\sigma_{YS}$  est apparu à la surface et à l'extérieur de la zone de contact, (Cf. Figure 3-8). Dans le film et suivant l'axe de symétrie  $Z$ , la linéarité de cette contrainte ( $\sigma^{rr}/\sigma_{YS}$ ) est devenue plus importante (Cf. Figure 3-11). Durant la décharge, la réplastification (Cf. Figure 3-23) et le « pile-up » formé autour de l'empreinte résiduelle (Cf. Figure 3-13 B) sont observés à partir d'un chargement tel que  $t_F/a = 1,30$ . Néanmoins, pour un tel niveau de chargement ( $t_F/a = 1,30$ ), la pression de contact n'a pas encore atteint sa valeur maximale (Figure 3-2 A). Ainsi, la chute de la dureté (survenue au stade où la pression de contact continue de croître) pourrait être expliquée par une importante influence de la

flexion du film (elle aussi accentuée par la déformation plastique du substrat) sur la réponse composite.

Le module élastique du système film-substrat décroît quant à lui dans toute la gamme la charge appliquée. Au début de la saturation de la dureté ( $t_F/a = 1,66$ ), le module de Young composite est nettement inférieur à la valeur du module d'élasticité du film ( $E_F = 420$  GPa) considérée dans le calcul numérique (figure 3-25). Ces deux observations montrent que le module de Young composite est plus sensible au développement du volume plastique dans le substrat (par conséquent à la flexion du film) que l'est la dureté composite (figure 3-25). Notons que la pression de contact a atteint sa valeur maximale à une épaisseur résolue du film  $t_F/a$  comprise entre 1,06 et 0,96 (figure 3-2 A). Pour  $t_F/a < 0,96$ , avec le développement croissant du volume plastique dans le substrat, la pression de contact décroît et prend une forme aplatie (figure 3-2 A). Dans cette plage d'épaisseur résolue du film ( $t_F/a < 0,96$ ), la chute de la dureté est également devenue plus accentuée. En plus, le module de Young composite (Oliver et Pharr) est plus proche de celui du substrat ( $E_S = 210$  GPa) considéré dans le calcul numérique. Il est par exemple égal à 222,93 et 211,02 GPa pour respectivement  $t_F/a$  égal à 0,9 et 0,8. Donc, la valeur  $t_F/a$  à laquelle la pression de contact commence à décroître en prenant une forme aplatie, pourrait représenter l'épaisseur résolue du film à partir de laquelle la réponse du système film-substrat est totalement dominée par la contribution du substrat. Par conséquent, l'ensemble se comporte comme un substrat « nu ». Dans le domaine de sa décroissance, la pression de contact garde aussi sa forme aplatie durant la décharge (Figure 3-26 B). Par contre, pour les épaisseurs résolues du film  $t_F/a \geq 0,96$  (c'est-à-dire avant et durant sa saturation de la pression de contact), la forme de la pression de contact n'est pas aplatie aussi bien à la charge maximale appliquée que durant la décharge correspondante (Figure 3-26 A). Rappelons que l'une des hypothèses de Oliver et Pharr est l'approximation de la décharge d'un indenteur de forme géométrique quelconque à celle d'un poinçon plat de même aire de contact (Cf. chp1. page 22). Autrement dit la pression de contact est celle du poinçon plat durant la décharge. Ainsi, pour un système film-substrat, l'hypothèse de Oliver et Pharr ne semble correcte que dans le régime de déformation ( $t_F/a < 0,96$ ) où la réponse composite est totalement dominée par la contribution du substrat. Ceci explique que le module d'élasticité composite déterminé soit très proche de celui du substrat utilisé ( $E = 210$  GPa) dans notre simulation pour les épaisseurs résolues du film  $t_F/a < 0,96$  (figure 3-26).



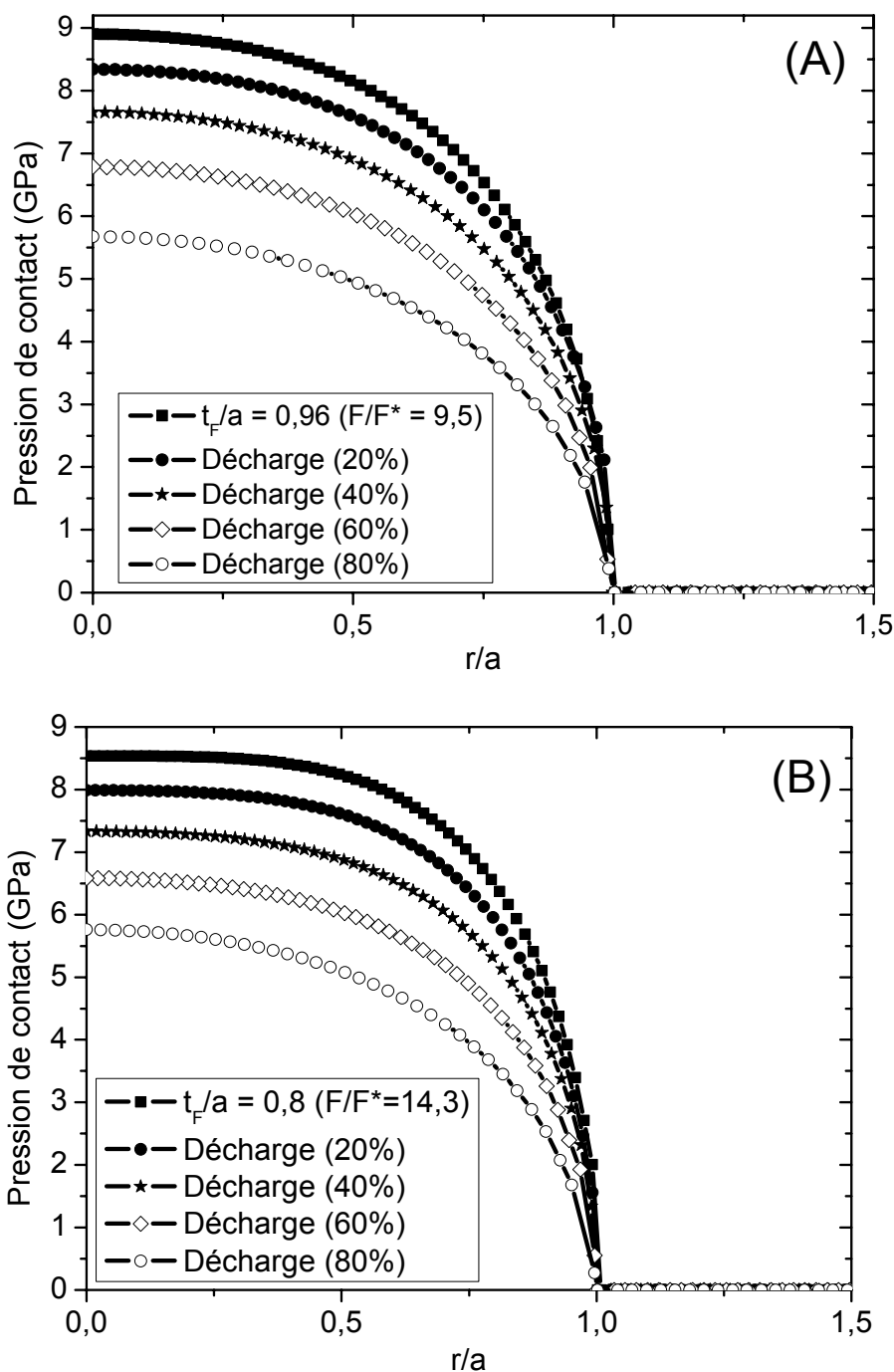


Figure 3-26 : Distributions de la pression de contact durant la décharge pour des charges maximales appliquées telles que : (A)  $t_F/a = 0,96$  et (B)  $t_F/a = 0,8$ .

Toutefois, l'avantage de la méthode de Oliver et Pharr est de mettre en évidence les différentes transitions marquées par la contribution du film ou celle du substrat, sur la dureté et le module d'élasticité mesurés (figure 3-25). Néanmoins, il est très difficile de mesurer

avec précision les caractéristiques du film avec cette technique. D'où l'intérêt majeur de rechercher une procédure permettant d'atteindre au mieux les caractéristiques du film.

Pour étudier l'influence du rapport  $R/t_F$ , nous avons représenté dans la figure 3-27 les variations, en fonction de  $R/t_F$ , du module de Young et de la dureté du système film substrat, pour deux épaisseurs résolues du film  $t_F/a = 1,79$  et  $0,8$ . Ces dernières correspondent respectivement à l'avant et l'après saturation de la dureté observé dans la figure 3-25. Pour  $t_F/a = 1,79$ , le module d'élasticité décroît avec le rapport  $R/t_F$ . Ainsi, aux faibles  $F/F^*$  (donc aux épaisseurs résolues du film relativement grandes), l'augmentation du rapport  $R/t_F$  a un effet similaire à celui de la charge appliquée (à  $R/t_F$  constant), sur le module de Young d'un système film-substrat (Cf. figure 3-25 et figure 3-27 A).

Cependant, à  $t_F/a = 0,8$ , les valeurs du module de Young composite restent plus proches de celles du substrat dans toute la gamme de rapport  $R/t_F$  considéré. Elles présentent aussi trois types de comportement (décroissance, croissance et palier) avec le rapport  $R/t_F$  (figure 3-27 A). Ceci dans respectivement les trois domaines observés dans les distributions de la contrainte axiale résiduelle de traction et la position du pile-up autour de l'empreinte résiduelle (figures 3-14 et 3-19). Rappelons que le maximum de traction se situe dans le film, à l'interface film-substrat et dans le substrat respectivement pour  $R/t_F$  inférieur à 20,  $R/t_F$  compris entre 20 et 133,33 et enfin  $R/t_F$  strictement supérieur à 133,33.

La dureté composite présente quant à elle, aux faibles ( $t_F/a$  grands) ou fortes ( $t_F/a$  petits) charges appliquées (figure 3-27 B), d'abord une décroissance rapide pour  $R/t_F$  inférieur à 20, puis lente pour  $R/t_F$  compris entre 20 et 133,33 et enfin un palier pour  $R/t_F$  strictement supérieur à 133,33. La dureté composite est alors très sensible à la variation du rapport  $R/t_F$  lorsque ce dernier est strictement inférieur à 20 (figure 3-27 B). Dans la plage de  $R/t_F$  compris entre 20 et 133,33, la dureté composite devient presque invariable avec la charge maximale appliquée et moins sensible aussi à l'augmentation de  $R/t_F$  (figure 3-27 B). Elle est quasiment invariable avec respectivement la charge maximale appliquée et le rapport  $R/t_F$  dans la gamme des valeurs  $R/t_F > 133,33$  (figure 3-27 B).

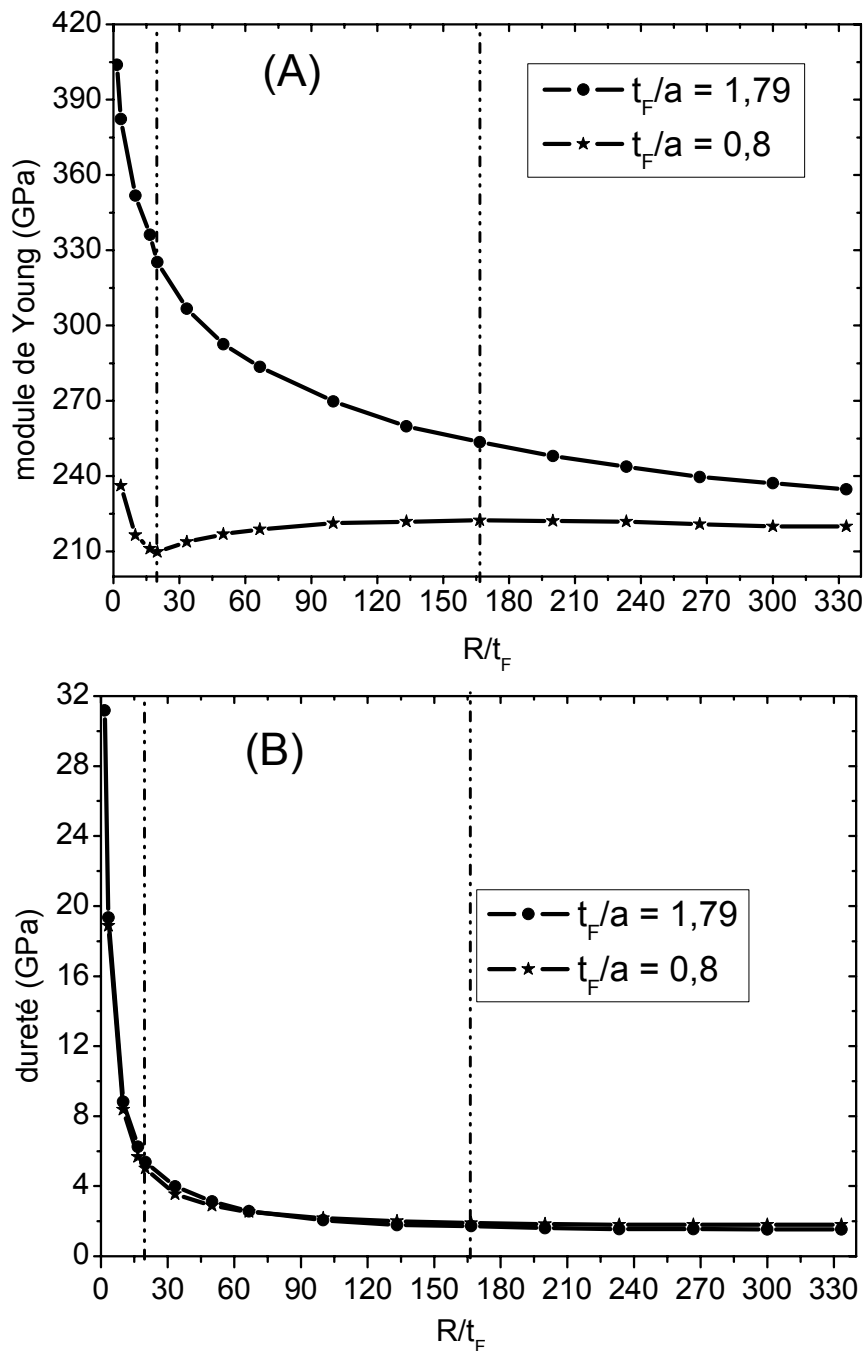


Figure 3-27 : Evolution en fonction du rayon de la pointe sphérique ( $R/t_F$ ) : (A) du module de Young et (B) de la dureté d'un système film-substrat, obtenus avec la méthode de Oliver et Pharr à deux épaisseurs résolues du film ( $t_F/a = 1,79$  et  $t_F/a = 0,8$ ).

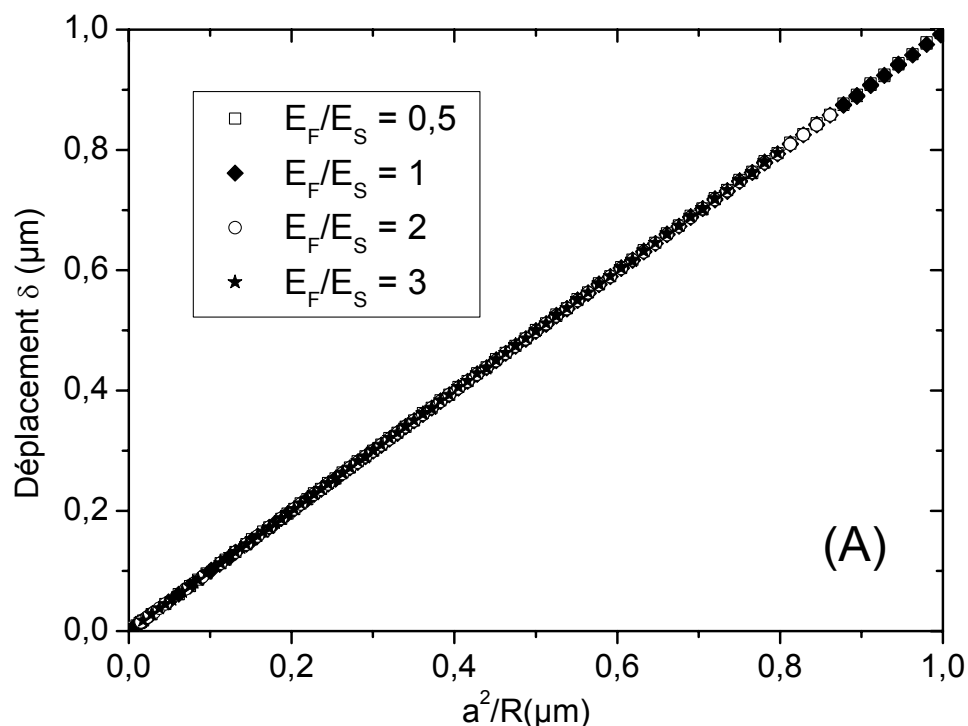
Ces observations montrent bien que, plus  $R/t_F$  est grand, plus la réponse composite est gouvernée par la déformation plastique du substrat. La quasi constance de la dureté, pour les grands rapports  $R/t_F$  est conforme au comportement du « pile-up » qui se trouve à la limite

de la zone de contact comme dans le cas d'un matériau massif. Donc, dans ce domaine, le système film-substrat se comporte comme le substrat « nu ».

Nous avons aussi remarqué, pour une valeur  $R/t_F$  appartenant à la plage  $R/t_F < 20$  (par exemple  $R/t_F = 16,66$ ), des variations du module de Young et de la dureté du système film-substrat (obtenus avec la méthode classique de Oliver et Pharr) avec le rapport  $E_F/E_S$ , la limite d'élasticité du substrat  $E_S/\sigma_{YS}$  (chapitre 4 ; partie 4.4.2.2).

### 3.4. Système film-substrat : Relation entre le rapprochement $\delta$ et le rapport $\frac{a^2}{R}$

Le rapprochement de deux corps en contact ( $\delta$ ) (appelé aussi delta) est calculé à partir de l'équation 2-13 (Cf. chp.2 page 60) pour toutes les configurations film-substrat étudiées ci-dessus. Nous avons constaté que, pour tous les rapports  $E_F/E_S$ ,  $E_S/\sigma_{YS}$ ,  $R/t_F$  considérés dans nos investigations,  $\delta$  (Eq.2-13) reste toujours égal à  $a^2/R$  (avec  $a$  le rayon de contact et  $R$  le rayon de courbure de la pointe) en régime de déformation élastique et élastoplastique (figure 3-28). Cela offre, en indentation sphérique, une opportunité de déterminer, connaissant  $\delta$ , le rayon ( $a$ ) et l'aire ( $\pi a^2 = \pi R \delta$ ) de contact à chaque charge appliquée et par suite la



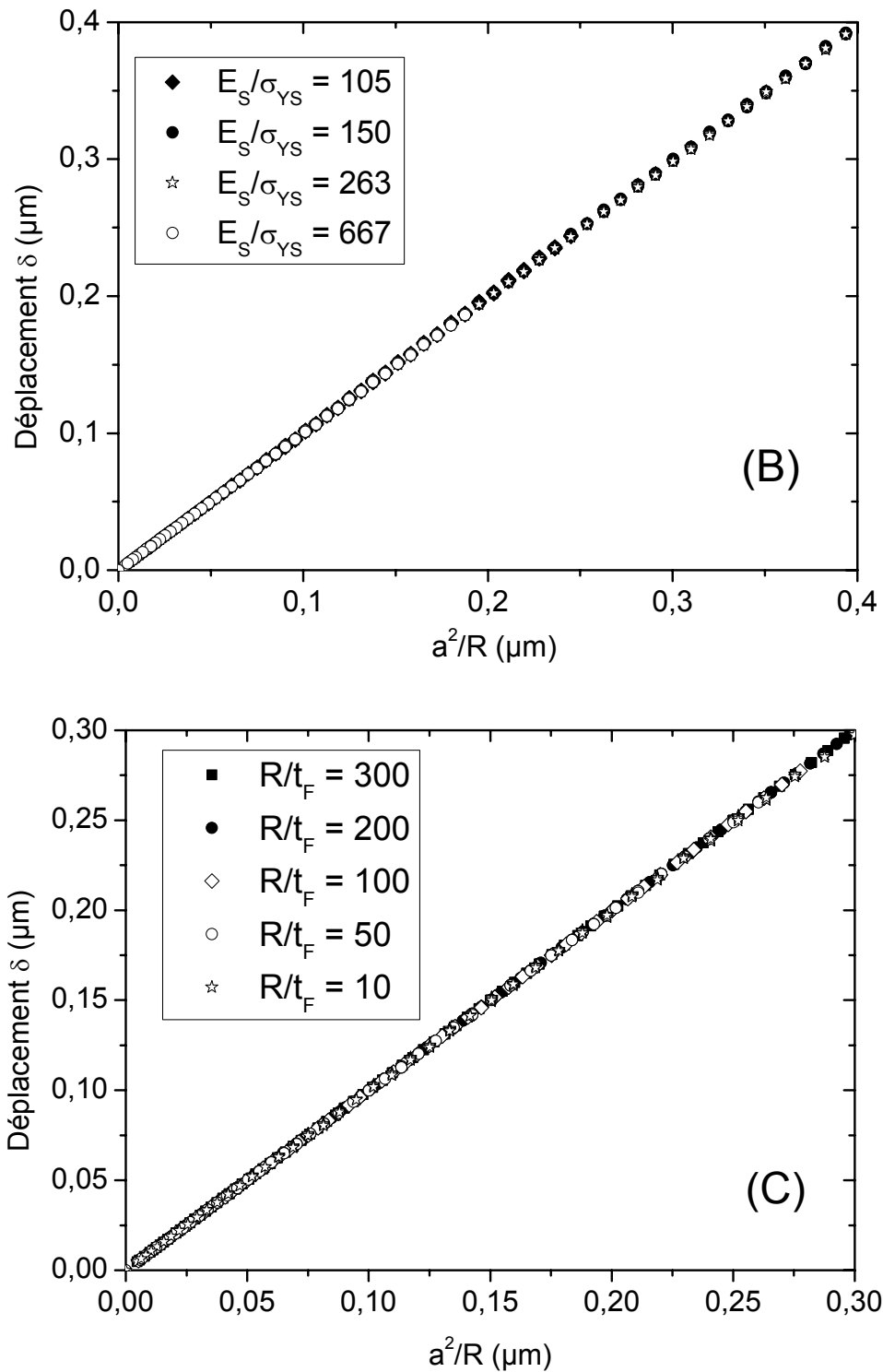


Figure 3-28 : Système film-substrat : Relation entre le déplacement  $h$  issu de l'équation 2-2 et le rapport  $a^2/R$  pour différents rapports : (A)  $E_F/E_S$  ; (B)  $E_S/\sigma_{YS}$  et (C)  $R/t_F$ .

dureté ( $H = F/\pi a^2$ ) qui est conforme, par définition, à la pression moyenne.

Analysons l'évolution de la pression moyenne composite  $F/\pi R\delta$  (ou dureté) en fonction de la charge appliquée. Contrairement à la dureté obtenue avec la méthode classique de Oliver et Pharr,  $F/\pi R\delta$  présente deux types de variation : croissance et saturation dans toute la plage de la charge appliquée (Figure 3-29). Notons que dans l'expression  $F/\pi R\delta$ , l'aire de contact ( $\pi R\delta$ ) est calculée directement à la charge maximale appliquée, tandis que, dans la méthode proposée par Oliver et Pharr, l'aire de contact ( $A = \pi(2Rh_p - h_p^2)$ ) est déterminée à partir de la pente (calculée à la charge maximale) d'une portion de la courbe de décharge. Bien que, la dureté (Oliver et Pharr) et  $F/\pi R\delta$  soient du même ordre de grandeur à leurs saturations, la méthode basée sur la relation  $F/\pi R\delta$  a pour avantage d'éviter l'influence de la déformation plastique du substrat sur la dureté composite mesurée (donc d'éviter la décroissance de la dureté). Le fait que la pression moyenne  $F/\pi R\delta$  croisse dans toute la gamme de la charge appliquée, réconforte bien l'hypothèse que la chute de la dureté composite (Oliver et Pharr) est lié à la réplastification du système durant la décharge.

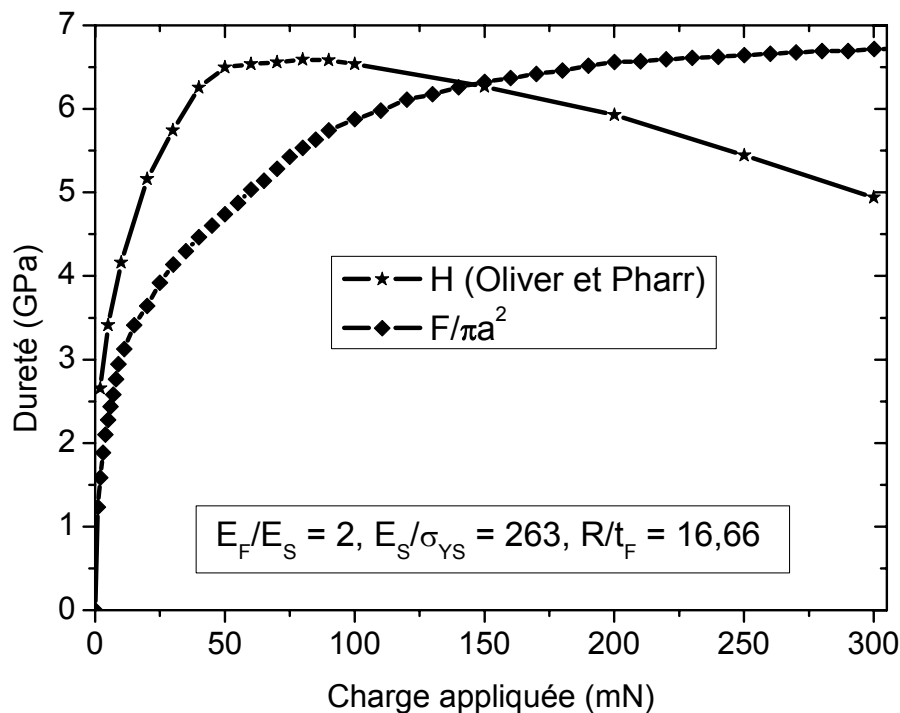


Figure 3-29 : Système film-substrat : comparaison entre la dureté composite issue de la méthode de Oliver et Pharr et de la relation  $F/\pi R\delta$  (avec  $\pi R\delta = \pi a^2$ ).

Maintenant représentons la pression moyenne composite ( $H = F/\pi R\delta$ ) en fonction de la déformation  $\frac{a}{R}$  (avec  $a = \sqrt{R\delta}$  le rayon de contact à la charge appliquée). Au début du chargement, l'expression  $F/\pi R\delta$  varie linéairement avec  $\frac{a}{R}$  et coïncide avec la pression moyenne théorique calculée avec les caractéristiques du film « massif » (figure 3-30). Cela donne aussi une possibilité de déterminer le module élastique du film à partir de la courbe de charge issue de l'indentation sphérique d'un système film-substrat. Remarquons aussi qu'au début de la décharge, la dureté composite  $F/\pi R\delta$  est une fonction linéaire de  $\frac{a}{R}$  qui coïncide cette fois avec la pression moyenne théorique du substrat massif (figure 3-30). Ainsi la relation  $F/\pi R\delta$  permettrait de mesurer non seulement la dureté composite, mais aussi les modules d'élasticité du film (au début du chargement) et du substrat (au stade initial de décharge) à partir des tests d'indentation instrumentée.

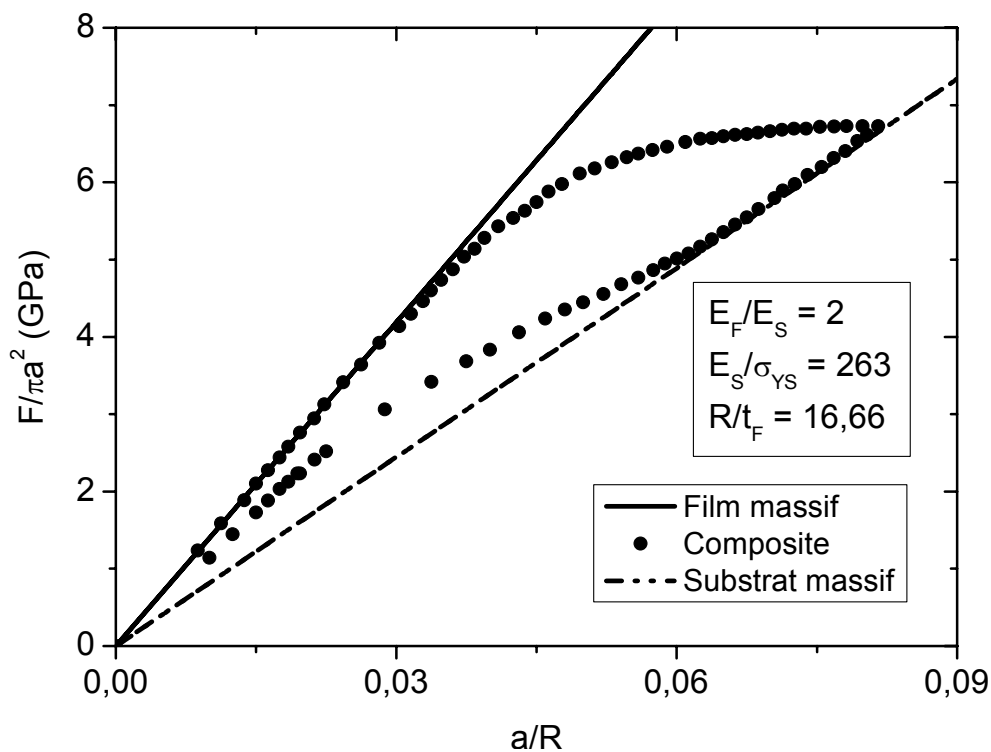
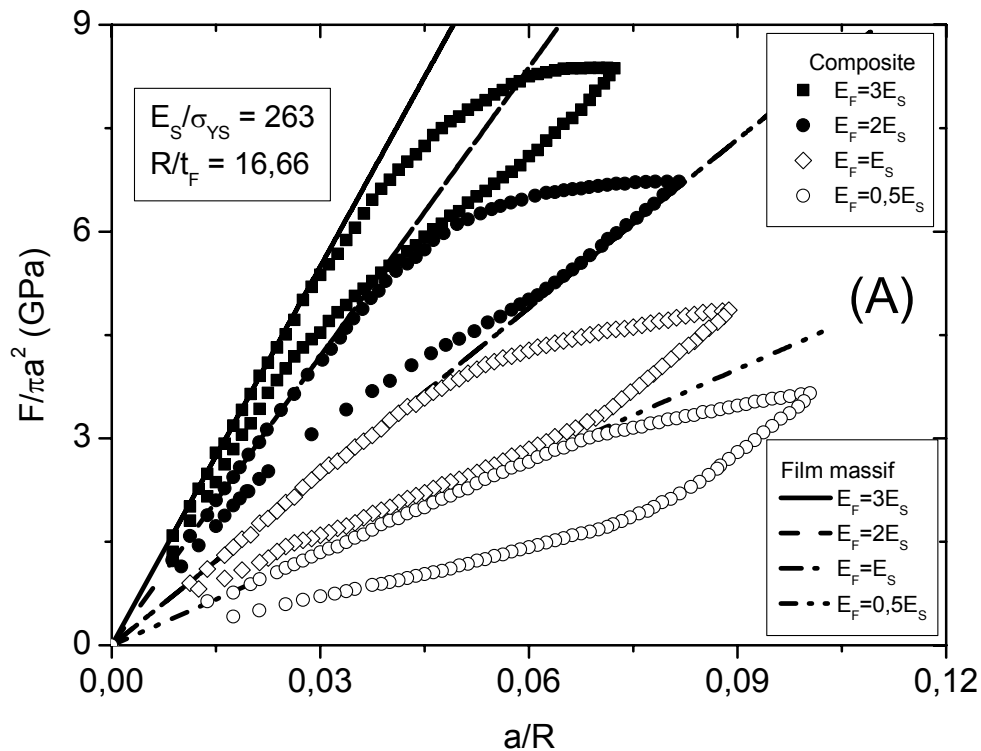


Figure 3-30 : Evolution de la dureté composite ( $H = F/\pi R\delta$ ) en fonction de  $a/R$  pour  $E_F/E_S = 2$ ,  $E_S/\sigma_{YS} = 263$  et  $R/t_F = 16,66$ .

Pour vérifier cette affirmation, nous avons modélisé numériquement l'indentation sphérique d'assemblages film-substrat pour différents rapports  $E_F/E_S$ ,  $E_S/\sigma_{YS}$  et  $R/t_F$ . Les représentations de la pression moyenne ( $F/\pi R\delta$ ) en fonction de la déformation ( $a/R$ ) sont regroupées dans les figures 3-31 A, B et C. Quels que soient les rapports  $E_F/E_S$ ,  $E_S/\sigma_{YS}$  et  $R/t_F$  considérés dans nos investigations numériques (figure 3-31 A, B et C) la pression moyenne (ou la dureté) varie linéairement avec  $a/R$  au début de la charge et de la décharge. Nous avons également constaté que, le coefficient de proportionnalité correspond au module de Young du film « massif » et du substrat « massif », respectivement à la charge et à la décharge





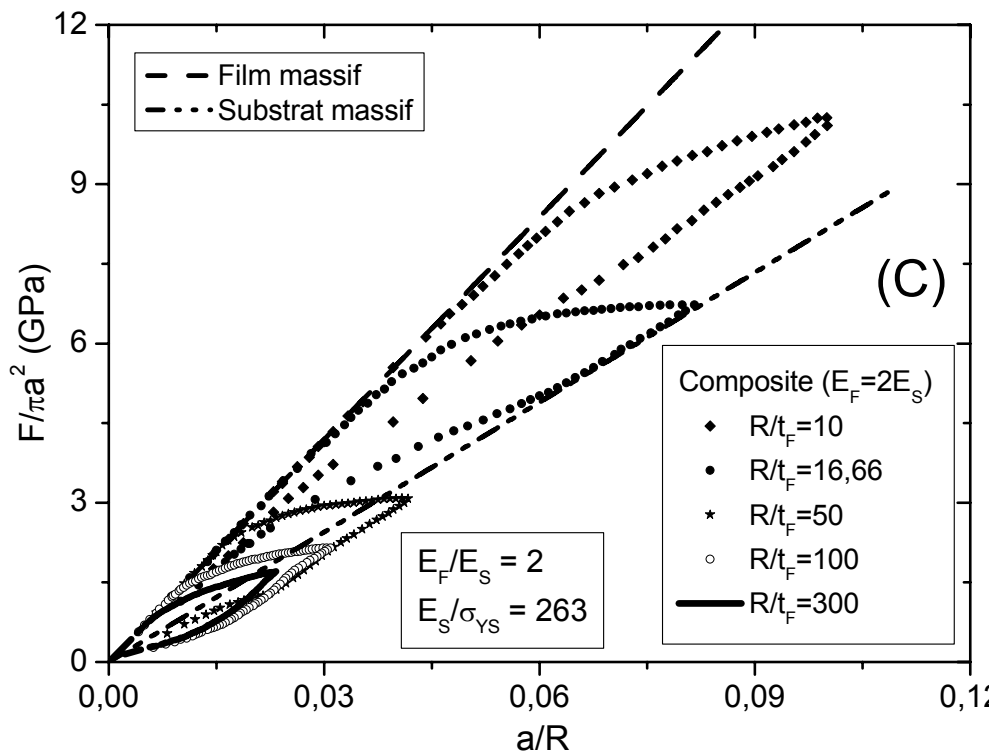
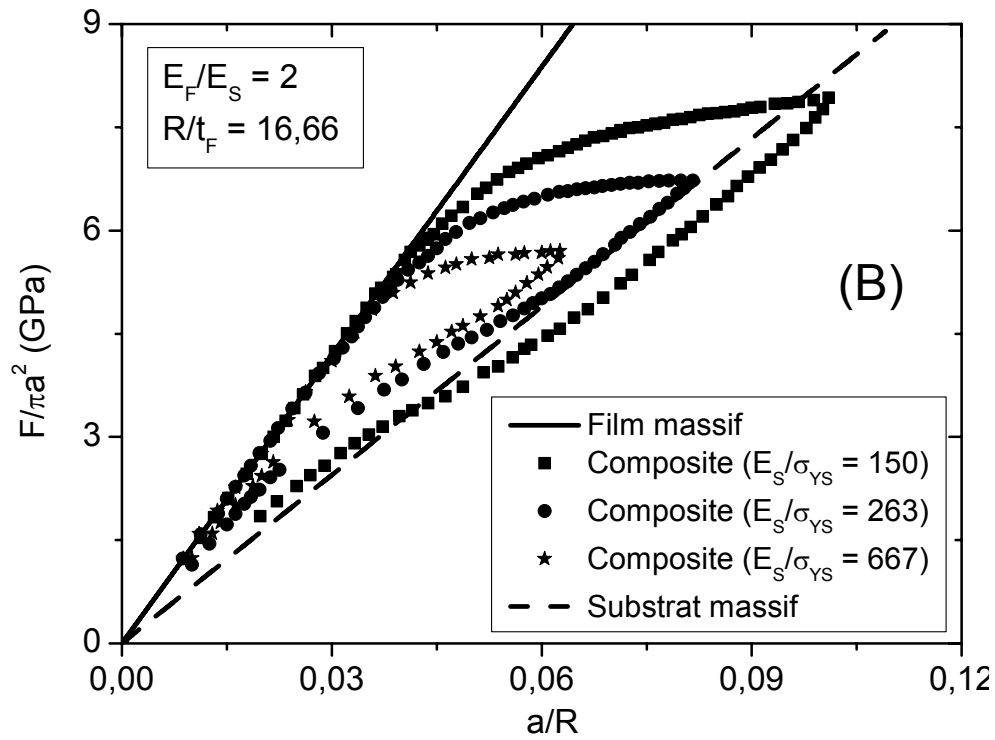


Figure 3-31 : Evolution de la pression moyenne (ou dureté) composite ( $H = F/\pi R\delta$ ) en fonction  $a/R$  pour différentes combinaisons film-substrat.

### 3.5. Conclusion

Comme les états de contraintes et de profil de surface à la charge et après la décharge totale, le module élastique et la dureté d'un système film-substrat (Oliver et Pharr) sont des fonctions complexes. Ces dernières dépendent de la charge appliquée (donc du volume plastique développé dans le substrat), du rapport  $R/t_F$  (donc du rayon de la pointe sphérique  $R$  et de l'épaisseur du film  $t_F$ ), du rapport  $E_F/E_S$  et de la limite d'élasticité du substrat ( $E_S/\sigma_{YS}$ ). Cependant, nous avons montré que le rapprochement de deux solides en contact  $\delta$  (Cf. Eq. 2-10) est toujours égal à  $\frac{a^2}{R}$  (avec  $a$  et  $R$  respectivement le rayon de contact et la courbure de la pointe) en régime de déformation élastique et élastoplastique durant l'indentation d'un système film-substrat (figure 3-28). Nous avons aussi montré qu'à partir de la représentation  $F/\pi R\delta - a/R$  (pression moyenne – déformation), les modules de Young du film et du substrat peuvent être calculés respectivement à la charge et à la décharge.

Par ailleurs, l'indentation instrumentée (ou nanoindentation) donne accès à deux paramètres mesurables qui sont la charge appliquée  $F$  et la pénétration de l'indenteur dans le matériau (c'est-à-dire le déplacement normal de l'indenteur). Ainsi, afin de pouvoir accéder aux propriétés mécaniques (module de Young ou dureté) du film ou du substrat séparément (et non à celles de l'ensemble film-substrat), d'une part une relation entre  $\frac{a^2}{R}$  (donc rapprochement  $\delta$ ) et le déplacement normal de l'indenteur  $U_z$ , et d'autre part une procédure d'analyse des courbes d'indentation, seront établies dans le chapitre 4.



# Chapitre 4. Procédure d'analyse des courbes d'indentation sphérique : validation numérique et expérimentale

## 4.1. Introduction

Le mécanisme de déformation d'un système film-substrat, sous indentation sphérique, est complexe. Il est accompagné de plusieurs phénomènes tels que la déflexion du film [39], la formation des fissures [40-65], la saturation de la pression de contact, le délaminage du film, la plastification durant la phase de décharge, la formation d'un bourrelet (pile up) autour de l'empreinte résiduelle. Ces phénomènes seraient à leur tour influencés par plusieurs paramètres tels que le volume plastique développé dans le substrat, les rapports  $E_S/\sigma_{YS}$ ,  $E_F/E_S$ ,  $R/t_F$  (Cf. Chapitre 3). Il est évident qu'il existe une réelle difficulté à accéder avec précision aux propriétés mécaniques du film in situ par les méthodes d'analyse actuelles. En effet, dans leur majorité, ces méthodes d'analyse des courbes d'indentation ont été développées à l'origine pour la caractérisation de matériaux massifs. Couplées aux corrections suggérées ces dernières années, elles conduisent (selon le pourcentage de décharge considéré) à des résultats satisfaisants pour des matériaux massifs. A l'heure actuelle, appliquées aux systèmes film-substrat, ces techniques permettent uniquement d'accéder aux propriétés mécaniques composites. Les modules élastiques du film et du substrat sont estimés en extrapolant les valeurs composites mesurées respectivement aux très faibles et grandes profondeurs d'indentation [34]. En effet, aux faibles charges appliquées, si le module de Young composite est relativement élevé (plus proche de celui du film), la dureté quant à elle est loin d'être celle du film (Cf. Chp.3 page 100). En plus, les valeurs (de  $E$  et  $H$ ) estimées (pour le film et le substrat respectivement aux faibles et fortes charges appliquées) dépendent de l'épaisseur du film et de rayon de la pointe sphérique. Notre objectif est de proposer une technique simple permettant de mesurer avec un maximum de précision les propriétés mécaniques du film.

## 4.2. Rappel des équation de Hertz

Considérons un massif semi-infini, homogène et isotrope et un indenteur sphérique (de rayon  $R$ ) de modules élastiques respectifs  $E_m$  et  $E_i$ , de coefficients de Poisson respectifs  $\nu_m$  et  $\nu_i$ . Durant l'indentation, une charge normale est appliquée au matériau massif par le biais de l'indenteur sphérique. Le contact entre le massif homogène et l'indenteur est supposé s'effectuer sans frottement dans une zone circulaire de rayon  $a$ . Les distributions théoriques de la pression  $p(r)$  exercée sur toute la zone de contact et du déplacement normal résultant sont données respectivement par les expressions 1-7 et 1-6 (Cf. Chp.1, page 15 et 16) [2 3]. Nous rappelons que, d'après la théorie de Hertz, le déplacement normale est aussi donnée par (Cf. figure 1-4 Chp1 page 16):

$$U_{z_1}(r) + U_{z_2}(r) = \delta - \frac{r^2}{2R} \quad 4-1$$

Où  $r$  désigne la coordonnée radiale et  $\delta = U_{z_1}(r=0) + U_{z_2}(r=0)$  le déplacement normal sur l'axe de symétrie, appelé aussi delta  $\delta$  (ou rapprochement entre les deux corps en contacts).

Quels que soient le matériau massif indenté et le rayon de la pointe sphérique utilisée, nous avons montré que, dans le cadre de petites déformations, le déplacement delta  $\delta$  calculé à partir de l'Equation. 4-1 s'exprime par :

$$\delta = \frac{a^2}{R} \quad 4-2$$

Avec  $a$  le rayon de contact et  $R$  le rayon de la pointe sphérique.

Nos études numériques ont montré la validité de cette expression (équation 4-2), dans le régime de déformation élastique et élastoplastique, aussi bien pour un matériau massif (chap.2 page 61) que pour un système film-substrat (chap.3 page 105). Cela est conforté par des nombreux travaux [3 22 51] qui ont montré qu'en régime de petites déformations purement élastiques, le déplacement  $\delta$  est égale à  $\frac{a^2}{R}$ .

### 4.3. Relation entre la charge appliquée et le déplacement élastique

Dans le domaine de déformation élastique, le déplacement normal sur l'axe de symétrie  $U_z(r=0)$  du premier point de contact entre un matériau massif et une sphère rigide (module de Young infini) est égal au déplacement élastique résultant (appelé aussi delta  $\delta$ ) [3 22 51]. Cette relation est largement utilisée en indentation instrumentée où la pointe sphérique est souvent en diamant ( $E_i = 1140$  GPa). Néanmoins, en mécanique du contact, la notion d'indéformabilité doit être liée à la déformabilité de l'antagoniste. Ainsi, une pointe en diamant est loin d'être parfaitement rigide, surtout quand le matériau indenté a un module d'élasticité élevé. D'où l'idée d'établir une relation entre le déplacement normal total  $U_z(r)$  et le rapprochement entre le matériau massif et la pointe sphérique en contact ( $\delta$ ) qui sera valable quels que soient les caractéristiques de l'indenteur sphérique utilisé (rigide ou non).

Notons  $U_z(m)$  et  $U_z(i)$  les déplacements normaux respectifs du matériau massif et de l'indenteur durant l'indentation. Le déplacement normal résultant de l'action de la pression de Hertz  $p(r)$  sur la surface de contact varie conformément à l'équation suivante [2] :

$$U_z(r) = \frac{1-\nu^2}{\pi E} \iint P(r) ds d\phi \quad 4-3$$

$E$  et  $\nu$  sont respectivement le module élastique et coefficient de Poisson du matériau ;  $p(r)$  est la distribution de pression de Hertz ;  $ds$  est l'élément de surface sur laquelle est exercé  $p(r)$ ,  $d\phi$  est l'élément d'angle de rotation par rapport à l'axe de contact.

En posant  $k_m = \frac{1-\nu_m^2}{\pi E_m}$  et  $k_i = \frac{1-\nu_i^2}{\pi E_i}$ , les déplacements normaux du matériau massif  $U_z(m)$  et de l'indenteur  $U_z(i)$  s'expriment alors respectivement par les équations suivantes :

$$U_z(m) = k_m \iint P(r) ds d\phi \quad \text{et} \quad U_z(i) = k_i \iint P(r) ds d\phi \quad 4-4$$

En introduisant  $U_z(m)$  et  $U_z(i)$  dans l'expression 4-1, le déplacement sur l'axe de symétrie

$$\delta \text{ s'écrit sous la forme suivante : } \delta = \left(1 + \frac{k_i}{k_m}\right) U_z(m) + \frac{r^2}{2R}.$$

Le déplacement sur l'axe d'indentation appelé aussi delta  $\delta$  s'écrit alors comme suit :

$$\delta(r=0) = \left(1 + \frac{k_i}{k_m}\right) U_z(m) \quad 4-5$$

Avec 
$$\frac{k_i}{k_m} = \frac{(1-\nu_i^2)E_m}{(1-\nu_m^2)E_i}$$

Lorsque la pointe est parfaitement rigide, le rapport  $\frac{k_i}{k_m}$  tend vers zéro et, d'après la relation 4-5, le déplacement  $\delta$  est égal au déplacement normal total  $U_z(m)$ . Sinon moins la pointe est rigide, plus le rapport  $\frac{k_i}{k_m}$  augmente et par conséquent, la différence entre le déplacement  $\delta$  et  $U_z(m)$  accroit.

Remarquons que le rapport  $\frac{k_i}{k_m}$  contient à la fois les caractéristiques du matériau testé et de la pointe sphérique. Néanmoins, la technique d'indentation instrumentée (nanoindentation) est utilisée, à priori, pour caractériser des nouveaux matériaux dont les propriétés mécaniques ne sont pas en général connues. Dans ce cas, comment doit-on procéder pour déterminer le déplacement  $\delta$  à partir de l'équation 4-5 ? Afin de répondre à cette question, il est nécessaire de trouver une équation qui permettra de déterminer l'inconnu  $\frac{k_i}{k_m}$ . En effet, l'indentation instrumentée d'un matériau massif permet l'enregistrement en temps réel de la charge appliquée et de la pénétration de l'indenteur dans le matériau (appelé profondeur d'indentation). Or, d'après la théorie de Hertz, durant l'indentation sphérique purement élastique, la charge appliquée est proportionnelle au déplacement  $\delta$  à la puissance 1,5 (Equation 1-11 page 17). D'où l'opportunité d'établir une relation entre la charge appliquée  $F$  et le déplacement normal  $U_z(m)$  qui nous permettra par la suite de déterminer  $k_m$ .

Lorsqu'on remplace le déplacement  $\delta$  (expression 4-5) par sa valeur dans l'expression 1-11

$$(F = \frac{4}{3} \frac{E^*}{R} a^3 = \frac{4}{3} E^* R^{1/2} \delta^{3/2}) \text{ on obtient :}$$

$$F^2 = \frac{16}{9} E^{*2} R \left( \left( 1 + \frac{k_i}{k_m} \right) U_z(m) \right)^3 \quad 4-6$$

Par ailleurs, le module élastique effectif  $E^*$  est une fonction des caractéristiques du matériau massif et de l'indenteur (Cf. expression 1-9, page 17). Ainsi,  $E^*$  peut s'écrire en fonction de  $k_m$  et  $k_i$  de la manière suivante :

$$1/E^* = \pi(k_m + k_i) \quad 4-7$$

En introduisant  $\delta$  (Eq. 4-5) et  $E^*$  (Eq. 4-7) dans l'expression 4-6, on obtient une équation du troisième degré de la forme suivante :

$$k_m^3 + pk_m + q = 0 \quad 4-8$$

$$\begin{aligned} p &= -\alpha^2 \frac{U_z(m)^3}{F^2} \\ \text{Avec } \alpha &= \frac{4\sqrt{R}}{3\pi} \\ q &= pk_i \end{aligned}$$

Afin de résoudre cette équation, nous avons utilisé la méthode de résolution de Cardan qui consiste à calculer dans un premier temps le déterminant :

$$Det = 4p^3 + 27q^2 \quad 4-9$$

- Si le déterminant (Eq. 4-9) est positif, l'équation 4-8 possède une solution réelle et deux solutions complexes qui sont respectivement, en posant :

$$u = \sqrt[3]{\frac{-27q + 3\sqrt{3}\sqrt{Det}}{2}} \quad \text{et} \quad v = \sqrt[3]{\frac{-27q - 3\sqrt{3}\sqrt{Det}}{2}}$$

$$k_{m1} = \frac{1}{3}(u + v)$$

$$\begin{cases} k_{m2} = \frac{1}{3}(ju + \bar{j}v) \\ k_{m3} = \frac{1}{3}(j^2u + \bar{j}^2v) \end{cases}$$

$$\text{Où } j = -\frac{1}{2}(1 + i\sqrt{3}) = e^{i\frac{2\pi}{3}}$$



- Si le déterminant (Eq. 4-9) est nul, l'équation 4-8 possède deux solutions réelles, une simple et une double qui sont respectivement:

$$\begin{cases} k_{m1} = 2 \left( \sqrt[3]{\frac{-q}{2}} \right) \\ k_{m2} = k_{m3} = - \left( \sqrt[3]{\frac{-q}{2}} \right) \end{cases}$$

- Si le déterminant (Eq. 4-9) est négatif, l'équation 4-8 possède trois solutions réelles. Si on pose  $u = \sqrt[3]{\frac{-27q + 3i\sqrt{3}\sqrt{-Det}}{2}}$ , les trois racines s'écrivent respectivement :

$$\begin{cases} k_{m1} = \frac{1}{3} \left( u + \bar{u} \right) \\ k_{m2} = \frac{1}{3} \left( ju + \overline{j\bar{u}} \right) \\ k_{m3} = \frac{1}{3} \left( j^2u + \overline{j^2\bar{u}} \right) \end{cases}$$

La forme réelle s'écrit :

$$k_{mk} = 2 \sqrt{\frac{-p}{3} \cos \left( \frac{1}{3} \arccos \left( \frac{-q}{2} \sqrt{\frac{27}{-p^3}} \right) + \frac{2k\pi}{3} \right)} \quad \text{Avec } k = \{1, 2, 3\}$$

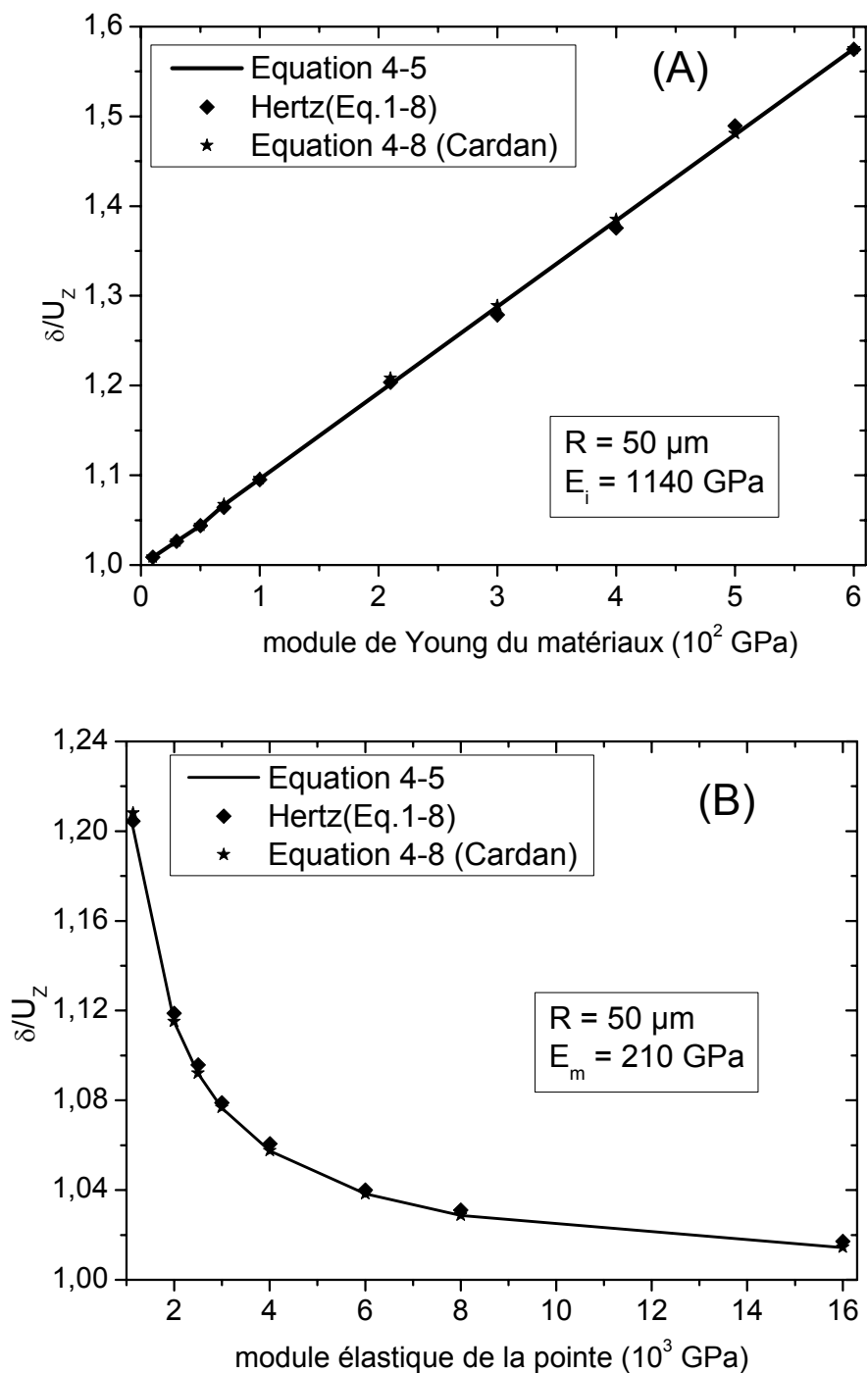
Une fois la racine  $k_m$  calculée, le déplacement élastique  $\delta$  correspondant peut être aisément déterminé à partir de l'équation 4-5. Dans notre cas, le déterminant est toujours de signe négatif.

Dans le domaine de déformation élastique, nos investigations ont montré que les déplacements  $\delta$  numérique, analytique (équation 4-5) et celui résultant de la résolution de l'équation 4-8 par la méthode de Cardan sont en parfait accord.

Afin de vérifier, au delà de la déformation élastique, la fiabilité de l'expression 4-5 avec  $\frac{k_i}{k_m}$  connu ou déterminé en résolvant l'équation 4-8 par la méthode de Cardan, nous avons simulé

des indentations sphériques élastoplastiques sur divers types de matériaux massifs pour différents rayons de courbure  $R$  et modules de Young de la pointe. Les résultats obtenus sont présentés dans la figure 4-1.

Quel que soit le matériau massif et la pointe sphérique utilisés dans nos calculs, de bons accords sont obtenus entre les solutions analytiques calculées à partir des expressions 4-2 ; 4-5 et celles issues de la résolution de l'équation 4-8 par la méthode de Cardan (figure 4-1).



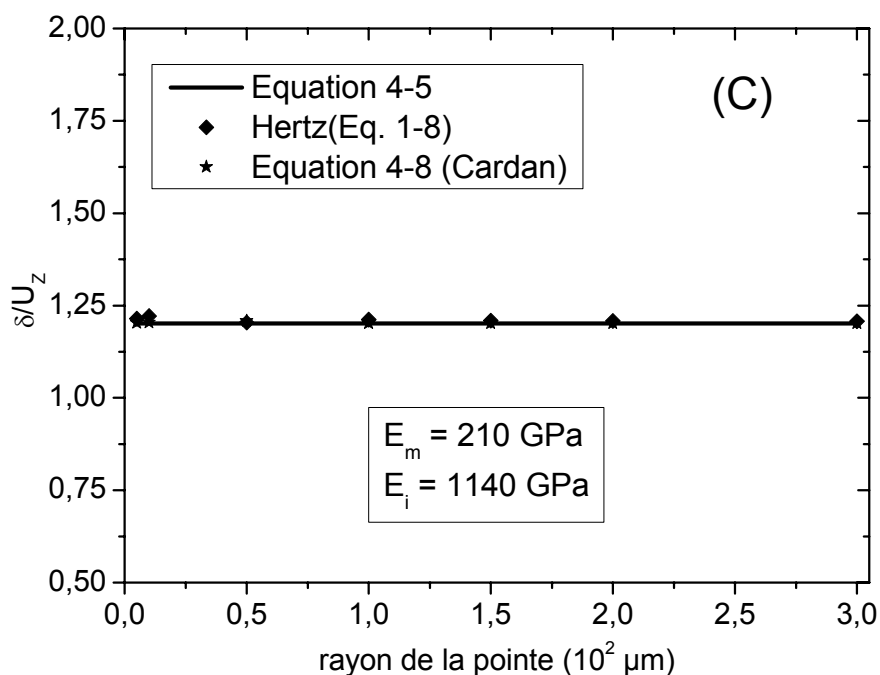


Figure 4-1 : Evolution du rapport  $\delta/U_z$  issu respectivement de l'équation 4-5, de la théorie de Hertz (1-8) et de la résolution de l'équation 4-8, en fonction (A) du module élastique du matériau massif, (B) du module élastique de la pointe et (C) du rayon de la pointe.

Ainsi, l'expression 4-5 est validée quel que soit le matériau massif et l'indenteur utilisés lors de l'indentation sphérique. Le bon accord, entre les résultats issus des équations 4-5 et 4-8, offre une issue pertinente qui permettra de calculer le déplacement  $\delta$  quel que soit le matériau indenté. Bien que les solutions analytiques (Eq. 4-2 et Eq. 4-5) soient en parfait accord avec, leur relation avec le déplacement normal  $U_z$  dépend de la nature non seulement du matériau, mais aussi de la pointe. En effet, dans le cas des matériaux massifs indentés par une pointe sphérique en diamant ( $E_i = 1140 \text{ GPa}$ ), lorsque  $E_m$  varie de 10 à 600 GPa, le rapport  $\delta/U_z$  varie de 1,008 à 1,575 (figure 4-1 A). Ce rapport est compris entre 1 et 1,1 pour  $E_m$  inférieur ou égal à 100 GPa (figure 4-1 A). Ainsi, une pointe en diamant ne peut être considérée comme indéformable que pour les matériaux ayant  $E_m$  inférieur ou égal à 100 GPa (figure 4-1 A). Dans le cas d'un matériau massif de module de Young égale à 210 GPa, plus le module d'élasticité de la pointe sphérique est élevé (c'est-à-dire plus la pointe est rigide), plus le rapport  $\delta/U_z$  tend vers l'unité (figure 4-1 B). Alors le rapport  $\delta/U_z$  est compris 1 et 1,1 seulement si le module d'élasticité de l'indenteur utilisé est supérieur ou égal à 3000 GPa (figure 4-1 B). Enfin, lorsqu'on fixe les modules de Young du matériau testé et de la pointe

respectivement à 210 et 1140 GPa, le rapport  $\delta/U_z$  est égale à 1,201 pour toutes les valeurs de  $R$  allant de 5 à 300  $\mu\text{m}$  (figure 4-1 C). D'après ces résultats, l'approximation d'un indenteur sphérique en diamant ( $E_i = 1140$  GPa) à un poinçon indéformable pourrait être une source d'erreur dans l'analyse des données expérimentales d'indentation instrumentée des matériaux massifs ayant un module d'élasticité élevé. L'utilisation de l'équation 4-5 est une solution pertinente à ce problème.

Notons, pour un système film-substrat,  $U_z(F/S)$  et  $k_{F/S}$  respectivement le déplacement normal composite (connu) et le facteur représentant la réponse de l'ensemble. Rappelons que dans nos études, le déplacement delta composite  $\delta_{F/S}$  est aussi toujours égal à  $a^2/R$  (Cf. chapitre 3 page 105). Ainsi, par analogie à un matériau massif, le déplacement composite s'écrit par :

$$\delta_{F/S} = \left(1 + \frac{k_i}{k_{F/S}}\right) U_z(F/S) \quad 4-10$$

Connaissant le déplacement composite total  $U_z(F/S)$ , le terme  $k_{F/S}$  peut être déterminé à partir de la résolution de l'équation 4-8. Ce qui permettra de calculer par la suite  $\delta_{F/S}$ . Les résultats issus de nos investigations numériques sont regroupés dans la figure 4-2 A l'exception du cas particulier où  $E_F/E_S = 1$ , le déplacement composite  $\delta_{F/S}/U_z(F/S)$  (Equation.4-10), résultant de l'indentation sphérique d'un système film-substrat, n'est égal ni à  $1 + \frac{k_i}{k_F}$  (caractéristique du film) ni à  $1 + \frac{k_i}{k_S}$  (caractéristique du substrat) (figure 4-2 B). Par

ailleurs, pour  $E_F/E_S = 2$ , le coefficient de proportionnalité, entre les déplacements  $\frac{a^2}{R}$  (delta) et  $U_z(F/S)$  est compris entre 1 et 1,1 dans toute la gamme du  $R/t_F$  étudié (figure 4-2 A).

Lorsque  $R/t_F$  est fixé à une valeur quelconque, le déplacement composite  $\frac{a^2}{R}$  présente en fonction de  $U_z(F/S)$ , deux types de variation en fonction de  $E_F/E_S$  (figure 4-2 B). Il

décroît d'abord et puis se sature à une valeur de  $\frac{a^2}{R} = (1,0542 \pm 0,0102) U_z(F/S)$  pour respectivement  $E_F/E_S$  inférieur et supérieur à 1,5 (figure 4-2 B). Ainsi, en première

approximation on peut considérer que  $\frac{a^2}{R}$  est égale à  $U_z(F/S)$ , pour tout système

film-substrat dont le film est 1,5 (et plus) fois plus rigide que le substrat (c'est-à-dire pour  $E_F/E_S \geq 1,5$ ) et quel que soit le rapport  $R/t_F$ .

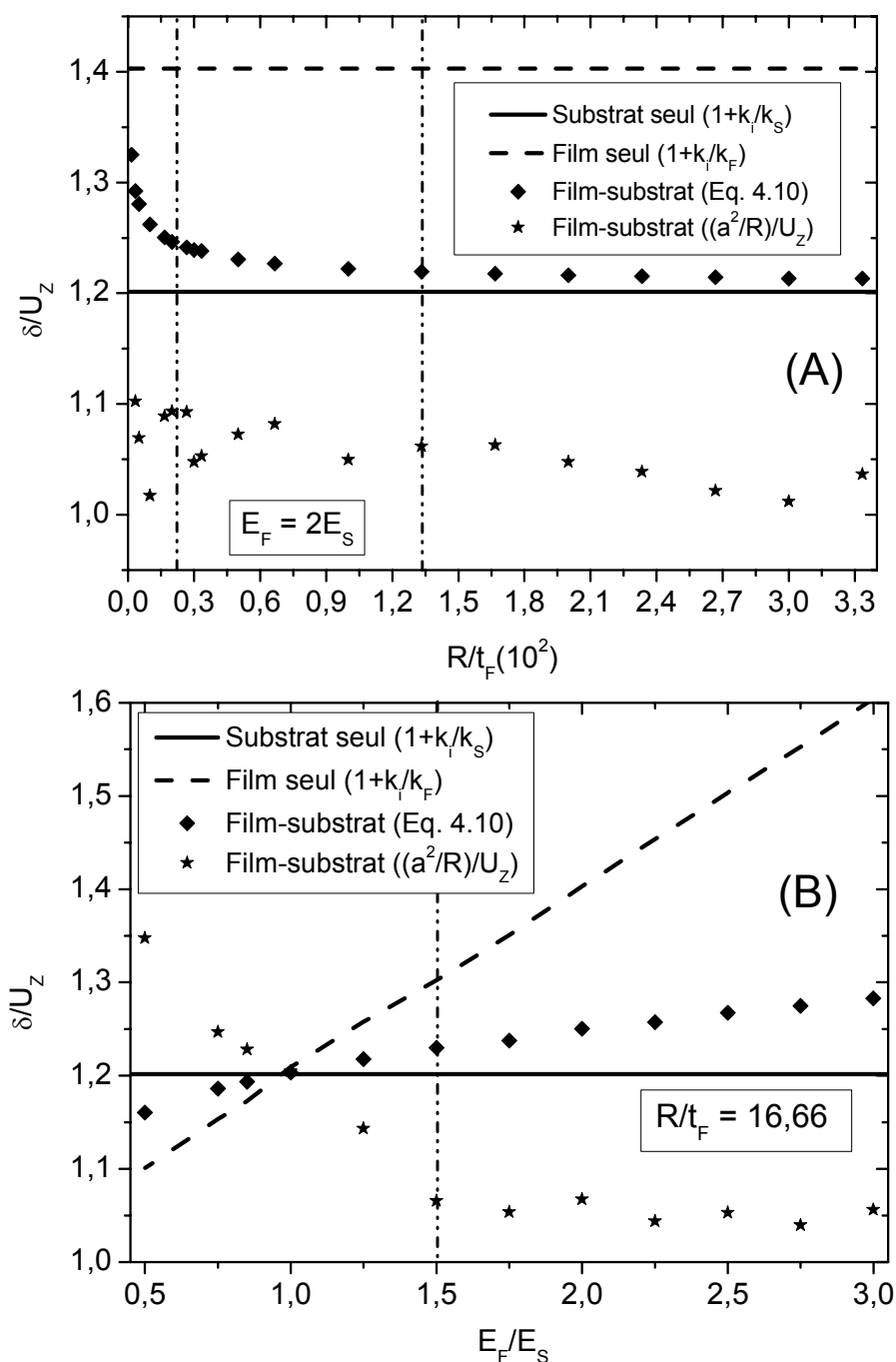


Figure 4-2 : Système film-substrat : Evolution en fonction des rapports : (A)  $R/t_F$  et (B)  $E_F/E_S$ , des déplacements composites (équations 4-1 et 4-10) et ceux correspondants aux films massifs et substrats massifs (équation 4-5).

Par ailleurs, nous avons calculé les déplacements (équation 1-8) qui correspondent respectivement au substrat « massif » ( $E_S$ ) et film « massif » ( $E_F = 2E_S$ ). Remarquons

qu'aux faibles valeurs de  $a/t_F$  (avec  $a$  le rayon de contact et  $t_F$  l'épaisseur du film) donc aux faibles charges appliquées, le déplacement composite  $\frac{a^2}{R}$  correspond à la réponse du film « massif » (figure 4-3 A). Cela trouve également son support dans les travaux de Kouitat et Stebut [32] qui ont montré que, pour un système film-substrat donné, la réponse composite représente celle du film « massif » aux faibles profondeurs d'indentation ( $\delta < 2\% t_F$ ).

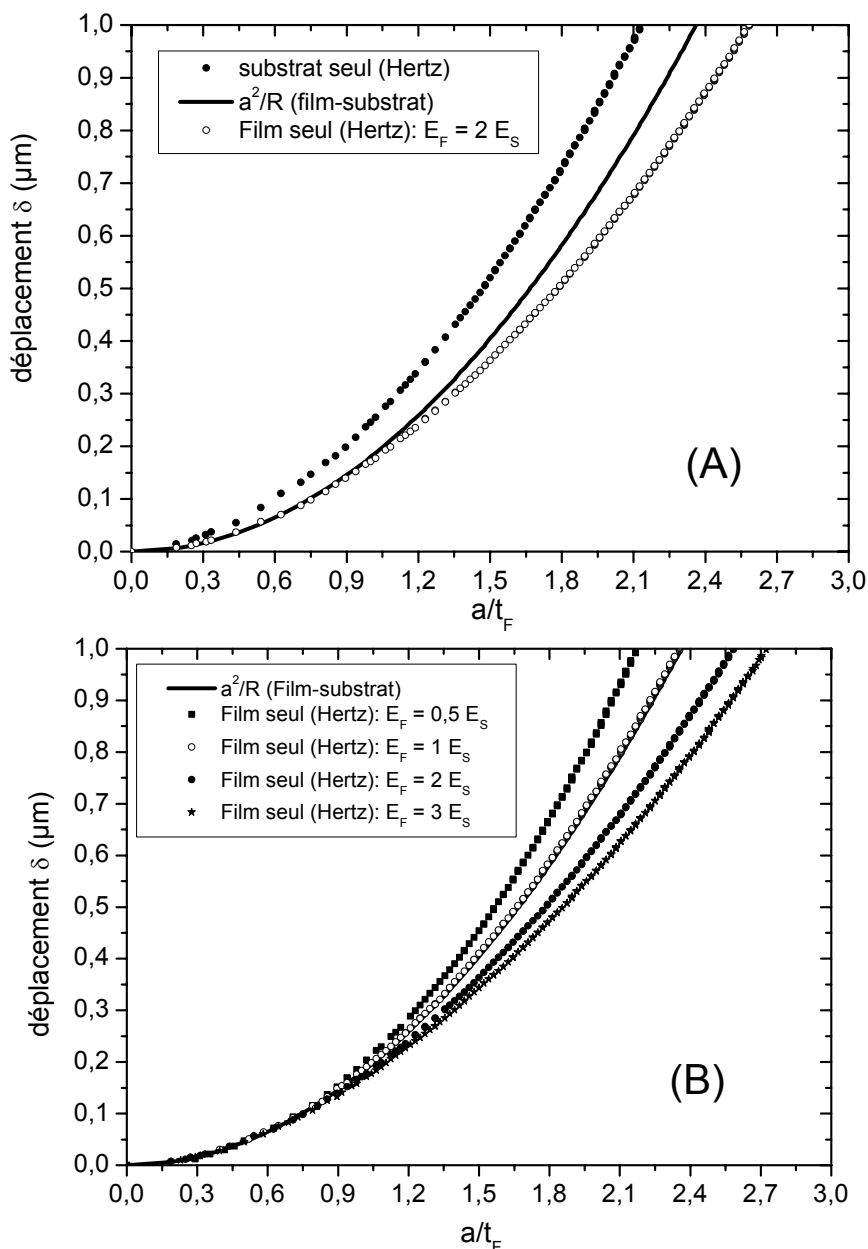


Figure 4-3 : Système film-substrat : Evolution du déplacement en fonction de  $a/t_F$  pour : (a)  $E_F = 2 E_S$  et (b)  $E_F/E_S$  allant de 0,5 à 3.

En plus, lorsque le rapport  $E_F/E_S$  évolue de 0,5 à 3, le déplacement composite  $\frac{a^2}{R}$  reste égal à celui correspondant au film « massif », pour les faibles rayons de contact par rapport à l'épaisseur du film ( $a/t_F < 0,77$ ). Cela présente une réelle opportunité de pouvoir déterminer les propriétés du film à partir des données d'indentation instrumentée d'un système film-substrat. Ainsi, connaissant la courbure de l'indenteur  $R$ , le rayon  $a$  et l'aire  $A$  de la surface de contact peuvent être calculées directement à partir du déplacement  $U_Z$ .

Remarquons que le carré de la charge appliquée s'écrit:

$$F^2 = \frac{16 E^*2}{9 R^2} (R\delta)^3 \quad 4-11$$

Avec  $\delta = \frac{a^2}{R} = \left(1 + \frac{k_i}{k_m}\right) U_Z (m)$  pour un matériau massif (Figure 4-1) et en première

approximation  $\delta = \delta_{F/S} = \frac{a_{F/S}^2}{R} \approx U_Z (F/S)$  pour un système film-substrat dont  $E_F/E_S \geq 1,5$  (Figure 4-2).

Nous avons vérifié que la formule 4-11 est linéaire dans le domaine de déformation élastique aussi bien pour un massif homogène (figures 4-4) que pour un système film-substrat (film et substrat tous élastiques) (figures 4-8). D'où la possibilité de déterminer le module d'élasticité du matériau à partir de la pente. Ceci est bien connu pour les matériaux massifs dans la théorie de Hertz [3]. La seule nouveauté est que l'équation 4-11 peut être utilisée pour tout type de pointe (indéformable ou non) à condition que le déplacement  $\frac{a^2}{R}$  soit déterminé à partir de l'expression 4-5. Récemment une étude semblable [56] a montré (théoriquement et expérimentalement) que le rapport  $F/h^{3/2}$  est une fonction linéaire de  $\sqrt{R}$  en indentation sphérique et élastique. D'après la même étude, la relation entre  $F/h^{3/2}$  et  $\sqrt{R}$  reste linéaire aussi en indentation élastoplastique si  $R$  (appelé cette fois rayon réduit) tient compte du rayon de l'empreinte résiduelle. L'intérêt majeur se situe au niveau du système film-substrat où la relation 4-11 a aussi une variation linéaire en régime de déformation élastique. En déformation élastoplastique, l'équation 4-11 est aussi linéaire à faible charge et dévie à charge élevée pour un matériau homogène aussi bien que pour un matériau composite. D'où la

possibilité d'extraire le module de Young des matériaux homogènes ou composites dans la portion de la courbe de charge où  $F^2$  est une fonction linéaire de  $(R\delta)^3$  par un simple calcul de la pente. En notant  $Pte$  la pente de la fonction  $F^2((R\delta)^3)$  donnée par l'équation 4-11, le module effectif s'obtient par :

$$E^* = \frac{3}{4} R \sqrt{Pte} \quad 4-12$$

Avec  $R$  le rayon de la pointe sphérique. Comme  $\delta = \frac{a^2}{R}$  (Cf. chap.2 page 61 et chap.3 page 105), le rayon de contact peut être déduit à chaque charge appliquée. Cela donne aussi la possibilité de calculer la pression moyenne (ou dureté) durant toute l'indentation sphérique de la façon suivante :

$$H = F/\pi R\delta \quad 4-13$$

Avec  $R\delta = a^2$ ,  $F$  la charge appliquée et  $R$  le rayon de la pointe.

## 4.4. Validation numérique

### 4.4.1. Cas des matériaux massifs homogènes

#### 4.4.1.1. Régime de déformation élastique

L'indentation de massifs homogènes et élastiques ( $\nu_s = 0,3$  et  $E_s$  allant de 100 à 500 GPa) à l'aide d'une pointe sphérique ( $E_t = 1140$  GPa,  $\nu_s = 0,07$  et  $R = 50$   $\mu\text{m}$ ) est simulée. La représentation du carré de la charge appliquée ( $F^2$ ) en fonction de  $(R\delta)^3$  (Eq.4-11) est illustrée sur la figure 4-4. Le simple calcul de la pente permet de déterminer le module de Young du matériau à partir de l'équation 4-11. En effet, pour un matériau massif ( $E_s = 210$  GPa et  $\nu_s = 0,3$ ), la valeur calculée de  $E$  est égale à 209,63 GPa soit une erreur de 0,18%. Les résultats obtenus pour tous les massifs homogènes considérés (figure 4-4), sont représentés dans le tableau 4-1. L'erreur évaluée, entre les valeurs calculées (Eq. 4-11 et 4-12) et celles utilisées dans le calcul numérique, est inférieur ou égale à 0,5% pour tous les cas étudiés (tableau 4-1). Ainsi, notre formulation (Eq. 4-11 et 4-12) est adéquate à la caractérisation des matériaux massifs sous indentation sphérique en régime élastique.



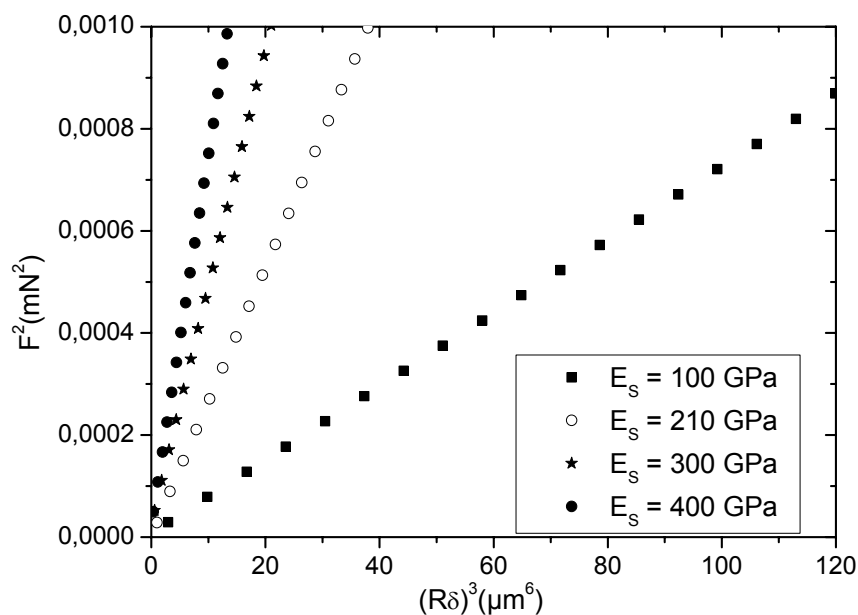


Figure 4-4 : Substrats élastiques : Représentation du carré de la charge appliquée  $F^2$  en fonction de  $(R\delta)^3$  (Eq. 4-11).

$E_S$ (utilisé) (GPa)	100	210	300	400	500
$E$ (4-11 et 4-12) (GPa)	100,215	209,629	299,380	401,623	502,508
Erreur	0,25%	0,18%	0,2%	0,4%	0,5%

Tableau 4-1 : Substrats élastiques : Résultats issus des équations 4-11 et 4-12

#### 4.4.1.2. Domaine élastoplastique d'indentation sphérique

Dans cette, partie des indentations élastoplastiques de matériaux massifs sont simulées. La méthode de caractérisation, basée sur les équations 4-11 et 4-12, est utilisée pour accéder aux propriétés mécaniques des matériaux indentés. Les résultats obtenus sont comparés avec ceux issus de la technique classique d'analyse d'Oliver et Pharr (Chp.1 page 24). Divers matériaux et diverses pointes sphériques ont été considérés.

Dans tous les cas étudiés, le module d'élasticité et le coefficient de Poisson de la pointe sphérique considérés ont pour valeurs respectives 1140 GPa et 0,07.

#### ◆ Cas 1 : Effet de la Charge maximale appliquée ( $E_S/\sigma_{YS}$ et $R$ constants)

La figure 4-5 illustre l'évolution du module de Young en fonction de la charge appliquée. Ces résultats sont issus de l'équation 4-11 et de la technique classique d'analyse des données d'indentation (Chp.1 page 24). Le module de Young issu de la méthode classique

de Oliver et Pharr (90% de la courbe de décharge est considéré) décroît en fonction de la charge appliquée  $F$  (figure 4-5). Ces valeurs de  $E$  tendent vers  $212,36812 \pm 0,29475$  GPa aux charges appliquées élevées. Ce type d'évolution du module élastique avec la charge appliquée  $F$  (ou avec la profondeur d'indentation  $h$ ) est observé dans les études expérimentales de Zhu et al 2008 [58]. L'utilisation des équations 4-11 et 4-12 donne une valeur moyenne de  $E$  égale à  $(211,105 \pm 0,014)$  GPa. La technique que nous proposons (Eq. 4-11 et 4-12) conduit donc à des valeurs de  $E$  avec une erreur inférieure à 1% (figure 4-5).

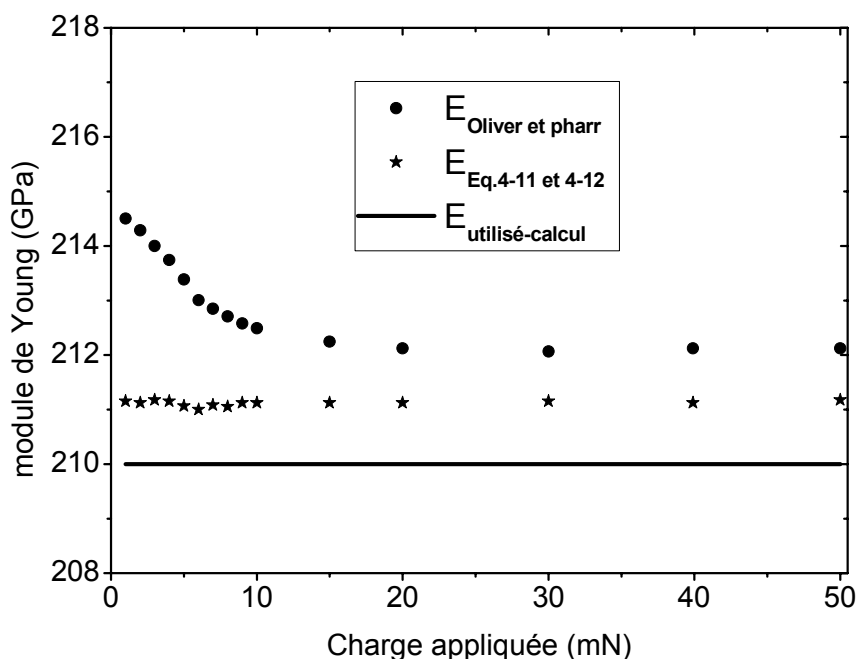


Figure 4-5 : Evolution du module élastique du substrat nu (élastoplastique) avec la charge appliquée : comparaison entre la technique classique (Oliver et Pharr) et celle donnée par les équations 4-11 et 4-12

◆ *Cas 2 : Effet du rayon de courbure de la pointe  $R$  ( $E_s / \sigma_{ys}$  et  $F$  constants)*

L'évolution du module de Young  $E$  du matériau, en fonction du rayon de la pointe, issu de la technique de Oliver et Pharr, est représentée dans la figure 4-6. Nous rappelons que les charges maximales appliquées sont telles que  $a/R = 0,05$ . A ce niveau de chargement le module élastique (Oliver et Pharr) reste constant dans la gamme des rayons de pointe utilisés (figure 4-6). Cela est conforme à nos investigations où nous avons montré que pour  $a/R \geq 0,03$ , la pression de contact a une forme aplatie à la charge qu'à la décharge (Cf. Figure 2-11, page 59) et par conséquent le module de Young est constant (Cf. Figure 2-9, page 57). La valeur moyenne de cette constante est environ  $(212,366 \pm 0,362)$  GPa. Ceci est sans

surprise, puisque l'une des hypothèses de Oliver et Pharr est l'approximation de la décharge d'un indenteur (de forme géométrique quelconque) à celle d'un poinçon plat. En utilisant les équations 4-11 et 4-12, nous avons trouvé une valeur moyenne de  $E$  égale à  $(211,091 \pm 0,173)$  GPa pour tous les rayons  $R$  supérieurs ou égales à  $10 \mu\text{m}$  (figure 4-6). Soit un écart de 1,091 de la valeur exacte. Ce qui correspond à une erreur moyenne de 0,52%. Une valeur de  $E$  égale à 208,698 GPa est obtenue pour un rayon de pointe de  $5 \mu\text{m}$  (figure 4-6) soit une erreur de 0,62%. Une fois de plus, quel que soit le rayon de la pointe sphérique, notre formulation permet de mesurer le module de Young d'un matériau massif avec une erreur inférieure à 1%.

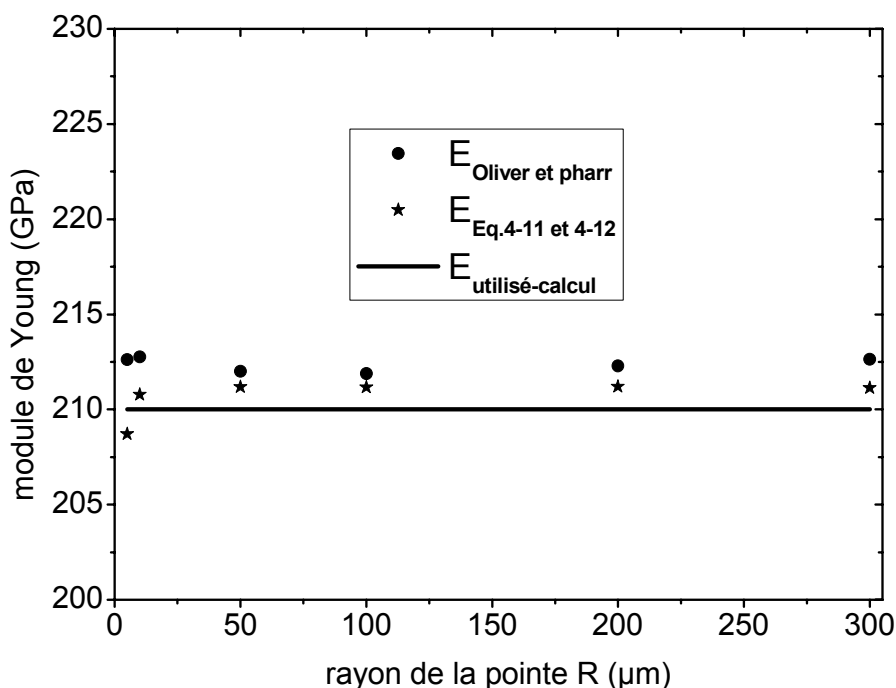


Figure 4-6 : Evolution du module élastique du substrat nus (élastoplastique) avec le rayon de la pointe  $R$  : comparaison entre la technique classique (Oliver et Pharr) et celle donnée par les équations 4-11 et 4-12

◆ *Cas 3 : Effet du Rapport  $E_S / \sigma_{YS}$  ( $R$  et  $F$  constants)*

Maintenant, pour une même valeur donnée de la limite d'élasticité  $\sigma_{YS}$ , nous avons fait varier le rapport  $E_S / \sigma_{YS}$  donc le module de Young du matériau. Les résultats obtenus sont donnés dans la figure 4-7. Dans le domaine où  $E_S / \sigma_{YS} \leq 263$ , la technique de Oliver et Pharr donne des bons résultats (figure 4-7). Au delà de  $E_S / \sigma_{YS} = 263$ , le module élastique (Oliver et Pharr) s'écarte davantage de sa valeur exacte (utilisée dans le calcul), lorsque  $E_S / \sigma_{YS}$  augmente. Cela trouve son explication dans l'approximation de la pointe sphérique à un

indenteur rigide (indéformable). En effet, nous avons montré que pour les matériaux massifs ayant un module élastique supérieur à 100 GPa, la pointe sphérique ( $E_i = 1140$  GPa,  $\nu_s = 0,07$ ) ne peut pas être considérée comme indéformable (figure 4-1 A). Cependant, l'utilisation des équations 4-11 et 4-12 produit les valeurs du module de Young avec une erreur inférieure à 0,8% dans toute la plage  $E_s / \sigma_{YS}$  étudiée (figure 4-7).

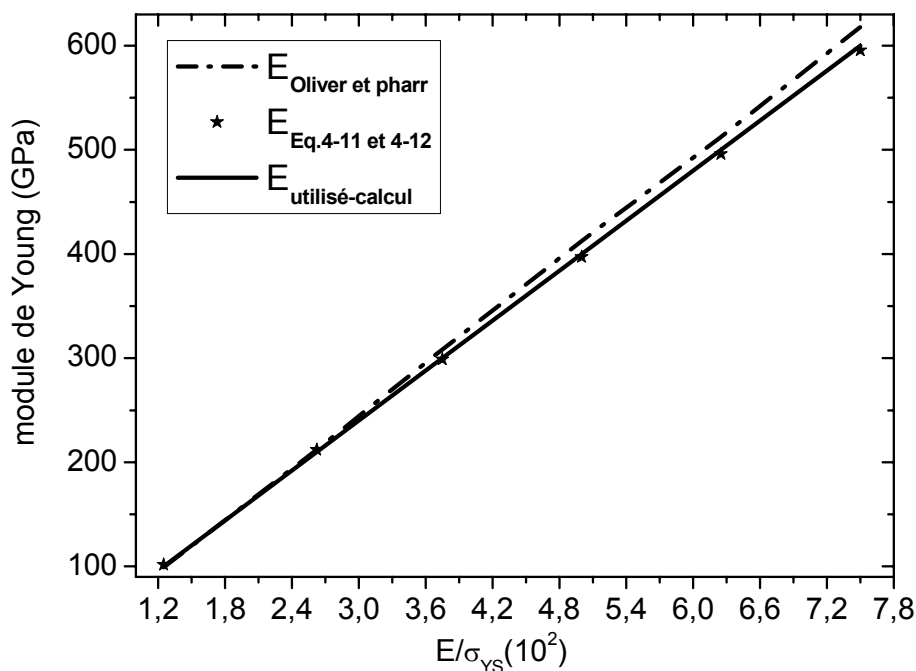


Figure 4-7 : Evolution du module élastique du substrat nus (élastoplastique) avec  $E_s / \sigma_{YS}$  : comparaison entre la technique Oliver et Pharr et celle donnée par les équations 4-11 et 4-12

En résumé, quel que soit le matériau massif (de caractéristique  $E_s / \sigma_{YS}$  donné) et le rayon de la pointe sphérique utilisés dans nos études, les équations 4-11 et 4-12 permettent de mesurer le module de Young avec une erreur inférieure à 1%.

#### 4.4.2. Cas des systèmes film-substrat

##### 4.4.2.1. Indentation élastique des systèmes film-substrat

Des indentations élastiques des systèmes film-substrat ( $E_F / E_S$  allant de 0,5 à 2), avec une pointe sphérique de 50  $\mu\text{m}$  de rayon, sont simulées. L'épaisseur du film est 3  $\mu\text{m}$ , soit  $R/t_F = 16,66$ . Le carré de la charge appliquée ( $F^2$ ) est une fonction linéaire de  $(R\delta)^3$  (figure 4-8). Cela donne la possibilité de mesurer aisément la pente de cette fonction et de

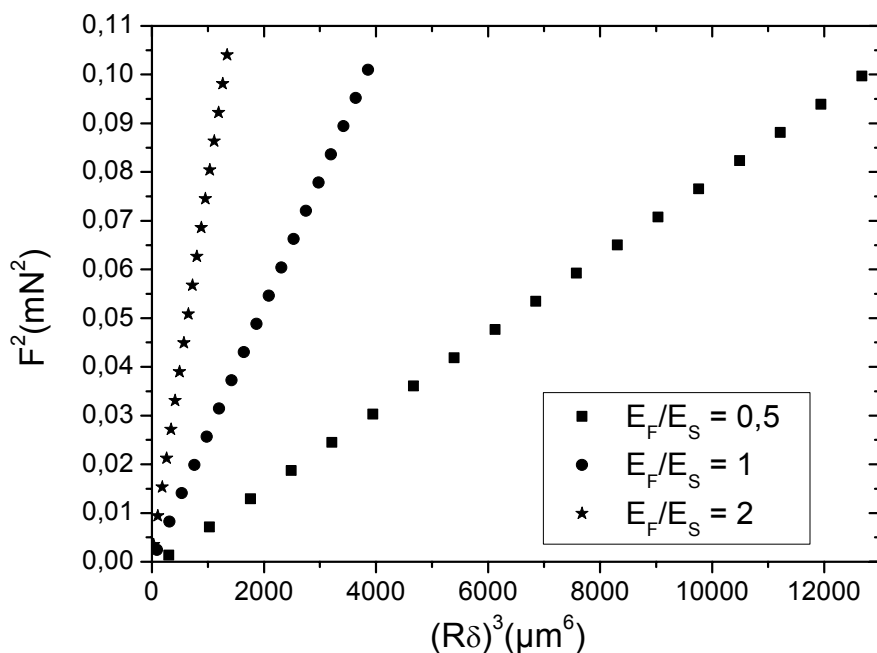


Figure 4-8 : Système film-substrat (film et substrat tous élastiques) : Représentation du carré de la charge appliquée  $F$  en fonction de  $(R\delta)^3$ .

déterminer par la suite le module élastique correspondant à partir de l'équation 4-12. Les caractéristiques du film et du substrat injectées dans la simulation aussi bien que les valeurs du module de Young issues des équations 4-11 et 4-12 sont présentées dans le tableau 4-2. Le module de Young qui résulte de l'application des expressions 4-11 et 4-12 aux données d'indentation élastique du système film-substrat, correspond au module élastique du film. Cela avec une erreur inférieure ou égale 0,95% (tableau 4-2). Ainsi la formulation (Eq. 4-11 et 4-12) permet de mesurer les caractéristiques du film à partir des données d'indentation sphérique et élastique d'un système film-substrat.

	0,5	1	2
$E_S$ (utilisé) (GPa)	210	210	210
$E_F$ (utilisé) (GPa)	105	210	420
$E$ (Eq. 4-11 et 4-12) (GPa)	106,001	209,579	418,837

Tableau 4-2 : Système film-substrat (film et substrat tous élastique) : module de Young obtenu de l'application des équations 4-11 et 4-12.

#### 4.4.2.2. Indentation élastoplastique du substrat revêtu

Les études de l'indentation sphérique élastoplastique des systèmes film-substrat sont faites en quatre étapes :

1. La charge maximale appliquée variable, le rapport  $E_S/\sigma_{YS}$ , le rayon de la pointe  $R$  et l'épaisseur du film  $t_F$  sont tous constants.
2. Le rapport  $R/t_F$  variable, les rapports  $E_S/\sigma_{YS}$  et  $t_F/a$  (épaisseur résolue du film) sont tous constants.
3. L'épaisseur du film  $t_F$  variable, le rapport  $E_S/\sigma_{YS}$ , le rayon de la pointe  $R$  et la charge appliquée  $F$  sont tous constants.
4. Le rapport  $E_S/\sigma_{YS}$  variable, le rapport  $R/t_F$  et la charge maximale appliquée  $F$  constants.

◆ *Cas 1 : Charge maximale appliquée variable, rapport  $E_S/\sigma_{YS}$ , rayon de la pointe  $R$  et épaisseur du film  $t_F$  constants*

L'indentation sphérique élastoplastique du système film-substrat est étudiée pour différents niveaux de la charge maximale appliquée (Cf. Chp.3 partie 3.2). Les courbes charge-décharge d'indentation sphérique élastoplastique de l'ensemble film-substrat ( $E_F/E_S = 2$ ,  $t_F = 3 \mu\text{m}$  et  $R = 50 \mu\text{m}$ ) en fonction de la charge appliquée  $F$  sont illustrées dans la figure 3-1 A (Cf. chapitre 3 page 68). Ces courbes sont analysées avec la méthode classique de Oliver et Pharr et celle basée sur les équations 4-11 et 4-12. A chaque charge maximale appliquée  $F$ , les équations de Oliver et Pharr sont appliquées à la courbe de décharge supposée purement élastique. L'équation 4-11 quant à elle, est utilisée pour modéliser la courbe de charge correspondant à chaque chargement maximal appliqué  $F$ . Cela permet également de déterminer la pente dans la partie linéaire de la fonction  $F^2 ((R\delta)^3)$  et par la suite déduire le module de Young à partir de l'équation 4-12.

L'évolution du module de Young résultant de ces méthodes, en fonction de la charge appliquée  $F$ , est donnée dans la figure 4-9. Comme attendu, on note une décroissance du module de Young (Oliver et Pharr). Cette variation est bien expliquée dans la partie 3-3 du chapitre 3 (page 100). Les valeurs de  $E$  tendent, aux faibles et fortes charges appliquées, respectivement vers les modules élastiques du film et du substrat. Récemment un résultat similaire, obtenu avec la méthode de Oliver et Pharr, est rapporté dans une étude expérimentale d'indentation sphérique d'un film nanocomposite de nc-TiN/a-BN (de  $5 \mu\text{m}$  d'épaisseur) déposé sur un acier [34]. Nous rappelons que la profondeur d'indentation est

inférieur à 10% de l'épaisseur du film jusqu'à l'application d'une charge de 300 mN (soit  $F/F^* = 14,3$ ) (figure 3-1 A). En effet, à ce niveau de chargement, le module de Young composite (du système film-substrat) issu de la méthode classique d'indentation est différent de celui du film et du substrat respectivement de 208,984 GPa et 1,02 GPa. L'utilisation des équations 4-11 et 4-12 donne une valeur moyenne de module de Young égale à  $(415,371 \pm 0,104)$  GPa. Soient les écarts de 1,10% et 97,79% du module d'élasticité respectivement du film et du substrat. La valeur trouvée correspond donc au module de Young du film.

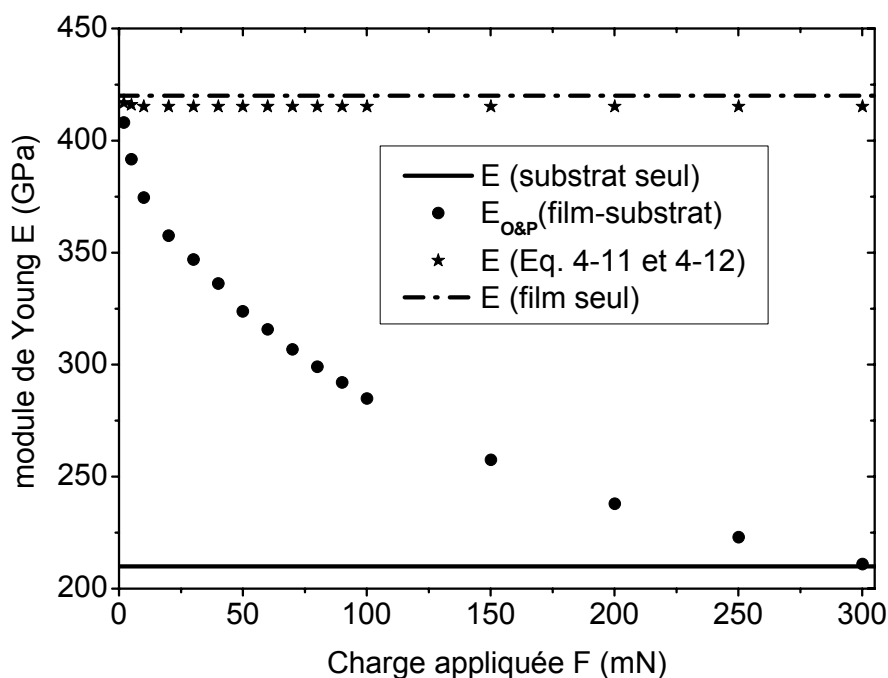


Figure 4-9 : Evolution, en fonction de la charge appliquée  $F$ , du module de Young résultants de l'indentation sphérique d'un système film-substrat ( $E_F/E_S = 2$ ,  $t_F = 3 \mu\text{m}$  et  $R = 50 \mu\text{m}$ ).

La variation, en fonction de la charge appliquée, de la pression moyenne (ou dureté) de l'ensemble film-substrat est illustrée dans la figure 4-10. La dureté calculée par la méthode de Oliver Pharr croît avec la charge appliquée, atteint un maximum (ou plateau) et puis décroît. La croissance, la saturation et la chute de la dureté sont analysées dans la partie 3-3 du Chapitre 3 (page 100). Ce type de comportement a été aussi observé dans une étude expérimentale [34] où est utilisée la méthode d'Oliver et Pharr. Aux faibles charges appliquées, la dureté n'est autre que la pression moyenne. La valeur maximale est attribuée à la dureté du film [34]. Dans notre cas, la chute de la dureté est survenue avant la saturation de

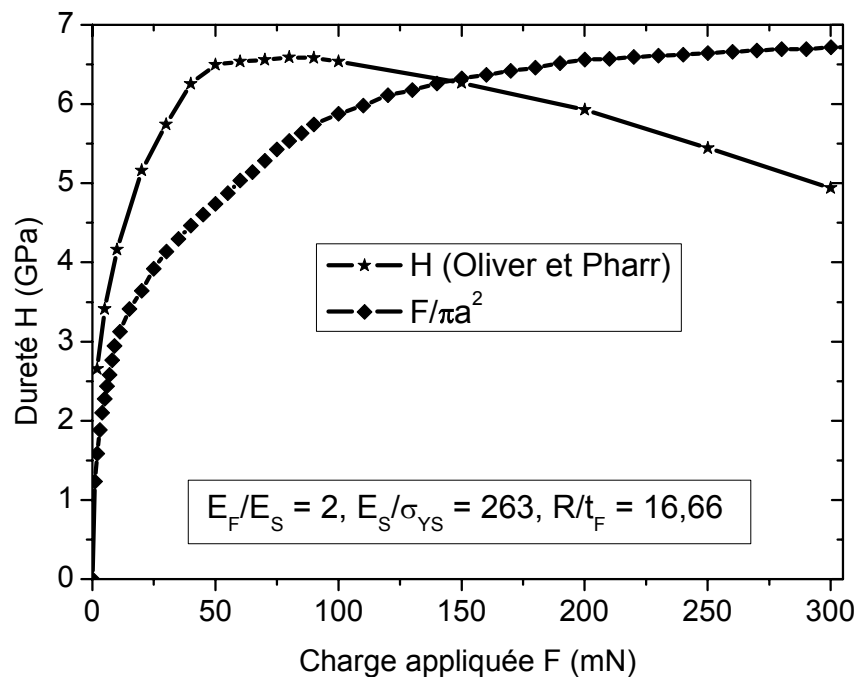


Figure 4-10 : Evolution, en fonction de la charge appliquée  $F$ , de la dureté résultant de l'indentation sphérique d'un système film-substrat ( $E_F/E_S = 2$ ,  $t_F = 3 \mu\text{m}$  et  $R = 50 \mu\text{m}$ ).

la pression de contact (Cf. Chp.3 page 100). Phénomène que nous avons attribué à la flexion du film qui lui aussi est accentuée par le développement du volume plastique dans le substrat (Cf. Chp.3 page 100). En effet la dureté obtenue avec notre proposition (Eq. 4-13) présente deux types de variation : croissance et saturation dans toute la plage de la charge appliquée. Notons que dans l'équation 4-13, l'aire de contact  $A$  ( $\pi R\delta$ ) est calculée directement à la charge maximale appliquée. Par contre, l'aire de contact (Oliver et Pharr) est déterminée à partir de la pente (calculée à la charge maximale) d'une portion de la courbe de décharge (90%). Les valeurs maximales de la dureté (Oliver et Pharr) et de la pression moyenne  $F/\pi R\delta$  (équation 4-13) sont quasiment égales. L'intérêt du calcul de la pression moyenne (donc de la dureté) à partir de l'expression  $F/\pi R\delta$  est d'éviter toute contribution liée à la relaxation plastique pouvant se manifester lors de la décharge.

◆ Cas 2 : Le rapport  $R/t_F$  variable, les rapports  $E_S/\sigma_{YS}$  et  $t_F/a$  (épaisseur résolue du film) sont tous constants

La réponse en indentation sphérique d'un système film-substrat ( $E_F/E_S = 2$ ,  $t_F = 3 \mu\text{m}$ ) est étudiée en fonction du rapport  $R/t_F$ . Comme dans la précédente partie, les courbes charge-décharge obtenues numériquement (pour deux épaisseurs résolues du film différentes), sont



analysées avec la technique classique (Chp.1 page 24) et celle basée sur les équations 4-11 et 4-12. Les résultats obtenus sont représentés dans la figure 4-11. A une épaisseur résolue  $t_F/a$  du film relativement grande, le module élastique du système film-substrat, issu de technique classique d'analyse d'indentation (Oliver et Pharr), décroît avec le rapport  $R/t_F$  (figure 4-11). Par contre, à une petite épaisseur résolue du film  $t_F/a$ , il est non seulement proche de celui du substrat, mais aussi présente trois types de variations avec le rapport  $R/t_F$ . Cela, dans respectivement trois domaines observés dans les distributions de contraintes résiduelles (Chp.3 figure 3-22 page 95) et du profil résiduel de la surface (Chp.3 figure 3-14 page 85). Cependant, l'application des équations 4-11 et 4-12, dans la partie linéaire de la fonction  $F^2((R\delta)^3)$ , donne une valeur moyenne du module élastique égale à  $(415,097 \pm 0,469)$  GPa dans toute la gamme du  $R/t_F$  utilisée. Soient les écarts de 1,17% et 97,66% du module de Young respectivement du film et du substrat considéré dans nos calculs numériques.

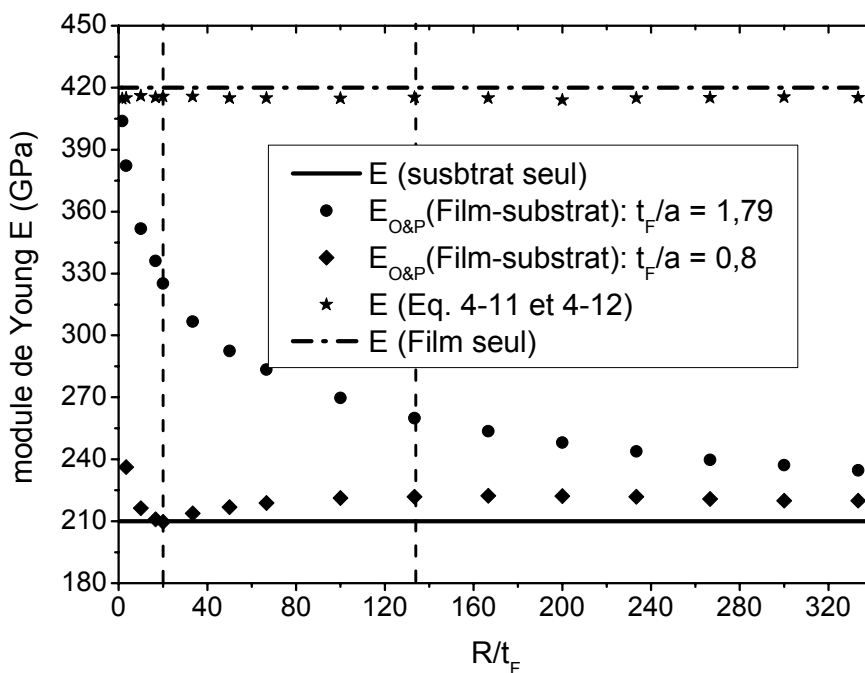


Figure 4-11 : Evolution, en fonction du rapport  $R/t_F$ , du module de Young résultant de l'indentation sphérique d'un système film-substrat ( $E_F/E_S = 2$ ,  $t_F = 3 \mu\text{m}$ ).

◆ Cas 3 : *Épaisseur du film  $t_F$  variable, rapport  $E_S/\sigma_{YS}$ , rayon de la pointe  $R$  et charge appliquée  $F$  sont tous constants*

Dans cette partie, les courbes charge-décharge obtenues numériquement de l'indentation des systèmes film-substrat ( $E_F/E_S = 2$ ,  $R = 50 \mu\text{m}$ ) pour différentes épaisseurs du film  $t_F$ , sont analysées. Les résultats obtenus sont représentés dans la figure 4-12. Le module de Young résultant de la technique d'analyse classique (Oliver et Pharr), croît avec l'augmentation de l'épaisseur du film  $t_F$  (diminution de  $R/t_F$ ) pour les cas étudiés ( $t_F$  allant de 2 à 15  $\mu\text{m}$  donc  $R/t_F$  de 25 à 3,33). Aux faibles épaisseurs du film, les valeurs mesurées de  $E$  composite tendent vers le module de Young du substrat, tandis qu'elles tendent vers celui du film massif aux larges épaisseurs du film employées. Ainsi, étant donné un rayon  $R$  de pointe, plus l'épaisseur du film est grande, plus le système film-substrat se comporte comme un film « massif ». Cette variation est conforme à celle observée dans la partie précédente où, pour tout  $R/t_F < 20$ , le module de Young du composite augmente lorsque  $R/t_F$  décroît (Figure 4-11).

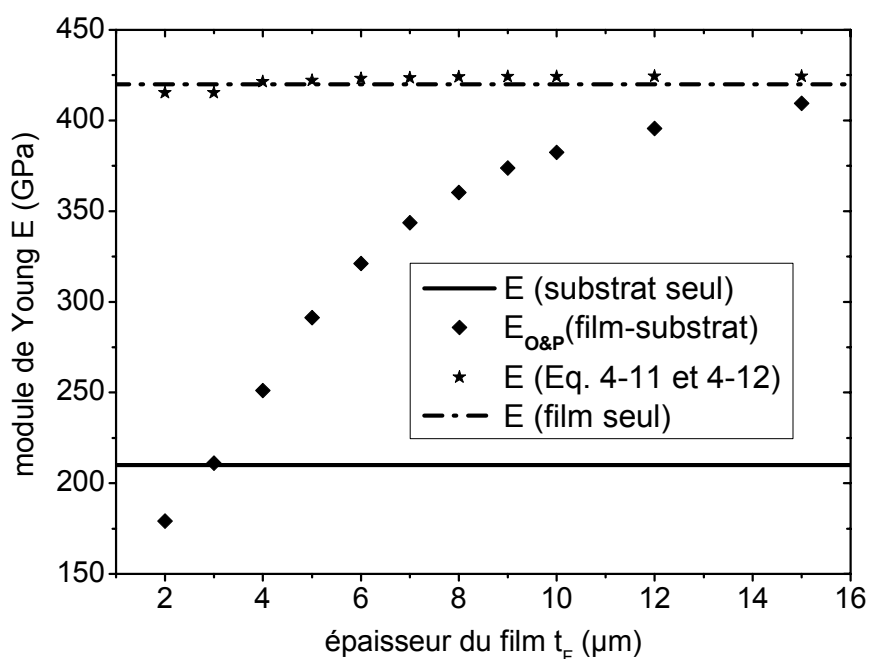


Figure 4-12 : Evolution, en fonction de l'épaisseur du film  $t_F$ , du module de Young résultants de l'indentation sphérique d'un système film-substrat ( $E_F/E_S = 2$ ,  $R = 50 \mu\text{m}$  et  $F = 300 \text{ mN}$ ).

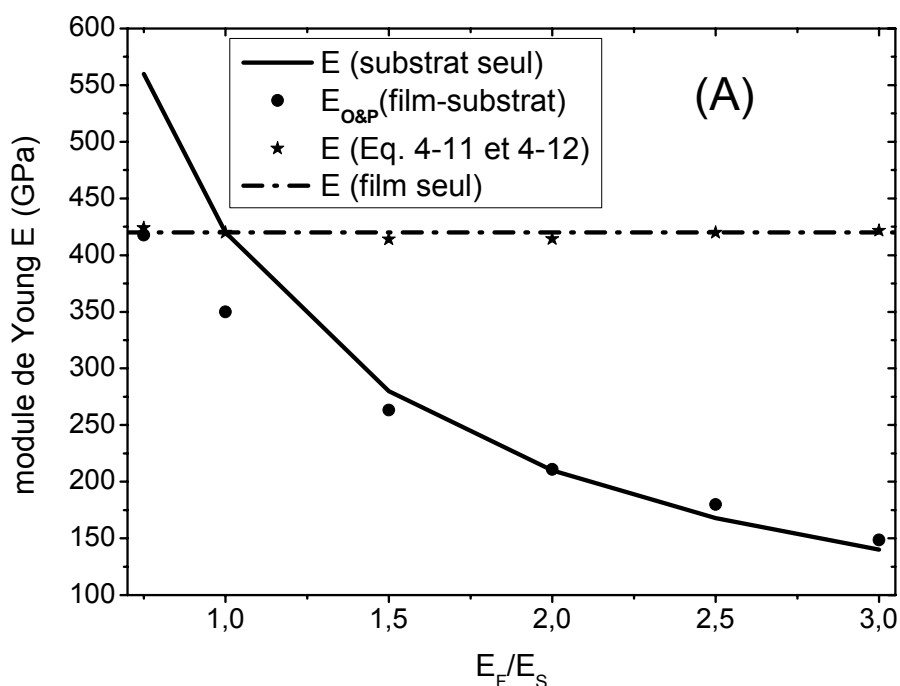
Cependant, en appliquant les équations 4-11 et 4-12 aux courbes de charge, nous avons trouvé une valeur moyenne du module de Young de l'ensemble film-substrat égale à  $(422,34457 \pm 2,46551)$ . Soient les écart de 0,55% et 101,11% du module d'élasticité

respectivement du film et du substrat considéré dans nos investigations numériques. Une fois encore, les résultats obtenus sont relatifs aux propriétés du film (figure 4-12).

◆ Cas 4 : Le rapport  $E_S/\sigma_{YS}$  variable, le rapport  $R/t_F$  et la charge maximale appliquée  $F$  constants

Les courbes charge-décharge (numériques) issues de l'indentation sphériques des systèmes film-substrat ( $E_F/E_S$  allant de 0,5 à 3,  $t_F = 3 \mu\text{m}$ ,  $R = 50 \mu\text{m}$  et  $F/F^* = 14,3$ ) sont analysées dans cette partie. Celles-ci concernent respectivement un module de Young constant du film (pour celui du substrat variable) et du substrat constant (pour celui du film variable). Ces courbes sont analysées par la technique de Oliver et Pharr et celle basée sur les équations 4-11 et 4-12. Les résultats obtenus sont regroupés dans la figure 4-13. Lorsque le module d'élasticité du film est maintenu constant ( $E_F = 420 \text{ GPa}$ ) et le rapport  $E_F/E_S$  variant de 0,5 à 3, l'application des équations 4-11 et 4-12 produit une valeur moyenne du module composite égale à  $(419,844 \pm 1,695) \text{ GPa}$  (figure 4-13.A). Cette valeur est différente d'environ 0,04% de la valeur exacte utilisée du module de Young du film.

Maintenant, lorsqu'on maintient constant le module élastique du substrat et le rapport  $E_F/E_S$  variant de 0,5 à 3, l'application des équations 4-11 et 4-12 produit le module élastique du film avec un erreur inférieure ou égale à 1,75% (figure 4-13.B). Dans les deux cas, la méthode fondée sur les expressions 4-11 et 4-12, produit les caractéristiques du film.



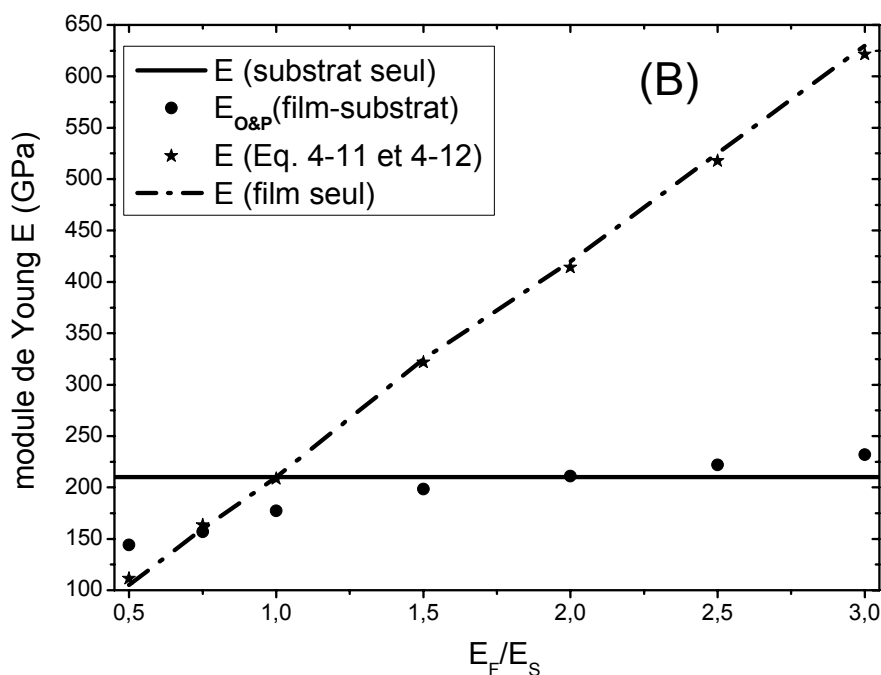


Figure 4-13 : Evolution, en fonction du rapport  $E_F/E_S$ , du module de Young résultants de l'indentation sphérique d'un système film-substrat ( $R = 50 \mu m$  et  $t_F = 3 \mu m$ ) : A) au module de Young du film utilisé constant et B) à celui du substrat constant.

La méthode classique, quant à elle, donne des valeurs composites du système film-substrat. En effet, à  $E_F$  constant (420 GPa), plus le substrat est rigide (c'est-à-dire  $E_F/E_S$  petit), davantage le module élastique composite (Oliver et Pharr) tend vers celui du film (figure 4-13 A). Par contre, à  $E_S$  constant, le module de Young du système film-substrat (Oliver et Pharr) tend vers celui du substrat pour tous les rapports  $E_F/E_S$  compris entre 0,5 à 3 (figure 4-13 B).

En résumé des quatre parties précédentes, quels que soient le rayon de la pointe, l'épaisseur du film et le rapport  $E_F/E_S$  utilisés, les équations 4-11 et 4-12 permettent de mesurer le module du film avec une erreur de moins de 2%. En effet, la méthode classique permet, quant à elle, d'identifier les différents domaines de contribution du film ou du substrat selon les paramètres utilisés, sans pour autant mesurer précisément les caractéristiques de l'un ou de l'autre.

## 4.5. Validation expérimentale

La validation expérimentale consiste à réaliser des tests d'indentation instrumentée des matériaux massifs et revêtus et par la suite appliquer les équations 4-11 et 4-12 afin de mesurer leurs modules de Young. Divers matériaux massifs et revêtus sont ainsi considérés.

### 4.5.1. Dispositif expérimental de la nanoindentation

Le dispositif expérimental de nanoindentation utilisé est le NHT (Nano Hardness Tester) de CSM Instrument. Son appareillage et son fonctionnement sont décrits dans le chapitre 1 (page 19). L'ensemble du bâti est posé sur une table anti-vibratoire qui permet d'amortir efficacement les vibrations extérieures (figure 4-14). Le dispositif est aussi muni d'une table motorisée qui permet de déplacer l'échantillon sous le microscope optique ou sous

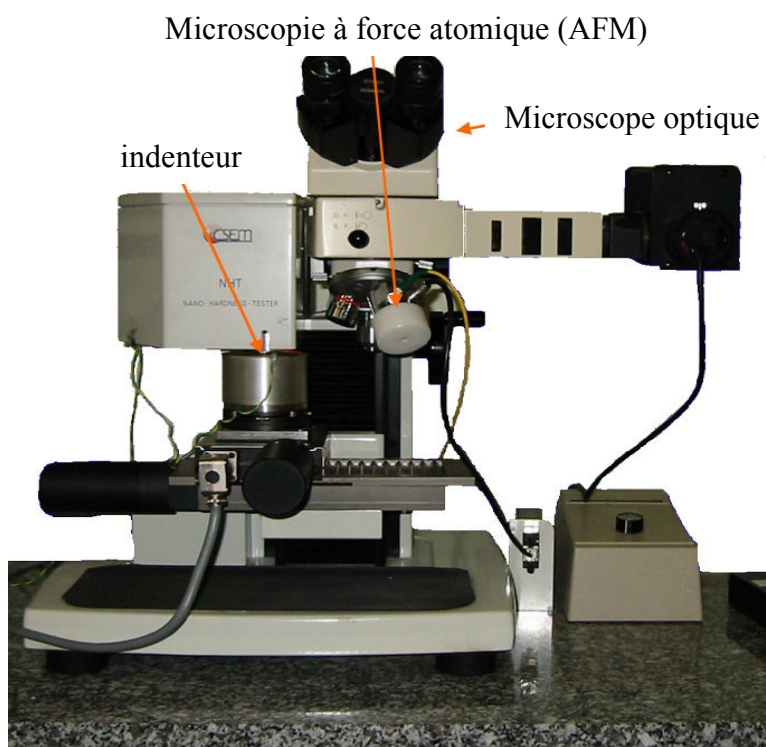


Figure 4-14 : dispositif de la nanoindentation.

l'indenteur. Muni de deux objectifs permettant deux agrandissements  $\times 50$  et  $\times 1000$ , le microscope optique permet d'imager la zone à indenter de manière à la choisir la plus homogène possible. Le dispositif est aussi relié à un ordinateur qui permet l'acquisition des paramètres d'indentation. Ainsi au cours de l'indentation d'un matériau, la charge appliquée  $F$  et la profondeur d'indentation  $h$  correspondante sont enregistrées en temps réel. Ces

paramètres sont accessibles à la fin de l'indentation. En effet, les techniques d'indentation instrumentée visent à déterminer les propriétés mécaniques des matériaux ( $E$  et  $H$ ) à partir de ces deux paramètres mesurables ( $F$  et  $h$ ).

#### 4.5.2. Les échantillons (matériaux massifs et revêtus) étudiés

##### 4.5.2.1. Matériaux massifs (substrats nus)

Le verre de silice, un matériau isotrope bien connu est utilisé afin de s'assurer du bon fonctionnement du NHT. Les matériaux massifs comme les aciers inoxydables AISI304L, AISI316L, AISI430 et l'acier rapide HSS652 sont étudiés. Le choix des aciers inoxydables se justifie par leur propriété paramagnétique [80] et leur bonne tenue à la corrosion [81]. Ces matériaux ne s'oxydent pas (ou peu) dans les conditions normales de température ambiante. L'acier rapide HSS652 est quant à lui un bon candidat pour la caractérisation mécanique du fait de sa dureté élevée. Tous ces échantillons ont été polis mécaniquement par du papier abrasif jusqu'à la granulométrie 1200  $\mu\text{m}$  puis par un feutre diamanté jusqu'à la granulométrie de 3  $\mu\text{m}$ . les valeurs théoriques du module de Young et de la dureté de ces quatre ces matériaux sont regroupés dans le tableau 4-3 suivant.

Matériaux	Module de Young $E$ (GPa)	Dureté $H$ (GPa)
Silice	72	11 à 12
AISI 304L	193 à 203	2,5 à 3
AISI 316L	193	1,8 à 2
AISI 430	230 à 235	2 à 4
HSS 652	225 à 228	8.4 à 9

Tableau 4-3 : Valeurs théoriques du module de Young  $E$  et de la dureté  $H$  des matériaux massifs (silice, AISI 304L, AISI 316L, AISI 430 et HSS 652).

##### 4.5.2.2. Matériaux revêtus (système film-substrat)

Les échantillons étudiés ont été obtenus par la technique de dépôt PVD (particulièrement la pulvérisation cathodique et magnétron). D'un côté le film de TiN est déposé sur l'acier inoxydable AISI430 (TiN/AISI430) et sur l'acier rapide HSS652 (TiN/HSS652) ; et d'autre côté le film de  $\text{TiO}_2$  est déposé sur l'acier rapide HSSI652 ( $\text{TiO}_2$ /HSS652). La technique de dépôt PVD est bien maîtrisée dans le laboratoire LSGS. Ainsi, trois types d'échantillons de TiN/AISI430 sont réalisés avec trois épaisseurs de film différentes ( $t_F = 1 ; 2$  et  $3 \mu\text{m}$ ). Trois

échantillons de TiN/HSS652 d'épaisseur différente ( $t_F = 1,3 ; 2$  et  $3 \mu\text{m}$ ) sont aussi élaborés. Enfin, trois films de  $\text{TiO}_2$  (de même épaisseur) sont déposés sur l'acier rapide (HSS652) qui a subi trois types de traitement de surface avant le dépôt.

### 4.5.3. Application aux substrats massifs

Dans cette partie, la méthode de Oliver et Pharr [16] (Cf. chapitre 1 page 24) et celle que nous avons établie (Eq. 4-11 et 4-12) sont utilisées pour analyser les données expérimentales issues de l'indentation sphérique des matériaux massifs. Ainsi, les matériaux massifs (nus) énumérés dans la partie 4-5-2-1 sont soumis à des chargements normaux (essais d'indentation instrumentée) par le biais des pointes sphériques.

◆ D'abord, le verre de silice, qui est un matériau amorphe, est étudié. Ce dernier est soumis à des charges normales maximales variant de 5 à 200 mN par l'intermédiaire de deux pointes sphériques des rayons respectifs 5 et 50  $\mu\text{m}$ . La figure 4-15 donne la représentation du carré de la charge appliquée ( $F^2$ ) en fonction de  $(R\delta)^3$  (Eq. 4-11).

Premièrement, pour chaque charge maximale appliquée, nous avons adoptée ce type de représentation (Eq. 4-11) et calculé la pente dans la partie linéaire (de la charge). Ensuite l'équation 4-12 est utilisée pour extraire le module de Young. Enfin, la détermination du module élastique est aussi réalisée avec la méthode de Oliver et Pharr. Les résultats obtenus sont illustrés dans la figure 4-16. Les valeurs du module de Young  $E$  du verre de silice issus de la méthode de Oliver et Pharr sont égales à  $(68,060 \pm 1,005)$  GPa et  $(70,23944 \pm 0,09676)$  GPa respectivement pour les pointes de 5 et 50  $\mu\text{m}$  de rayon (figure 4-16). Celles issues de notre formulation (équations 4-11 et 4-12) sont égales à  $(72,164 \pm 0,418)$  GPa et  $(72,05987 \pm 0,0871)$  GPa respectivement pour  $R = 5$  et 50  $\mu\text{m}$ . Ces dernières sont quasiment égales à la valeur donnée par le fabricant HERAEUS ( $E = 72$  GPa) (Cf. thèse de Soro page 91 [82]). Elles sont aussi proches des différentes valeurs du module élastique du verre de la silice qui ont été récemment reportées dans la littérature parmi les quelles on peut citer quelques exemples :  $73,8 \pm 1,89$  GPa, 72 GPa [84 85 86] et 72,9 GPa [87].

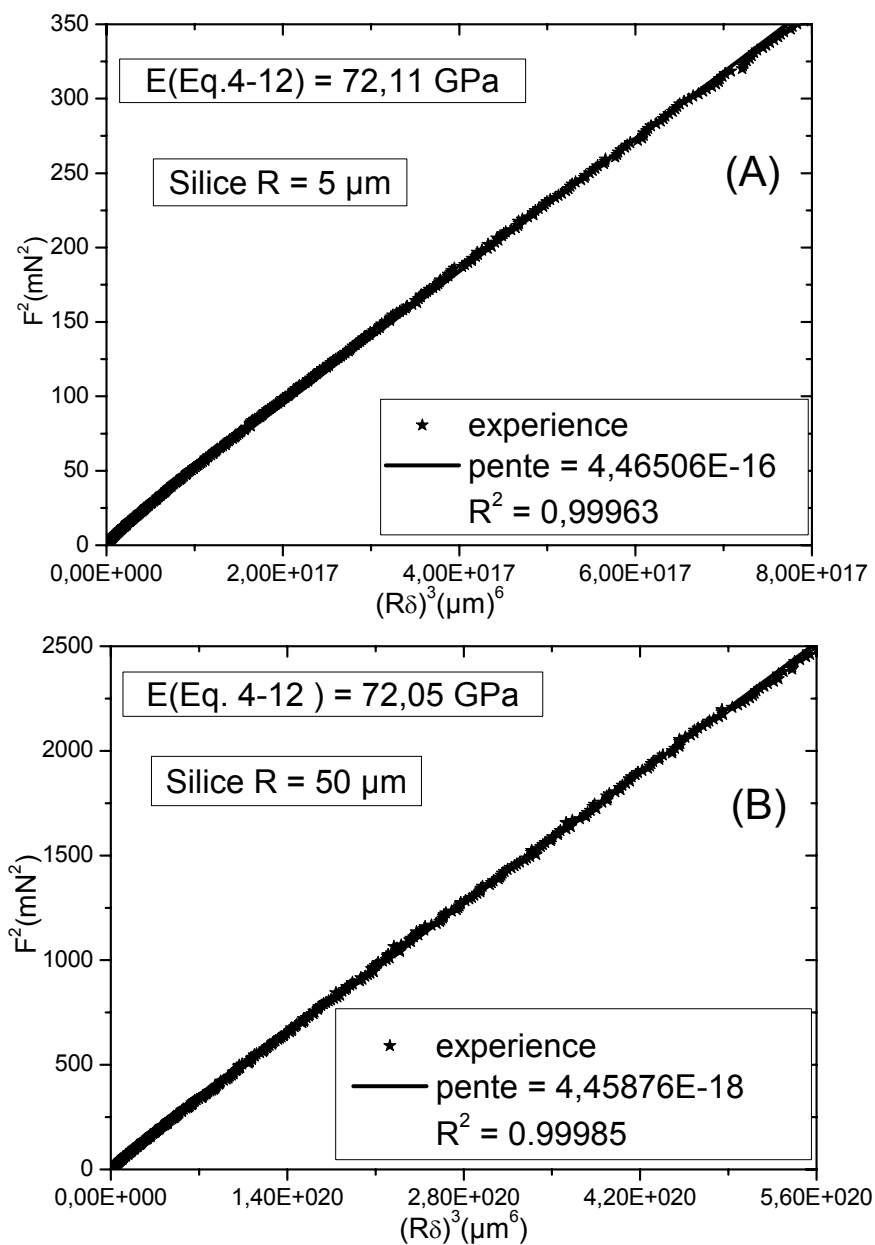


Figure 4-15 : Représentation du carré de la charge appliquée ( $F^2$ ) en fonction du produit  $R\delta$  à la puissance 3 ( $(R\delta)^3$ ) (Cf. Eq. 4-11) : (A) pour  $R = 5 \mu\text{m}$  et (B) pour  $R = 50 \mu\text{m}$ .



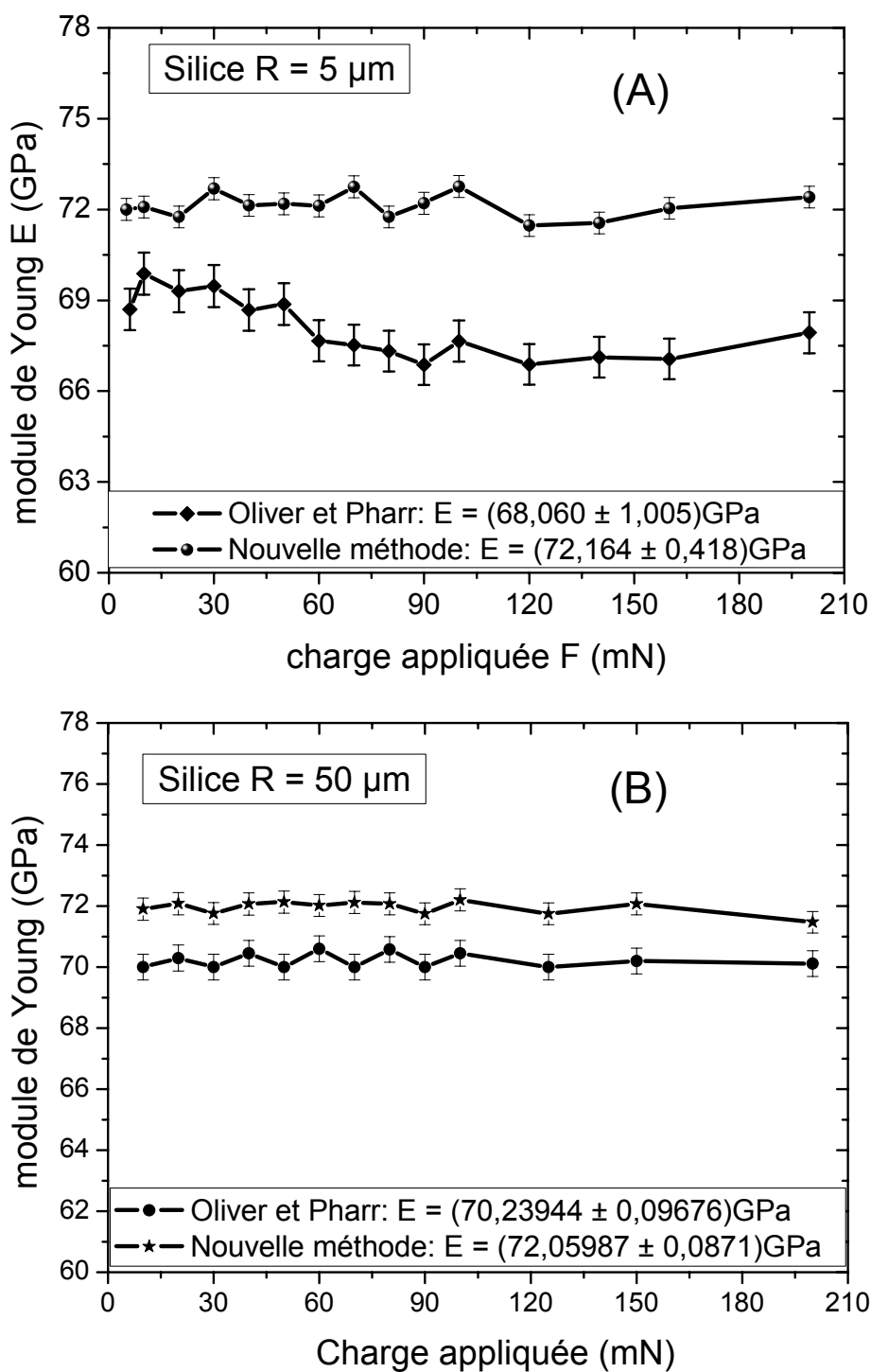


Figure 4-16 : module du Young du verre de la silice : comparaison entre la méthode classique de Oliver et Pharr et la technique basée sur les équations 4-11 et 4-12 : (A) pour  $R = 5 \mu\text{m}$  et (B) pour  $R = 50 \mu\text{m}$

◆ Afin d'élargir l'application de la formulation basée sur les équations 4-11 et 4-12, les aciers rapide (HSS652) et inoxydables (AISI304L, AISI316L et AISI430) (Cf. 4.5.2.1) sont aussi étudiés. Ainsi, chacun de ces matériaux est soumis à des indentations à l'aide d'une

pointe sphérique 5 et 50  $\mu\text{m}$  de rayon. Durant les tests d'indentation réalisés, la charge maximale appliquée  $F$  (pour un cycle charge-décharge) varie de 5 à 300 mN. Pour chaque charge maximale une douzaine d'indentation sont effectuées. Les propriétés mécaniques (module de Young et dureté) sont d'abord déterminées avec la méthode de Oliver et Pharr (Cf. chp.1 page 24) [16]. Les résultats obtenus (avec une pointe de 5 et 50  $\mu\text{m}$  de rayon) sont illustrés dans la figure 4-17.

◆ Les modules de Young de tous les matériaux massifs sont influencés par la charge maximale appliquée  $F$  (donc par la profondeur d'indentation  $h$ ). En effet, excepté celui du AISI430, ils croissent rapidement puis lentement respectivement aux faibles et aux fortes charges appliquées (La figure 4-17 A et C). Lorsque la charge appliquée varie de 5 à 300 mN, le module de Young de l'acier rapide (HSS652) croît de 140,683 à 247,182 GPa et de 131,668 à 305,933 GPa pour respectivement  $R = 5$  et 50  $\mu\text{m}$  (tableau 4-4). Dans la même plage de charge appliquée ( $F$  allant de 5 à 300 mN),  $E$  de AISI430 varie de 194,786 à 292,712 GPa et de 137,756 à 333,318 GPa pour respectivement  $R = 5$  et 50  $\mu\text{m}$  (tableau 4-4). De même, pour les autres matériaux testés (AISI304L et AISI316L), le module élastique reste relativement influencé par la charge appliquée (La figure 4-17 A et C). De tels comportements ont été rapportés dans des études réalisées avec des pointes sphériques [56 57 88 89]. D'après ces études, les faibles et grandes valeurs de  $E$  (obtenues respectivement aux petites et fortes charges appliquées), résultent de la contribution respectivement du « sink-in » et « du pile-up ». En effet, le fait de négliger ces phénomènes (« sink-in » ou « pile-up ») introduirait une déviation considérable dans le calcul de l'aire de contact avec la méthode de Oliver et Pharr [55]. Bolshakov et Pharr [1998] [26] ont aussi montré que, si le « pile-up » devient significatif, l'aire de contact (déduit de la méthode d'Oliver et Pharr) peut être estimée avec une incertitude de 60%. Ce qui introduit une erreur de 60% et 50% respectivement sur la dureté  $H$  et le module élastique  $E$  calculés. En plus, non seulement, le module de Young varie avec la charge appliquée, mais il croît aussi (à une charge donnée) lorsque le rayon de la pointe augmente (figure 4-17 A et C ; tableau 4-3). D'après les études de Wu-Gui [90], cette variation pourrait être liée à la nature de la surface du matériau (présence de rugosité ou pas).

◆ Les figures 4-17. B et D présentent la variation avec la charge appliquée, de la dureté  $H$  des matériaux testés (AISI304L, AISI316L, AISI430 et HSS652) avec respectivement une pointe de 5 et 50  $\mu\text{m}$  de rayon. En effet, pour  $R = 5 \mu\text{m}$ , la dureté du AISI430 décroît et croît respectivement aux faibles et fortes charges appliquées

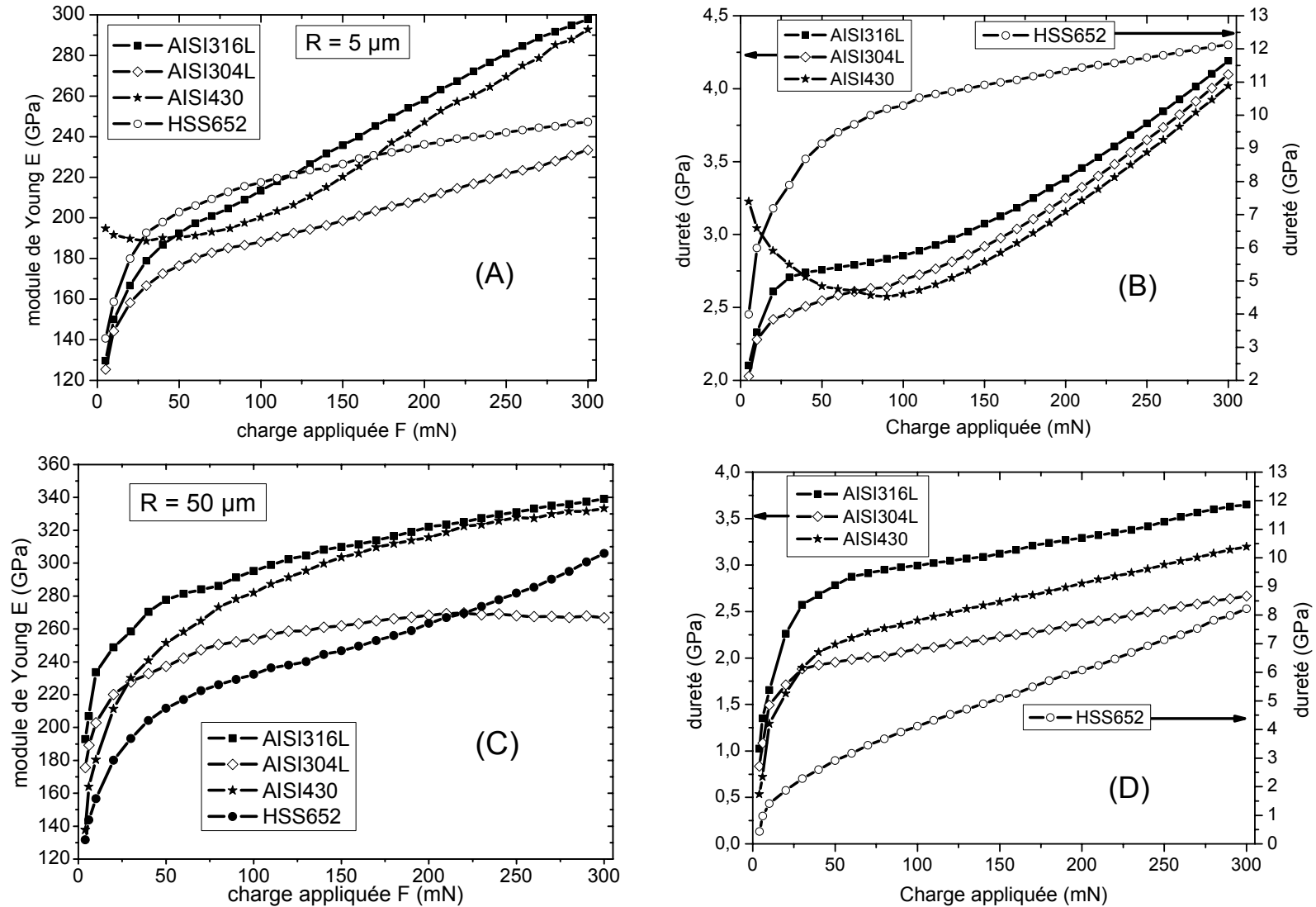


Figure 4-17 : Evolution avec la charge, du module de Young  $E$  (a et c) et de la dureté  $H$  (b et d) issus de la méthode classique d'analyse d'indentation sphérique des divers matériaux massifs.

$R$ ( $\mu\text{m}$ )	Matériaux	$F$ (mN)	$h$ ( $\mu\text{m}$ )	$E$ (GPa)	$H$ (GPa)
5	AISI 304L	5	0,0172	125,342	2,028
		100	1,438	188,212	2,689
		200	2,766	209,839	3,248
		300	3,816	233,394	4,098
	AISI 316L	5	0,017	129,648	2,103
		100	1,520	213,291	2,855
		200	2,902	258,107	3,384
		300	4,008	297,788	4,191
	AISI 430	5	0,049	194,786	2,620
		100	1,491	200,236	2,590
		200	2,879	247,126	3,155
		300	3,979	292,712	4,018
	HSS 652	5	0,092	140,683	3,987
		100	0,424	217,423	10,288
		200	0,740	236,160	11,331
		300	1,034	247,182	12,125
50	AISI 304L	5	0,023	175,627	0,835
		100	0,193	253,662	2,096
		200	0,327	268,269	2,369
		300	0,436	266,788	2,666
	AISI 316L	5	0,019	192,835	1,026
		100	0,151	295,200	2,994
		200	0,255	322,083	3,292
		300	0,338	339,055	3,651
	AISI 430	5	0,031	137,756	0,533
		100	0,173	281,859	2,402
		200	0,285	315,644	2,800
		300	0,371	333,318	3,196
	HSS 652	5	0,0350	131,668	0,482
		100	0,138	232,337	4,113
		200	0,203	263,407	6,028
		300	0,249	305,933	8,225

Tableau 4-4 : Méthode de Oliver et Pharr : module de Young  $E$  et dureté  $H$  issus de la méthode classique d'analyse d'indentation sphérique ( $R = 5$  et  $50 \mu\text{m}$ ) des divers matériaux massifs à quatre charges maximales appliquées.

(figure 4-17 B). La variation décroissante de la dureté, aux faibles charges appliquées, est d'ordinaire observée dans les études réalisées avec une pointe aigüe de type conique, berkovich ou Vickers et est qualifiée « d'effet de la taille » [91 92 93]. Par contre, la dureté

des autres matériaux testés (avec  $R = 5 \mu\text{m}$  et  $50 \mu\text{m}$ ) croît avec la charge appliquée  $F$  (donc avec la profondeur d'indentation  $h$ ) dans toute la gamme de la charge appliquée (figure 4-17. B et D). Lorsque  $F$  varie de 5 à 300 mN, la dureté de HSS652 varie de 3,987 à 12,125 GPa et de 0,482 à 8,225 respectivement pour  $R = 5$  et  $50 \mu\text{m}$  (tableau 4-4). Dans cette plage de charge appliquée, la dureté de AISI304L varie aussi de 2,028 à 4,098 GPa pour  $R = 5 \mu\text{m}$  et de 0,835 à 2,666 GPa pour  $R = 50 \mu\text{m}$  (tableau 4-4). Le même type de dépendance de la dureté à la charge appliquée, est aussi observé pour l'échantillon de AISI316L. Soient des valeurs faibles et élevées respectivement aux petites et fortes charges appliquées (figure 4-17. B et D). Un tel comportement a été observé récemment dans les travaux de Xiangyang et al. [89]. Cela pourrait être lié à la sous évaluation de l'aire de contact due à la montée du « sink-in » ou « du pile-up » [55 25]. En plus de la dépendance à la charge appliquée de la dureté, sa variation avec le rayon de la pointe est aussi observée dans des études (réalisées avec divers pointes sphériques) où l'effet du « pile-up » est corrigé [59 60 62]. Ce phénomène (dépendance avec  $R$ ) est dans ce cas qualifié par les mêmes auteurs « d'effet de taille » en indentation sphérique. Dans tous nos cas expérimentaux étudiés, la dureté varie avec la charge appliquée. Elle augmente aussi à une charge appliquée, lorsque le rayon  $R$  de la pointe utilisée diminue (figure 4-17. B et D). Cela a également été rapporté dans les travaux de Qu et al. [59].

◆ En résumé, les propriétés des matériaux massifs (module de Young et dureté), issues de la méthode d'Oliver et Pharr, dépendent de la courbure de la pointe utilisée lors de l'indentation. Certains auteurs qualifient ce phénomène « d'effet de la taille » en indentation sphérique [59 60]. D'autres le considère comme le résultat de la nature de la surface (présence ou pas de rugosité) du matériau [90]. Elles sont aussi influencées par la charge appliquée  $F$  (donc par la profondeur d'indentation  $h$ ). Cela est qualifié, en indentation sphérique, de l'effet de la montée du « sink-in » ou du « pile-up » (non pris en compte) qui fausse l'évaluation de l'aire de contact et par conséquent du module de Young et de la dureté [55 25]. Afin de palier ce genre de problème, la méthode basée sur les équations 4-11 et 4-12 est par la suite utilisée pour analyser nos données expérimentales.

◆ Pour chaque cycle charge-décharge d'indentation instrumentée (correspondant à une charge maximale appliquée  $F$ ), l'équation 4-11 est utilisée pour modéliser la phase initiale de la courbe de charge. Un exemple pour chaque matériau testé est illustré dans la figure 4-18. Dans tous les cas étudiés, l'équation 4-11 permet d'ajuster les données

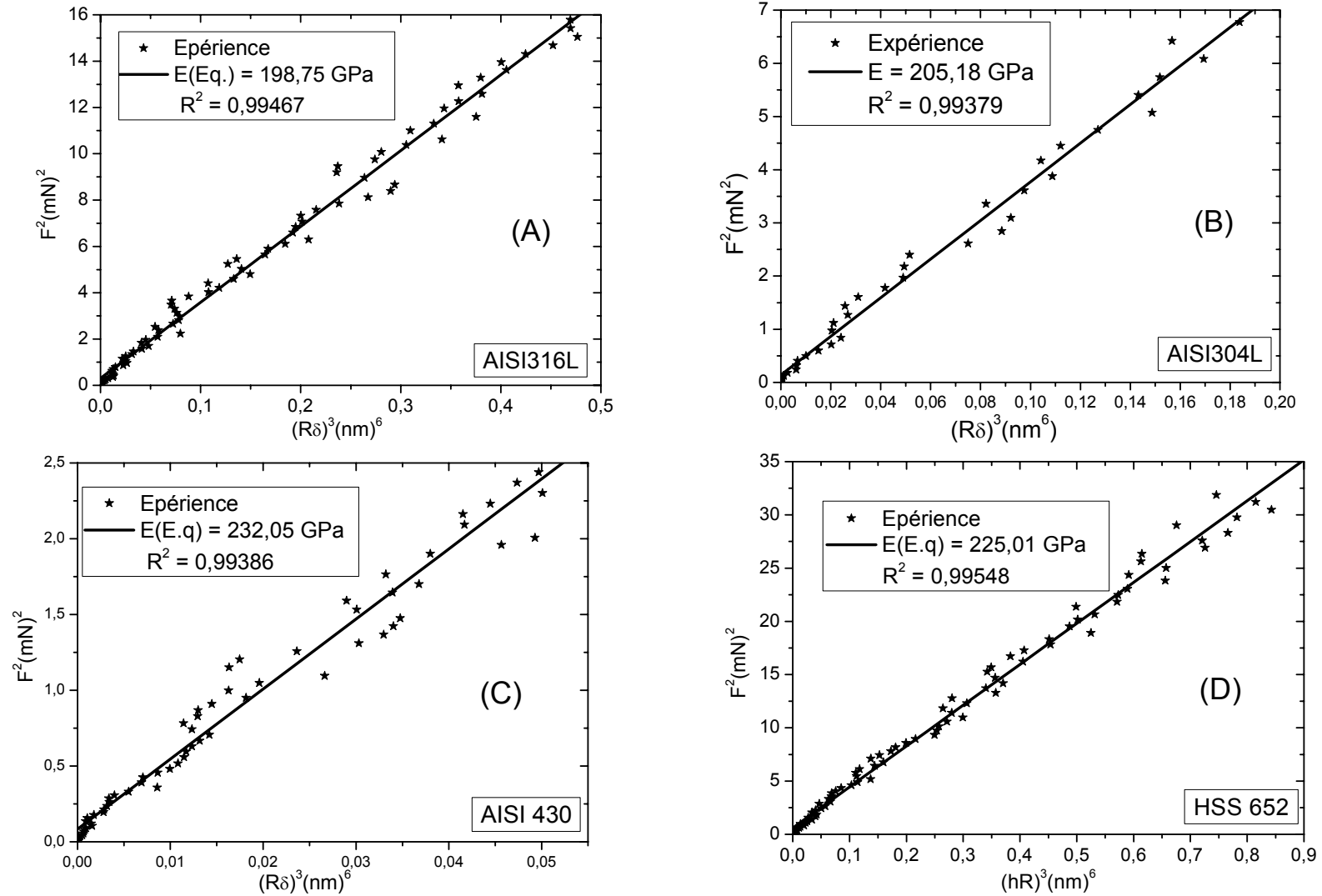


Figure 4-18 : Divers matériaux massifs : Représentation du carré de la charge appliquée ( $F^2$ ) en fonction du produit  $R\delta$  à la puissance 3 ( $(R\delta)^3$ ) (Eq. 4-11).

expérimentales avec un facteur de corrélation ( $R^2$ ) nettement supérieur à 0,99. L'injection de la pente déduite dans l'équation 4-12, permet également de déterminer le module de Young du matériau testé. Les valeurs moyennes du module de Young  $E$  issues des équations 4-11 et 4-12 sont regroupées dans le tableau 4-5 pour tous les matériaux massifs testés. Le module de Young  $E$ , déterminé à partir des équations 4-11 et 4-12, est quasiment insensible à la variation du rayon de la pointe sphérique. En effet, la valeur moyenne de  $E$  du AISI430 varie de  $232,292 \pm 0,702$  à  $232,659 \pm 0,484$  GPa pour respectivement les pointes sphériques de 5 et 50  $\mu\text{m}$  de rayon (tableau 4-5). Théoriquement AISI430 a un module de Young compris entre 230 et 235 GPa. De même, lorsque le rayon de la pointe varie de 5 à 50  $\mu\text{m}$ , le module du HSS652 (issu des équations 4-11 et 4-12) va de  $226,579 \pm 0,654$  à  $225,885 \pm 0,462$  GPa (figure 4-19 et tableau 4-5). Ces valeurs sont proches de la valeur théorique (225 à 228 GPa) (Cf. tableau 4-3). Des résultats aussi concordants avec les valeurs théoriques sont obtenus pour les autres matériaux massifs étudiés (tableaux 4-3 et 4-5 ; figure 4-19). La méthode basée sur les équations 4-11 et 4-12, reproduit donc de manière très satisfaisante les valeurs théoriques de  $E$  pour les matériaux massifs. Toutefois, on remarque que, plus le rayon  $R$  de la pointe sphérique est petit, plus la barre d'erreur est grande, sans toutefois invalider la méthode. Cela résulte probablement des incertitudes expérimentales à faibles charges pour les faibles rayons de courbure.

$R$ ( $\mu\text{m}$ )	Matériaux	$E$ (E.q 4-11 et 4-12)
50	AISI 304L	$206,383 \pm 0,733$
	AISI 316L	$199,130 \pm 0,391$
	AISI 430	$232,659 \pm 0,484$
	HSS 652	$225,885 \pm 0,462$
5	AISI 304L	$207,339 \pm 0,626$
	AISI 316L	$198,088 \pm 0,775$
	AISI 430	$232,292 \pm 0,702$
	HSS 652	$226,579 \pm 0,654$

Tableau 4-5 : Divers matériaux massifs : valeurs théoriques de  $E$  et celles issues de la nouvelle d'analyse basée sur les équations 4-11 et 4-12.

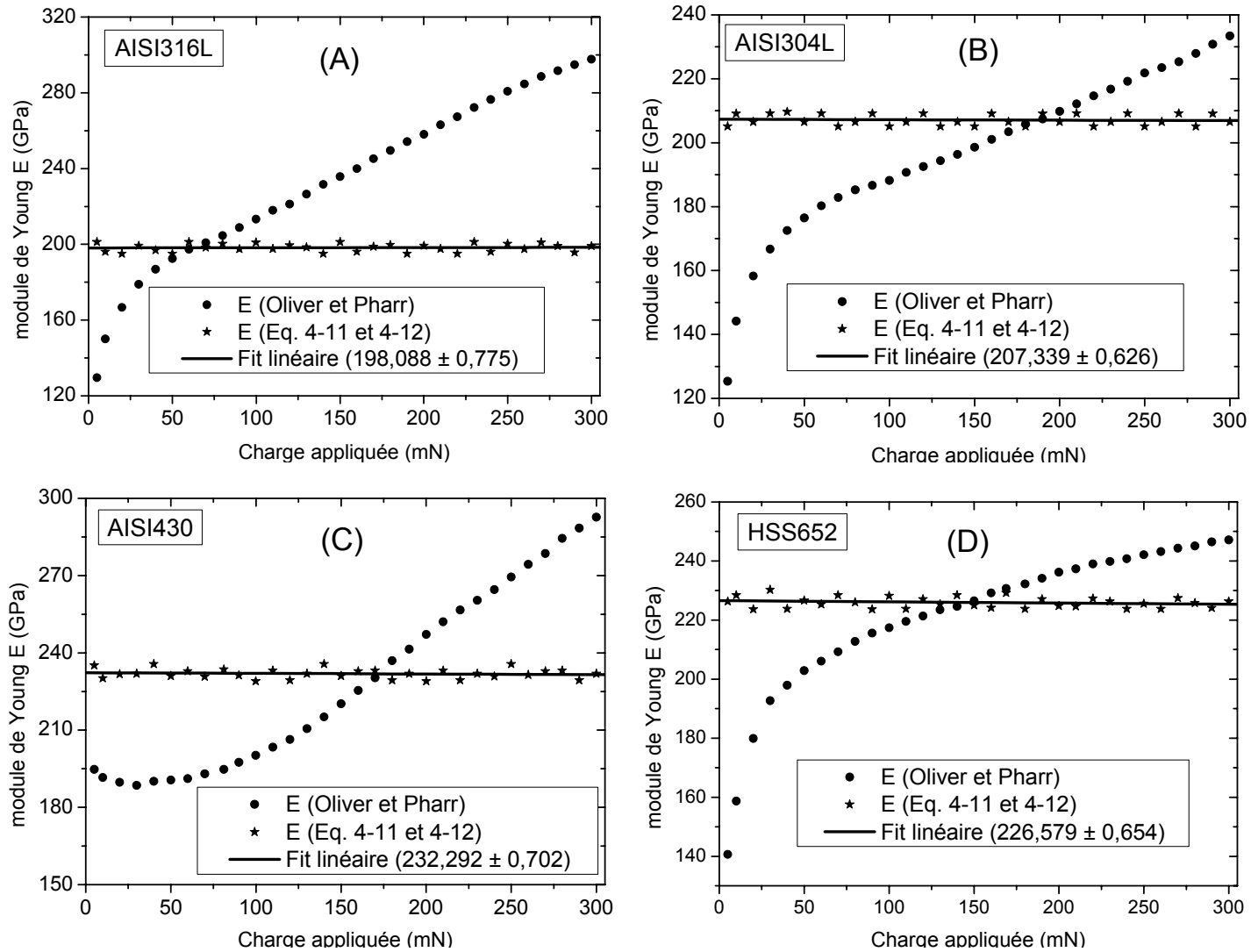


Figure 4-19 : Comparaison entre les résultats obtenus avec la méthode de Oliver et Pharr et celle basée sur les équations 4-11 et 4-12.



#### 4.5.4. Application aux substrats revêtus (système film-substrat)

◆ Dans cette partie, comme pour les matériaux massifs, la méthode de Oliver et Pharr [16] et celle que nous avons établie (Eq. 4-11 et 4-12) seront utilisées pour analyser les données issues de l'indentation sphérique de systèmes film-substrat. Pour cela, des indentations par le biais des pointes sphériques sont réalisées sur trois types de systèmes film-substrat (TiN/AISI430, TiN/HSS652 et TiO<sub>2</sub>/HSS652). Pour chaque système, il existe trois épaisseurs du film ou trois natures d'interface film-substrat différentes (Cf. Partie 4.5.2.2).

##### 4.5.4.1. Exploitation des données d'indentation instrumentée des substrats revêtus (film-substrat) : méthode de Oliver et Pharr

Les propriétés mécaniques, (module de Young  $E$  et dureté  $H$ ) du TiN/AISI430 et TiN/HSS652, issues de la méthode classique de Oliver et Pharr [16] sont respectivement représentées dans les figures 4-20 à 4-22.

###### a) Effet de la charge maximale appliquée

Les propriétés mécaniques ( $E$  et  $H$ ) dépendent, pour une pointe sphérique de rayon ( $R = 5 \mu\text{m}$ ) et une épaisseur  $t_F$  du film de TiN données, de la charge appliquée  $F$  et par conséquent de la profondeur d'indentation  $h$  (figure 4-20 ; tableau 4-6). En effet, pour trois charges maximales appliquées  $F = 5, 100$  et  $300 \text{ mN}$  ( $h = 0,0273, 0,687$  et  $2,855 \mu\text{m}$ ), le module de Young du TiN/AISI430 (pour  $t_F = 3 \mu\text{m}$ ) est respectivement de  $380,288 ; 212,887$  et  $246,820 \text{ GPa}$  (figure 4-20 A ; tableau 4-6). Dans cette plage de charge appliquée ( $F$  allant de  $5$  à  $300 \text{ mN}$ ), la dureté, quant à elle varie de  $13,115$  à  $4,750 \text{ GPa}$  (figure 4-20 B ; tableau 4-6). L'extrapolation de la réponse d'un système film-substrat aux faibles et fortes charges, est supposée représenter respectivement les propriétés mécaniques du film et du substrat [34]. D'après cette supposition, le module de Young (respectivement la dureté) du film de TiN et du substrat (AISI430) sont respectivement  $380,288 \text{ GPa}$  et  $246,820 \text{ GPa}$  (respectivement  $13,11527 \text{ GPa}$  et  $4,750 \text{ GPa}$ ). Cependant, dans la littérature, les valeurs de  $E$  du TiN varient de  $430$  à  $500 \text{ GPa}$  [86 94 34] et de  $H$  du TiN de  $20$  à  $30 \text{ GPa}$  [35 36 95 96]. Le module de Young de AISI430 massif varie de  $230$  à  $235 \text{ GPa}$  et sa dureté de  $2$  à  $4 \text{ GPa}$  (Cf. tableau 4-3).

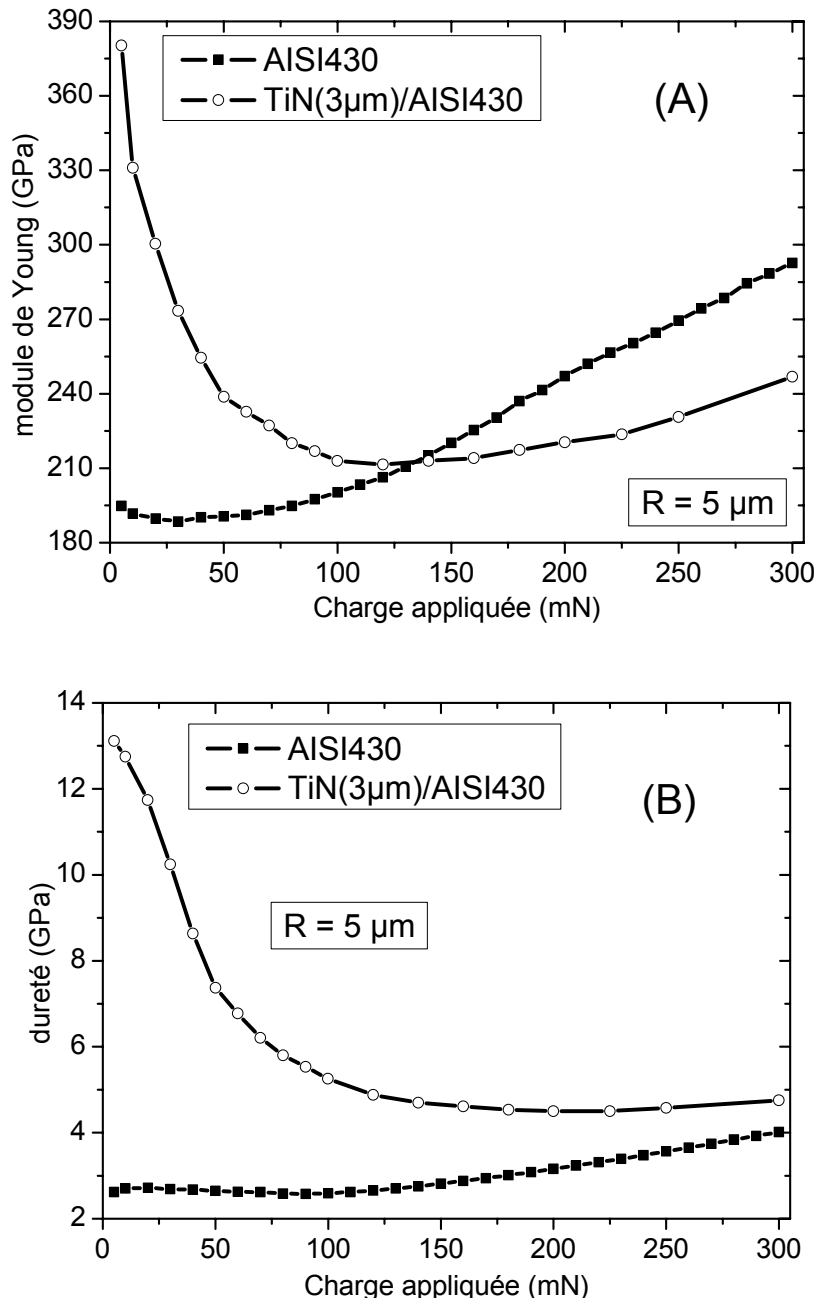


Figure 4-20 : Evolution avec la charge appliquée des propriétés composites (TiN/AISI430 avec  $t_F = 3 \mu\text{m}$ ) issus de la méthode Oliver et Pharr ; (A) module élastique et (B) dureté.

#### b) Effet de l'épaisseur du film

A une charge appliquée  $F$  et un rayon d'indenteur  $R$  donnés,  $E$  et  $H$  sont aussi influencés, par l'épaisseur du TiN (figure 4-21). En effet, à une charge appliquée ( $F = 5 \text{ mN}$ ), le module d'élasticité du TiN/AISI430 varie de 231,679 à 380,288 GPa pour respectivement les épaisseurs du TiN égalent à 1 et 3  $\mu\text{m}$  (tableau 4-6). Dans ces conditions, la dureté du TiN/AISI430 varie aussi de 6,416 à 13,115 GPa (tableau 4-6). Ces valeurs (de  $E$  et  $H$ ),

largement différentes, seront attribuées au film du TiN, si la réponse d'un système film-substrat correspondent à celle du film aux faibles charges appliquées [34]. Néanmoins, la valeur de  $E$  (231,679 GPa) pour 1  $\mu\text{m}$  d'épaisseur du TiN est proche de celle théorique du substrat AISI430 (230 à 235 GPa ; Cf. tableau 4-3). Dans ces conditions, à la plus petite charge appliquée, la valeur de  $E$  issue de la méthode de Oliver et Pharr correspond à celle du substrat (et non du film). D'où une réelle difficulté de mesurer les propriétés du film par indentation instrumentée d'un système film-substrat, surtout pour les faibles épaisseurs du film.

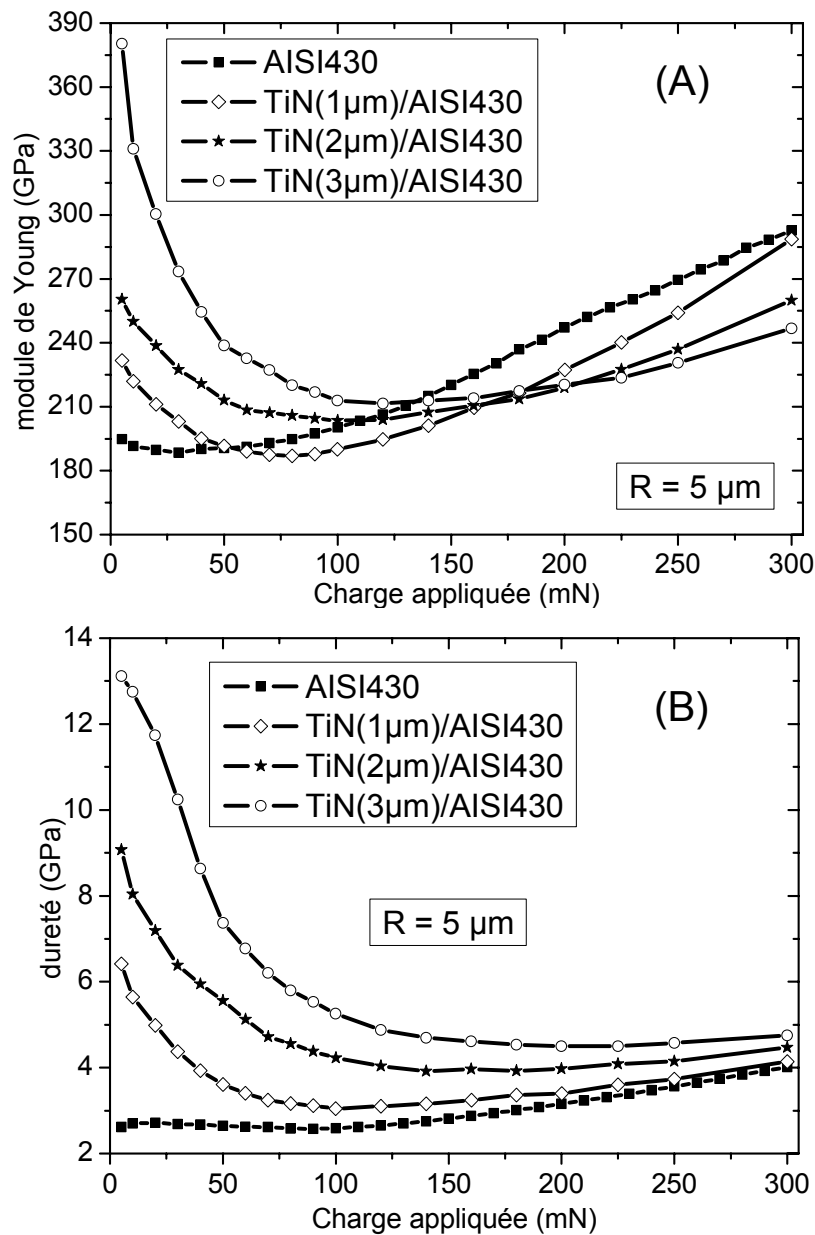


Figure 4-21 : Evolution avec l'épaisseur du film des propriétés composites (TiN/AISI430 pour  $R = 5 \mu\text{m}$ ) issus de la méthode Oliver et Pharr ; (A) module élastique et (B) dureté.

### c) Effet de la nature du substrat

Pour une épaisseur  $t_F$  du film de TiN et un rayon d'indenteur (par exemple  $R = 5 \mu\text{m}$ ) tous fixés, l'évolution du  $E$  et  $H$ , avec la charge appliquée  $F$ , dépend aussi nettement de la nature du substrat (figure 4-22). En effet, pour toutes les épaisseurs du TiN comprise entre 1 et 3  $\mu\text{m}$ , le module de Young du TiN/AISI430 décroît jusqu'à atteindre un minimum (plateau) et puis croît à nouveau avec la charge appliquée (figure 4-22 A). Néanmoins, pour le système TiN/HSS652, ce type de comportement de  $E$  avec  $F$  est uniquement observé uniquement pour la plus petite épaisseur du TiN ( $t_F = 1,3 \mu\text{m}$ ) (figure 4-22 C). Après le plateau, aucune augmentation du module de Young  $E$  correspondant au TiN/HSS652, n'est observé pour 2 et 3  $\mu\text{m}$  d'épaisseur du TiN. En plus, si on fixe la charge appliquée  $F$  à 5 mN, le rayon de la pointe  $R$  à 5  $\mu\text{m}$  et l'épaisseur du TiN  $t_F$  à 3  $\mu\text{m}$ , le module de Young composite  $E$  varie de 380,288 à 408,584 GPa pour respectivement TiN/AISI430 et TiN/HSS652 (figure 4-22 A et C ; tableau 4-6). De même, seule la dureté  $H$  du TiN/HSS652 (pour  $t_F = 1,3 \mu\text{m}$ ) (figure 4-22 D) évolue de manière semblable à celle du TiN/AISI430 ( $t_F$  allant de 1 à 3  $\mu\text{m}$ ) (figure 4-22 B). Pour les autres cas (2 et 3  $\mu\text{m}$  d'épaisseur du TiN), la dureté  $H$  du TiN/HSS652 croît avec  $F$  sur toute la gamme du chargement maximale appliqué. En effet, en considérant les valeurs maximales de  $H$ , la dureté de TiN ( $t_F = 3 \mu\text{m}$  et  $R = 5 \mu\text{m}$ ) varie de 13,115 à 22,836 GPa pour respectivement TiN/AISI430 et TiN/HSS652 (figure 4-22 B et 4-21 D). Ainsi, plus le substrat a une dureté élevée, plus sa contribution est petite et les valeurs composites mesurées du module de Young  $E$  et de la dureté  $H$  se rapprochent davantage à celles du film (TiN).

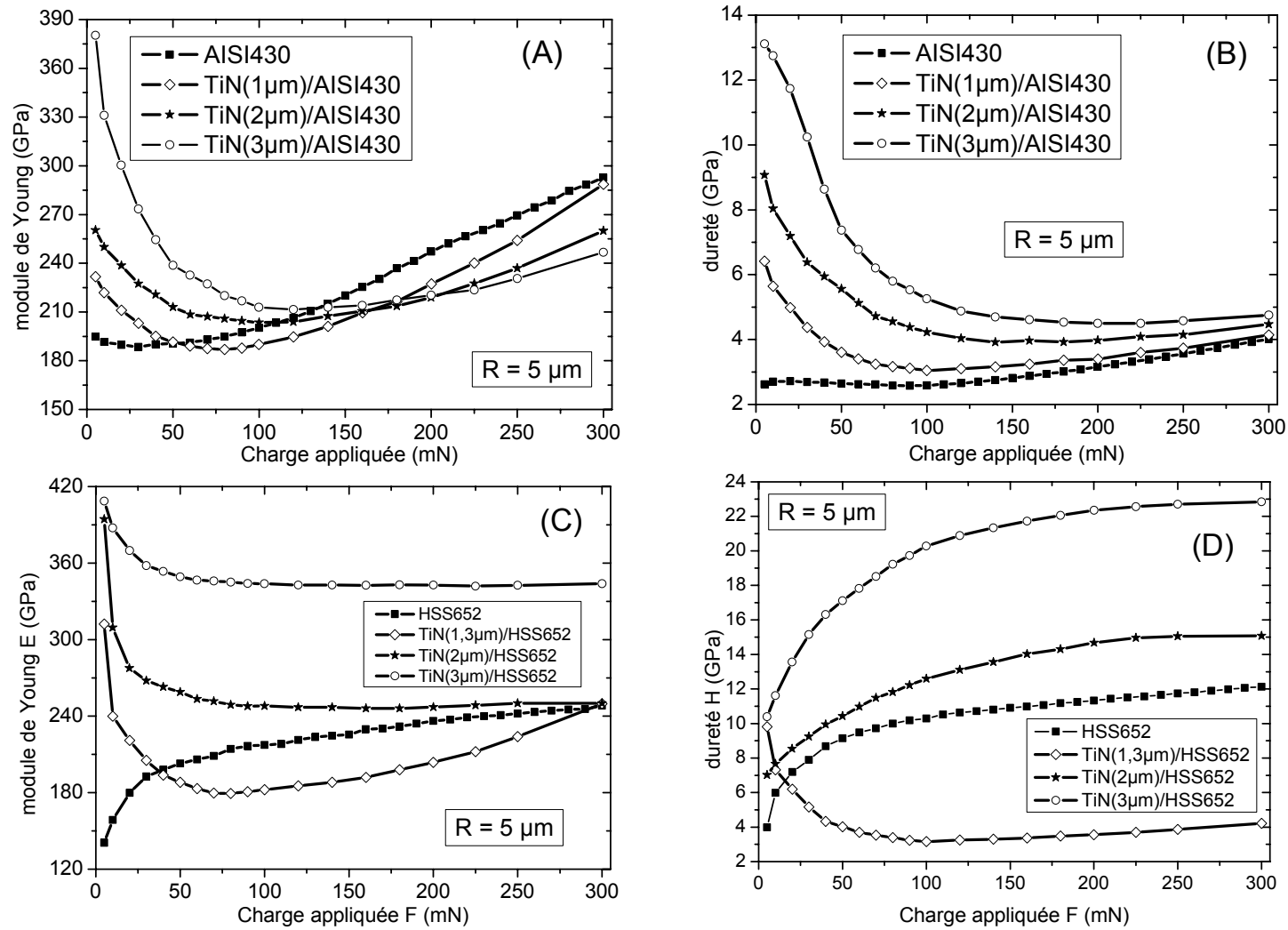


Figure 4-22 : Méthode de Oliver et Pharr : Evolution avec la charge (pour  $R = 5 \mu\text{m}$ ), du module de Young  $E$  et de la dureté  $H$  issus d'indentation sphérique du : A et B TiN/AISI430 (avec  $t_F$  allant de 1 à 3  $\mu\text{m}$ ) ; C et D TiN/HSS652 (avec  $t_F$  allant de 1,3 à 3  $\mu\text{m}$ ).

#### d) Effet du rayon de la pointe

A une épaisseur du film et une charge appliquée données, Les propriétés mécaniques du TiN/AISI430 ( $E$  et  $H$ ) sont aussi affectées par la variation du rayon  $R$  de la pointe sphérique (figure 4-23 ; tableaux 4-6). En effet, elles décroissent avec la charge appliquée pour  $R = 5 \mu\text{m}$ . Par contre, dans le cas où  $R = 50 \mu\text{m}$ , elles croissent d'abord jusqu'à atteindre un maxima (plateau) et puis décroissent avec l'augmentation de la charge appliquée. Ainsi, lorsque le rayon de la pointe  $R$  varie de 5 à 50  $\mu\text{m}$ , à une charge appliquée ( $F = 5 \text{ mN}$ ), le module de Young  $E$  du TiN/AISI430 évolue respectivement de 380,288 à 227,824 GPa. Dans ces conditions, la dureté composite  $H$  décroît aussi de 13,115 à 0,256 GPa. Les faibles valeurs de  $E$  et  $H$  obtenus aux petites charges appliquées ( $R = 50 \mu\text{m}$ ) pourraient être expliquées par les contributions conjuguées de l'élasticité du TiN et du AISI430 ou bien de la rugosité de la surface du TiN. A ce stade d'essai, la dureté mesurée (Oliver et Pharr) n'est rien d'autre que la pression moyenne. L'attribution donc au film de la valeur de  $E$  aux faibles charges, est erronée pour une pointe de rayon relativement grand. Considérons maintenant que les valeurs maximales de  $E$  et  $H$  (TiN/AISI430) correspondent à la réponse du film. Le module de Young du TiN varie donc de 380,288 (pour  $R = 5 \mu\text{m}$ ) à 424,112 GPa (pour  $R = 50 \mu\text{m}$ ) (figure 4-23 A). Avec cette hypothèse, la dureté du TiN décroît aussi de 13,115 à 5,489 GPa, lorsque le rayon de la pointe  $R$  varie de 5 à 50  $\mu\text{m}$  (figure 4-23 B).

Que ce soit pour la combinaison TiN/AISI430 ou TiN/HSS652, si  $R = 50 \mu\text{m}$ , le module de Young  $E$  croît jusqu'à une valeur plateau et puis décroît avec l'augmentation de la charge appliquée  $F$  (figure 4-23 A et C). La chute du module de Young  $E$  survient à une charge plus élevée pour la combinaison TiN/HSS652. Dans cette situation, les valeurs maximales de  $E$  atteintes (donc  $E$  de TiN) évoluent de 424,112 à 429,198 GPa pour respectivement les combinaisons TiN/AISI430 et TiN/HSS652 ( $t_F = 3 \mu\text{m}$  et  $R = 50 \mu\text{m}$ ). Ces trois étapes de comportement (croissance, palier et décroissance), avec la charge appliquée, sont aussi observés dans la variation de la dureté du TiN/AISI430 ( $t_F = 3 \mu\text{m}$  et  $R = 50 \mu\text{m}$ ) (figure 4-23 B). Néanmoins, la dureté du TiN/HSS652 ( $t_F = 3 \mu\text{m}$  et  $R = 50 \mu\text{m}$ ), quant à elle évolue de manière monotone dans toute la plage de la charge appliquée (figure 4-23 D). En effet, en considérant les valeurs maximales de  $H$ , la dureté du TiN va de 5,3397 à 8,5284 pour respectivement TiN/AISI430 et TiN/HSS652 ( $t_F = 3 \mu\text{m}$  et  $R = 50 \mu\text{m}$ ).

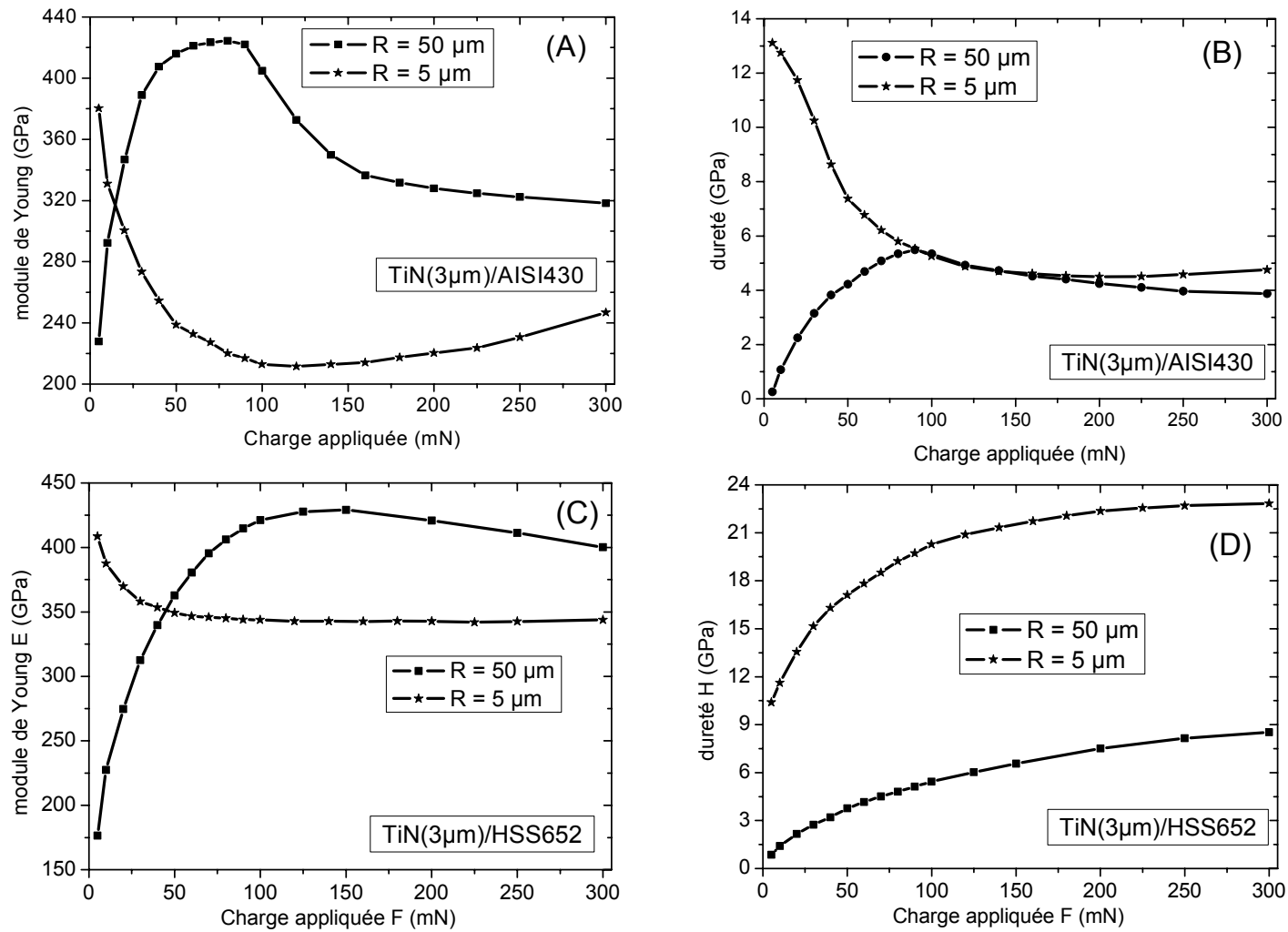


Figure 4-23 : Méthode de Oliver et Pharr : Evolution avec la charge ( $R = 5$  et  $50 \mu\text{m}$ ), du module de Young  $E$  et de la dureté  $H$  issus d'indentation sphérique du : a et b TiN/AISI430 ( $t_F = 3 \mu\text{m}$ ) ; c et d TiN/HSS652 ( $t_F = 3 \mu\text{m}$ ).

Film-substrat	$R$ ( $\mu\text{m}$ )	$F$	$t_F$ ( $\mu\text{m}$ )	$h$ ( $\mu\text{m}$ )	$E$ (GPa)	$H$ (GPa)	
TiN/AISI430	5	5	1	0,04076	231,67934	6,41588	
			2	0,04074	260,35401	9,06832	
			3	0,02736	380,2887	13,11527	
		50	1	0,50555	191,62961	3,6105	
			2	0,33646	213,11586	5,55998	
			3	0,27244	238,7359	7,371	
		100	1	1,23513	190,0444	3,04908	
			2	0,87599	203,55764	4,22798	
			3	0,687	212,88765	5,26156	
	10	5	3	0,02554	407,20007	5,2537	
		50		0,12119	358,71855	11,165	
		100		0,32584	281,32043	6,06787	
	50	5	3	0,02724	227,82457	0,25629	
		50		0,06596	415,96694	4,22177	
		100		0,10269	398,56635	5,3397	
	TiN/HSS652	5	5	1	0,03183	312,27924	9,81412
				2	0,02773	394,45875	7,02165
				3	0,02685	408,58397	10,39635
50			1	0,46042	188,12171	4,0193	
			2	0,21387	258,83312	10,43768	
			3	0,15802	349,2671	17,11176	
100			1	1,18836	182,2548	3,16402	
			2	0,34818	247,99883	12,59216	
			3	0,25405	343,75073	20,28204	
50		5	3	0,02573	176,5945	0,84972	
		50		0,07036	362,66823	3,76755	
		100		0,11091	421,21123	5,433	

Tableau 4-6 : Méthode de Oliver et Pharr : module de Young  $E$  et de la dureté  $H$  issus d'indentation sphérique ( $R = 5 ; 10$  et  $50 \mu\text{m}$ ) de TiN/AISI430 et TiN/HSS652 à trois charges maximales appliquées.

◆ Résumé et discussion : Les propriétés mécaniques ( $E$  et  $H$ ) issues de l'indentation sphérique d'un substrat revêtu sont affectées par la charge maximale appliquée  $F$ , l'épaisseur du film  $t_F$ , la nature du substrat et le rayon de la pointe  $R$ . Ces résultats expérimentaux sont conformes à ceux obtenus dans nos études numériques (Cf. chapitre 3) où nous avons montré



la dépendance de la réponse mécanique résultant de l'indentation d'un système film-substrat à ces différents paramètres. En effet, les variations, avec la charge appliquée, du module de Young  $E$  et de la dureté  $H$  du TiN/AISI430 (pointe de 50  $\mu\text{m}$  de rayon) présentent trois domaines de variation (croissance, palier et décroissance). De tels comportements ont été récemment observés dans des études d'indentation de couches de TiN déposées sur des substrats en acier [35 36 34 37]. D'après d'autres travaux, l'allure croissante de  $H$  aux faibles charges pourrait être liée à un « effet de la taille » [59] et ou au traitement de surface [90 64] ou au « sink-in » [55]. Dans le domaine de faible charge appliquée, certains auteurs suggèrent que la dureté n'est rien d'autre que la pression moyenne de contact [34]. D'après nos études numériques, le comportement de la dureté, aux faibles charges appliquées, est lié à la transition entre la réponse composite dominée par le champ élastique et celle gouvernée par la flexion du film (elle aussi accentuée par la plasticité du substrat) (Chapitre 3). La diminution de  $E$  et  $H$ , après le palier, explique bien la contribution du substrat. Quant au TiN/HSS652, les trois types de comportement (croissance, palier et décroissance) ne sont observés que dans l'évolution du  $E$ . La dureté quant à elle croît sur toute la gamme de charge appliquée. Elle est aussi plus élevée que celle obtenue dans la combinaison TiN/AISI430. De plus, la chute de  $E$  (pour TiN/HSS652) est moins atténuée et advient à une charge plus élevée que pour TiN/AISI430. Cela montre bien que la réponse d'un système film-substrat dépend de la nature du substrat. Avec le rayon de la pointe ( $R = 5 \mu\text{m}$ ), seule la décroissance de  $E$  du TiN/AISI430 et TiN/HSS652 est observée aux faibles charges appliquées pour toutes les épaisseurs du TiN. Le même type de comportement est obtenu pour la dureté du TiN/AISI430 ( $t_F = 1, 2$  et  $3 \mu\text{m}$ ) et TiN/HSS652 ( $t_F = 1,3 \mu\text{m}$ ). Cependant, pour 2 et 3  $\mu\text{m}$  d'épaisseur de TiN, les deux premiers stades (croissance et palier) sont seulement observés dans la variation de  $H$  de TiN/HSS652. Cela signifie que l'influence du substrat devient rapidement prononcée, si le rayon  $R$  ou l'épaisseur du film est petit ou bien si le substrat est mou (c'est-à-dire a une petite dureté). Remarquons que la valeur théorique de la dureté varie de 2 à 4 GPa et de 8,4 à 9 GPa pour respectivement AISI430 et HSS652 (Cf. tableau 4-3). Nous avons montré par nos investigations numériques que le comportement de la dureté et du module de Young est lié au volume plastique développé dans le substrat. Ainsi, pour atteindre une déformation plastique susceptible d'amorcer la variation de  $E$  et de  $H$ , Il est donc évident d'appliquer une charge plus importante dans le cas de l'assemblage TiN/HSS652. Les propriétés mécaniques composites ( $E$  et  $H$ ) issues de la méthode de Oliver et Pharr restent affectées par l'épaisseur du film, la nature du substrat et le rayon de la pointe. Ainsi, cette méthode doit être utilisée avec précaution dans le cas des systèmes film-substrat, surtout si on cherche à extraire les

propriétés du film. Pour mesurer les propriétés du film, la procédure basée sur les équations 4-11 et 4-12 est utilisée pour dépouiller nos données d'indentation.

#### 4.5.4.2. Exploitation des données d'indentation instrumentée des substrats revêtus (film-substrat) : méthode basée sur les équations 4-11 et 4-12

Nous avons montré dans la partie précédente que les propriétés mécaniques ( $E$  et  $H$ ) d'un système film-substrat, mesurées expérimentalement avec la méthode de Oliver et Pharr, dépendent de la charge appliquée (donc de la profondeur d'indentation  $h$ ), de l'épaisseur du film, de la nature du substrat et du rayon de la pointe.

Dans cette partie, ces propriétés sont déterminées par la procédure basée sur les équations 4-11 et 4-12. Pour cela, la courbe de charge (correspondante à chaque niveau du chargement maximal) issue de l'indentation du TiN/AISI430 et TiN/HSS652 est d'abord modélisée par l'équation 4-11, puis la pente de la partie linéaire (au début du chargement) est déterminée. Enfin le module de Young est calculé en injectant simplement la valeur de cette pente dans l'équation 4-12.

Cette méthode est appliquée aux deux combinaisons film-substrat (TiN/AISI430 et TiN/HSS652) testées. Pour le rayon de la pointe  $R = 5 \mu\text{m}$  et les épaisseurs du TiN  $t_F = 2$  et  $3 \mu\text{m}$ , les modules de Young, issus de cette procédure basée sur les équations 4-11 et 4-12 et de la méthode classique de Oliver et Pharr, sont représentés dans la figure 4-24. A une charge appliquée ( $F = 5 \text{ mN}$ ) et une épaisseur du TiN ( $t_F = 3 \mu\text{m}$ ),  $E$  (Oliver et Pharr) varie de 380,2887 à 408,58397 GPa pour respectivement TiN/AISI430 et TiN/HSS652 (figure 4-22 A et C). Cependant, les valeurs moyennes de  $E$  obtenues, avec la nouvelle méthode, sont égales à  $445,856 \pm 6,849$  et  $445,377 \pm 0,999$  GPa pour respectivement TiN/AISI430 et TiN/HSS652 (figure 4-24 et tableau 4-7). Rappelons qu'une valeur du module de Young de TiN de 440 GPa a été trouvée dans une récente étude faite avec la méthode de la microscopie acoustique [79]. Non seulement le module de Young  $E$  (Eq. 4-11 et 4-12) est quasiment constant pour les deux systèmes (TiN/AISI430 et TiN/HSS652), mais il est proche de celui de TiN. Ainsi, contrairement à la méthode classique de Oliver et Pharr, la méthode basée sur les équations 4-11 et 4-12 permet de déterminer, indépendamment de la nature du substrat, le module de Young du revêtement.

Lorsque l'épaisseur du TiN varie de 1 à 3  $\mu\text{m}$ , la valeur moyenne de  $E$  (Eq. 4-11 et 4-12) varie de  $444,095 \pm 5,042$  à  $445,377 \pm 0,999$  GPa pour le système TiN/HSS652 indenté avec

une pointe de 5  $\mu\text{m}$  de rayon (tableau 4-7). Cependant, pour ce même système,  $E$  (issu de la méthode de Oliver et Pharr) varie de 312,279 à 408,584 GPa (figure 4-22 C). Une fois de plus, notre technique permet d'accéder au module élastique du TiN, indépendamment de l'épaisseur du film.

Enfin, pour une épaisseur du TiN égale à 3  $\mu\text{m}$ , si on fait varier le rayon de la pointe  $R$  de 5 à 50  $\mu\text{m}$ , la valeur moyenne du module de Young  $E$  (Eq. 4-11 et 4-12) va de  $445,856 \pm 6,849$  à  $444,706 \pm 2,612$  GPa et de  $445,377 \pm 0,999$  à  $445,966 \pm 1,061$  pour respectivement les assemblages TiN/AISI430 et TiN/HSS652 (figure 4-25 et tableau 4-7). Ces valeurs du module de Young quasiment constantes, sont encore plus proches de celle du TiN que celles déduites de la méthode de Oliver et Pharr (Figure 4-22 A et C).

Film-substrat	$R$ ( $\mu\text{m}$ )	$t_F$ ( $\mu\text{m}$ )	$E$ (Eq. 4-11 et 4-12) (GPa)
TiN/AISI430	5	1	$442,816 \pm 6,171$
		2	$444,863 \pm 6,452$
		3	$445,856 \pm 6,849$
	10	1	$443,962 \pm 1,135$
		2	$444,443 \pm 1,133$
		3	$444,943 \pm 1,131$
	50	1	$443,694 \pm 1,982$
		2	$444,480 \pm 1,221$
		3	$444,706 \pm 2,612$
TiN/HSS652	5	1	$444,095 \pm 5,042$
		2	$445,734 \pm 4,293$
		3	$445,377 \pm 0,999$
	50	3	$445,966 \pm 1,061$

Tableau 4-7 : Valeurs moyennes, du module de Young  $E$  de TiN/AISI430 et TiN/HSS652, issues de notre nouvelle procédure (équations 4-11 et 4-12)

En résumé, que le substrat soit AISI430 ou HSS652, notre procédure permet de mesurer le module de Young du film de TiN. Ceci, pour tous les rayons d'indenteur ( $R = 5, 10$  et  $50 \mu\text{m}$ ) et épaisseurs du TiN ( $t_F$  comprise entre 1 et 3  $\mu\text{m}$ ) utilisés dans nos investigations (tableau 4-7). Néanmoins, la barre d'erreur a tendance à augmenter lorsque le rayon de la pointe ou l'épaisseur du film est faibles et ou les valeurs de dureté du substrat sont faibles (tableau 4-7). Donc, des valeurs extrêmement faibles de ces derniers pourraient être une limitation à l'application de notre technique.

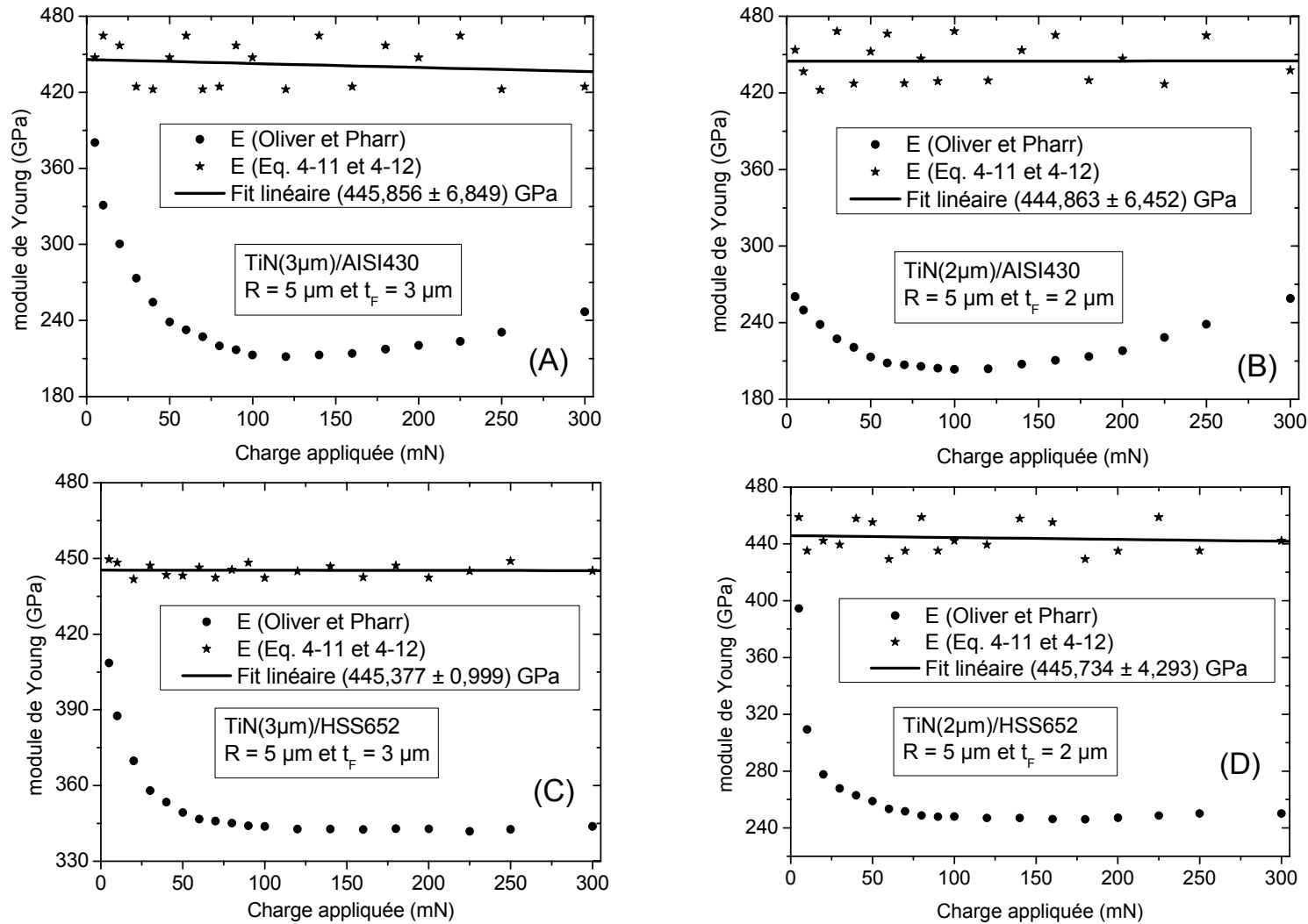


Figure 4-24 : comparaison (pour  $R = 5 \mu\text{m}$ ) entre les propriétés mécaniques mesurées avec la méthode classique de Oliver et Pharr et celles issues des équations 4-11 et 4-12 : (a) TiN/AISI430 ( $t_F = 3 \mu\text{m}$ ) ; (b) TiN/AISI430 ( $t_F = 2 \mu\text{m}$ ) ; (c) TiN/HSS652 ( $t_F = 3 \mu\text{m}$ ) et (d) TiN/HSS652 ( $t_F = 2 \mu\text{m}$ ).

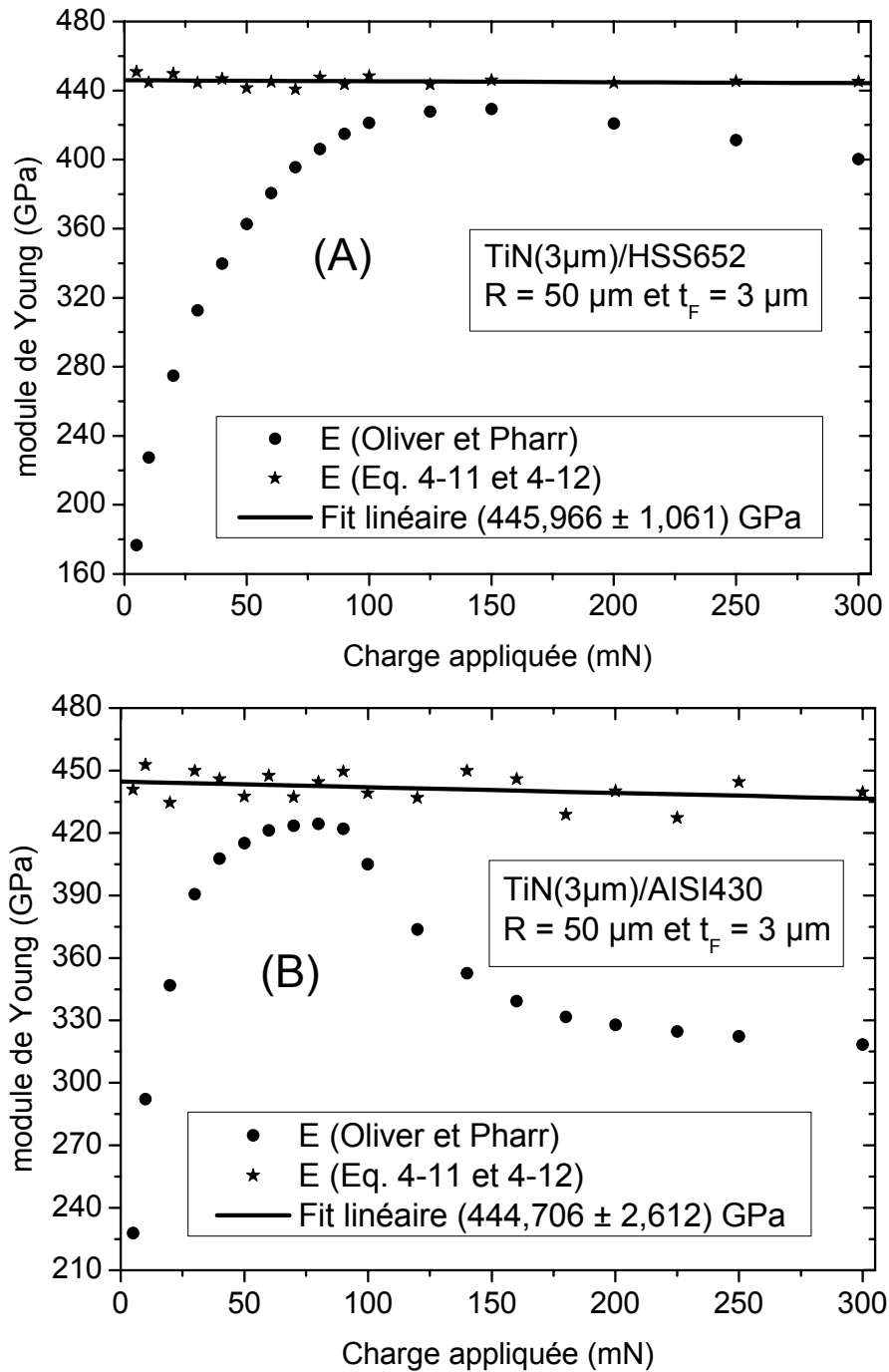


Figure 4-25 : Module de Young mesurés : comparaison entre la méthode classique de Oliver et Pharr et celle basée sur les équations 4-11 et 4-12.

Tous les résultats rassemblés ci-dessus montrent la validité de la méthode basée sur les équations 4-11 et 4-12 pour la détermination du module de Young du revêtement à partir des données d'indentation sphérique d'un système film-substrat.

Maintenant, vérifions l'application de cette méthode dans le cas de l'assemblage film-substrat où le substrat a subi un traitement avant le dépôt du film. Pour cela, trois échantillons comportant un revêtement  $\text{TiO}_2$  (dépôtés sur un substrat HSS652) sont élaborés. Nous rappelons que les conditions d'élaboration de ces trois échantillons sont détaillées dans la partie 4.5.2.2 (page 139) et ils sont respectivement notés comme suit :

$\text{TiO}_2(1)/\text{HSS652}$  : avant le dépôt du film ( $\text{TiO}_2$ ), le substrat (HSS652) a subi un simple polissage mécanique à l'aide des papiers abrasifs et d'un feutre diamanté.

$\text{TiO}_2(2)/\text{HSS652}$  : après avoir subi un polissage mécanique à l'aide des papiers abrasifs et d'un feutre diamanté, le substrat a aussi été décapé avant le dépôt du revêtement.

$\text{TiO}_2(3)/\text{HSS652}$  : En plus du polissage mécanique et du décapage du substrat, une couche intermédiaire de Ti a été déposée à l'interface.

Les courbes charge – déplacement (à une charge maximale appliquée de 180 mN) issues de la nanoindentation instrumentée sphérique de ces trois systèmes  $\text{TiO}_2/\text{HSS652}$  sont présentées dans la figure 4-26.

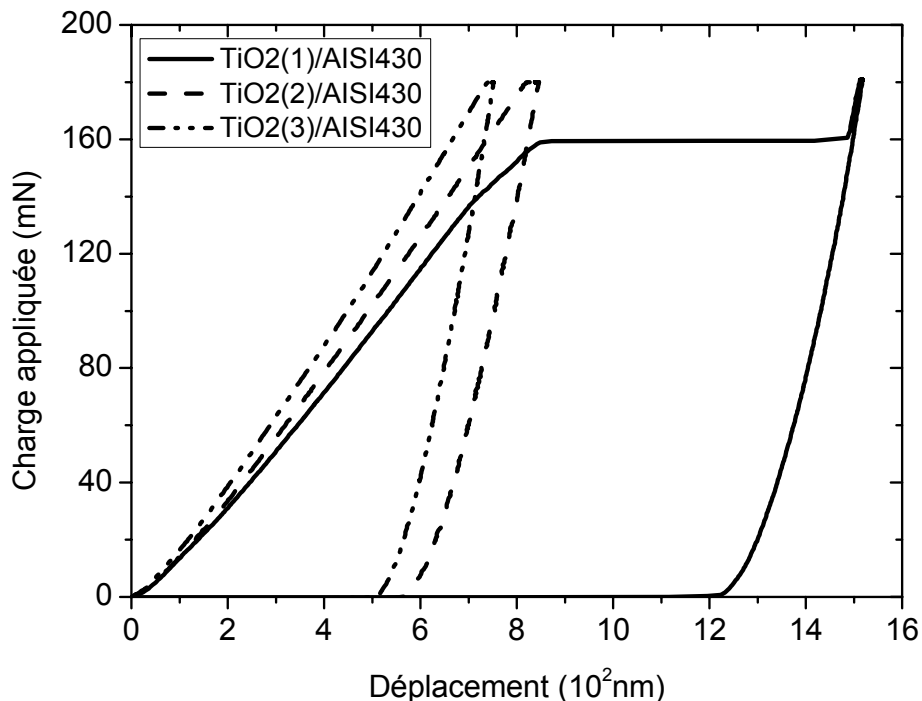


Figure 4-26 : Effet de la nature d'interface du  $\text{TiO}_2/\text{HSS652}$  sur les courbes charge-décharge issues d'indentation instrumentée avec une pointe sphérique de  $5 \mu\text{m}$  de rayon.

La figure 4-27 présente les résultats obtenus par la méthode d'analyse de Oliver et Pharr appliquée aux données d'indentation instrumentée de ces trois assemblages TiO<sub>2</sub>/HSS652. La variation avec la charge appliquée du module de Young composite (Oliver et Pharr) dépendant de la nature de l'interface (donc du traitement de surface subi par le substrat avant le dépôt du film). Aux faibles charges appliquées, quelle que soit la nature de l'interface, le module de Young composite croît avec la charge appliquée. Dans le cas où le substrat a subi un simple polissage mécanique,  $E$  composite (Oliver et Pharr) présente une chute notable à partir d'une charge appliquée de 150 mN (figure 4-27). Cela est corrolé sur la courbe de chargement du TiO<sub>2</sub>(1)/AISI430, à la présence d'un palier appelé « pop-in » (aux alentours de  $F = 160$  mN) (figure 4-26). Ce dernier se manifeste par un enfoncement brusque de la pointe dans le matériau à une charge appliquée constante (figure 4-26). Ce phénomène n'est pas observé dans les autres cas (TiO<sub>2</sub>(2)/AISI430 et TiO<sub>2</sub>(3)/AISI430). En plus, dans ces derniers cas, non seulement que l'évolution du  $E$  est plus régulière, mais aussi sa valeur augmente (figure 4-27) en fonction du traitement de surface subi par le substrat (AISI430) avant le dépôt du film (TiO<sub>2</sub>). Ainsi, le décapage et le dépôt d'une couche de Ti à l'interface permettent chacun (ou les deux ensembles) d'améliorer la qualité du revêtement du TiO<sub>2</sub>.

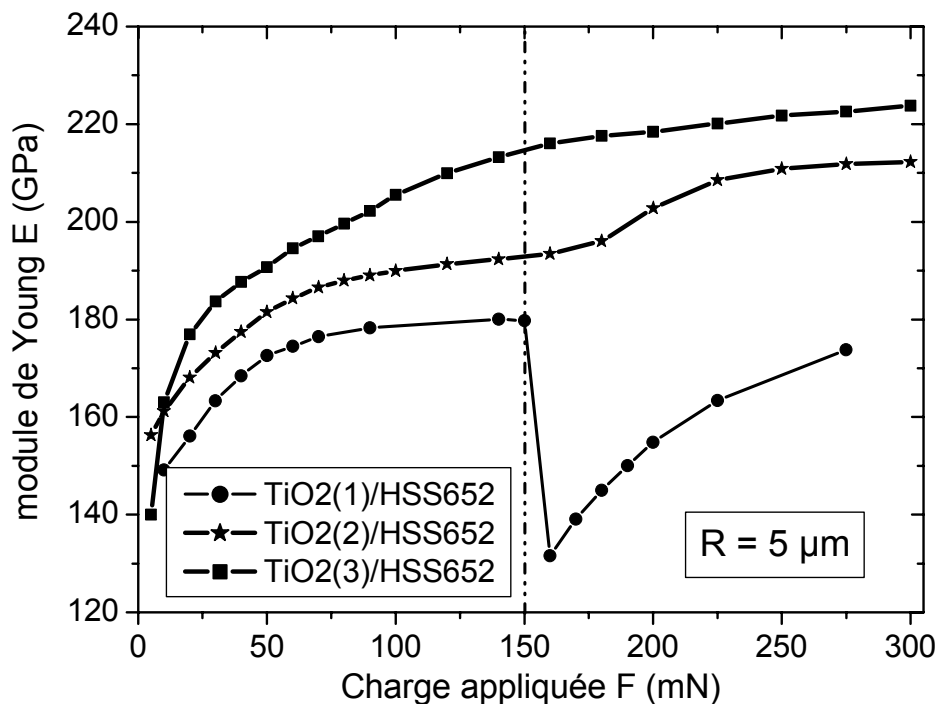


Figure 4-27 : Evolution avec la charge maximale appliquée, du module de Young du TiO<sub>2</sub>/HSS652, en fonction justement de la nature d'interface.

La dureté composite (Oliver et pharr) pour trois échantillons de  $\text{TiO}_2/\text{HSS652}$  (avec différents traitements de surface du HSS652 avant le dépôt du  $\text{TiO}_2$ ) a une variation croissante aux faibles charges appliquées. Une chute remarquable de la dureté composite ( $\text{TiO}_2(1)/\text{HSS652}$ ) est aussi observée à partir d'un niveau de chargement de 150 mN (figure 4-28) dans le cas où le substrat a subi un polissage mécanique simple. La nature de l'interface de l'assemblage  $\text{TiO}_2/\text{HSS652}$  (selon le traitement de surface subi par le substrat avant le dépôt du film) permet aussi d'améliorer la qualité du  $\text{TiO}_2$  en terme de la dureté.

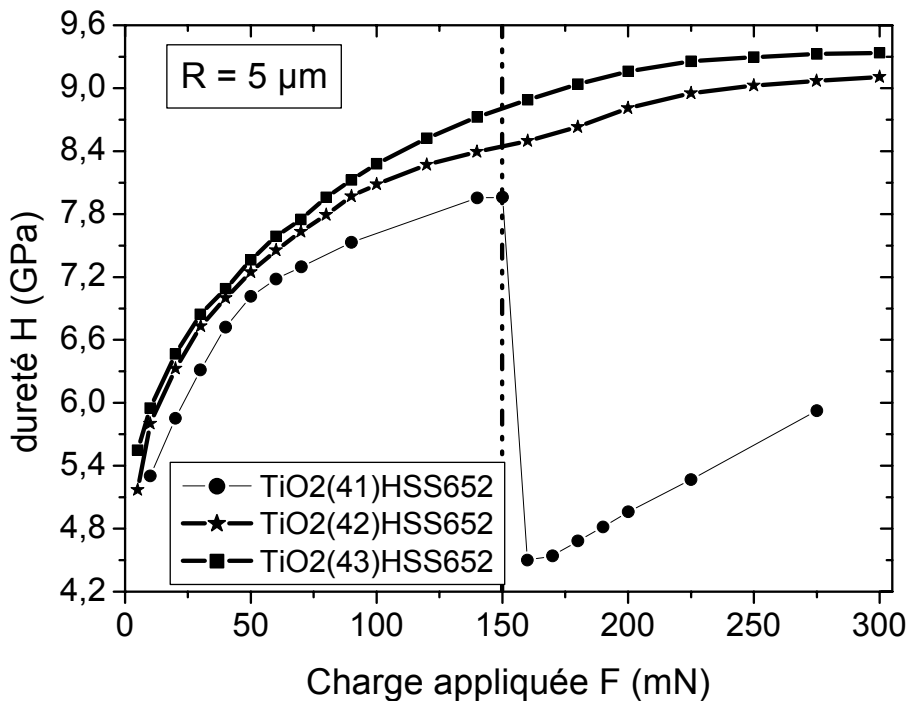


Figure 4-28 : Evolution avec la charge maximale appliquée, de la dureté du  $\text{TiO}_2/\text{HSS652}$ , en fonction justement de la nature d'interface.

Les résultats obtenus, avec la méthode basée sur les équations 4-11 et 4-12, montrent une augmentation du module élastique (du  $\text{TiO}_2$ ) avec le traitement de l'interface (Figure 4-29). Il est égale à  $187,333 \pm 0,431$  GPa (dans le cas du polissage mécanique simple),  $194,832 \pm 0,343$  GPa (cas du polissage mécanique plus décapage) et  $199,597 \pm 0,360$  GPa (cas du polissage mécanique plus décapage et dépôt d'une couche intermédiaire à l'interface). Cela montre bien que la rigidité du  $\text{TiO}_2$  s'améliore avec le traitement de la surface du substrat. En effet, récemment, des valeurs de 194 et 201 GPa ont été reportés dans les travaux de Giovanni et al [97], pour respectivement, une pointe Vickers et celle Berkovich. Une fois de plus, notre formulation permet de mesurer les propriétés du film avec plus de précision.



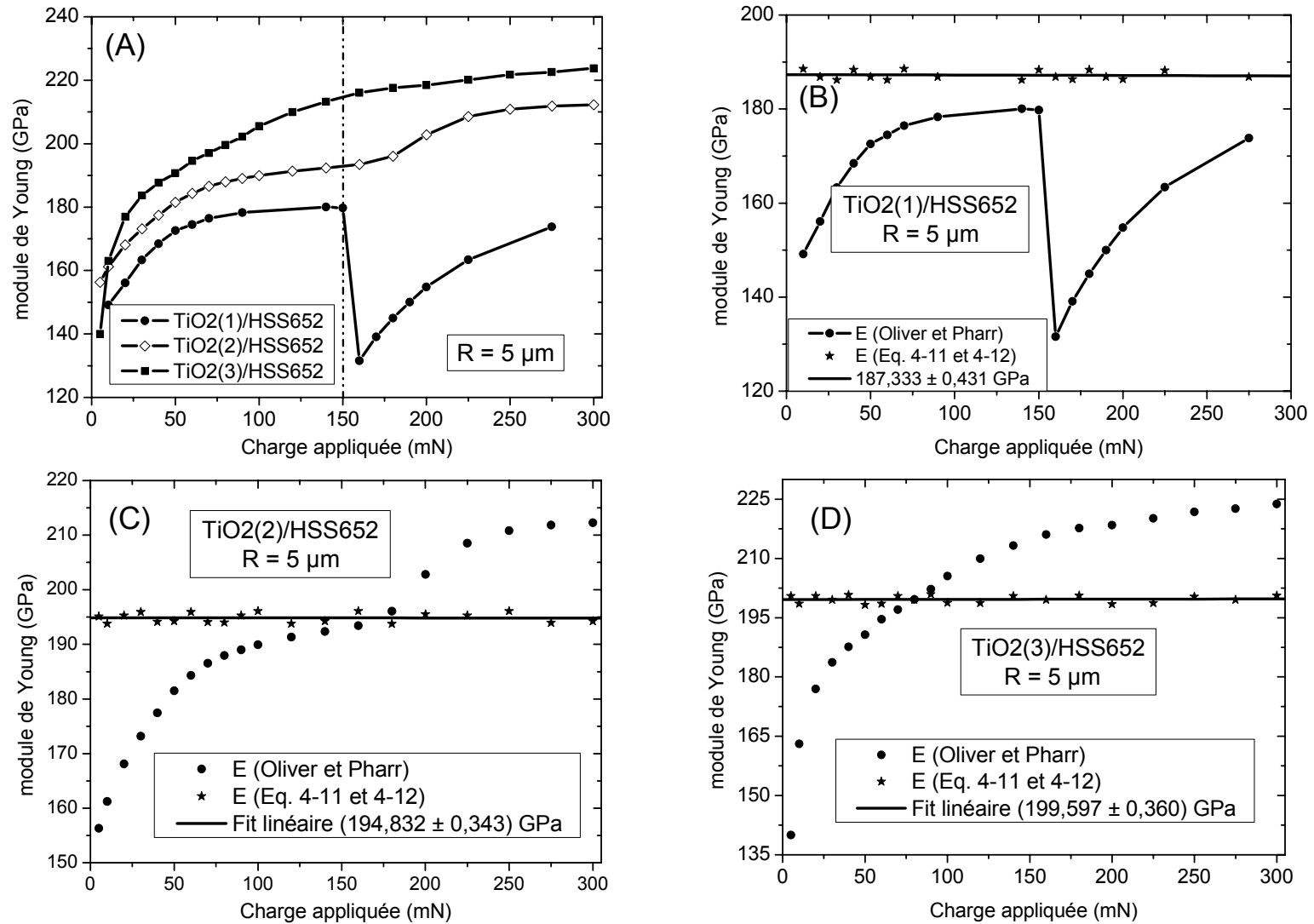


Figure 4-29 : Effet du traitement de l'interface : comparaison entre les résultats issus de la méthode classique et ceux obtenus suite à l'application des équations 4-11 et 4-12.

## 4.6. Conclusion

Une relation entre le déplacement de l'indenteur et le rapprochement  $\delta$  a été établie (Equation 4-5). Cette dernière dépend des modules de Young du matériau d'essai et de la pointe considérés. Par ailleurs, dans le cadre des petites déformations, nos investigations numériques ont montré que le rapprochement entre deux solides en contact  $\delta$  est égale à  $\frac{a^2}{R}$  (Equation 4-2) pour un matériau massif aussi bien que pour un assemblage film-substrat. Ces deux expressions (Equations 4-2 et 4-5) permettent, à chaque charge appliquée, de déterminer le rayon de contact  $a$  à partir du déplacement de l'indenteur quelle que soit la nature de la pointe (rigide parfait ou pas) et par la suite d'en déduire la pression moyenne (ou la dureté). Nous avons montré qu'alternativement à la méthode classique de Oliver et Pharr [16] (où le module de Young est déterminé à partir de la courbe de décharge) le module de Young du matériau massif ou du film peut être mesuré dans la phase du chargement, à partir des équations 4-11 et 4-12. Des bons résultats ont été obtenus avec une erreur inférieure à 1% et 2%, pour respectivement un matériau massif et un système film-substrat. L'application des équations 4-11 et 4-12 est aussi validée avec des données expérimentales issues de l'indentation instrumentée des matériaux massifs (verre de silice SiO<sub>2</sub>, acier rapide HSS652 et quatre nuances d'aciers inoxydables AISI430, AISI304L, AISI314L) et des systèmes film-substrat (TiN/HSS652, TiN/AISI430 et TiO<sub>2</sub>/HSS652) avec succès.



## Conclusion générale

L'indentation instrumentée (ou nanoindentation) et les différentes méthodes d'analyse des données expérimentales sont présentées dans le chapitre 1. Nous avons montré que les caractéristiques ( $H$  et  $E$ ) obtenues, avec, en particulier la méthode de Oliver et Pharr [16], dépendent du pourcentage de la courbe de décharge modélisée par la loi puissance (Eq. 1-14) pour un matériau massif aussi bien que pour un système film-substrat.

Afin de mieux comprendre les mécanismes de déformations des matériaux massifs et revêtus, nous avons procédé à la simulation numérique utilisant un code (méthode des éléments de frontière) qui nous permet de réaliser des indentations sphériques. Le principe et la stratégie de résolution du code sont brièvement présentés dans le chapitre 2. D'abord il a été validé dans le domaine des déformations élastiques d'un matériau massif. Un excellent accord est obtenu entre les résultats numériques et ceux analytiques (théorie de Hertz) aussi bien pour les grandeurs surfaciques que pour les grandeurs internes. Dans le domaine de déformations élastoplastiques, nos résultats numériques ont été comparés avec ceux de Hardy et al. [2 54] obtenus en utilisant la méthode des éléments finis. L'analyse des courbes obtenues numériquement a montré que le module élastique  $E$  et la dureté  $H$  (Oliver et Pharr) dépendent du pourcentage de la courbe de décharge modélisée par la loi puissance (Eq. 1-14). Puis, l'analyse de  $E$  et  $H$  (pour 90% de décharge) nous a permis de mettre en évidence certaines particularités de la déformation en indentation sphérique d'un milieu homogène dans le domaine des petites déformations. Ils ont aussi permis de conclure que la variation de la dureté aux faibles charges appliquées est liée à la transition entre le comportement dominé par l'élasticité à celui gouverné par la déformation plastique développée dans le matériau. En effet, cette variation est observée dans le domaine de charge appliquée où  $a/R \leq 0,0195$ , alors que le volume plastique n'a pas encore atteint la surface libre du matériau. La variation linéaire de la dureté avec  $a/R$  dans le cas d'un massif homogène est observée dans le domaine de chargement où  $a/R > 0,03$ . Dans ce domaine, le module de Young est constant (et est proche de celui du matériau massif considéré dans le calcul numérique) et la pression de contact a une forme aplatie à la charge et à la décharge. Ainsi, l'approximation de la décharge d'un indenteur sphérique à celle d'un poinçon plat ne peut être correcte qu'à partir d'une charge appliquée  $F/F^* = 12,5$  ( $a/R > 0,03$ ).

Nos études numériques ont montré que la réponse d'un système film-substrat est dépendante de la flexion du film, du volume plastique développé dans le substrat et des rapports  $E_F/E_S$ ,  $E_S/\sigma_{YS}$  et  $R/t_F$ . En effet, pendant l'indentation sphérique d'un substrat revêtu d'un film, la pression de contact sature lorsque l'épaisseur résolue du film  $t_F/a$  est sensiblement égale à 1. Ceci, quel que soit le rapport  $E_S/\sigma_{YS} \geq 263$  et ou  $E_F/E_S > 1$  et ou  $R/t_F < 20$ . Cette saturation survient quand la profondeur  $Z_p$  et le rayon  $r_p$  du volume plastique qui sont égales alors qu'avant  $r_p > Z_p$  et après  $r_p < Z_p$ . Plus  $E_F/E_S$  ou  $E_S/\sigma_{YS}$  diminue ou  $R/t_F$  augmente, plus la réponse du système film-substrat est rapidement affectée par la déformation plastique du substrat et par conséquent, la pression de contact atteint sa valeur maximale aux faibles épaisseurs résolues du film.

Un niveau maximum de la contrainte radiale de tension est observé à la surface loin de la zone de contact à un certain stade d'indentation du système film-substrat (par exemple à  $t_F/a = 1,30$  pour  $E_F/E_S = 2$  et  $R/t_F = 16,66$ ). Ce phénomène est accompagné par une importante flexion du film qui est caractérisée par la linéarité et le changement de signe de la contrainte radiale dans le film, suivant la direction de l'axe de symétrie (avec également de larges valeurs de compression à la surface et de tension à l'interface). A partir de l'application d'une charge maximale telle que  $t_F/a = 1,30$ , la décharge est suivie d'un processus de réplastification du substrat et de la formation du pile-up au tour de l'empreinte résiduelle après la décharge totale. D'un côté, l'analyse de la contrainte de von Mises (dans la phase de décharge) a montré que la réplastification du substrat commence à partir d'une décharge partielle de 50% de la décharge totale. De l'autre côté, la position du pile-up est une fonction complexe qui dépend non seulement du rapport  $R/t_F$ , mais aussi de  $E_F/E_S$  et de  $E_S/\sigma_{YS}$ .

Nous avons aussi montré que, sur l'axe de symétrie  $Z$ , la contrainte résiduelle axiale est de traction aussi bien dans le film que dans le substrat. Celle-ci a un maximum dont la position vis-à-vis de l'interface ne dépend que du rapport  $R/t_F$ . En effet, ce maximum se situe dans le film, à l'interface film-substrat ou dans le substrat pour respectivement  $R/t_F < 20$ ,  $R/t_F$  compris entre 20 et 133,33 et  $R/t_F > 133,33$ . Donc le délaminage du film remarqué dans les travaux expérimentaux de Stebut et al [79] sera d'autant plus sévère si  $R/t_F$  est compris entre 20 et 133,33. A l'interface et suivant la direction radiale, cette contrainte résiduelle axiale est de tension et devient de compression pour des fortes charges appliquées (où la

formation du pile-up est observée autour de l’empreinte résiduelle) respectivement à l’intérieur et l’extérieur de la zone de contact. Cette dernière atteint un maximum de compression dont sa position est sensiblement égale à celle du pile-up.

Le développement du volume plastique dans le substrat, l’apparition, loin de la limite de contact, du maximum de la contrainte radiale surfacique, la flexion du film (durant la charge) et l’éventuelle réplastification du substrat (durant la décharge) affectent les propriétés mécaniques composites (module de Young et dureté). Nous avons constaté que le module de Young du système film-substrat est plus sensible à ces phénomènes que la dureté. En effet, la chute de la dureté composite commence à partir d’une charge appliquée telle que le processus de la réplastification du substrat soit observé dans la phase de décharge; alors que la décroissance du module élastique composite est observée dès le début du chargement. Cependant, dans le domaine de la décroissance (pour les petits  $R/t_F$ ) ou de la stagnation (pour les grands  $R/t_F$ ) de la pression de contact, le module de Young composite représente pratiquement celui du substrat. Dans ce domaine, la pression de contact a également une forme aplatie à la charge et à la décharge. Ce qui explique que le module élastique composite déterminé soit représentatif de celui du substrat. La dureté quant à elle décroît pour les petits  $R/t_F$  et devient pratiquement constante pour  $R/t_F > 133,33$ , confirmant l’influence majeure de la réponse du substrat sur celle de l’ensemble film-substrat que ce soit au niveau du profil de surface ou des distributions de contraintes radiales et axiales.

Nous avons aussi montré que, dans les domaines des petites déformations élastoplastiques induites durant l’indentation sphérique d’un matériau massif ou revêtu, le déplacement  $\delta$  (ou rapprochement entre deux corps en contact), est toujours égale à  $a^2/R$ . Cela permet, connaissant la géométrie de l’indenteur, de déterminer l’aire de contact  $A$  ( $A = \pi a^2 = \pi R \delta$ ) et par la suite d’en déduire aisément la dureté  $H$  (ou pression moyenne) par :  $H = F/\pi R \delta$ . La représentation pression moyenne ( $F/\pi R \delta$ )- déformation  $a/R$  prouve aussi une possibilité de mesurer les modules élastiques du film et du substrat respectivement à la charge et à la décharge. Néanmoins, expérimentalement on n’a accès qu’à la pénétration de l’indenteur dans le matériau testé (c’est à dire du déplacement du matériau) et à la charge appliquée. Ainsi, nous avons établi une relation entre le déplacement  $\delta$  et celui du matériau. Puis, nous avons formulé une équation du troisième degré (Eq. 4-8 page 111) dont la résolution par la méthode de Cardan permet de calculer le déplacement delta  $\delta$  quel que soit

le matériau testé. Nous avons aussi montré qu'alternativement à la méthode classique de Oliver et Pharr, le module de Young peut être déterminé dans la phase du chargement à partir de l'équation suivante :  $F^2 = \frac{16 E^{*2}}{9 R^2} (\delta R)^3$ . L'application de cette relation est d'abord analysée numériquement et de bons résultats ont été trouvés avec une erreur inférieure à 1% et 2%, pour respectivement un matériau massif et un système film-substrat. Son application est ensuite validée avec des données expérimentales issues de l'indentation des matériaux massifs (verre de silice, acier rapide HSS652 et trois nuance d'acier inoxydable AISI430, AISI304L, AISI314L) et des systèmes film-substrat (TiN/HSS652, TiN/AISI430 et TiO<sub>2</sub>/HSS652) avec succès.

## Références bibliographiques

- [1] J. A. Brinell, 2<sup>ème</sup> Congrès International des Méthodes d'Essai, Paris (1901)
- [2] K.L. Jonhson, Contact mechanics, Cambridge University Press, (1985)
- [3] H. Hertz ; Über die Berührung fester elastische Körper. J. Reine und angewandte Mathematik, 92 (1882) 156-171.
- [4] D. François, A. Pineau, A. Zaoui ; Comportement mécanique des matériaux (élasticité et plasticité) ; Editions Hermès, Paris, 1991, 1992.
- [5] J. B. Pethica, R. Hutchings, et W. C. Oliver, Philosophical Magazine, vol A48(4) (1983) pp. 593-606.
- [6] J. L. Loubet, J. M. Georges, O. Marchesini et G. Meille. Vickers indentation Curves of Magnesium Oxide (MgO). Journal of Tribology, vol 106 (1984) pp. 43-48
- [7] W.C. Oliver d and J.B. Pethica; Method for continuous determination of the elastic stiffness of contact between two bodies; US Patent N<sup>o</sup>. 4848141.v
- [8] J.B, Pethica ; Ion Implantation into metals, Proceedings of the 3<sup>rd</sup> international Conference on Modification of surface Properties of Metals by Ion Implantation, Manchester, (1981) 147.
- [9] K. Sangwall, P. Gorostiza, F. Sanz, J. Borc; Study of the nature and distribution of elementary steps on the (001) cleavage faces of MgO single crystals; phil. Mag. A 80 (2000) 2325.
- [10] D. Kramer, H. Huang, M. Kresse, J. Nelson, A. Wright, D. Barh, W. Gerberich; Yield strength predictions from the plasticity zone around nanocontacts; Acta Mater., 47(1999) 333.
- [11] H. Hertz; on the contact of elastic solids. J Reine Angew Math 92 (1881) 156-171. Translated and reprinted in English. In Hertz's miscellaneous papers. London: Macmillan&Co., 1896 [chapter 5]
- [12] H. Hertz; On hardness. Verch Ver Beforderung Gewerbe Fleisses 61 (1881) 410. Translated and reprinted in English. In Hertz's miscellaneous papers. London: Macmillan&Co., 1896 [chapter 6]
- [13] M.F. Doerner and W.D. Nix, A method for interpreting the data from depth-sensing indentation instruments. J. Mater., 1(4) (1986) 601-609.
- [14] I. N. Sneddon, the relation between load and penetration in the axisymmetric Boussineq problem for a punch of arbitrary profile; Int. J. Eng. Sci. 3 (1965) 47.
- [15] W. Yu and J. Blanchard, Analytical Models for Hardness; J. Mater. Res. 11 (1996) 1.
- [16] W.C. Oliver, G.M. Pharr, An improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments. J. Mater. Res. 7 (6) (1992) 1564-1583



- [17] G.M. Pharr and A. Bolshakov. Understanding nanoindentation unloading curves *J. Mater. Res.*, 17(10) (2002) 2660-2671.
- [18] W.C.Oliver, G.M. Pharr; Measurement of hardness and elastic modulus by instrumented indentation: Advances in understanding and refinements to methodology; *J. Mater. Res.* Vol. 19, N°1, (2004); 3-20.
- [19] M. Martin and M. Troyon. Fundamental relation used in nanoindentation : Critical examination based on experimental measurements. *J. Mater. Res.* 17(9) 2227-2234; 2002.
- [20] J.Woigard and J.C. Daegenton. An alternative method for penetration depth determination in nanoindentation measurement. *J. Mater. Res.*, 12(9); 2455-2458; 1997
- [21] R.B. King. Elastic anlysis of some punch problems for layered medium. *Int. J. Solids struct.*, 23(12) (1987) 1657-1664.
- [22] J.S. Field, M.V. Swain. A simple predictive model for spherical indentation. *J. Mater. Res.*, Vol. 8 N0.2 Feb 1993.
- [23] A.C. Fischer-Cripps, A review of analysis methods for sub-micron indentation testing; *Vacuum* 58 (4) (2000) 569-585
- [24] T.Y. Tsui and G.M. Pharr, Substrate effet on nanoindentation mechanical property measurement of soft films on hard substrates. *J. Mater. Res.*, 14(1): 292-301, 1999.
- [25] A. Bolshakov, G. M. Pharr; Influences of pile-up on the measurement of mechanical properties by load and depth sensing indentation techniques; *Journal of Materials Research* 13 (4), 1049-1058 (1998).
- [26] Cheng Y.T. and Cheng C.M. Relationships between hardness, elastic modulus and the work of indentation. *App. Phys. Lett.*, 73(5); 614-616; 1998.
- [27] J. Malzbender and G. De With. The  $P-h^2$  relationship in indentation. *J. Mater. Res.*, 15(5); 1209-1212; 2000.
- [28] S.J. Bull. Extracting hardness and Young's modulus from load displacement curves. *Z. Metallkd.*, 93; 870-974; 2002.
- [29] P.L. Larsson, A.E. Giannakopoulos, E. Soderlund, D.J. Rowcliffe, and R. Vestergaard. Analysis of Berkovich indentation. *Int. J. Solids Struct.*, 33(2) 221-248; 1996.
- [30] J.C. Hay, A.Bolshakov, and G.M. Pharr. A critical examination data. *J. Mater. Res.*, 14(6) 2296-2305; 1999
- [31] H. Bückle, in J.W. Westbrook, H. Conrad (Eds.), *The Science of Hardness Testing and its Applications*, American Society for Metals, Metals Park, OH, 1973, p. 453.

- [32] R. Kouitat-Njiwa, J. von Stebut ; Boundary element numerical analysis of elastic indentation of a sphere into a bi-layer material; *International Journal of Mechanical Sciences* 45 (2003) 317-324.
- [33] F. Cleymand, O. Ferry, R. Kouitat, A. Billard, J. Von Stebut; *Surface & Coatings Technology* 200 (2005) 890-893.
- [34] A. C. Fischer-Cripps; Critical review of analysis and interpretation of nanoindentation test data; *Surface & Coating Technology*; 200 ( 2006) 4153-4165.
- [35] J. An, Q. Y. Zhang; Structure, morphology and nanoindentation behaviour of multilayered TiN/TaN coatings; *Surface and Coating Technology*; 200; 2451-2458 (2005).
- [36] N. J. M. Carvalho, J. Th. M. De Hosson, Deformation mechanisms in TiN/(Ti,Al)N multilayer under depth-sensing indentation; *Scripta Materialia* ; 54; 1857-1862 (2006).
- [37] Z. H. Xie, M. Hoffman, P. Munroe, A. Bendavid, P. J. Martin ; Deformation mechanisms of TiN multilayer coatings alternated by ductile or stiff interlayer; *acta Materialia*; 56; 852-861 (2008).
- [38] B.R. Lawn; Indentation of ceramics with spheres: a century after Hertz. *Journal of American Ceramics society* 81, 1977-1994 (1998).
- [39] K. V. Sampath, R. Narasimhan; A numerical analysis of spherical indentation response of thin hard films on soft substrates; *International Journal of Solids and Structures* 43, 6180-6193 (2006)
- [40] E. Weppelmam, M. V. Swain; Investigation of the stresses and stress intensity factors responsible for fracture of thin protective films during ultra-micro indentation test with spherical indenters; *Thin Solids Films* 286, 111-121 (1996).
- [41] R. Kouitat-Njiwa, R. Consiglio, J. Von Stebut; Boundary element modelling of coated materials in static and sliding ball-flat elastic contact; *Surface and Coating technology* 102 (1998) 148-153.
- [42] Knapp JA, Follstaedt DM , Barbour JC, Myers SM,(1997) Finite-element modelling of nanoindentation for determining the mechanical properties of implanted layers and thin films, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* 127/128 , 935-939 .
- [43] Chen X, Vlassak J. ; Numerical study on the measurement of thin film mechanical properties by means of nanoindentation, *J. Mater. Res.* 16, 10
- [44] Bouzakis K-D, Michailidis N,(2004) Coating elastic-plastic properties determined by means of nanoindentation and FEM-supported evaluation algorithms, *Thin Solid Films*, 469-470, 227-232.

- [45] Bressan JD, Tramontin A, Rosa C,(2005) Modelling of nanoindentation of bulk and thin film by finite element method, *Wear* 258 , 115-122;
- [46] M. Mata, O. Casals, J. Alcalá; The plastic zone size in indentation experiments: The analogy with the expansion of a spherical cavity; *International Journal of Solids and Structures* 43 (2006) 5994-6013.
- [47] Balas J, Sladek J, Sladek V Stress analysis by boundary element methods. Amsterdam, Elsevier Science Publishers. (1989)
- [48] Henry DP, Banerjee PK, A variable stiffness type boundary element formulation for axisymmetric elastoplastic media. *Int. J. Numer. Meth. Eng.* 26 (1988) 1005-1027
- [49] Bonnet M, Mukherjee S, Implicit BEM formulations for usual and sensitivity problems in elasto-plasticity using consistent tangent operator concept. *Int. J. solids and structures* 30(1996) 4461-4480.
- [50] Christensen PW, Klarbring A, Pang JS, Strömberg N., Formulation and comparison of algorithms for frictional contact problems. *Int. J. Numer. Meth. Engng.* 42(1998) 145-173.
- [51] D. Tabor, *The hardness of metals* Oxford University Press, London, (1951).
- [52] H.A. Francis. Phenomenological analysis of plastic spherical indentation. *Transaction of ASME journal of engineering materials and technology* (July), 272-281 (1976).
- [53] Y.J. Park and G.M. Pharr. Nanoindentation with spherical indenters: finite element studies of deformation in the elastic-plastic transition regime. *Thin Solids Films* 447-448, 246-250 (2004).
- [54] C. Hardy, C. N. Baronet and G. V. Tordion. The elasto-plastic indentation of a half-space by a rigid sphere. *International Journal of Numerical Methods in Engineering*; 3, 451-462 (1971).
- [55] M. A. Garrido Maneiro ;J. Rodriguez ; Pile-up effect on nanoindentation tests with spherical-conical tips; *Scripta Materialia* 52; 593-598 (2005).
- [56] J. Rodriguez, M. A. Garrido Maneiro ; A procedure to prevent pile up effects on the analysis of spherical indentation data in elastic-plastic materials; *Mechanics of Materials*; 39; 987-997 (2007).
- [57] M. A. Garrido Maneiro ;J. Rodriguez ; A new consideration on spherical depth sensing indentation ; *Materials Letters*; 68; 69-72 (2008).
- [58] T. T. Zhu, A. J. Bushby, D. J. Dunstan; Size effect in the initiation of plasticity for ceramics in nanoindentation; *Journal of the Mechanics and Physics of solids*; 56; 1170-1185 (2008).

- [59] S. Qu, Y. Huang, G. M. Pharr and K. C. Hwang ; The indentation size effect in the spherical indentation of iridium : A study via the conventional theory of mechanism-based strain gradient plasticity ; *International Journal of Plasticity* ; 22 ; 1265-1286 (2006).
- [60] J. G. Swadner, E. P. George, G. M. Pharr; The correlation of the indentation size effect measured with indenters of various shapes; *Journal of the Mechanics and Physics of solids*; 50; 681-694 (2002).
- [61] K.L. Johnson, The correlation of indentation experiments. *J. Mech. Phys. Solids* 18 (1970) 115-126.
- [62] J. G. Swadner, A. Misra, R. G. Hoagland and M. Nastasi; A mechanistic description of combined hardening and size effects; *Scripta Materialia*; 47; 343-348 (2002).
- [63] Liu 2001, Y. Liu and A.H.W. Ngan; Depth dependence of hardness in copper single crystals measured by nanoindentation; *Scripta mater*; 44; 237-241 (2001).
- [64] A. A. Elmustafa, D.S. Stone; Nanoindentation and the indentation size effect: Kinetics of deformation and strain gradient plasticity; *Journal of the Mechanics and Physics of solids*; 51; 357-381; (2003).
- [65] K. S. Lee, S. Wuttiphan, X. Z. Hu, S. K. Lee and B. R. Lawn; contact-induced transverse fractures in brittle layers on soft substrates: a study on silicon nitride bilayers; *Journal of American Ceramics society* 81, 571-580 (1998).
- [66] H. Djebella, R. D. Arnell; Finite element analysis of the contact stresses in an elastic coating on an elastic substrate. *International Journal of Solids and Structures* 29, 205-219 (1992).
- [67] J. Li, T. W. Chou; Elastic field of a thin film/substrate system under an axisymmetric loading; *International Journal of Solids and Structures* 34, 4463-4478 (1997).
- [68] R. Kouitat Njiwa, J. von Stebut; Boundary element numerical modelling as a surface engineering tool: application to very thin coatings; *Surface of coating technology* 116-119 (1999) 573-579.
- [69] C. H. Hsueh, P. Miranda; Combined empirical-analytical method for determining contact radius and indenter displacement during Hertzian indentation on coating/substrate systems. *Journal of Material Research* 19, 2774-2781 (2004).
- [70] P. M. Ramsey, H. W. Chandler, T. F. Page; Modelling the contact response of metallic glasses. *Acta Materialia* 52, 3335-3345, (1991).
- [71] M. R. McGurk, T. F. Page ; Exploration of plate bending model for predicting the hardness response of coated systems; *Surface of coating technology* 92, 87-95 (1997).

- [72] A.C. Fischer-Cripps, B. R. Lawn, A. Pajares, L. Wie ; Stress analysis of elastic-plastic contact damage in ceramic coatings on metal substrates; *Journal of American Ceramics society* 79, 2619-2625 (1996)
- [73] K. Sriram, R. Narasimhan, S. K. Biswas; A numerical fracture analysis of indentation into thin hard films on soft substrates; *Engineering Fracture Mechanics* 70, 1323-1338 (2003).
- [74] S. P. Timoshenko, S. Winowsky-Kreiger; *Theory of plate and shells*. MacGraw Hill publishing Company, New York (1959).
- [75] R. Hill, B. Storakers, A.B. Zdunek. A theoretical study of the brinell hardness test. *Proceedings of the royal Socitey of London A* 423, 301-330 (1989).
- [76] S. Biwa and B. Storakers. An analysis of fully plastic Brinell indentation. *Journal of Mechnics and Physics of Solids* 43 (8) 1303-1333 (1995).
- [77] S. Field and M. V. Swain. Determining the mechanical properties of small volumes of material from submicron spherical indentations. *Journal of Material Research* 10 (1), 101-112 (1995).
- [78] B. Taljat and G. M. Pharr. Development of pile-up during spherical indentation of elastic-plastic solids; *International Journal of Solids and Structures* 41, 3891-3904 (2004).
- [79] J. von Stebut, F. Lapostolle, M. Busca M, H. Vallen. Acoustic emission monitoring of single cracking events and associated damage mechanism analysis in indentation and scratch testing, *Surface and coatings technology* 116-119, 160-171, (1999).
- [80] B. Boubeker, J. P. Eymery, M.F. Denanot, E.L.H. Sayouty; *J. Magn.* 133; 470 (1994a).
- [81] B. Boubeker, J. P. Eymery, P. Goudeau, K. Bouslykhane, J.P. Villain; *Ann. Chim.* 19; 377; (1994b).
- [82] S. Jean Michel ; *Etude du Viellissement et de la Fragilisation d'aciers inoxydables austénoferritiques ; Mises en œuvre de l'essai de microindentation instrumentée ; thèse de doctorat en science et ingénierie des matériaux ; Institut National Polytechnique de Lorraine (INPL) ; Soutenue le 29 Octobre 1997.*
- [83] J. Shuman David, L. M. Costa André, S. Andrade Margareth; Calculating the élastic modulus from nanoindentation and microindentation reload curves; *Materials characterization*; 58; 380-389 (2007).
- [84] Linmao Qian, Ming Li, Zhongrong Zhou, Hui Yang, Xinyu Shi; Comparison of nano-indentation hardness to microhardness; *Surface and Coating Technology*; 194; 264-271 (2005).
- [85] L ; Riestter, P.J. Blau, Lara-Curzio, K. Breder ; Nanoindentation with a Knoop indenter ; *Thin Solid Films* ; 377-378 ; 635-639 (2000).

- [86] L. Robert, N. Brunet, T. Flaherty, T. Randles, E. Matthaei-Schulz, H. Vettters, D. Rats and J. Von Stebut; Characterization of TiN and carbon-doped chromium thin film coatings by acoustic microscopy; *Surface and Coating Technology*; 116-119; 327-334 (1999).
- [87] C. Comte, J. von Stebut ; Microprobe-type measurement of Young's modulus and Poisson coefficient by means of depth sensing indentation and acoustic microscopy; *Surface and Coating Technology*; 154; 42-48 (2002).
- [88] A. C. Fischer-Cripps; A review of analysis methods for sub-micron indentation testing; *Vacuum*; 58; 569-585; (2000).
- [89] Xiangyang Zhou, Zhuangde Jiang, Hairong Wang and Ruixia Yu ; Investigation on methods for dealing with pile-up errors in evaluating the mechanical properties of thin metal films at sub-micron scale on hard substrates by nanoindentation technique; *Materials Science and Engineering A* 488; 318-332 (2008).
- [90] Wu-Gui Jiang, Jian-jun Su, Xie-Qiao Feng; Effet of surface roughness on nanoindentation test of thin films; *Engineering Fracture Mechanics* (2008).
- [91] D. Nix William, Gao Huajian ; *Journal of the Mechanics and Physics of solids*; vol. 46; No. 3; pp. 411-425 (1998).
- [92] H. Gao, Y. Huang, W. D. Nix, J. W. Hutchinson; *Journal of the Mechanics and Physics of solids* 47 (1999) 1239-1263;
- [93] Gang Feng ; D. Nix William; Indentation size effect in MgO; *Scripta Materialia*; 51; 599-603 (2004).
- [94] A. C. Fischer-Cripps, P. Karvankova, S. Veprek ; On the measurement of hardness of super-hard coatings ; *Surface & Coating Technology*; 200; 5645-5654 (2006).
- [95] V. Jayaram, S. Bhowmick, Z.-H. Xie, S. Math, M. Hoffman, S.K. Biswas; Contact deformation of TiN coatings on metallic substrates; *Materials Science and Engineering A* 423; 8-13; (2006).
- [96] Wu-Ling Pan, Gre-Ping Yu, Jia-Hong Huang; Mechanical properties of ion-plated TiN films on AISI D2 steel; *Surface and Coating Technology*; 110; 111-119 (1998).
- [97] G. Bolelli, V. Cannillo, L. Lusvardi, F. P. Mantini, E. Gualtieri, C. Menozzi; An FIB study indentation testing on plasma-sprayed TiO<sub>2</sub>; *Materials Letters* 62 1557-1560 (2008).
- [98] J. Boussinesq Application des potentiels à l'étude de l'équilibre et du mouvement des solides élastiques ; Paris Gauthier-Villars, 1885.
- [99] S. Timoshenko, J.N. Goodier, *Theorie de l'élasticité* librairie polytechnique CH. Béranger, 1961.
- [100] A.E.H. Love *Philos. Trans. A.* 228, 377 (1929).

- [101] M. T. Huber. Zur Theorie der Berührung Fester Elestische Körper. Ann. der Phys. 14(62), (1904).
- [102] W. B. Morton and L. J. Close. Notes on Hert' theory of contact problems. Philosophical Magazine, 43(62), 320 (1922).

## Annexe 1 : champs des déplacement et contraintes issus du contact de Hertz

Le problème de contraintes produites dans un demi-espace élastique par une distribution de forces normales ou tangentielles a été d'abord envisagé par Boussinesq [98]. Ce dernier, en utilisant la théorie des potentiels, a établi clairement l'expression du champ de contrainte élastique créé par une force ponctuelle normale [99]. Il s'intéresse également au cas d'un matériau élastique soumis à une distribution de pression  $p(x, y)$  axisymétrique. Toutefois la solution qu'il obtient ne lui autorise aucun calcul numérique et reste sous sa forme analytique [2 100] exprimée par le potentiel suivant :

$$H_1 = \int_0^a \int_0^a p(x, y) [z \ln(\rho + z) - R] dx dy \quad \text{A.1}$$

Avec  $\rho = (x^2 + y^2 + z^2)^{1/2}$

Ces résultats sont utilisés dans le cadre du contact de Hertz (sphère rigide/plan) pour établir des expressions analytiques de déplacements et contraintes ayant des solutions numériques.

Considérons un matériau massif  $(E_m, \nu_m)$  auquel est exercée une pression de Hertz sous l'application d'une charge normale  $F$  par le biais d'un indenteur sphérique rigide  $(E_i, \nu_i)$  de rayon  $R$ . Soit  $a$  ( $a \ll R$ ) le rayon de la surface de contact. Le contact entre les deux matériaux s'effectue dans une surface circulaire de rayon  $a$  ( $a \ll R$ ).

Les distributions de déplacements normale et radiale dans la surface de contact sont respectivement données par, en notant  $r = (x^2 + y^2)^{1/2}$  :

$$U_z(r \leq a) = \frac{1-\nu^2}{E} \frac{\pi p_0}{4a} (2a^2 - r^2) \quad \text{A.2}$$

$$U_r(r \leq a) = -\frac{(1-2\nu)(1+\nu)}{3E} \frac{a^2}{r} p_0 \left( 1 - \left( 1 - \frac{r^2}{a^2} \right)^{3/2} \right) \quad \text{A.3}$$

$$U_r(r > a) = -\frac{(1-2\nu)(1+\nu)}{3E} \frac{a^2}{r} p_0 \quad \text{A.4}$$



Avec  $E$  et  $\nu$  les module de Young et coefficient de poisson respectifs du matériau,  $p_0$  est la pression maximale de contact donnée par l'expression 1-8 (Cf. Chp.1 page 16). Les composantes de déformations résultantes de la distribution de pression de Hertz sont définies par  $\varepsilon^{rr} = \frac{\partial U}{\partial r}$  et  $\varepsilon^{\theta\theta} = \frac{U}{r}$ . Ainsi les composantes de contraintes normale ( $\sigma^{zz}(r)$ ), radiale ( $\sigma^{rr}(r)$ ) et tangentielle ( $\sigma^{\theta\theta}(r)$ ) sont respectivement données par les expressions suivantes [2] :

***A la surface  $Z = 0$  et l'intérieur de la zone de contact ( $r \leq a$ ) :***

$$\sigma^{zz}(r) = -p_0 \left(1 - \frac{r^2}{a^2}\right)^{1/2} \quad \text{A.5}$$

$$\sigma^{rr}(r) = -\frac{1-2\nu}{3} p_0 \frac{a^2}{r^2} \left\{1 - \left(1 - \frac{r^2}{a^2}\right)^{3/2}\right\} - p_0 \left(1 - \frac{r^2}{a^2}\right)^{1/2} \quad \text{A.6}$$

$$\sigma^{\theta\theta}(r) = -\frac{1-2\nu}{3} p_0 \frac{a^2}{r^2} \left\{1 - \left(1 - \frac{r^2}{a^2}\right)^{3/2}\right\} - 2\nu p_0 \left(1 - \frac{r^2}{a^2}\right)^{1/2} \quad \text{A.7}$$

On peut bien remarquer qu'au bord de la zone de contact ( $r = a$ ) :

$$\sigma^{zz}(r) = 0 \quad \text{et} \quad \sigma^{rr}(r) = -\sigma_{\theta}(r) = \frac{1-2\nu}{3} p_0 \quad \text{A.8}$$

***A la surface ( $Z = 0$ ) et l'extérieur de la zone de contact ( $r > a$ ) :***

$$\sigma^{zz}(r) = 0 \quad \text{et} \quad \sigma^{rr}(r) = -\sigma_{\theta}(r) = \frac{1-2\nu}{3} p_0 \frac{a^2}{r^2} \quad \text{A.9}$$

***Le long de l'axe d'indentation  $Z$  ( $r = 0$ ) appelé aussi axe de symétrie :***

$$\sigma^{zz}(z) = -p_0 \left(1 + \frac{z^2}{a^2}\right)^{-1} \quad \text{A.10}$$

$$\sigma^{rr}(z) = \sigma^{\theta\theta}(z) = -(1-\nu) p_0 \left\{1 - \frac{z}{a} \tan^{-1}(a/z)\right\} + \frac{1}{2} p_0 \left(1 + \frac{z^2}{a^2}\right)^{-1} \quad \text{A.11}$$

En particulier à la surface ( $Z = 0$ ) et sur l'axe de symétrie  $Z$  ( $r = 0$ ) on a :

$$\sigma^{ZZ}(r) = -p_0 \quad \text{et} \quad \sigma^{rr}(r) = \sigma^{\theta\theta}(r) = -\frac{3(1-\nu)}{2} p_0 \quad \text{A.12}$$

Les distributions de contraintes aux autres points à travers les solides sont calculées par Huber [101] et Morton & Close [102].

Le long de l'axe de symétrie  $Z$ , les composantes de contrainte ( $\sigma^{ZZ}(z), \sigma^{rr}(z), \sigma^{\theta\theta}(z)$ ) sont des contraintes principales. Ainsi la contrainte principale de cisaillement s'écrit :

$$\tau_0 = \frac{1}{2} |\sigma^{ZZ}(z) - \sigma^{\theta\theta}(z)| \quad \text{A.13}$$

Cette contrainte atteint sa valeur maximale ( $(\tau_0)_{\max} = 0,32 p_0 = 0,48 p_m$ ) dans le matériau à une profondeur  $z = 0,48a$  dans le cas du contact de Hertz (sphère rigide/plan).

AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE  
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL  
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

**Monsieur Hamid ZAIDI, Professeur, Université de Poitiers**

**Monsieur Moussa GOMINA, Chargé de Recherche, ENSICAEN-CRISMAT, Caen**

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

**Monsieur OUMAROU Noura**

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,  
une thèse intitulée :

**"La caractérisation mécanique de systèmes film-substrat par indentation instrumentée  
(nanoindentation) en géométrie sphère-plan"**

en vue de l'obtention du titre de :

DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « Science et ingénierie des matériaux »

Fait à Vandoeuvre, le 16 décembre 2008

Le Président de l'I.N.P.L.,

F. LAURENT



NANCY BRABOIS  
2, AVENUE DE LA  
FORET-DE-HAYE  
BOITE POSTALE 3  
F - 5 4 5 0 1  
VANDŒUVRE CEDEX

## **Résumé :**

L'indentation instrumentée (nanoindentation) est une technique d'analyse des données expérimentales utilisées pour atteindre les propriétés mécaniques de matériaux (dureté  $H$ , module de Young  $E$ ) pour lesquels les techniques classiques sont difficilement applicables voire non envisageables. Ces paramètres mécaniques sont issus de l'exploitation de la seule courbe expérimentale charge-décharge. L'analyse de cette dernière repose sur des nombreux modèles reportés dans la littérature (Oliver et Pharr, Field et Swain, Doener et Nix, Loubet et al.) qui considèrent la décharge purement élastique.

De nombreuses expériences que nous avons menées, sur divers types de matériaux massifs (aciers inoxydables AISI304, AISI316, AISI430; aciers rapides HSS652; verre de silice  $\text{SiO}_2$ ) et revêtus de films minces de TiN et  $\text{TiO}_2$  ont montré que les propriétés mécaniques ( $E$  et  $H$ ), déduites de la méthode de Oliver et Pharr, dépendent du pourcentage de la courbe de décharge considéré, de la charge appliquée et du rayon de la pointe. De plus, pour un système film-substrat, la technique est en général utilisée pour atteindre les propriétés in-situ du film ou du substrat, alors que la méthode de dépouillement fournit des paramètres composites qu'il faut ensuite déconvoluer.

Dans la recherche d'une stratégie simple, permettant d'accéder au module élastique d'un film « dur » pour les applications mécaniques, nous avons fait appel à la simulation numérique. Le code de simulation numérique utilisé, est basé sur la méthode des éléments de frontière. Nos investigations numériques utilisant l'indentation sphérique nous ont permis de mettre en évidence un certain nombre de résultats utiles pour l'analyse des données expérimentales. Nous avons commencé par montrer que aussi bien pour un matériau massif homogène élastoplastique que pour un système film dur – substrat élastoplastique, la relation  $\delta = a^2/R$  demeure valable ( $R$  étant le rayon de l'indenteur,  $a$  le rayon de l'aire projetée de contact). Cela permet de représenter les résultats de l'essai d'indentation sphérique par la courbe pression moyenne  $F/\pi a^2$  – déformation  $a/R$ . Au début du chargement, la pente cette courbe est proportionnelle au module de Young du film tandis que la pente initiale de la courbe de décharge est proportionnelle au module d'élasticité du substrat. Une relation entre le déplacement de l'indenteur et  $\delta$ , puis une méthode d'analyse d'indentation ont été établies. Enfin, la procédure a été validée numériquement et expérimentalement sur les données issues de l'indentation de divers combinaisons film-substrat (TiN/AISI430, TiN/HSS652 et  $\text{TiO}_2$ /HSS652) avec succès.

**Mots clés :** Indentation Instrumentée, Nanoindentation, Déformation Elastoplastique, Contraintes Interne et Résiduelle, « sink-in », « pile-up », Module de Young, Dureté.

## **Abstract :**

Depth sensing Indentation (nanoindentation) is an experimental technique increasing retained for the assessment of the mechanical properties of materials (hardness  $H$ , Young's modulus  $E$ ) for which common homogeneous mechanical tests can not be performed or are extremely difficult to perform. The mechanical parameters are obtained from the indentation curve (the plot of the load vs penetration depth during both load and unload). Usually, some methodology reported in the literature (Oliver and Pharr, Field and Swain, Doener and Nix, Loubet and *al.*) are used in order to assess  $E$  and  $H$ .

We have performed a number of experiments on homogeneous materials (stainless steel AISI304, AISI316, AISI430; high-speed steel HSS652; glass  $\text{SiO}_2$ ) as well as a film-substrate system (TiN/AISI430, TiN/HSS652,  $\text{TiO}_2$ /HSS652). Applying the Oliver and Pharr methodology,  $E$  and  $H$  vary with the applied load as well as the percentage of used unload curve retained for the analysis, as reported in the literature. Besides, in the case of the film-substrate system, only composite parameters are obtained instead of the in-situ films properties.

In order to establish a simple strategy for the determination of the elastic modulus of a hard coating, we have carried out many simulations using a boundary element based numerical tool. Then a number of useful results have been identified. The well known elastic relation  $\delta = a^2/R$  between the relative approach  $\delta$ , the projected contact radius  $a$  and the punch radius  $R$ , remain valid in the plastic range for homogeneous as well as film-substrate specimens. This allows data indentation to be represented in term of mean pressure  $F/\pi a^2$  vs indentation strain  $a/R$ . The initial slope of the loading part of the latter curve is proportional to the elastic modulus of the film, while the slope of the initial part of the unloading curve is proportional to the substrate elastic modulus. Our indentation procedure analysis has been validated experimentally on a number of samples (TiN/AISI430, TiN/HSS652,  $\text{TiO}_2$ /HSS652) after having established a relation between the punch displacement and the relative approach  $\delta$ .

**Keywords :** Depth sensing Indentation, Nanoindentation, Elastoplastic Strain, Internal and Residual Stresses, “sinks in”, “pile-up”, Young's modulus, Hardness.