



**HAL**  
open science

# Mécanismes de déformation précédant et accompagnant le phénomène de pop-in lors d'un essai de nanoindentation sur un monocristal d'oxyde de magnésium

Alex Montagne

► **To cite this version:**

Alex Montagne. Mécanismes de déformation précédant et accompagnant le phénomène de pop-in lors d'un essai de nanoindentation sur un monocristal d'oxyde de magnésium. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université de Poitiers, 2010. Français. NNT : . tel-00664296

**HAL Id: tel-00664296**

**<https://theses.hal.science/tel-00664296>**

Submitted on 30 Jan 2012

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

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

# THESE

*Pour l'obtention du Grade de*

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE POITIERS

Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées

Diplôme National - Arrêté du 7 août 2006

Ecole Doctorale Sciences et Ingénierie en Matériaux, Mécanique, Energétique et  
Aéronautique

Secteur de Recherche : Milieux Denses, Matériaux et Composants

*Présentée par :*

**Alex MONTAGNE**

---

**Mécanismes de déformation précédant et accompagnant le  
phénomène de pop-in lors d'un essai de nanoindentation sur un  
monocristal d'oxyde de magnésium**

---

*Directeurs de Thèse :*

**Jean-François BARBOT**

**Christophe TROMAS**

**Valérie AUDURIER**

Soutenue le 24 Novembre 2010 devant la Commission d'Examen

## JURY

<b>J. RABIER</b>	Directeur de recherche CNRS, Institut Pprime, Poitiers	Président
<b>G. DIRRAS</b>	Professeur des Universités, LPMTM, Paris XIII	Rapporteur
<b>M. LEGROS</b>	Chargé de recherche CNRS (HDR), CEMES, Toulouse	Rapporteur
<b>M. FIVEL</b>	Directeur de recherche CNRS, SIMAP, St Martin d'Hères	Examinateur
<b>C. TROMAS</b>	Maître de conférences, Institut Pprime, Poitiers	Examinateur
<b>V. AUDURIER</b>	Maître de conférences, Institut Pprime, Poitiers	Examinatrice



# THESE

*Pour l'obtention du Grade de*

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE POITIERS

Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées

Diplôme National - Arrêté du 7 août 2006

Ecole Doctorale Sciences et Ingénierie en Matériaux, Mécanique, Energétique et  
Aéronautique

Secteur de Recherche : Milieux Denses, Matériaux et Composants

*Présentée par :*

**Alex MONTAGNE**

---

**Mécanismes de déformation précédant et accompagnant le  
phénomène de pop-in lors d'un essai de nanoindentation sur un  
monocristal d'oxyde de magnésium**

---

*Directeurs de Thèse :*

**Jean-François BARBOT**

**Christophe TROMAS**

**Valérie AUDURIER**

Soutenue le 24 Novembre 2010 devant la Commission d'Examen

## JURY

<b>J. RABIER</b>	Directeur de recherche CNRS, Institut Pprime, Poitiers	Président
<b>G. DIRRAS</b>	Professeur des Universités, LPMTM, Paris XIII	Rapporteur
<b>M. LEGROS</b>	Chargé de recherche CNRS (HDR), CEMES, Toulouse	Rapporteur
<b>M. FIVEL</b>	Directeur de recherche CNRS, SIMAP, St Martin d'Hères	Examineur
<b>C. TROMAS</b>	Maître de conférences, Institut Pprime, Poitiers	Examineur
<b>V. AUDURIER</b>	Maître de conférences, Institut Pprime, Poitiers	Examinatrice



*Pour mon père,  
J'aurais été fier de lui montrer les fruits de mon travail.*



**« Crystals are like people: it is the defects in them that make them interesting. »**

*Sir F. Charles Frank, physicien britannique (1911-1998)*



# Remerciements

Ce manuscrit est la pierre finale de trois années de recherche débutées au Laboratoire de Métallurgie Physique, puis poursuivies au Laboratoire de Physique des Matériaux et enfin achevées au Département de Physique et Mécanique des Matériaux de l'Institut Pprime. Ces trois années ont été très enrichissantes, malheureusement trop courtes, surtout vers la fin. Elles ont été l'occasion de nombreuses rencontres, et je souhaite ici remercier une partie des personnes qui ont fait de cette thèse ce qu'elle est aujourd'hui.

Tout d'abord, je remercie Jacques Woïrgard et Jean François Barbot qui ont accepté d'être mes directeurs de thèse successifs. Je remercie aussi chaleureusement mes co-directeurs Christophe Tromas et Valérie Audurier pour leur enthousiasme, leur disponibilité, leurs conseils et le savoir qu'ils m'ont transmis et permis de découvrir. Je remercie tout particulièrement Christophe Tromas pour sa patience, sa bienveillance et son extraordinaire capacité à m'éviter tout désœuvrement ; qu'il trouve ici toute l'expression de ma gratitude.

Je tenais également à remercier Guy Dirras, professeur des Universités, et Marc Legros, chargé de recherche au CNRS, pour avoir accepté de participer au Jury de cette thèse et d'avoir accepté le difficile exercice du rapport du manuscrit. Mes remerciements vont également à Marc Fivel et Jacques Rabier, directeurs de recherche au CNRS, pour m'avoir fait l'honneur d'être membres du Jury et pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail.

Un grand merci à Marc Fivel, il m'a formé à l'utilisation et à la modification du code de dynamique de dislocations discrètes. Il ne m'a jamais laissé sans réponse face aux difficultés que représente la modification d'un tel code.

Je remercie également Frédéric Pailloux, pour les très belles images de microscopie électronique en transmission. Il m'a également montré qu'il était très facile de préparer une lame mince... quand on sait faire. Merci aussi à Thierry Girardeau pour les analyses XPS, à Marc Marteau pour avoir réalisé les différentes implantations, à Marie-Laure David et Marie-France Beaufort pour leurs conseils et leur aide fort utile à l'utilisation de SRIM. Je tenais également à remercier Laurent Pizzagalli et Julien Guénoles pour l'utilisation du cluster PhyMat, pour m'avoir appris à dompter la bête peu coopérative et à comprendre son langage ésotérique. Enfin je remercie l'ensemble des personnes du laboratoire avec qui j'ai eu la chance de collaborer durant ces trois années.

J'ai également une pensée pour Amélie Fillon, ma colocataire du bureau 2E/28, avec laquelle j'ai partagé trois années de fou rire et de chocolat. Je remercie également mes amis

(Amélie, Florence, Nadège, Pierre et Sonia,...), et les p'tis de l'AESM avec qui j'ai partagé plus qu'une thèse.

Je pense aussi à ma famille et je remercie en particulier mes parents, Lysiane et Daniel, pour m'avoir fait aimer l'école, les devoirs du soir, les contrôles, et de m'avoir montré qu'aucune richesse n'équivaut celle du travail. Je pense aussi à ma sœur, Agnès, merci à elle pour son soutien moral sans faille à chaque fois que j'en ai eu besoin. La liste ne serait sans doute pas complète sans Loreley, avec qui j'ai pu m'aérer l'esprit lors de nos balades en campagne le dimanche après-midi.

Enfin j'ai une pensée pour mes instituteurs, professeurs des écoles, enseignants, maîtres de conférences et professeurs des Universités, qui durant ces vingt-cinq dernières années m'ont appris à apprendre, m'ont appris à aimer apprendre, merci à eux de m'avoir conduit là où j'en suis aujourd'hui.

# Sommaire

<b>Introduction générale.....</b>	<b>3</b>
-----------------------------------	----------

## Chapitre 1 : Bibliographie

<b>1. L'indentation : un outil pour l'étude des mécanismes de plasticité .....</b>	<b>9</b>
1.1. <i>De l'essai de dureté à la nanoindentation .....</i>	9
1.2. <i>Indentation et mécanismes de plasticité.....</i>	11
<b>2. Phénomène de pop-in : initiation de la plasticité .....</b>	<b>12</b>
2.1. <i>Le pop-in .....</i>	12
2.2. <i>Revue des modèles de plasticité associés au pop-in .....</i>	15
2.2.1. <i>Limite élastique théorique .....</i>	15
2.2.2. <i>Nucléation homogène de dislocations .....</i>	15
2.2.3. <i>Rupture d'une couche d'oxyde.....</i>	16
2.2.4. <i>Activation thermique.....</i>	17
2.2.5. <i>Influence des dislocations préexistantes.....</i>	18
2.2.6. <i>Effet de marches de surface.....</i>	20
2.2.7. <i>Compression de micropilliers.....</i>	22
2.3. <i>Activité de dislocations avant le pop-in .....</i>	23
<b>3. Nanoindentation dans MgO .....</b>	<b>26</b>
3.1. <i>Propriétés de l'oxyde de magnésium .....</i>	26
3.1.1. <i>Données physico-chimiques.....</i>	26
3.1.2. <i>Systèmes de glissement .....</i>	27
3.2. <i>Déformation autour d'une empreinte dans MgO sur une surface (001) .....</i>	29
3.2.1. <i>Figure de Rosette.....</i>	29
3.2.2. <i>Structure de dislocations dans MgO.....</i>	32
3.2.3. <i>Topographie.....</i>	33
3.2.4. <i>Interactions entre dislocations .....</i>	33
3.2.5. <i>Le pop-in dans MgO.....</i>	34
<b>Références bibliographiques .....</b>	<b>39</b>

## Chapitre 2 : Techniques d'analyse et développements expérimentaux

<b>1. La nanoindentation .....</b>	<b>47</b>
1.1. <i>Contact élastique sphère-plan : loi de Hertz .....</i>	47
1.2. <i>Dépouillement d'une courbe de nanoindentation.....</i>	50
1.3. <i>L'appareillage.....</i>	54
1.4. <i>Etalonnage .....</i>	57
1.4.1. <i>Complaisance machine.....</i>	57
1.4.2. <i>Etalonnage en force .....</i>	58

1.4.3. Rayon de courbure des indenteurs sphériques .....	59
1.4.3.1. Etalonnage par indentation dans la silice .....	59
1.4.3.2. Etalonnage par microscopie à force atomique.....	60
<b>2. Préparation de surface.....</b>	<b>62</b>
2.1. Exigences sur l'état de surface .....	62
2.2. Polissage mécano-chimique.....	63
2.2.1. Le principe.....	63
2.2.2. L'appareillage.....	64
2.2.3. Contrôle de l'état chimique des surfaces polies .....	64
<b>3. Observation des dislocations .....</b>	<b>66</b>
3.1. La microscopie à force atomique.....	67
3.1.1. L'appareillage.....	67
3.1.2. Application à l'étude de la plasticité .....	70
3.2. Attaque chimique.....	70
3.2.1. Protocole expérimental.....	70
3.2.2. Apport de l'attaque chimique .....	71
3.3. Couplage attaque chimique et polissage .....	72
<b>4. Récapitulatif du protocole expérimental.....</b>	<b>74</b>
<b>Références bibliographiques .....</b>	<b>75</b>

## Chapitre 3 : Mécanismes de déformation précédant le pop-in

<b>1. Introduction .....</b>	<b>81</b>
<b>2. Influence de l'état de surface sur les premiers stades de plasticité .....</b>	<b>82</b>
2.1. Caractérisation de l'état initial.....	82
2.2. Evolution du comportement au cours des différentes étapes de polissage CMP	83
<b>3. Etude des comportements réversibles .....</b>	<b>86</b>
3.1. Topographie de surface associée à un cycle d'indentation réversible .....	86
3.1.1. Comportement réversible à faible charge.....	86
3.1.2. Comportement réversible à très forte charge .....	88
3.2. Etude des cycles réversibles : confrontation au modèle de Hertz .....	92
3.3. Carte du champ de contrainte sous un indenteur sphérique .....	95
<b>4. Contrôle des structures de dislocations associées au pop-in pour des contraintes plus élevées.....</b>	<b>97</b>
<b>Références bibliographiques .....</b>	<b>101</b>

## Chapitre 4 : Influence des dislocations préexistantes

<b>Introduction .....</b>	<b>105</b>
<b>1. Génération de dislocations par clivage.....</b>	<b>106</b>
<b>2. Réponse mécanique sous indentation d'échantillons clivés .....</b>	<b>111</b>
2.1. Topographie de surface .....	111
2.2. Densité de dislocations préexistantes .....	112

<b>3. Protocole de double attaque pour étudier l'influence des dislocations préexistantes sur le pop-in.....</b>	<b>115</b>
3.1. <i>Principe de la double attaque</i> .....	115
3.2. <i>Détermination du plan de glissement</i> .....	117
3.3. <i>Localisation des empreintes</i> .....	118
<b>4. Influence de la structure de dislocations préexistantes sur le pop-in.....</b>	<b>119</b>
4.1. <i>Observations préliminaires</i> .....	119
4.2. <i>Cas de contacts réversibles</i> .....	121
4.3. <i>Cas des empreintes plastiques</i> .....	122
4.3.1. <i>Premier cas : empreinte 108</i> .....	122
4.3.2. <i>Deuxième cas : empreinte 104</i> .....	128
4.3.3. <i>Troisième cas : empreinte 64</i> .....	132
4.3.4. <i>Quatrième cas : empreinte 62</i> .....	135
4.3.5. <i>Cinquième cas : empreinte 117</i> .....	139
4.3.6. <i>Sixième cas : empreinte 120</i> .....	142
<b>Références bibliographiques .....</b>	<b>147</b>
<b>Chapitre 5 : Simulation multi échelle de l'essai de nanoindentation dans MgO</b>	
<b>1. Introduction .....</b>	<b>151</b>
<b>2. Les outils numériques .....</b>	<b>152</b>
2.1. <i>Historique</i> .....	152
2.2. <i>DDD : Discrétisation du système</i> .....	153
2.3. <i>Cinétique des dislocations</i> .....	154
2.4. <i>Maillage par éléments finis / Calculs des contraintes</i> .....	156
2.5. <i>Conditions limites et couplage DDD et FEM</i> .....	157
2.6. <i>Indentation</i> .....	158
2.7. <i>Nucléation de dislocations</i> .....	158
<b>3. Cas de boucles de dislocations dans un plan émergeant sous le contact : validation du modèle numérique .....</b>	<b>159</b>
3.1. <i>Exploration du champ de contrainte</i> .....	159
3.2. <i>Ajustement de la force de friction de réseau</i> .....	162
3.3. <i>Boucles de dislocations dans un plan émergeant sous le contact</i> .....	161
<b>4. Cas de boucles de dislocations dans un plan émergeant à l'extérieur du contact .....</b>	<b>163</b>
4.1. <i>Peu de dislocations émergées</i> .....	164
4.2. <i>Émergence d'un grand nombre de dislocations</i> .....	167
<b>5. Mise en mouvement d'une dislocation préexistante sous l'indenteur.....</b>	<b>172</b>
<b>Références bibliographiques .....</b>	<b>177</b>
<b>Conclusion générale .....</b>	<b>179</b>

<b>Annexes 1 : Comportement sous indentation d'échantillons écaillés et rugueux.....</b>	<b>187</b>
<b>Introduction .....</b>	<b>187</b>
<b>1. Echantillon fortement écaillé .....</b>	<b>187</b>
<b>2. Echantillon avec une forte rugosité .....</b>	<b>190</b>
<b>Annexes 2 : Comportement sous indentation de MgO implanté</b>	<b>195</b>
<b>Introduction .....</b>	<b>195</b>
<b>1. L'implantation ionique .....</b>	<b>196</b>
<b>2. Simulation des profils d'implantation.....</b>	<b>197</b>
<b>3. Implantation dans MgO : rappels bibliographiques .....</b>	<b>198</b>
3.1. Défauts ponctuels.....	198
3.2. Propriétés mécaniques sous indentation.....	198
<b>4. Profils d'implantation .....</b>	<b>200</b>
<b>5. Indentation dans MgO implanté.....</b>	<b>204</b>
5.1. Irradiation à moyenne fluence : $10^{15}$ ions.cm <sup>-2</sup> .....	204
5.1.1. Analyse des courbes d'indentation.....	204
5.1.2. Essai d'indentation réversible .....	205
5.1.3. Structures de dislocations dans un échantillon implanté.....	207
5.2. Irradiation à forte fluence : $10^{16}$ ions.cm <sup>-2</sup> .....	210
5.2.1. Analyse des courbes d'indentation.....	210
5.2.2. Structure de dislocations .....	212
5.2.3. Propriétés particulières de l'interface cristal/zone de défauts .....	214
5.2.4. Défauts affleurant sous le contact .....	216
<b>Références bibliographiques .....</b>	<b>223</b>

---

# **Introduction générale**



# Introduction générale

L'essai de nanoindentation a été développé initialement pour l'étude des propriétés mécaniques à l'échelle du nanomètre. La surface de contact, réduite à des échelles sub-micrométriques, fait de la nanoindentation un outil adapté à l'étude de la plasticité des matériaux fragiles, comme les céramiques. Là où des techniques conventionnelles de déformation conduisent à la fissuration de l'échantillon, la nanoindentation permet d'observer un comportement plastique. Cette capacité provient du fait que la nanoindentation permet de soumettre de très faibles volumes à de très fortes contraintes de plusieurs giga Pascals grâce au confinement élastique, assuré par l'ensemble de l'échantillon.

Le contrôle extrêmement fin du déplacement ainsi que de la force appliquée sur l'indenteur, rend la nanoindentation particulièrement utile pour l'étude des tous premiers stades de plasticité. La déformation plastique ainsi introduite peut être limitée à quelques dislocations seulement. Avec des techniques d'observation et de caractérisation adéquates, les mécanismes fins de plasticité peuvent être étudiés en termes de dislocations individuelles. De plus, les traces laissées en surface par le glissement des dislocations autour de l'empreinte donnent accès au parcours parfois complexe suivi par ces dislocations.

Dans un grand nombre de matériaux, les premiers stades de déformation plastique se manifestent sur les courbes de nanoindentation par un palier sur la courbe de charge, correspondant à une brusque pénétration de l'indenteur dans le matériau, communément désigné sous le terme de « pop-in ». La majeure partie des études rapportées dans la littérature associent ce phénomène à la nucléation en avalanche de dislocations sous l'indenteur. Si le pop-in a suscité un tel engouement depuis les quinze dernières années, c'est probablement parce qu'il renvoie à la problématique de la nucléation de dislocations dans un faible volume sous des contraintes de l'ordre de la limite élastique théorique du matériau. Par ailleurs, il s'agit d'une des rares manifestations expérimentales de la plasticité à des échelles voisines de celles accessibles par simulation atomistique.

L'objectif du travail rapporté ici est de s'intéresser aux mécanismes de déformation précédant et accompagnant l'apparition du pop-in. L'accent sera mis sur la nature homogène

## Introduction générale

---

ou hétérogène de la nucléation des dislocations. Le choix du matériau s'est porté sur l'oxyde de magnésium monocristallin (MgO), en raison de sa plasticité relativement simple, qui a déjà été largement décrite dans la littérature. Il présente l'avantage de ne posséder que peu de systèmes de glissement activables à température ambiante. Ainsi, il sera d'autant plus facile de retracer l'histoire des dislocations nucléées lors d'un essai d'indentation à partir de l'observation de la configuration finale. Par ailleurs, les exigences sur l'état des surfaces requis pour ce type d'étude peuvent être satisfaites dans le cas de MgO par clivage ou encore par polissage mécano-chimique.

L'étude de l'ensemble de la surface indentée permet de rendre compte de la distribution de dislocations nucléées au cours de l'essai. En effet, le glissement et l'émergence en surface d'une dislocation créent une marche monoatomique qui est observable par microscopie à force atomique (AFM). L'utilisation d'une technique de nano-attaque chimique sur MgO, permet de révéler les points d'émergence des dislocations en créant une nano-piqûre facilement observable par AFM. L'observation des figures d'attaque à différents niveaux de polissage donne une vue tridimensionnelle de la structure des dislocations, réalisant ainsi une tomographie de l'échantillon.

Dans une première partie nous présenterons quelques rappels bibliographiques concernant l'initiation de la plasticité sous indentation. Nous porterons une attention toute particulière aux études menées sur les mécanismes de plasticité associés au pop-in. Puis, la structure cristallographique ainsi que la plasticité de MgO seront présentées.

Dans une deuxième partie, les différents développements expérimentaux nécessaires à cette étude seront présentés. Il sera également fait rappel des principales méthodes de dépouillement des courbes de nanoindentation.

Une troisième partie sera consacrée à la caractérisation de la réponse mécanique sous indentation des surfaces préparées par polissage mécano-chimique. Sur des surface préparées par CMP, alors que le pop-in n'apparaît qu'à partir de très fortes charges appliquées, nous nous attacherons à décrire la phase de chargement réversible précédant le pop-in en regard de la théorie du contact élastique de Hertz, et des déformations observées en surface par AFM

Dans une quatrième partie nous nous intéresserons à la problématique de la nucléation hétérogène et à l'effet des dislocations préexistantes, en introduisant des dislocations de façon contrôlée avant indentation et en identifiant ces dislocations autour de chaque zone indentée. L'objectif est alors de déterminer la façon dont ces dislocations préexistantes modifient d'une

part les processus de nucléation sous indentation (activation de sources ou pas) et d'autre part la structure des dislocations générées pendant le pop-in. Grâce à un protocole de double attaque chimique, sur une même image seront visibles la position initiale des dislocations préexistantes, leur nouvelle position, ainsi que celle des dislocations introduites par nanoindentation.

Une cinquième partie sera dévolue aux simulations numériques. Les expériences menées au long des chapitres précédents se prêtent particulièrement bien à la modélisation. L'utilisation d'un indenteur sphérique, les faibles densités de dislocations ainsi que la résolution individuelle des dislocations sont des atouts pour l'utilisation de modèles numériques. L'utilisation d'un code de dynamique de dislocations discrètes, couplé à un code de calcul par éléments finis nous ont permis d'éprouver les hypothèses qui avaient pu être formulées lors des observations expérimentales sur le comportement des dislocations sous indentation au moment du pop-in.

Une étude annexe sera également présentée. L'objet de cette étude est l'effet des défauts ponctuels introduits par implantation sur la nucléation de dislocations sous indentation. Nous nous intéresserons à la modification du comportement mécanique et de l'influence de ces défauts sur le phénomène du pop-in. Les structures de dislocations introduites au moment du pop-in seront également détaillées.



---

# **Chapitre 1**

## **Bibliographie**

**Sommaire :**

<b>1. L'indentation : un outil pour l'étude des mécanismes de plasticité .....</b>	<b>9</b>
1.1. De l'essai de dureté à la nanoindentation .....	9
1.2. Indentation et mécanismes de plasticité.....	11
<b>2. Phénomène de pop-in : initiation de la plasticité .....</b>	<b>12</b>
2.1. Le pop-in .....	12
2.2. Revue des modèles de plasticité associés au pop-in .....	15
2.2.1. Limite élastique théorique .....	15
2.2.2. Nucléation homogène de dislocations .....	15
2.2.3. Rupture d'une couche d'oxyde.....	16
2.2.4. Activation thermique .....	17
2.2.5. Influence des dislocations préexistantes.....	18
2.2.6. Effet de marches de surface.....	20
2.2.7. Compression de micropilliers.....	22
2.3. Activité de dislocations avant le pop-in .....	23
<b>3. Nanoindentation dans MgO .....</b>	<b>26</b>
3.1. Propriétés de l'oxyde de magnésium .....	26
3.1.1. Données physico-chimiques.....	26
3.1.2. Systèmes de glissement .....	27
3.2. Déformation autour d'une empreinte dans MgO sur une surface (001) .....	29
3.2.1. Figure de Rosette .....	29
3.2.2. Structure de dislocations dans MgO.....	32
3.2.3. Topographie.....	33
3.2.4. Interactions entre dislocations .....	33
3.2.5. Le pop-in dans MgO.....	34
<b>Références bibliographiques .....</b>	<b>39</b>

# Chapitre 1

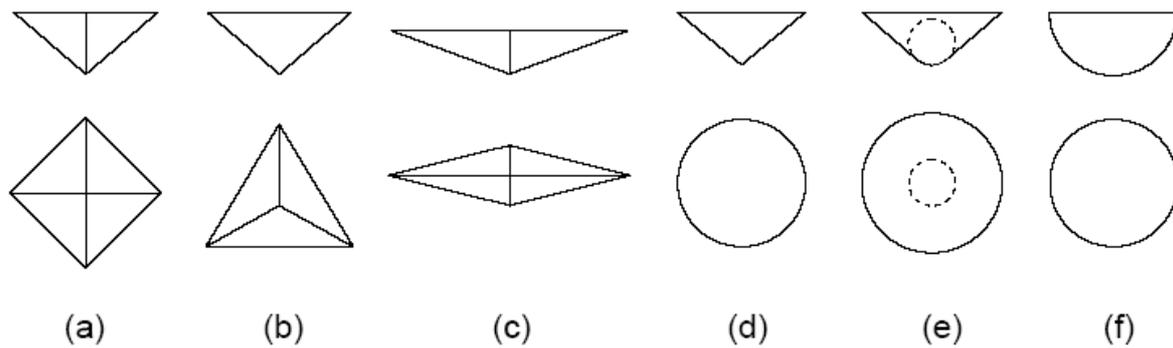
## Bibliographie

### 1. L'indentation : un outil pour l'étude des mécanismes de plasticité

#### 1.1. De l'essai de dureté à la nanoindentation

Parmi l'ensemble des propriétés mécaniques la dureté est probablement l'une des plus simples à appréhender. Elle peut être définie comme la résistance d'un matériau à la déformation plastique. La classification des matériaux en fonction de leur dureté remonte au XVIII<sup>ème</sup> siècle avec l'apparition de la première échelle, l'échelle de Mohs, dans laquelle les matériaux étaient classés en dix catégories. Chaque catégorie rayait les catégories de classes inférieures, et ainsi de suite. L'inconvénient de cette échelle est qu'elle ne permet qu'un classement relatif des matériaux et non une réelle évaluation quantitative de la dureté.

Les essais de dureté modernes consistent, de façon générale, à déformer un échantillon à l'aide d'une pointe appelée indenteur, de forme et de propriétés connues. Brinell [1] proposa une échelle de dureté en 1901, dans laquelle il évalue la dureté comme le rapport de la charge appliquée sur l'aire réelle de l'empreinte résiduelle formée par un indenteur sphérique. Cette dureté présente l'inconvénient de dépendre, pour un échantillon donné, des conditions d'expérience, c'est-à-dire de la charge et du rayon de courbure de l'indenteur. L'idée que la dureté puisse être une propriété intrinsèque du matériau conduisit à constater que le paramètre qui semble être constant pour une large gamme d'indentation est la pression moyenne de contact. C'est ainsi que la dureté Meyer [2] (1908) est définie comme le rapport de la charge appliquée sur l'aire de contact projetée. Pour les échelles Brinell et Meyer, les valeurs de dureté sont déduites de la taille de l'empreinte et de la charge appliquée. Le relevé des dimensions de l'empreinte se fait optiquement, ce qui implique des tailles d'empreinte de un à plusieurs microns.



**Figure 1-1. : Vues de profil et de face de différents indenteurs (a) Vickers, (b) Berkovich, (c) Knoop, (d) cône, (e) Rockwell, (f) sphère.**

Le profil de l'indenteur peut revêtir une grande variété de formes. Les plus couramment utilisées sont : la pyramide à base carrée (Vickers), la pyramide à base triangulaire (Berkovich), la pyramide à base losangique (Knoop), le cône, le poinçon plat ou encore la sphère (figure 1-1.).

La dureté telle que définie par Brinell et Meyer correspond aux notions métallurgiques de la 1<sup>ère</sup> moitié du XX<sup>ème</sup> siècle. Le développement des moyens expérimentaux permettant de sonder des volumes de plus en plus faibles, et des techniques d'observation associées a permis l'étude des propriétés mécaniques à l'échelle du micromètre, grâce à la technique de microindentation.

L'essai d'indentation Rockwell permet de s'affranchir de l'étape d'observation. La profondeur de pénétration est mesurée à charge maximale. Si le profil de l'indenteur est parfaitement connu il est alors possible de remonter à l'aire de contact sans avoir à observer individuellement chaque empreinte. De plus, le protocole de l'essai Rockwell prévoit que l'échantillon soit pré-chargé jusqu'à 10kg, avant d'être réellement indenté, ce qui permet de s'affranchir des problèmes de rugosité de surface et de la détermination de l'origine de l'indentation. L'essai Rockwell a ouvert la voie aux essais d'indentation instrumentée.

Au cours d'un essai d'indentation instrumentée, la force ainsi que le déplacement de l'indenteur dans le matériau sont continûment enregistrés, puis représentés sur des courbes de force-pénétration. L'analyse d'un cycle de charge-décharge permet de remonter aux propriétés mécaniques du matériau testé. Différentes méthodes de dépouillement ont été proposées. Par exemple, la mesure de dureté (et de module) s'effectue par une analyse de la courbe de décharge supposée élastique (méthode d'Oliver et Pharr [3]). Dans le cas de la nanoindentation, la mesure du déplacement se fait avec une précision meilleure que le nanomètre et la force avec une résolution de l'ordre du micro newton.

## 1.2. Indentation et mécanismes de plasticité

L'indentation, originellement développée pour l'étude des propriétés mécaniques [3-8], s'avère être un outil performant pour l'étude des mécanismes fins de plasticité [9-12]. L'observation par microscopie optique des empreintes réalisées par microindentation, a permis d'étudier les structures de dislocations autour des zones déformées ainsi que les mécanismes de fissuration [13-15]. Gilman *et al.* [16] ont développé une technique d'attaque chimique contrôlée qui dissout l'échantillon autour de la ligne de dislocation. Cette attaque conduit à la formation d'une piqûre aux points d'émergence des dislocations. De taille micrométrique, ces trous sont observables optiquement et rendent compte de la distribution de dislocations en surface. Cette technique a été largement réutilisée pour l'étude des mécanismes de plasticité [14, 15, 17-20].

Les caractéristiques techniques de l'indentation instrumentée, comme le suivi simultané de la profondeur de pénétration et de la force appliquée, et sa grande sensibilité permettent d'introduire localement et de façon contrôlée de faibles déformations. Toutefois, les échelles nanométriques mises en jeu imposent de nouveaux moyens d'observation pour étudier les mécanismes de déformation à cette échelle. La microscopie électronique à balayage (MEB) offre ainsi de bien meilleures résolutions que la microscopie optique [14, 21, 22]. Cependant l'utilisation du MEB implique que l'échantillon soit conducteur ou rendu conducteur par le dépôt d'une fine couche métallique en surface ce qui limite d'autant sa résolution.

L'utilisation, maintenant courante, de la microscopie électronique en transmission (MET) permet de visualiser les structures de dislocations en volume [23-25]. Plus récemment, le développement des expériences d'indentation *in situ* sous MET ont permis d'observer en direct, la réponse de l'échantillon à un essai d'indentation [26, 27].

La microscopie à force atomique (AFM) quant à elle, offre une haute résolution en **Z** et autorise l'étude de la topographie de surface autour d'une empreinte. En particulier l'étude des lignes de glissement associées aux dislocations générées autour de l'empreinte [12, 28, 29] permet de remonter de façon indirecte aux mécanismes élémentaires de déformation autour de l'empreinte. Des techniques de polissage mécano-chimique et d'attaque chimique fines, combinées à des observations AFM, permettent d'explorer la structure en trois dimensions des dislocations [17, 30]. Les figures d'attaque sont observées d'un niveau de polissage à un autre et les piqûres de dislocations sont identifiées d'une image à l'autre.

Connaissant la position de chaque dislocation sur chaque plan de coupe on réalise une sorte de tomographie de l'échantillon.

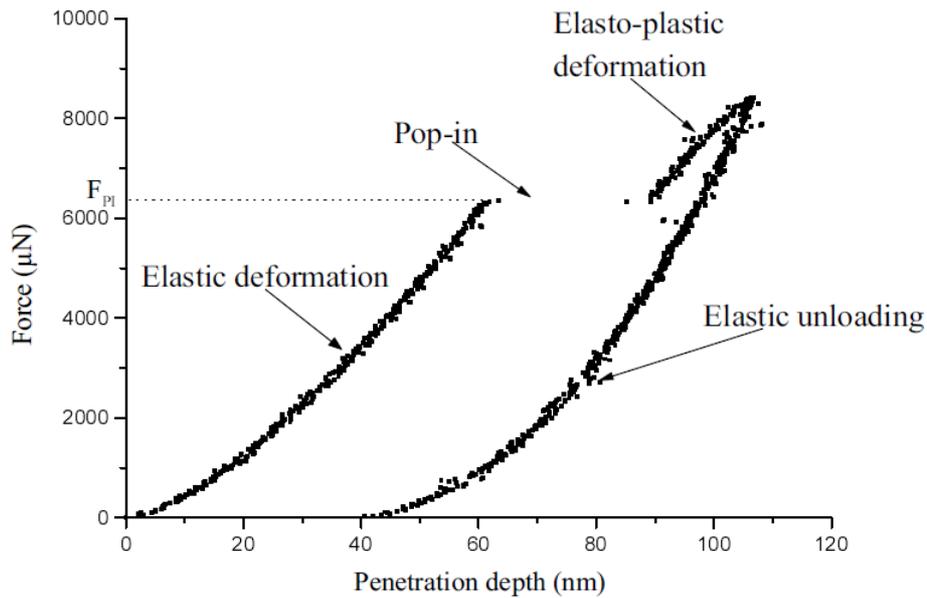
L'essai de nanoindentation est particulièrement bien adapté à l'étude des matériaux fragiles [22, 31, 32]. Dans les essais classiques de traction, de compression ou encore de microindentation, les matériaux fragiles (par exemple les verres [33] ou les céramiques [34]) se fissurent rapidement sans que la déformation plastique puisse être observée correctement. Généralement dans le cas de la nanoindentation, les volumes déformés sont très petits comparés à la taille de l'échantillon, ainsi le corps de l'échantillon impose un champ de confinement élastique à la zone sollicitée, empêchant la rupture de l'échantillon. Les volumes mis en jeu lors d'un essai de nanoindentation sont typiquement de l'ordre de quelques microns cubes. Comparés à la densité de défauts préexistants sur des échantillons monocristallins non écrouis, ces volumes peuvent être considérés comme exempts de défauts préexistants. La nanoindentation devient alors un outil très puissant pour l'étude des premiers stades de nucléation de dislocations.

## **2. Phénomène de pop-in : initiation de la plasticité**

### **2.1. Le pop-in**

Lors d'essais de nanoindentation en force imposée, certains matériaux montrent des « sauts de déplacements » à la charge et parfois à la décharge. Ce phénomène brutal, correspondant à l'enfoncement de l'indenteur dans l'échantillon sans augmentation de la charge, est couramment appelé pop-in [35]. Il se traduit par un plateau horizontal sur la courbe de force-déplacement (figure 1-2.). Au cours d'un essai en déplacement contrôlé, le pop-in correspond à une chute brutale de la force.

Le phénomène inverse, appelé pop-out, est parfois observé : il s'agit d'une diminution brutale de la pénétration, apparaissant généralement à la décharge. Ce phénomène est observé dans un nombre beaucoup plus restreint de matériaux et est de moindre amplitude que le pop-in. Le pop-out a été relié aux mouvements de dislocations [36] ou à une transformation de phase [37].



**Figure 1-2. : Courbe d'indentation en mode force contrôlée, avec un pop-in à la charge, (Tromas *et al.* 1999) [31].**

Le phénomène de pop-in a été rapporté sur de nombreux matériaux, comme sur les métaux [38], les céramiques [31], les alliages [39], les intermétalliques [23] ou encore les semi-conducteurs [9]. Dans tous les cas, la déformation avant le pop-in est réversible et est considérée comme purement élastique. Le pop-in marque donc le début de la déformation irréversible (figure 1-2.) et a ainsi très souvent été relié à la nucléation de dislocations [23, 39-42].

Certains des mécanismes proposés avancent l'hypothèse de nucléation homogène de dislocations [43], d'activation de sources de dislocations [18], d'activation sur un défaut [44], de la rupture d'un film de surface [45-47], ou encore de l'interaction d'un film avec la structure de dislocations sous jacente [48].

Expérimentalement, les essais d'indentation réalisés sur une surface avec le même indenteur montrent une dispersion dans la charge d'apparition du pop-in. L'analyse du pop-in uniquement en terme de contrainte critique, ne permet pas non plus d'expliquer certaines observations expérimentales dans lesquelles un maintien sous charge long permet d'observer un pop-in à des charges très inférieures auxquelles il est habituellement observé [23]. Toutefois il existe un lien entre la charge d'apparition et l'amplitude du pop-in : plus la charge de déclenchement est élevée et plus l'amplitude est importante. Ainsi, le pop-in est vu comme l'évènement qui marque la transition brutale d'un régime élastique à un régime continu de déformation élasto-plastique.

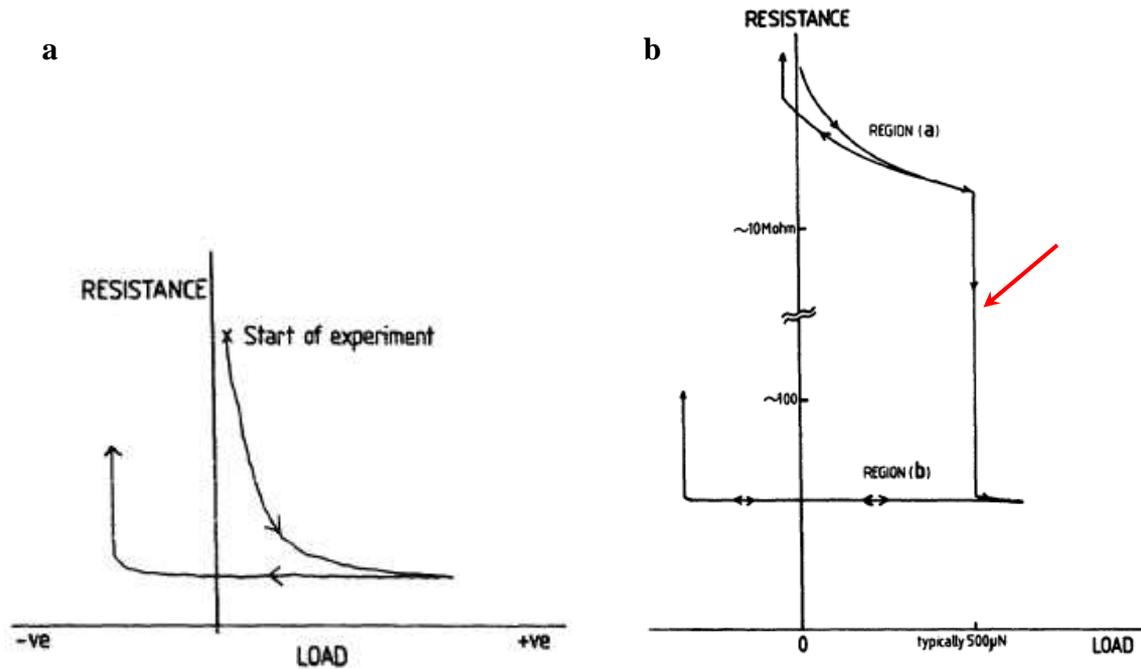


Figure 1-3. : Evolution de la résistance en fonction de la charge appliquée (a) sur une surface pure de nickel ; (b) sur une surface oxydée de nickel, le saut de résistance qui correspond au pop-in est indiqué par une flèche, (Pethica et Tabor 1979) [4].

Les premiers essais d'indentation instrumentée à très faibles charges [4, 5], mirent en avant plusieurs résultats. Pethica et Tabor [4] ont pu observer le pop-in de façon originale. Ils ont suivi l'évolution de la résistance électrique d'un circuit indenteur-échantillon (tungstène-nickel). La valeur de la résistance est mesurée en fonction de la charge appliquée sur l'indenteur (figure 1-3.). Plusieurs conclusions importantes ressortent de leur étude. Tout d'abord, les pressions appliquées atteignent la contrainte limite théorique de cisaillement. Ils proposèrent comme explication que les volumes sollicités sont suffisamment faibles pour être exempts de défauts préexistants. Ensuite, des comportements quasi réversibles à faibles charges ont également pu être observés sur des surfaces oxydées de nickel (figure 1-3.b, région a).

Les observations *in situ* sous MEB d'essais d'indentation sur des surfaces d'or faites par Gane et Bowden [5] ont montré que la première partie de la déformation était réversible, puis à partir d'une charge critique où l'indenteur pénètre brutalement dans l'échantillon, une empreinte se forme. La valeur moyenne de contrainte atteinte à ce stade de déformation est proche de la limite élastique théorique. Le profil de la courbe correspondant à la partie réversible du chargement peut être décrit par la théorie du contact de Hertz traduisant ainsi le caractère élastique des mécanismes de déformation impliqués dans cette première partie [49].

## 2.2. Revue des modèles de plasticité associés au pop-in

A l'échelle mésoscopique, les déformations plastiques sont analysées en termes de glissement, de multiplication et d'interaction d'une distribution statistique de dislocations. A l'échelle nanométrique où les mécanismes de déformation peuvent ne faire appel qu'à un nombre très réduit de dislocations, voire au comportement individuel d'une seule dislocation, cette approche n'est plus envisageable. La nucléation de dislocations au moment du pop-in a fait l'objet de différentes interprétations. Nous présenterons ici une revue non exhaustive de ce qui a été proposé.

### 2.2.1. Limite élastique théorique

L'étude des propriétés mécaniques des surfaces de monocristaux et de films minces métalliques, ont montré qu'une contrainte proche de la limite théorique élastique était nécessaire pour obtenir une déformation permanente lors d'un contact nanométrique [4, 5, 50, 51]. Ces résultats suggèrent que la déformation à l'échelle nanométrique est contrôlée par la nucléation homogène de dislocations, et non par le glissement et la multiplication de structures de dislocations préexistantes (seuls les *whiskers*, qui sont considérés comme exempts de défauts préexistants, présentent une résistance similaire à la déformation [52]). La limite élastique théorique est la contrainte nécessaire pour cisailer en bloc un cristal. Cette limite est couramment donnée comme le dixième du module de cisaillement [53] ; cet ordre de grandeur a été confirmé plus récemment par calculs [54].

Une approche simple consiste à considérer la nucléation lorsque le critère de Tresca (critère de contrainte) ou de Von Mises (critère énergétique), rapporté à la limite théorique élastique, est satisfait. Cependant ces modèles ne prennent pas en compte la nature des systèmes de glissement réellement activés.

### 2.2.2. Nucléation homogène de dislocations

Michalske et Houston [38] présentent le pop-in comme la nucléation homogène de boucles de dislocations mobiles lors d'essais d'indentation sur des surfaces d'or (111). Puis, la multiplication de ces dislocations par des mécanismes conventionnels permettrait d'accommoder la déformation. Des pointes en tungstène de différents rayons de courbures ont été utilisées pour leurs expériences. Leurs résultats montrent que plus le rayon de courbure de l'indenteur est petit, et plus la contrainte critique nécessaire au déclenchement du pop-in est

importante. Ils proposent comme explication que les boucles de dislocations se nucléant sous le contact ont un rayon du même ordre de grandeur que le rayon de contact (et donc de l'extension du champ de contrainte). Les boucles de petit rayon requièrent une contrainte plus importante pour se développer. Des simulations par dynamique moléculaire et par potentiel atomique sur le même système, montrent également un processus de nucléation homogène de dislocations dans le cœur du matériau [43].

### 2.2.3. Rupture d'une couche d'oxyde

L'un des mécanisme largement évoqué pour expliquer le pop-in, est la rupture d'une couche d'oxyde formée en surface du matériau [4, 9, 23, 24, 41, 42, 48, 55]. Il suppose que des dislocations sont nucléées dans le cœur du matériau au cours de la charge, et s'empilent à l'interface oxyde-métal (figure 1-4.1). Puis, lorsque la contrainte d'empilement est suffisante, les dislocations cisailent brutalement la couche d'oxyde, ce qui permet à l'indenteur de s'enfoncer dans le matériau (figure 1-4.2).



Figure 1-4. : Représentation schématique de la nucléation de dislocations à l'extrémité d'un indenteur en diamant (1) nucléation en volume, (2) rupture de la couche d'oxyde (Gerberich *et al.* 1996) [41].

Sur des surfaces de fer-silicium totalement débarrassées de leur couche d'oxyde, Gerberich *et al.* [41] montrent que la déformation est immédiatement élasto-plastique, sans phase réversible, sans discontinuité.

Kramer *et al.* [48] relient leurs observations de bourrelets sur des surfaces indentées de tungstène à la présence de dislocations prises au piège sous une couche d'oxyde. D'autre part, Gouldstone *et al.* [24] ont montré que lors d'essais d'indentation sur de l'aluminium, la charge d'apparition du pop-in était essentiellement indépendante de l'épaisseur du film d'oxyde. Ils ont suggéré que le saut de déplacement était dû à la nucléation de dislocations à l'arrière du film oxydé.

Le pop-in est observé sur un grand nombre de matériaux qui ne présentent pas de couche d'oxyde, et y compris sur certains oxydes massifs. La proposition de rupture d'une couche d'oxyde ne peut donc pas expliquer le pop-in observé sur ces matériaux.

### 2.2.4. Activation thermique

La nucléation de dislocations a également été interprétée comme un phénomène thermiquement activé [23, 44, 48, 56, 57]. Ces expériences montrent qu'un maintien sous charge long augmente la probabilité de voir apparaître un pop-in. Quelques rares études de nanoindentation en température montrent également un abaissement de la charge critique en fonction de la température [44, 56].

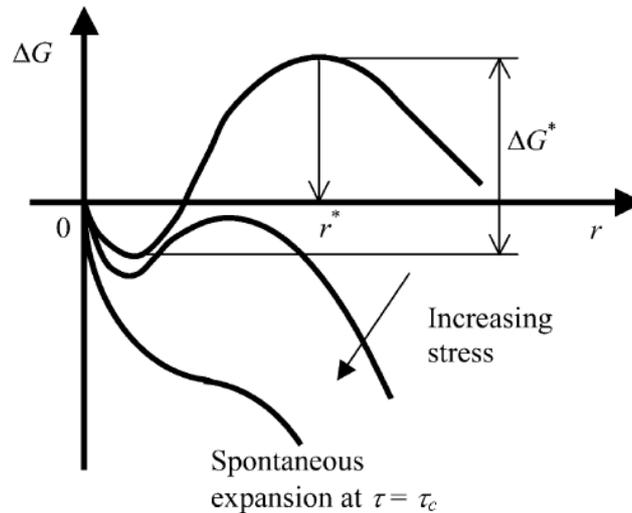


Figure 1-5.: Représentation graphique de l'énergie d'activation pour plusieurs contraintes appliquées (Chiu et Ngan 2002) [23].

Les essais d'indentation de Chiu et Ngan [23] sur  $\text{Ni}_3\text{Al}$  ont montré qu'en effectuant des maintiens sous faible charge de longue durée, on pouvait voir apparaître le pop-in à des charges plus faibles que celles observées sur un essai conventionnel. Le modèle proposé, basé sur la croissance de boucles stables, traduit le temps nécessaire à l'apparition d'un pop-in sous charge. Le temps requis est le temps nécessaire à une petite boucle stable pour grandir jusqu'à un état instable (correspondant à une barrière d'énergie) à partir duquel elle s'accroît brutalement et génère de nouvelles dislocations (figure 1-5.). Wo *et al.* [57] proposent que la croissance de défauts stables ou instables pendant la phase de maintien agisse comme précurseur pour la nucléation de défauts instables. La nucléation homogène ne serait observée qu'à, ou proche d'une charge critique.

Schuh *et al.* [44] et Mason *et al.* [56] ont réalisé des essais de nanoindentation sur du platine dans une gamme de température allant de 25 à 200 °C. Plusieurs pop-ins sont observés sur les courbes de charge. Leurs expériences et leur modèle rendent clairement compte du fait de l'abaissement du niveau du premier pop-in avec la température (figure 1-6.a). Sur la

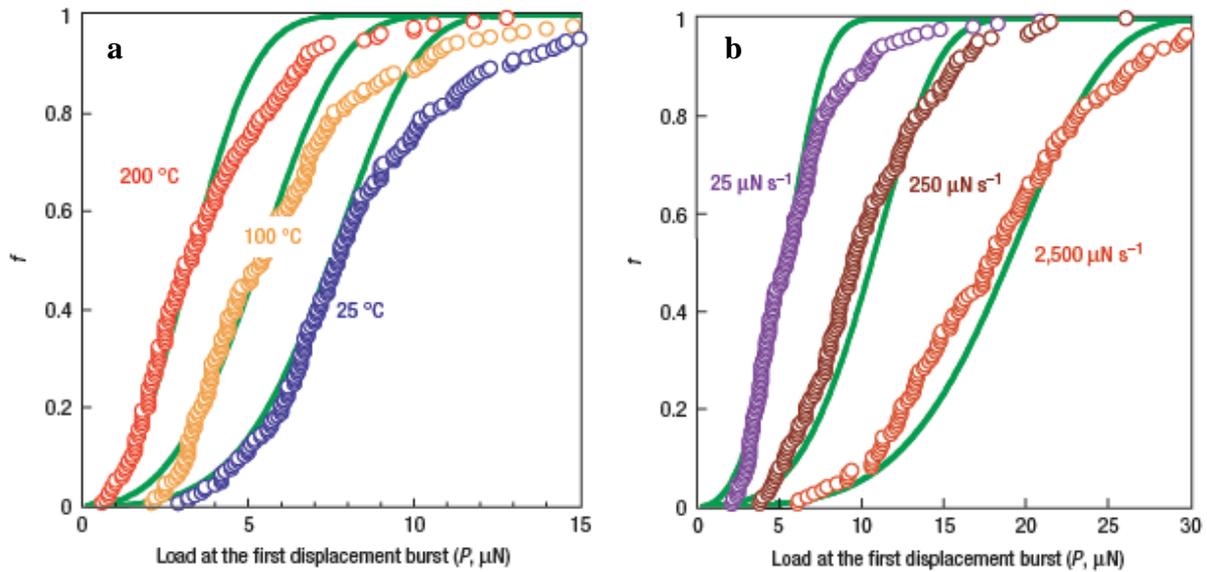


Figure 1-6. : Fréquence cumulée de la charge d'apparition du premier pop-in (a) à différentes températures pour une vitesse de chargement de  $25\mu\text{N}\cdot\text{s}^{-1}$ , (b) à différentes vitesses de chargement à  $100\text{ }^\circ\text{C}$  (Schuh *et al.* 2005) [56].

figure 1-6. les cercles évidés représentent les données expérimentales tandis que la courbe continue est tracée à partir de l'équation suivante :

$$f = 1 - \exp\left(-\int_0^t \dot{N} dt\right)$$

Où :  $t$  est le temps et  $\dot{N}$  est la fréquence de déclenchement du pop-in

Ces auteurs se sont également intéressés à l'influence de la vitesse de pénétration de l'indenteur sur la charge de déclenchement du pop-in (figure 1-6.b). Les vitesses de pénétration élevées repoussent la charge d'apparition du pop-in vers les hautes valeurs, ce qui est cohérent avec l'idée supportée par Chui et Ngan [23] selon laquelle il y a un temps nécessaire à l'apparition du pop-in. Ils proposent également comme mécanismes les plus plausibles à l'origine du pop-in la nucléation hétérogène sur des défauts préexistants ou l'activation de sources de dislocations assistée par des défauts de surface.

Toutefois, dans ces expériences, il reste très difficile de décorrélérer l'influence de la vitesse de chargement, de la durée d'indentation.

### 2.2.5. Influence des dislocations préexistantes

Bahr *et al.* [39] se sont intéressés au phénomène de pop-in observé par nanoindentation dans des échantillons de tungstène. En comparant le cas de surface préparée par polissage électrolytique et par polissage mécanique, ils montrent que l'apparition du pop-in est soumise

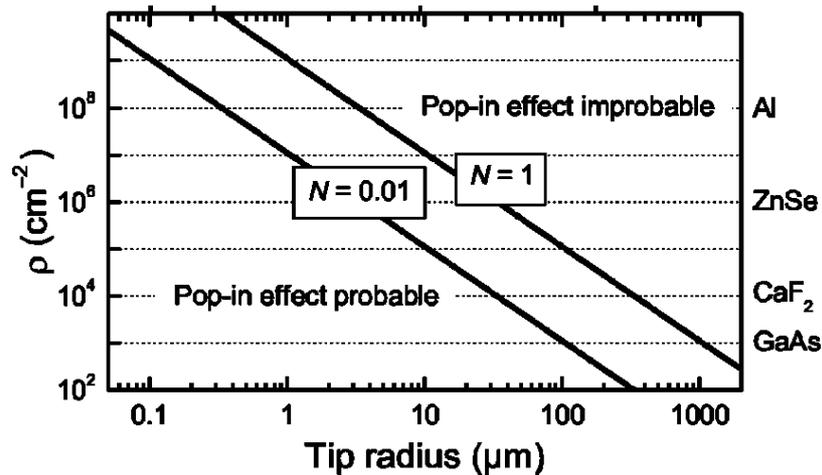


Figure 1-7. : Probabilité de déclenchement d'un pop-in en fonction de la densité de dislocation initiale et du rayon de courbure de l'indenteur (ici Rockwell). Les matériaux étudiés sont indiqués à leur densité typique de dislocations.  $N$  est le nombre de dislocation pouvant être activé dans le champ de contrainte de l'indenteur (Lorenz *et al.* 2003) [58].

à la condition que la zone testée ait une faible densité de dislocation préexistante (polissage électrolytique). Différentes études se sont intéressées à la présence de dislocations sous le contact de l'indenteur [18, 58, 59]. La présence de ces dislocations a pour effet de diminuer la charge d'apparition du pop-in sans toutefois le faire totalement disparaître.

Lorenz *et al.* [58] proposent un modèle pour une large gamme de matériaux (ZnSe, GaP, GaAs, InP, CdTe, W, Cu, Ni, Al, BaF<sub>2</sub>, CaF<sub>2</sub>) dans lequel la probabilité de déclenchement d'un pop-in est donnée en fonction de la densité de dislocations initiale  $\rho$  et de l'aire sous contact  $A_c$ . Ce modèle suppose qu'il y a nucléation seulement si le nombre  $N$  de dislocations se trouvant sous le contact est insuffisant pour accommoder la déformation (figure 1-7.). Ils évaluent le nombre  $N$  par la formule :

$$N = \rho A_c$$

Ces auteurs supposent que lorsque la grandeur statistique  $N$  devient supérieure ou égale à un, les dislocations préexistantes dans le champ de contrainte de l'indenteur accommodent continûment la déformation plastique et aucun pop-in n'est observé. Pour des valeurs de  $N$  inférieures ou égales au centième, la probabilité d'observer un pop-in est très grande.

Zbib et Bahr [18] ont testé l'influence des dislocations préexistantes sur le comportement sous indentation du tungstène. Ces dislocations ont été introduites par des essais de microindentation à forte charge. Des essais de nanoindentation ont ensuite été réalisés autour de ces empreintes de microindentation en s'éloignant progressivement du centre de l'empreinte (figure 1-8.a). Les courbes d'indentation montrent qu'au fur et à mesure

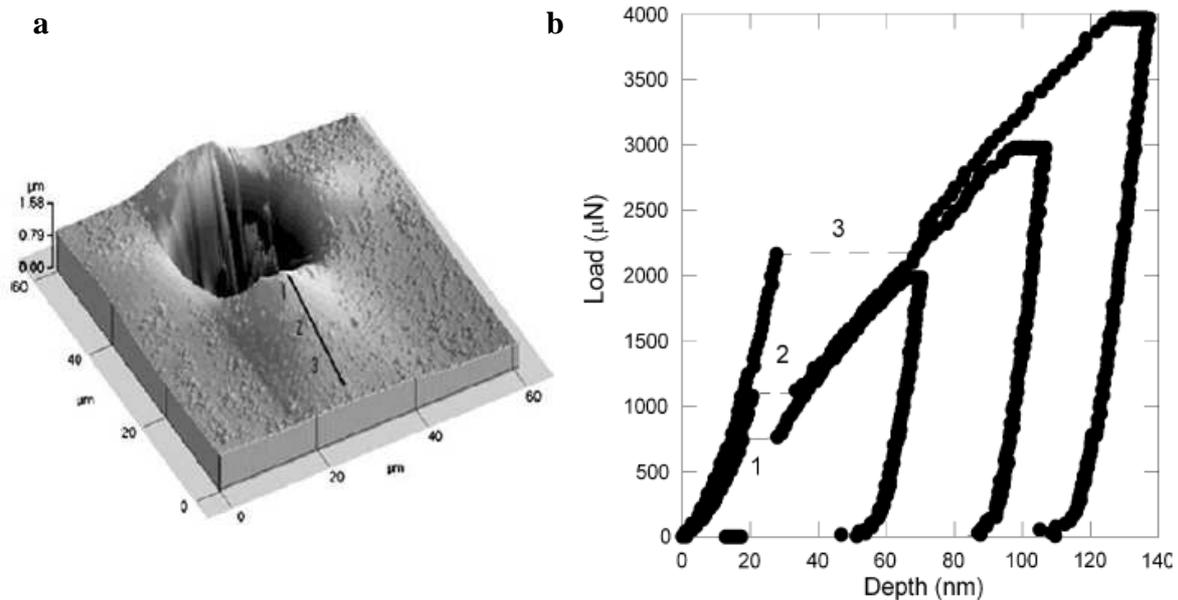


Figure 1-8. : (a) Image AFM de topographie d'une microindentation Vickers sur du tungstène, (b) courbes d'indentation réalisées aux trois endroits indiqués sur (a) (Zbib et Bahr 2007) [18].

de l'éloignement de la zone déformée (et donc de la diminution de la densité de dislocations), la charge d'apparition du pop-in augmente (figure 1-8.b). Les déformations élastiques et élasto-plastiques sont superposables quelle que soit la charge d'apparition du pop-in. Les auteurs proposent un modèle permettant de relier la densité de dislocations à la charge nécessaire pour l'apparition du pop-in (et donc un volume dans lequel la contrainte sera suffisante pour activer le mouvement des dislocations préexistantes). Leur modèle ne traduit cependant pas correctement le comportement pour les faibles densités de dislocations (inférieures à  $10^{12} \text{ m}^{-2}$ ).

Plus récemment, Barnoush *et al.* [59] ont comparé le comportement sous nanoindentation d'échantillons polycristallins d'aluminium pour l'un recuit et l'autre écroui par des cycles de contrainte uniaxiale. Les conditions de surface des deux types d'échantillons ont ensuite été contrôlées (rugosité, film d'oxyde). Ils observent que la charge moyenne d'apparition du pop-in est plus basse d'un facteur deux sur la surface de l'échantillon écroui que sur celle de l'échantillon recuit. Leurs conclusions sont qu'en l'absence de dislocation sous le contact, il est nécessaire d'atteindre les contraintes critiques théoriques pour activer la nucléation homogène de dislocations.

### 2.2.6. Effet de marches de surface

Les simulations atomistiques de Zimmerman *et al.* [60] et les essais expérimentaux de Kiely *et al.* [61] montrent que la présence de marches sur des surfaces d'or (111), à proximité

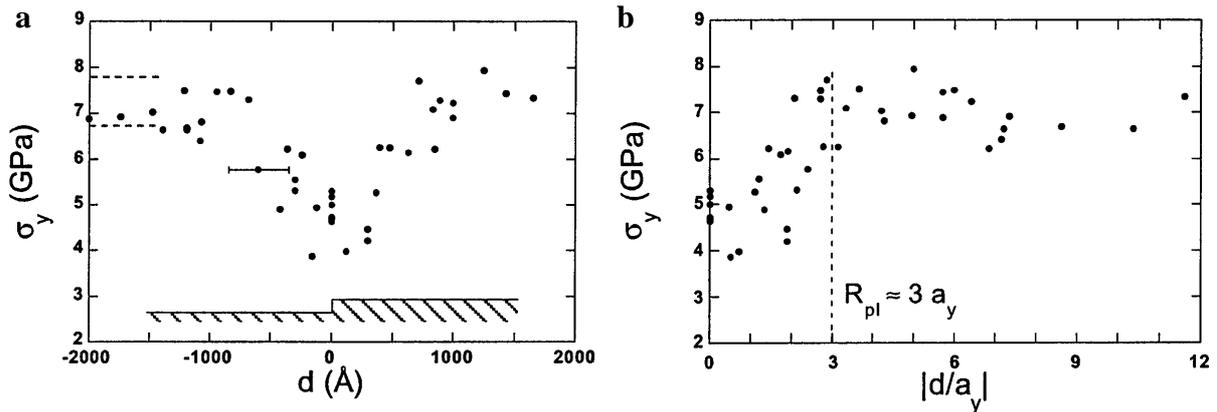


Figure 1-9. : (a) Evolution de la contrainte limite élastique  $\sigma_y$  à l'apparition du pop-in en fonction de la distance à une marche ( $d$ 'une hauteur comprise entre 5 et 30Å). La barre d'erreur représentée sur le graphique figure le diamètre moyen du contact au moment du pop-in. (b) Evolution de  $\sigma_y$  en fonction de la distance à la marche  $d$  normalisée par le rayon du contact élastique  $a_y$  (Kiely *et al.* 1998) [61].

ou sous le contact, abaisse significativement la contrainte d'apparition du pop-in (de 30 à 45%) : les marches agiraient comme des points de concentration des contraintes.

Kiely *et al.* [61] ont tracé l'évolution de la contrainte au moment du pop-in en fonction de la distance entre l'axe d'indentation et une marche (figure 1-9.a). L'abscisse 0 correspond à la position de la marche. La barre horizontale symbolise le diamètre moyen du contact au moment du pop-in. Non seulement le niveau du pop-in est abaissé lorsque l'indenteur entre en contact avec une marche, mais plus étonnant, une diminution de la contrainte critique est également observée lorsque l'indenteur est éloigné de la marche. L'influence de la marche sur le phénomène du pop-in se fait ressentir jusqu'à trois fois le rayon de contact au moment du pop-in (figure 1-9.b). Notons que l'orientation de la marche ne fait aucune différence. Les observations de Kiely *et al.* montrent que le site de nucléation au moment du pop-in peut être très fortement influencé par la présence de défauts en surface, comme les marches ou encore une rugosité importante.

Au-delà des structures ordonnées comme les marches, la rugosité de surface peut être également impliquée dans l'initiation du pop-in. Dans le cas d'une surface rugueuse au niveau atomique, Gouldstone *et al.* [62] rapportent que dans le cas de simulations *bubble-raft* sur de l'aluminium, les dislocations sont nucléées près de la surface, là où les reliefs concentrent les contraintes. Dans le cas d'une rugosité du même ordre de grandeur que la courbure de l'apex de l'indenteur celle-ci n'a que peu d'impact sur le site de nucléation.

### 2.2.7. Compression de micropiliers

Les essais de compression, avec un indenteur modifié sur des piliers dont le diamètre varie de quelques centaines de nanomètres à quelques microns, ont connu un essor considérable ces dernières années, en particulier grâce au développement des techniques de micro-usinage par faisceau d'ions focalisés (FIB) [63, 64]. La compression de micropiliers se rapproche de l'essai de nanoindentation dans la mesure où il permet de sonder les premiers stades de plasticité dans de faibles volumes, souvent exempts de défauts préexistants. La contrainte (uniaxiale) générée dans les micropiliers est cependant beaucoup plus simple que celle engendrée sous un indenteur. Les courbes contrainte-déformation obtenues lors des essais de compression de micropiliers font apparaître des sauts de déplacement, similaires au pop-in observé par nanoindentation (figure 1-10.). Ces sauts de déplacement marquent souvent les premiers stades de déformation plastique et sont généralement attribués à la nucléation de dislocations. Plusieurs modèles ont pu être proposés pour expliquer ces sauts de déplacement lors d'essais de compression de micropiliers tel que le modèle d'épuisement de dislocations (*dislocation starvation*) [64] ou de sources spirales, toutes faisant appel aux surfaces libres importantes bordant les micropiliers.

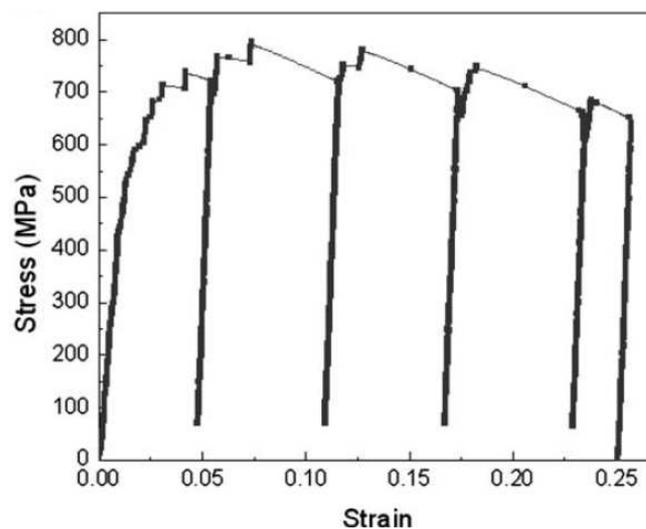
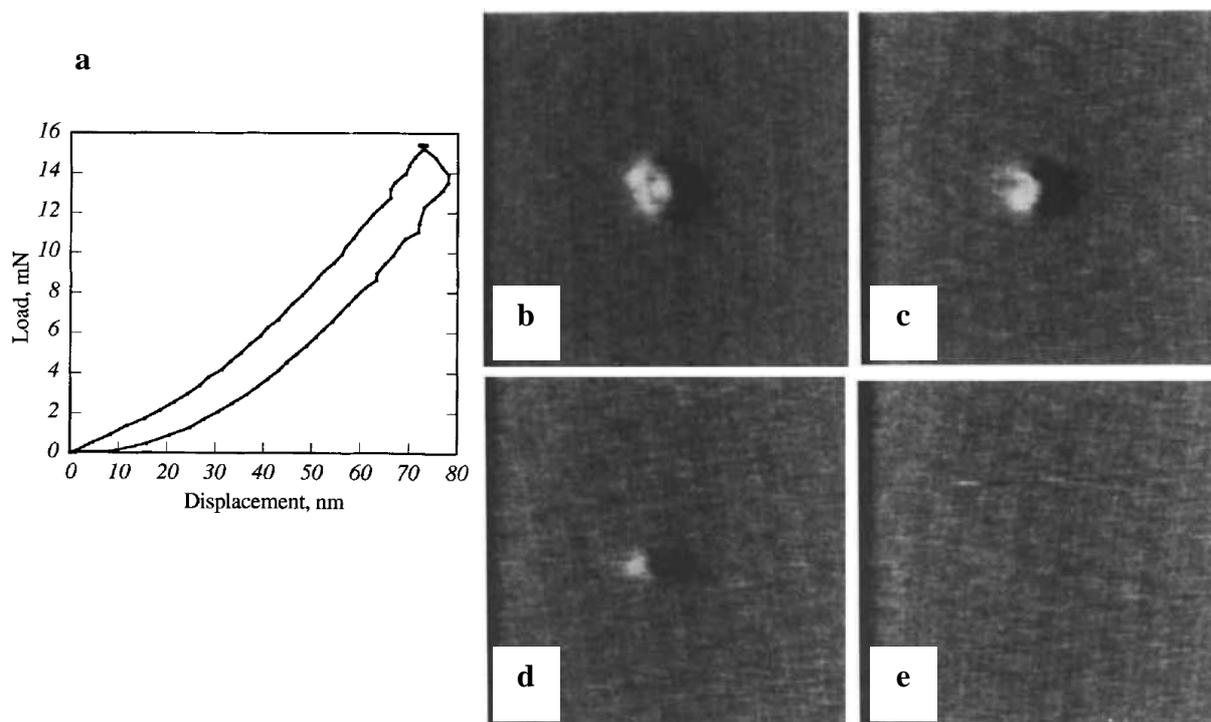


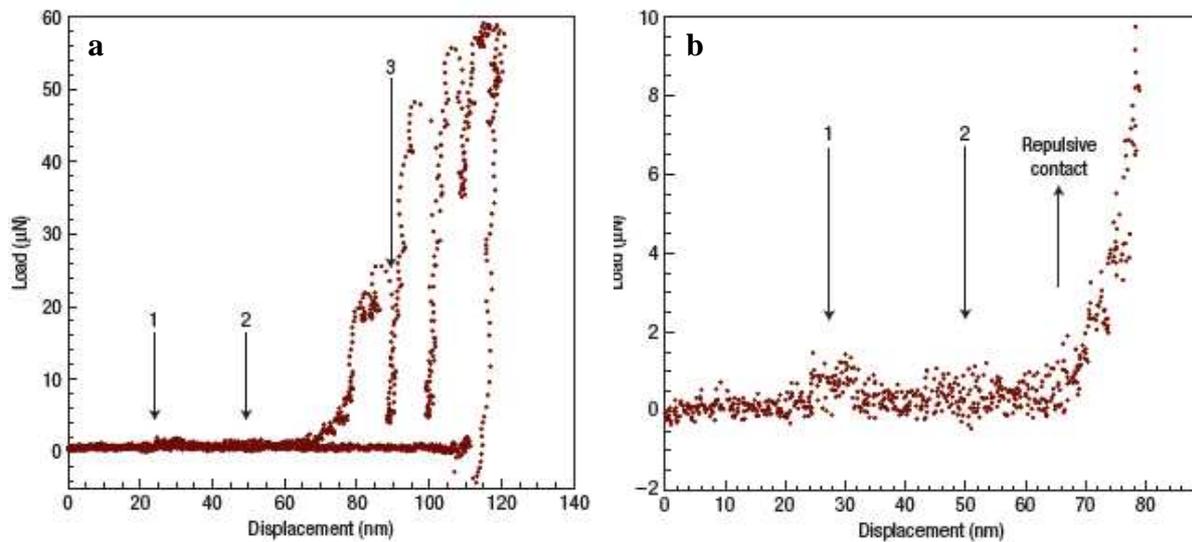
Figure 1-10. : Courbe contrainte-déformation d'un essai de compression sur un micropilier d'or (Greer *et al.* 2005) [64].

### 2.3. Activité de dislocations avant le pop-in

De récentes études expérimentales [27, 48, 65] et de simulations [65-67] suggèrent que, contrairement à la description généralement acceptée du pop-in, une activité de dislocations peut précéder l'apparition du pop-in. Cette activité n'est cependant pas incompatible avec un cycle de charge-décharge superposé comme dans le cas d'un chargement purement élastique.

Par observations AFM de surfaces de tungstène (001), Kramer *et al.* [48] montrent dans certains cas, la réversibilité de la déformation de surface. Des essais d'indentation avec maintien sous charge proche de la charge critique du pop-in (figure 1-11.a) montrent en surface une déformation rémanente qui n'évolue quasiment pas avec le temps. Alors que des essais à des charges correspondant à la moitié et au quart de la charge critique, montrent une déformation de surface qui s'estompe avec le temps. Après un certain temps qui dépend de la charge appliquée, la déformation disparaît complètement pour ne laisser qu'une surface vierge de toute trace (figure 1-11.b à e).





**Figure 1-12. :** Courbes de force déplacement en mode déplacement contrôlé, (a) les flèches 1 et 2 sont des pics de force avant l'apparition du pop-in (flèche 3), (b) zoom de (a) droite (Minor *et al.* 2006) [27].

Les essais en déplacement contrôlé d'indentation *in situ* sous MET sur de l'aluminium menés par Minor *et al.* [27], montrent des pics de force lors de l'approche de l'indenteur (figure 1-12.). Le premier contact entre l'indenteur et la surface a lieu au pied du pic 1. Au sommet du pic ils observent la nucléation et le glissement de dislocations à partir de la surface de l'échantillon. La contrainte au moment de la nucléation est proche des contraintes nécessaires au déclenchement d'un pop-in dans un essai classique de nanoindentation sur un échantillon d'aluminium sans dislocation. Lorsqu'un contact permanent est établi entre l'indenteur et l'échantillon (« Repulsive contact », figure 1-12.b) l'échantillon subit une déformation élastique jusqu'à la nouvelle chute de force (point 3) qui correspond au déclenchement d'un pop-in. Les contraintes au moment du pop-in (3) sont également du même ordre de grandeur que les contraintes observées en (1). Ceci montre la possibilité d'atteindre des contraintes très élevées y compris dans un matériau contenant des dislocations mobiles. Les dislocations nucléées en (1) et (2) restent immobiles durant toute la déformation élastique entre le contact permanent (« Repulsive contact ») et le pop-in (3). Les auteurs concluent que le pop-in observé sur des essais classiques d'indentation ne correspond pas nécessairement aux premiers événements plastiques dans le matériau.

De la même façon Navarro *et al.* [65] ont mené des études comparatives sur des surfaces d'or parfaitement planes et d'autres vicinales (figure 1-13.). Leurs travaux mettent en avant, pour de faibles charges d'indentation, un mécanisme de nucléation de dislocations à la charge, qui s'annihilent à la décharge. Ils introduisent le terme de « quasi-plasticité » pour

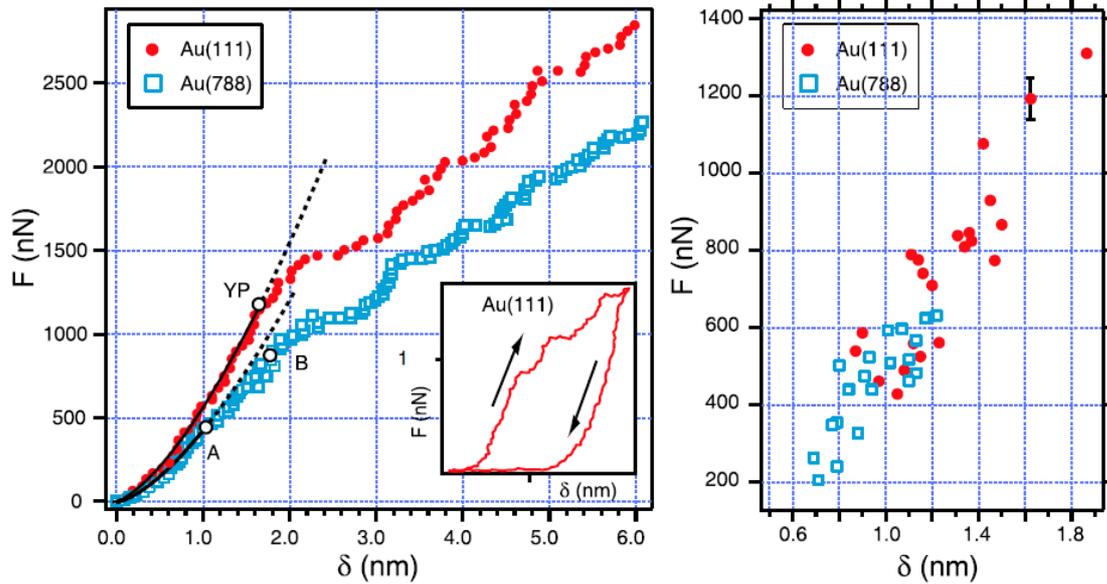


Figure 1-13. : (a) courbes d'indentation et (b) niveau d'apparition du pop-in sur une surface plane (cercles pleins) et sur une surface vicinale (carrés évidés), la déformation réversible mais non élastique entre A et B est appelée quasi-plasticité (Navarro *et al.* 2008) [65].

décrire le comportement associé aux cycles d'indentation réversibles. Ainsi, tandis que sur les surfaces planes, la phase réversible de l'indentation suit parfaitement le comportement hertzien attendu jusqu'à l'apparition du pop-in (YP) ; sur les surfaces vicinales un léger écart à la loi de Hertz est observé (à partir du point A) sur la partie précédant le pop-in (point B) (figure 1-13.a). Si l'indenteur est retiré au cours de la déformation quasi plastique (*i.e.* entre A et B), aucune trace de déformation résiduelle n'est observée en surface. Les simulations couplées à cette étude expérimentale montrent que des dislocations sont nucléées en bord de marche lors de la phase quasi plastique et disparaissent au moment du retrait de l'indenteur. Si le pop-in est atteint, la déformation est une déformation élasto-plastique classiquement décrite, avec des traces rémanentes en surface lors du retrait de l'indenteur.

Les comportements mécaniques sous indentation de surfaces planes et vicinales de cuivre (111) ont été étudiés par Ziegenhain et Urbassek en dynamique moléculaire (EAM) [66]. Ces auteurs montrent également un régime intermédiaire de plasticité réversible, visible cette fois sur les deux types de surfaces. Dans ce régime, seuls des défauts d'empilement planaires sont nucléés, sans transport de matière. Ce régime est instable et dès qu'apparaît un glissement dévié (*cross-slip*) la déformation devient irréversible.

### 3. Nanoindentation dans MgO

L'étude des premiers stades de plasticité nécessite de connaître parfaitement le comportement mécanique du matériau d'étude ainsi que de ses mécanismes de déformation. Le choix d'un matériau présentant peu de systèmes de glissement est tout à fait approprié, l'étude de la déformation résiduelle et des interactions entre dislocations en sera d'autant simplifiée. L'oxyde de magnésium (MgO) répond à ces critères, et a ainsi fait l'objet de nombreuses études depuis les années 60. De plus, les échantillons d'oxyde de magnésium peuvent être obtenus sous la forme de monocristaux orientés et se clivent facilement dans des plans (001).

#### 3.1. Propriétés de l'oxyde de magnésium

##### 3.1.1. Données physico-chimiques

L'oxyde de magnésium (MgO) est un cristal ionique de type NaCl. Le caractère ionique de MgO explique une partie de ses propriétés, entre autre l'impossibilité pour les dislocations de se propager dans certains plans, ce qui contribuerait à mettre en vis-à-vis des ions de même charge. La structure de l'édifice atomique peut être vue comme deux réseaux cubiques à faces centrées, l'un formé de magnésium l'autre d'oxygène, imbriqués l'un dans l'autre et décalés d'un demi-vecteur unitaire  $\frac{1}{2}[100]$  (figure 1-14.).

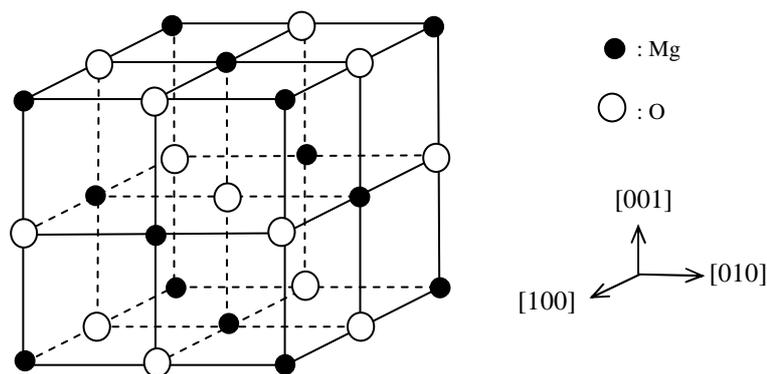


Figure 1-14. : Structure cristallographique de l'oxyde de magnésium.

Température de fusion	2 800°C
Masse volumique (à 25°C)	3,58 g.cm <sup>-3</sup>
Paramètre de maille $a$	4,2 Å
Masse molaire	4,6 g.mol <sup>-1</sup>
Solubilité dans 100g d'eau	0,62 mg
Dureté Vickers (001)	910 Hv
Module d'Young $E$ (001)	290 GPa
Coefficient de Poisson $\nu$	0,18
Module de cisaillement	148 GPa

Tableau 1-1. : Quelques données physico-chimiques de MgO.

L'oxyde de magnésium est une céramique, elle possède une grande dureté et est difficilement déformable, ce qui rend son étude par des techniques classiques de déformation très difficile à température ambiante (tableau 1-1.). La très faible solubilité de MgO dans l'eau permet l'utilisation de solutions aqueuses pour la préparation de surface (polissage et nettoyage).

### 3.1.2. Systèmes de glissement

Les dislocations mobiles dans MgO ont pour vecteur de Burgers  $\frac{1}{2}[110]$ , plus petit vecteur du réseau cristallin. Le cisaillement le long de ces directions est favorable énergétiquement, puisqu'il consiste à faire glisser une rangée d'ions de même charge contre une rangée d'ions de charge opposée.

A température ambiante, les systèmes de glissement couramment observés dans MgO sont les systèmes de type  $\langle 110 \rangle \{ 110 \}$  [15, 69]. Il existe uniquement 6 systèmes de ce type que l'on peut répartir en deux catégories : les 4 systèmes dont le plan de glissement fait un angle de 45° avec la surface (001), notés  $\{ 110 \}_{45}$  et les 2 systèmes dont le plan de glissement fait un angle de 90° avec la surface, notés  $\{ 110 \}_{90}$  (tableau 1-2., figure 1-15.).

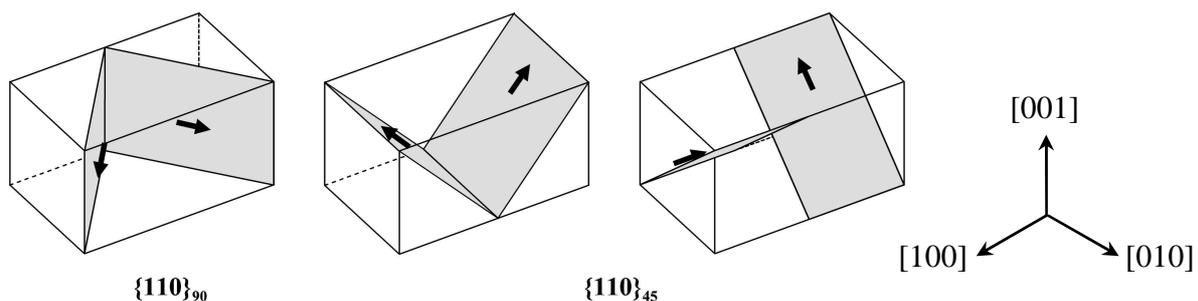


Figure 1-15. : Plans de glissement dans MgO.

$\frac{1}{2}\langle 110 \rangle \{110\}_{90}$	$\frac{1}{2}\langle 110 \rangle \{110\}_{45}$
$\frac{1}{2}[1\bar{1}0](110)$	$\frac{1}{2}[\bar{1}01](101)$
$\frac{1}{2}[110](1\bar{1}0)$	$\frac{1}{2}[101](10\bar{1})$
	$\frac{1}{2}[0\bar{1}1](011)$
	$\frac{1}{2}[011](01\bar{1})$

Tableau 1-2. : Tableau récapitulatif des systèmes de glissement dans MgO.

Parmi les familles de plan classiquement envisagées pour le glissement dans un matériau cubique, seules trois contiennent la direction  $\langle 110 \rangle$ , les plans  $\{111\}$  (ne contenant que des ions de même charge),  $\{110\}$  et  $\{100\}$  (plans électriquement neutres). Les plans denses  $\{111\}$  ne sont pas favorables énergétiquement car cela reviendrait à faire glisser les uns contre les autres des ions de même charge. Expérimentalement, le glissement dans des plans de type  $\{100\}$  n'est observé qu'à haute température, ceci s'expliquant par une diminution de la cission critique résolue avec la température [70, 71] (figure 1-16.). Carrez

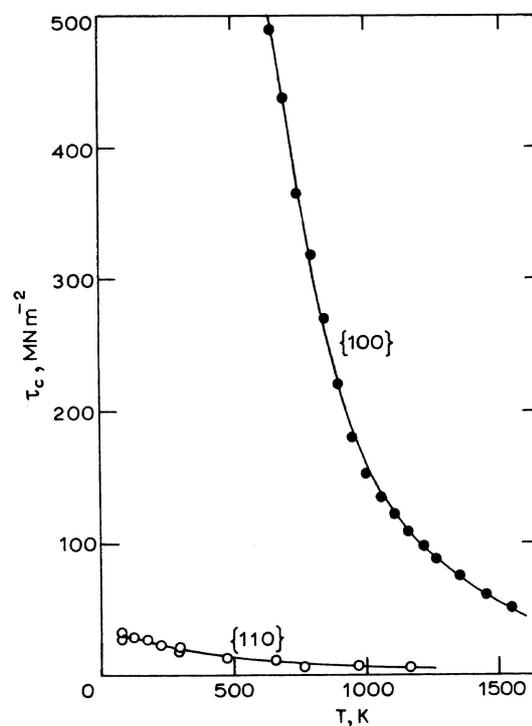


Figure 1-16. : Evolution en fonction de la température de la contrainte critique résolue dans MgO pour les plans  $\{100\}$  et  $\{110\}$  (Haasen 1985) [71].

*et al.* [72] montrent par simulation que quelle que soit la pression de 0 à 100 GPa, le système  $\langle 110 \rangle \{110\}$  est toujours favorisé par rapport au  $\langle 110 \rangle \{100\}$ .

L'oxyde de magnésium est un matériau difficile à déformer à température ambiante. Il y a donc peu de bibliographie sur les forces de friction à cette température. Ces valeurs sont généralement extrapolées à partir d'essais à hautes températures. Gaillard *et al.* [30] ont simulé la relaxation d'un empilement simple qu'ils ont comparée à la relaxation expérimentale observée par AFM. Ils déterminèrent, à l'ambiante dans un plan  $\{110\}$ , des forces de friction de réseau de 65 et 86 MPa pour une dislocation coin et vis respectivement.

L'activation de systèmes inattendus a toutefois pu être observée dans des conditions particulières. Tromas *et al.* [28] ont montré que, sous forte contrainte, la formation d'empilements contre une dislocation sessile favorise l'activation de systèmes de glissement secondaires de type  $\langle 01\bar{1} \rangle \{\bar{2}11\}$ , donnant lieu à des marches dans les directions  $\langle 120 \rangle$ . Il est à noter que du glissement dans des plans  $\{100\}$  peut être observé dans le cas de compression de micropilliers (Korte 2009, résultats non publiés).

### **3.2. Déformation autour d'une empreinte dans MgO sur une surface (001)**

#### **3.2.1. Figure de Rosette**

Les structures de dislocations se développant lors d'un essai de nanoindentation forment une figure de Rosette, constituée de huit bras d'empilement de demi-boucles de dislocations dans les directions  $\langle 100 \rangle$  et  $\langle 110 \rangle$ . Compte tenu de la cristallographie de MgO chaque bras est constitué de dislocations émergeant dans une configuration bien particulière : coin pour les directions  $\langle 110 \rangle$  ou vis pour les directions  $\langle 100 \rangle$ . Les alignements dans les directions  $\langle 110 \rangle$  ne produisent pas de marche en surface et ne sont révélés qu'après attaque chimique (voir chapitre 2-3.2.).

Les bras de Rosette ont tout d'abord été révélés sur des empreintes de microindentation, soit par observation par microscopie électronique à transmission [73] soit encore par attaque chimique et observation optique [15, 69]. Afin d'observer la distribution des dislocations en surface, Keh [15] a réalisé des essais de microindentation sphérique sur des échantillons de MgO. Les empreintes sont observées optiquement après attaque chimique (figure 1-17.a). Les alignements dans les deux types de directions sont révélés et la structure en étoile est

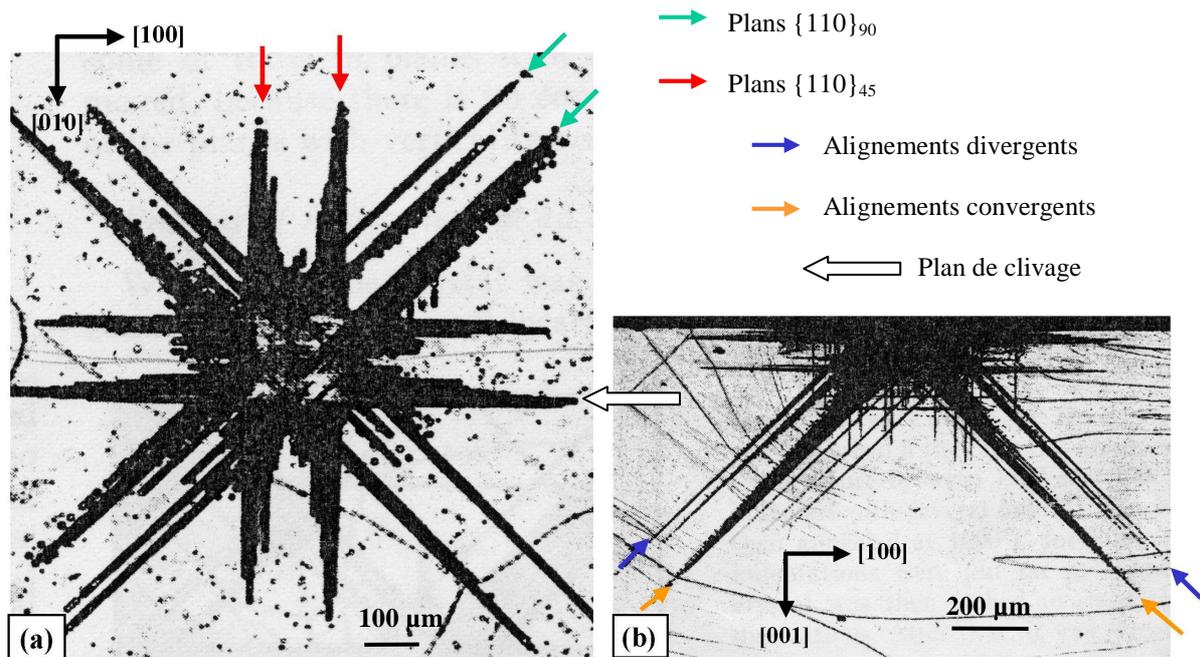


Figure 1-17. : Images de microscopie optique (a) vue en surface d'une empreinte de microindentation après attaque chimique ; (b) la même empreinte après clivage et attaque chimique (le plan de clivage est le plan perpendiculaire à la surface dans la direction indiquée par la flèche blanche) (Keh 1960) [15].

clairement identifiable. Loubet *et al.* [69] ont également décrit ces structures après microindentation instrumentée Vickers.

Keh [15] s'est également intéressé à la structure sous jacente des dislocations. Le même échantillon est clivé perpendiculairement au plan d'indentation de sorte que le front de clivage passe au travers d'une empreinte (figure 1-17.b). Le faciès de clivage est attaqué chimiquement. Les demi-boucles de dislocations selon les directions  $\langle 100 \rangle$  sont centrées sur

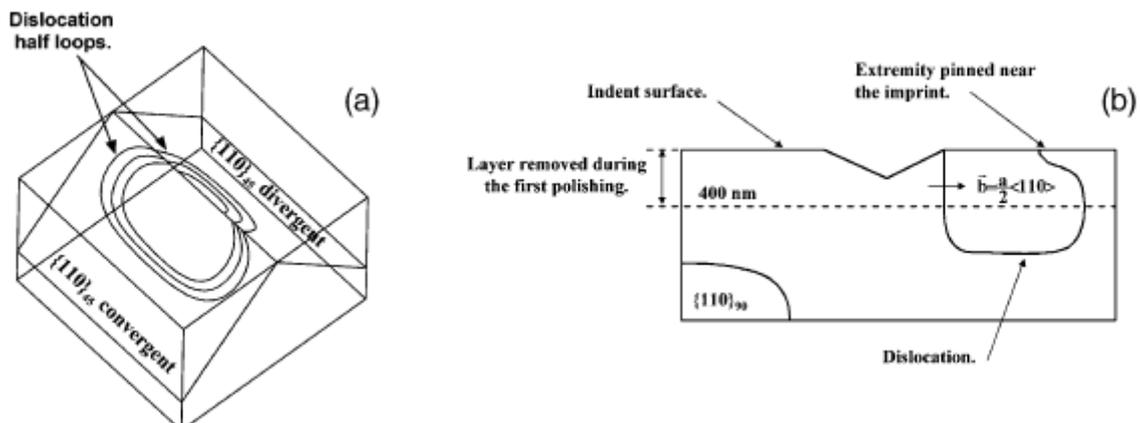
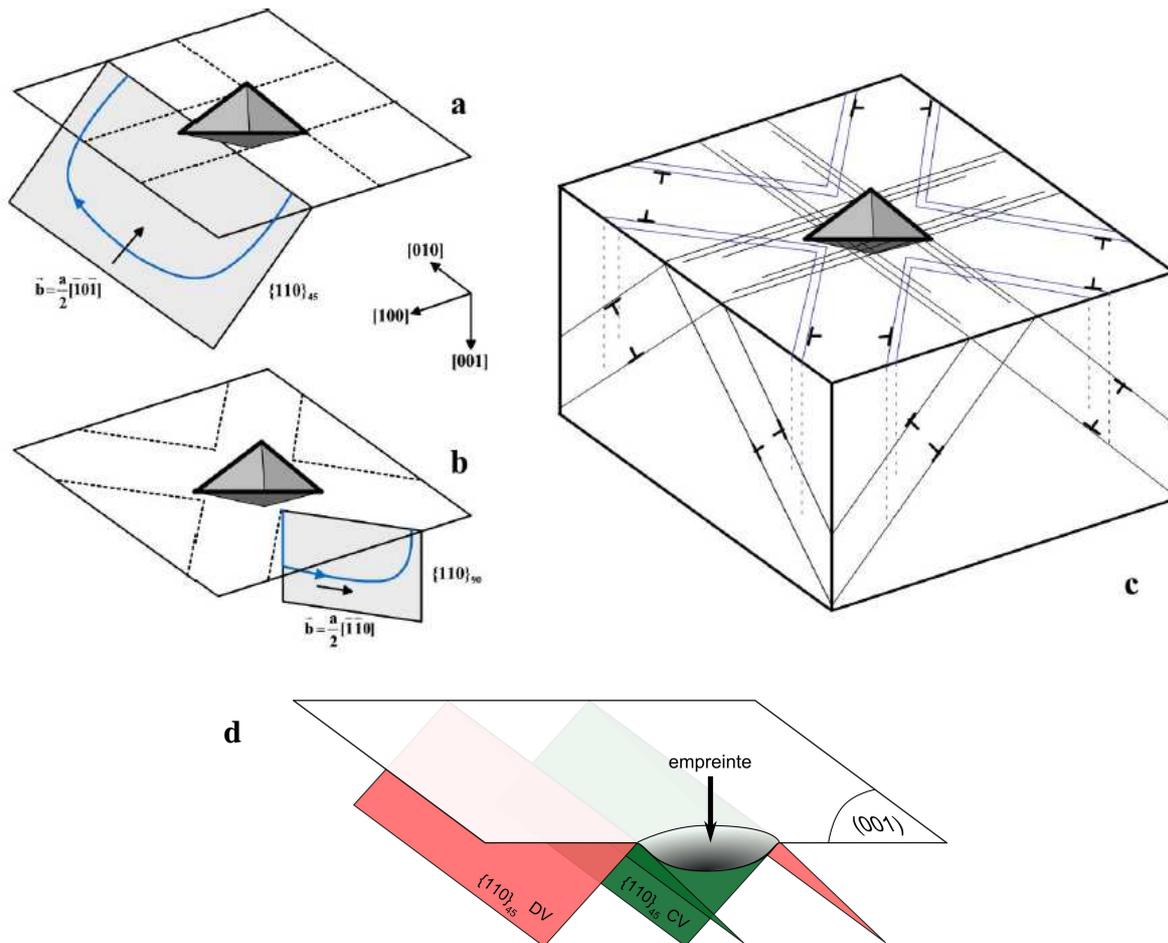


Figure 1-18 : Représentation de (a) dislocations dans des plans convergents bloquées par celles dans des plans divergents et (b) dislocations étranglées en surface et ne s'étendant qu'en volume (Gaillard *et al.* 2003) [17].



**Figure 1-19 :** Représentation schématique des dislocations autour d’une empreinte sur une face MgO (001), (a) demi-boucle dans les plans  $\{110\}_{45}$ , (b) demi-boucle dans les plans  $\{110\}_{90}$ , (c) distribution en volume autour de l’empreinte (Gaillard 2004) [74], (d) dénomination des plans convergents (CV) et divergents (DV) sous l’empreinte.

l’empreinte (figure 1-19.a), tandis que les demi-boucles selon les directions  $\langle 110 \rangle$  sont réparties de chaque côté de l’empreinte (figure 1-19.b).

Dans le cas d’indentation sur une surface (001) nous distinguerons les plans à  $45^\circ$  qui s’éloignent de l’empreinte (divergents) de ceux qui repassent en dessous (convergents) (figure 1-19.d). Expérimentalement ce sont des plans  $\{110\}_{45}$  convergents qui sont activés en premier.

Les dislocations des plans convergents repassent sous l’empreinte et voient une contrainte plus élevée que celles glissant dans des plans divergents. Gaillard *et al.* [17] ont observé que les dislocations des plans convergents se développent sur de plus grandes distances en raison de la contrainte plus élevée à laquelle elles sont soumises (figure 1-18.a). Les dislocations dans les plans de type  $\{110\}_{90}$  présentent un étranglement, dû au profil du champ de contrainte, d’une de leurs extrémités à proximité de l’empreinte (figure 1-18.b).

### 3.2.2. Structure de dislocations dans MgO

Gaillard *et al.* [17, 74] ont étudié la distribution des piqûres d'attaque sous une empreinte de nanoindentation réalisée avec un indenteur Berkovich (figure 1-20.). Ces auteurs ont observé les figures d'attaque réalisées après décapages successifs d'une fine couche d'échantillon. La figure 1-20.a, réalisée en surface, montre clairement les alignements de piqûres des huit bras de Rosette. Les alignements 1 et 2 sont très dissymétriques, cela provient de la non axisymétrie de l'indenteur qui présente des faces et des arêtes. Au fur et à mesure des polissages, les empilements dans les plans convergents commencent par se rapprocher jusqu'à se croiser au point de convergence (figures 1-20.b et c), puis s'éloignent les uns des autres (figures 1-20.d et e), alors que les empilements dans les plans divergents ne font que s'éloigner d'une distance double de la profondeur de décapage (figures 1-20.c à e). A n'importe quelle profondeur, l'espacement des DVA et CVB (et *vice versa*) correspond à la largeur du bras de surface.

Les dislocations des plans convergents sont plus étendues que celles des plans divergents car elles voient une contrainte plus importante dans le premier cas. La forme

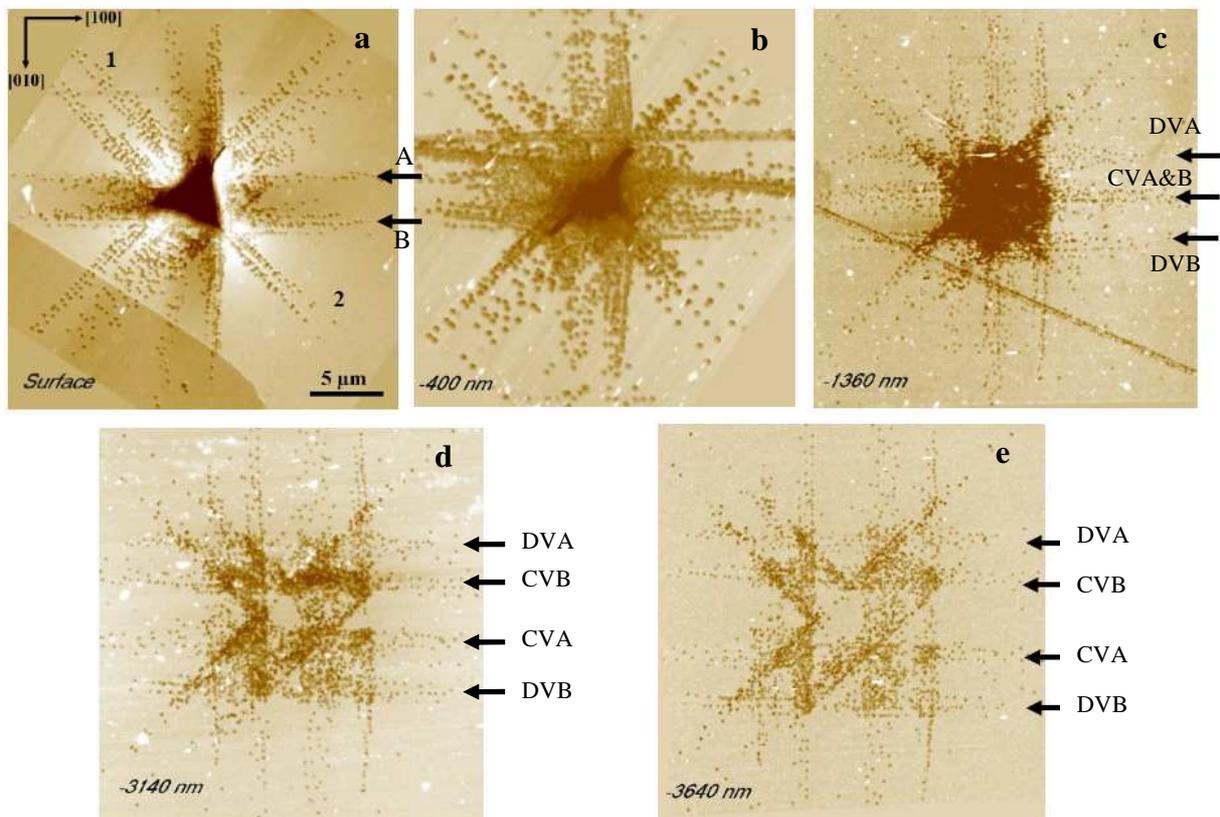


Figure 1-20. : Images AFM des figures d'attaque réalisées autour d'une empreinte Berkovich (80 mN) à différentes profondeurs (indiquées en bas à gauche de chacune des images a à e) (Gaillard *et al.* 2002) [17].

d'équilibre des dislocations est proche d'une forme en « U ».

Dans le cas d'un essai de nanoindentation avec un indenteur sphérique sur MgO (001), le rapport de dimension entre l'empreinte et l'extension des bras de Rosette est d'environ 1 pour 5. Toujours dans le cas d'indentation avec une sphère, la distribution des dislocations est symétrique car l'indenteur présente une symétrie de révolution.

### 3.2.3. Topographie

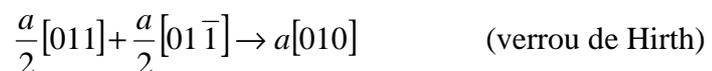
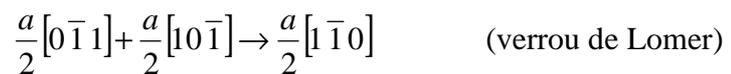
La propagation et l'émergence d'une dislocation en surface a pour effet de cisailer le plan de surface. Les systèmes  $\langle 110 \rangle \{110\}_{45}$  donnent lieu à une marche en surface, alors que les systèmes  $\langle 110 \rangle \{110\}_{90}$ , dont le vecteur de Burgers est dans le plan de surface, ne produisent aucune marche. La hauteur  $h$  de la marche formée est directement proportionnelle à la composante perpendiculaire du vecteur de Burgers  $b_z$  et au nombre  $N$  de dislocations ayant contribuées à sa formation :

$$h = N \times b_z = N \times 2,1 \text{ \AA}$$

Il n'y a pas de vecteur de Burgers communs à deux plans de type  $\{110\}$  ce qui ne permet pas de glissement dévié dans ce type de plan.

### 3.2.4. Interactions entre dislocations

Sous l'effet des contraintes complexes engendrées par l'indenteur, plusieurs systèmes de glissement peuvent rapidement être activés, conduisant à de multiples interactions entre dislocations. Keh *et al.* [13] ont rapporté l'interaction de deux dislocations contenues dans des plans  $\{110\}_{45}$  adjacents et faisant un angle de  $120^\circ$  entre eux (figure 1-21.a). Cette interaction conduit à la formation d'une nouvelle dislocation hors de son plan de glissement primaire et qui est donc sessile et forme un verrou de Lomer. Veledniskaya *et al.* [73] ont observé la réaction de deux dislocations contenues dans des plans  $\{110\}_{45}$  opposés et faisant un angle de  $90^\circ$  (figure 1-21.b). Cette réaction conduit également à la formation d'une dislocation sessile qui forme un verrou de Hirth. Ces deux réactions ont pour équations :



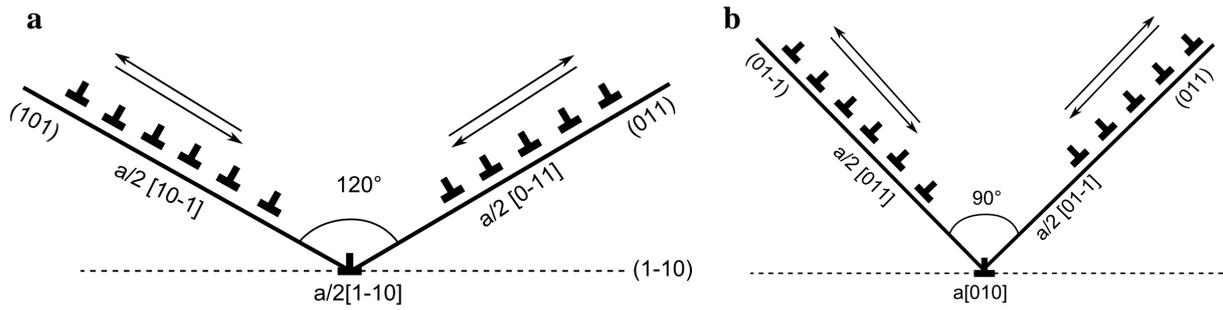


Figure 1-21. : Interactions entre dislocations conduisant à la formation d'une dislocation sessile et d'un verrou de (a) Lomer, (b) Hirth, d'après Keh *et al.* (1959) [13] et Veledniskaya *et al.* (1975) [73].

Keh *et al.* [13] montrent que la première réaction permet de relaxer l'énergie élastique des composantes vis des deux dislocations initiales, tandis que la seconde réaction ne permet aucun changement en énergie. Pourtant les deux types de réaction sont observés expérimentalement sans ambiguïté [13, 21].

La formation de ces verrous empêche la propagation des nouvelles dislocations qui s'accumulent contre la dislocation sessile. Lorsque la contrainte devient trop importante une fissure s'initie dans les plans  $\{110\}_{45}$  et  $\{100\}$  pour les verrous de Lomer et Hirth respectivement. De nombreuses études rapportent la formation de ces fissures lors d'essais de microindentation sur MgO [13, 14, 21, 73].

### 3.2.5. Le pop-in dans MgO

Tromas *et al.* [75] et Gaillard [74] ont considéré le site de nucléation sur MgO au regard des contraintes projetées dans les systèmes de glissement effectivement observés et non des contraintes principales. Cette approche permet de tenir compte des réels systèmes de glissement dans MgO. Ils ont représenté les contraintes élastiques sous un indenteur sphérique (figure 1-22.). La contrainte projetée est maximale ( $RSS_{max}$ ) dans les systèmes  $\langle 110 \rangle \{110\}_{45}$  sur l'axe d'indentation à  $0,44 r_c$  fois le rayon de contact  $r_c$  sous le contact (figure 1-22.a). L'émergence d'une dislocation nucléée à  $RSS_{max45}$  crée une marche en surface, sous le contact de l'indenteur à  $0,44 r_c$  de l'axe d'indentation (figure 1-22.c). Les systèmes  $\langle 110 \rangle \{110\}_{90}$  présentent quatre maxima de contrainte identiques. Ils sont situés à une profondeur de  $0,65 r_c$ , à une distance radiale de  $1,1 r_c$  de l'axe d'indentation et à une position angulaire de  $0, \pi/2, \pi$  et  $3\pi/2$  par rapport à la direction  $[100]$  (figure 1-22.b). La nucléation au point de contrainte maximum de ces systèmes conduit à la formation d'empilements dans les directions  $\langle 110 \rangle$  qui ne laissent pas de marche en surface (figure 1-22.c). Le maximum de contrainte vu dans les plans de type  $\{110\}_{45}$  est beaucoup plus important que celui des plans

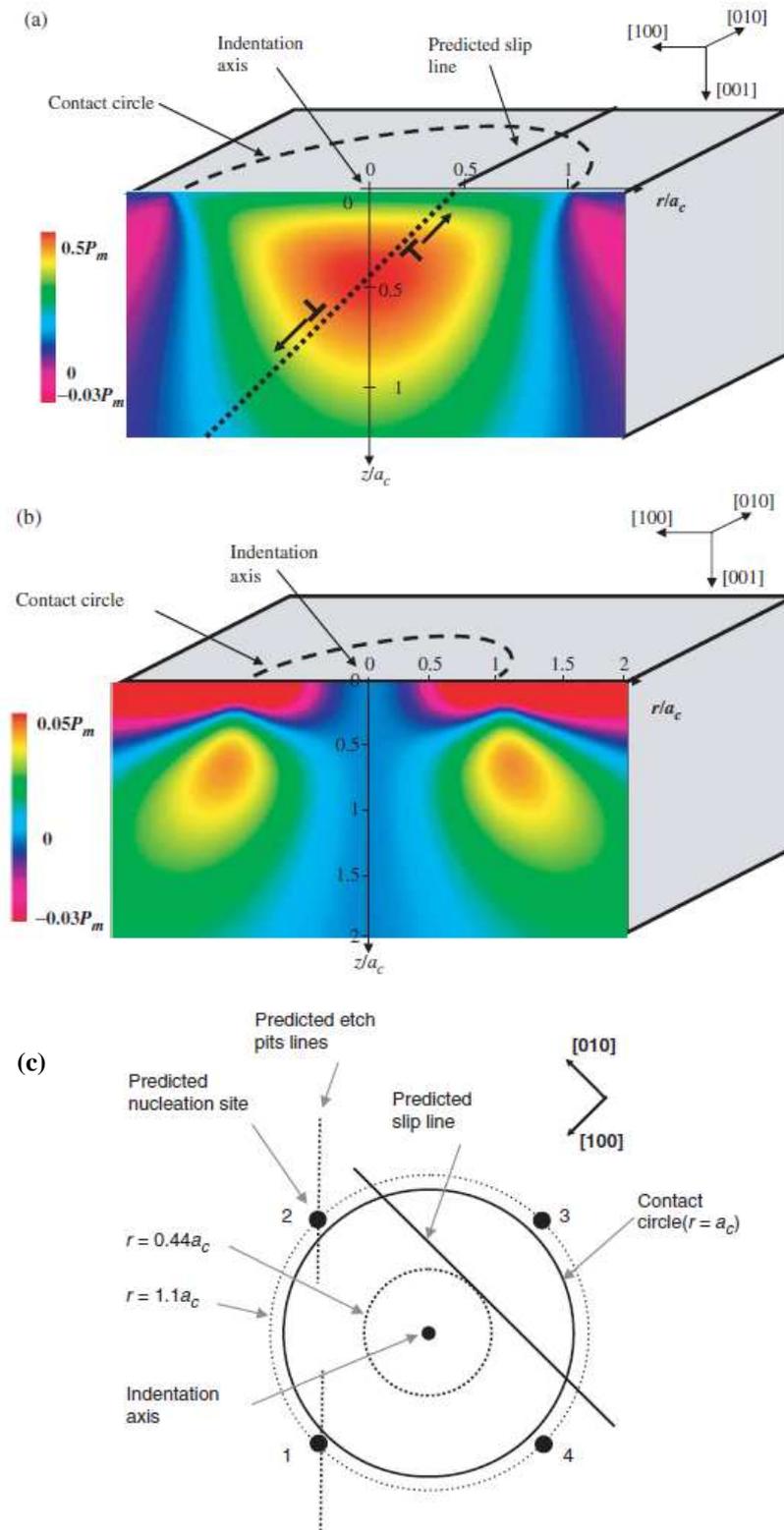


Figure 1-22. : Contraintes résolues (a) pour le système  $\langle 110 \rangle \{110\}_{45}$  et (b) pour le système  $\langle 110 \rangle \{110\}_{90}$ , représentées dans le plan (100) contenant l'axe d'indentation, la nucléation d'une boucle glissile est schématisée en (a) ; (c) projection dans le plan de surface (001) des maximums de contrainte, sont également représentées la position d'émergence de dislocations nucléées au point de contrainte maximum pour un système  $\langle 110 \rangle \{110\}_{45}$  (ligne continue) ainsi qu'aux points de contrainte maximum 1 et 2 pour les systèmes  $\langle 110 \rangle \{110\}_{90}$  (pointillés) ;  $a_c$  est le rayon sous contact et  $P_m$  la pression moyenne de contact (Tromas *et al.* 2006) [75].

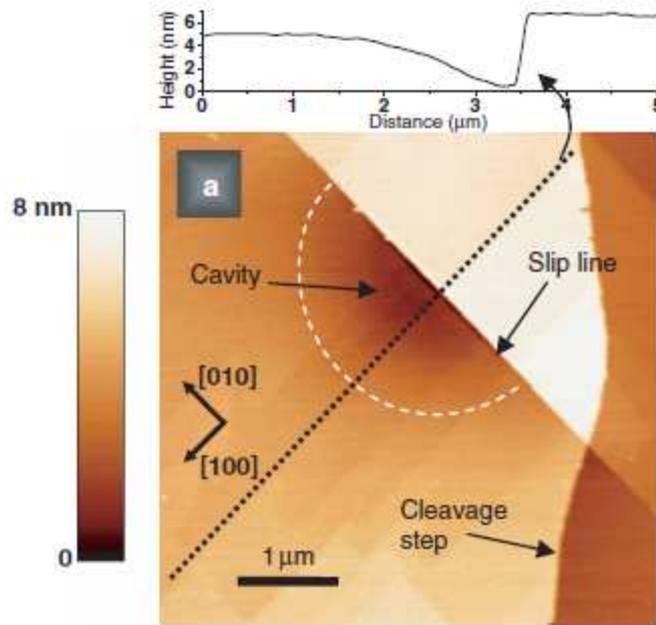


Figure 1-23. : Image AFM de la déformation de surface après un essai de nanoindentation avec une sphère de grand rayon de courbure, stoppée après le premier pop-in (Tromas *et al.* 2006) [75].

de type  $\{110\}_{90}$ . Par exemple, avec un indenteur sphérique de rayon  $10 \mu\text{m}$  à  $50 \text{ mN}$ ,  $\text{RSS}_{\text{max}45}$  est dix fois plus grand que  $\text{RSS}_{\text{max}90}$ .

En comparant leurs analyses du champ de contrainte avec l'étude expérimentale d'une zone faiblement déformée (figure 1-23.), ils montrent que lors du pop-in, les premières dislocations sont nucléées au point où la contrainte projetée est maximale.

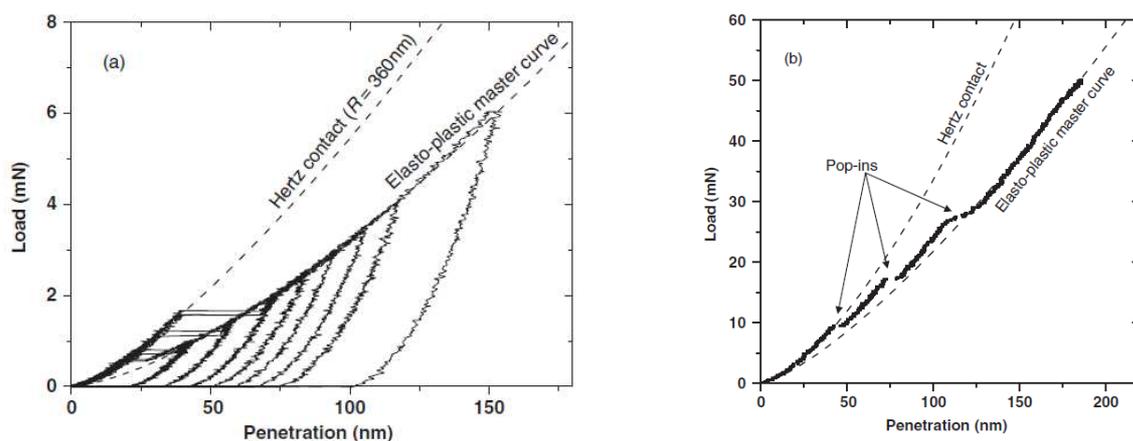


Figure 1-24. : (a) Superposition de plusieurs courbes d'indentation réalisées avec un indenteur Berkovich sur MgO, (b) courbe de nanoindentation sur MgO avec un indenteur sphérique de grand rayon de courbure ( $10 \mu\text{m}$ ). Par soucis de clarté la courbe de décharge n'est pas représentée (Tromas *et al.* 2006) [75].

Dans le cas d'indentation avec un indenteur Berkovich (figure 1-24.a), on retrouve la description classique d'un essai de nanoindentation dans MgO. Une phase de déformation élastique est tout d'abord observée : la charge et la décharge sont parfaitement superposées. Ensuite après apparition d'un pop-in, on observe une déformation élasto-plastique. Avec un indenteur sphérique il est possible d'observer plusieurs pop-in espacés de rechargement élastique avant d'atteindre le régime continu de déformation élasto-plastique (figure 1-24.b).

En indentant des surfaces clivées de MgO, Tromas *et al.* [75] et Gaillard [74] montrent qu'au premier pop-in les dislocations se nucléent au point de contrainte projetée maximum. L'émergence sous le contact de ces dislocations permet de relaxer les contraintes au point de nucléation. Cette chute de contrainte provoque l'arrêt de la nucléation. Le rechargement élastique permet d'augmenter à nouveau la contrainte, jusqu'à nucléation au nouveau maximum situé plus profondément sur l'axe d'indentation. Ce cycle se répète jusqu'à ce que la présence des marches de surface délocalise le maximum de contrainte projetée sur  $\langle 110 \rangle \{110\}_{45}$  hors de l'axe d'indentation, en bord d'empreinte. La nucléation sur ce nouveau site ne permet plus de relaxer suffisamment les contraintes, et après nucléation de plusieurs trains de dislocations le régime atteint un stade continu de déformation élasto-plastique.

Lorsque l'indenteur est retiré avant le régime continu de déformation élasto-plastique, c'est-à-dire après le premier ou le second pop-in, seules quelques lignes de glissement sont observables en surface. Il n'y a pas formation d'une réelle empreinte épousant la forme de l'indenteur (figure 1-23.).



## Références bibliographiques

- [1] J. Brinell, "Mémoire sur les épreuves à bille en acier," presented at the Congrès International des Méthodes d'Essai des Matériaux de Construction, Paris, p. 83-94, 1901.
- [2] E. Meyer, "Untersuchungen über Harteprüfung und Harte," vol. **52**, p. 645-654, 1908.
- [3] W. C. Oliver et G. M. Pharr, "Improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments," *Journal of Materials Research*, vol. **7**, n°. 6, p. 1564, 1992.
- [4] J. Pethica et D. Tabor, "Contact of characterised metal surfaces at very low loads: Deformation and adhesion," *Surface Science*, vol. **89**, n°. 1, p. 182-190, 1979.
- [5] N. Gane et F. P. Bowden, "Microdeformation of Solids," *Journal of Applied Physics*, vol. **39**, n°. 3, p. 1432, 1968.
- [6] W. Oliver et G. Pharr, "Measurement of hardness and elastic modulus by instrumented indentation: Advances in understanding and refinements to methodology," *Journal of Materials Research*, vol. **19**, n°. 1, p. 3-20, 2004.
- [7] W. Gerberich, W. Yu, D. Kramer, A. Strojny, D. Bahr, E. Lilleodden, et J. Nelson, "Elastic loading and elastoplastic unloading from nanometer level indentations for modulus determinations," *Journal of Materials Research*, vol. **13**, n°. 2, p. 421-439, 1998.
- [8] G. Pharr, "Measurement of mechanical properties by ultra-low load indentation," *Materials Science and Engineering A*, vol. **253**, n°. 1, p. 151-159, 1998.
- [9] W. W. Gerberich, S. Venkataraman, H. Huang, S. E. Harvey, et D. L. Kohlstedt, "The injection of plasticity by millinewton contacts," *Acta Metallurgica Et Materialia*, vol. **43**, n°. 4, p. 1569, 1995.
- [10] A. Asenjo et J. M. Rojo, "Dislocation generation and motion at the incipient stages of surface plasticity in barite," *Philosophical Magazine*, vol. **87**, n°. 26, p. 3959-3966, 2007.
- [11] S. G. Corcoran, R. J. Colton, E. T. Lilleodden, et W. W. Gerberich, "Anomalous plastic deformation at surfaces: Nanoindentation of gold single crystals," *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. **55**, n°. 24, 1997.
- [12] K. A. Nibur et D. F. Bahr, "Identifying slip systems around indentations in FCC metals," *Scripta Materialia*, vol. **49**, n°. 11, p. 1055-1060, 2003.
- [13] A. S. Keh, J. C. M. Li, et Y. T. Chou, "Cracks due to the piling-up of dislocations on two intersecting slip planes in MgO crystals," *Acta Metallurgica*, vol. **7**, n°. 10, p. 694-696, 1959.
- [14] R. W. Armstrong et C. C. Wu, "Lattice misorientation and displaced volume for microhardness indentations in MgO crystals," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. **61**, n°. 3, p. 102, 1978.
- [15] A. S. Keh, "Dislocations in indented magnesium oxide crystals," *Journal of Applied Physics*, vol. **31**, n°. 9, p. 1538, 1960.
- [16] J. J. Gilman, W. G. Johnston, et G. W. Sears, "Dislocation Etch Pit Formation in Lithium Fluoride," *Journal of Applied Physics*, vol. **29**, n°. 5, p. 747, 1958.

- [17] Y. Gaillard, C. Tromas, et J. Woïrgard, "Study of the dislocation structure involved in a nanoindentation test by atomic force microscopy and controlled chemical etching," *Acta Materialia*, vol. **51**, n° 4, p. 1059, 2003.
- [18] A. A. Zbib et D. F. Bahr, "Dislocation nucleation and source activation during nanoindentation yield points," *Metallurgical and Materials Transactions A: Physical Metallurgy and Materials Science*, vol. **38**, n° 13, p. 2249, 2007.
- [19] P. Sadrabadi, K. Durst, M. Göken, et W. Blum, "Quantification of dislocation structures at high resolution by atomic force microscopy of dislocation etch pits," *Philosophical Magazine Letters*, vol. **89**, n° 6, p. 391-398, 2009.
- [20] J. J. Gilman, "Nucleation of dislocation loops by cracks in crystals," *Journal of Metals*, vol. **212**, n° 310, p. 449-454, 1957.
- [21] B. L. Hammond et R. W. Armstrong, "Recovered elastic and plastic strains at residual micro-indentations in an MgO crystal," *Philosophical Magazine Letters*, vol. **57**, n° 1, p. 41-47, 1988.
- [22] T. F. Page, W. C. Oliver, et C. J. McHargue, "Deformation behavior of ceramic crystals subjected to very low load (nano)indentations," *Journal of Materials Research*, vol. **7**, n° 2, p. 450, 1992.
- [23] Y. L. Chiu et A. H. W. Ngan, "Time-dependent characteristics of incipient plasticity in nanoindentation of a Ni<sub>3</sub>Al single crystal," *Acta Materialia*, vol. **50**, n° 6, p. 1599, 2002.
- [24] A. Gouldstone, H. J. Koh, K. Y. Zeng, A. E. Giannakopoulos, et S. Suresh, "Discrete and continuous deformation during nanoindentation of thin films," *Acta Materialia*, vol. **48**, p. 2277-2295, 2000.
- [25] Y. Chiu et A. Ngan, "A TEM investigation on indentation plastic zones in Ni<sub>3</sub>Al(Cr,B) single crystals," *Acta Materialia*, vol. **50**, n° 10, p. 2677, 2002.
- [26] A. M. Minor, E. T. Lilleodden, E. A. Stach, et J. W. Morris Jr, "Direct observations of incipient plasticity during nanoindentation of Al," *Journal of Materials Research*, vol. **19**, n° 1, p. 176, 2004.
- [27] A. M. Minor, S. A. Syed Asif, Z. Shan, E. A. Stach, E. Cyrankowski, T. J. Wyrobek, et O. L. Warren, "A new view of the onset of plasticity during the nanoindentation of aluminium," *Nature Materials*, vol. **5**, n° 9, p. 697, 2006.
- [28] C. Tromas, J. C. Girard, et J. Woïrgard, "Study by atomic force microscopy of elementary deformation mechanisms involved in low load indentations in MgO crystals," *Philosophical Magazine A*, vol. **80**, n° 10, p. 2325-2335, 2000.
- [29] C. Coupeau, "Slip line analysis in Ni<sub>3</sub>Al by atomic force microscopy," *Scripta Materialia*, vol. **41**, n° 9, p. 945-950, 1999.
- [30] Y. Gaillard, C. Tromas, et J. Woïrgard, "Quantitative analysis of dislocation pile-ups nucleated during nanoindentation in MgO," *Acta Materialia*, vol. **54**, n° 5, p. 1409, 2006.
- [31] C. Tromas, J. C. Girard, V. Audurier, et J. Woïrgard, "Study of the low stress plasticity in single-crystal MgO by nanoindentation and atomic force microscopy," *Journal of Materials Science*, vol. **34**, n° 21, p. 5337, 1999.
- [32] B. R. Lawn, "Indentation of ceramics with spheres: A century after Hertz," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. **81**, n° 8, p. 1977, 1998.

- [33] A. Arora, D. Marshall, B. Lawn, et M. Swain, "Indentation deformation/fracture of normal and anomalous glasses," *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. **31**, n°. 3, p. 415-428, 1979.
- [34] J. Li, W. Pan, F. SATO, et R. WATANABE, "Mechanical properties of polycrystalline Ti<sub>3</sub>SiC<sub>2</sub> at ambient and elevated temperatures," *Acta Materialia*, vol. **49**, n°. 6, p. 937-945, 2001.
- [35] M. Göken et M. Kempf, "Pop-ins in nanoindentation - the initial yield point," *Zeitschrift für Metallkunde*, vol. **92**, n°. 9, p. 1061-1067, 2001.
- [36] G. L. W. Cross, A. Schirmeisen, P. Grütter, et U. T. Dürig, "Plasticity, healing and shakedown in sharp-asperity nanoindentation," *Nature Materials*, vol. **5**, n°. 5, p. 370-376, 2006.
- [37] T. Juliano, V. Domnich, et Y. Gogotsi, "Examining pressure-induced phase transformations in silicon by spherical indentation and Raman spectroscopy: A statistical study," *Journal of Materials Research*, vol. **19**, n°. 10, p. 3099-3108, 2004.
- [38] T. A. Michalske et J. E. Houston, "Dislocation nucleation at nano-scale mechanical contacts," *Acta Materialia*, vol. **46**, n°. 2, p. 391, 1998.
- [39] D. F. Bahr, D. E. Kramer, et W. W. Gerberich, "Non-linear deformation mechanisms during nanoindentation," *Acta Materialia*, vol. **46**, n°. 10, p. 3605, 1998.
- [40] S. A. Syed Asif et J. B. Pethica, "Nanoindentation creep of single-crystal tungsten and gallium arsenide," *Philosophical Magazine A: Physics of Condensed Matter, Structure, Defects and Mechanical Properties*, vol. **76**, n°. 6, p. 1105, 1997.
- [41] W. W. Gerberich, J. C. Nelson, E. T. Lilleodden, P. Anderson, et J. T. Wyrobek, "Indentation induced dislocation nucleation: The initial yield point," *Acta Materialia*, vol. **44**, n°. 9, p. 3585, 1996.
- [42] A. B. Mann et J. B. Pethica, "The role of atomic size asperities in the mechanical deformation of nanocontacts," *Applied Physics Letters*, vol. **69**, n°. 7, p. 907, 1996.
- [43] C. L. Kelchner, S. J. Plimpton, et J. C. Hamilton, "Dislocation nucleation and defect structure during surface indentation," *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, vol. **58**, n°. 17, p. 11085, 1998.
- [44] C. A. Schuh, J. K. Mason, et A. C. Lund, "Quantitative insight into dislocation nucleation from high-temperature nanoindentation experiments," *Nature Materials*, vol. **4**, n°. 8, p. 617-621, 2005.
- [45] M. Pang et D. F. Bahr, "Thin-film fracture during nanoindentation of a titanium oxide film-titanium system," *Journal of Materials Research*, vol. **16**, n°. 9, p. 2634-2643, 2001.
- [46] E. Weppelmann et M. V. Swain, "Investigation of the stresses and stress intensity factors responsible for fracture of thin protective films during ultra-micro indentation tests with spherical indenters," *Thin Solid Films*, vol. **286**, n°. 1, p. 111-121, 1996.
- [47] S. V. Hainsworth, M. R. McGurk, et T. F. Page, "The effect of coating cracking on the indentation response of thin hard-coated systems," *Surface and Coatings Technology*, vol. **102**, n°. 1, p. 97-107, 1998.
- [48] D. E. Kramer, K. B. Yoder, et W. W. Gerberich, "Surface constrained plasticity: Oxide rupture and the yield point process," *Philosophical Magazine A*, vol. **81**, n°. 8, p. 2033-2058, 2001.

- [49] S. K. Venkataraman, D. L. Kohlstedt, et W. W. Gerberich, "Continuous microindentation of passivating surfaces," *Journal of Materials Research*, vol. **8**, n° 4, p. 685-688, 1993.
- [50] N. Gane, "The direct measurement of the strength of metals on a sub-micrometre scale," *Proceedings of the Royal Society of London*, vol. **317**, p. 367, 1970.
- [51] R. C. Thomas, J. E. Houston, T. A. Michalske, et R. M. Crooks, "The Mechanical Response of Gold Substrates Passivated by Self-Assembling Monolayer Films," *Science*, vol. **259**, n° 5103, p. 1883-1885, 1993.
- [52] A. Kelly et N. H. Macmillan, *Strong solids*, 3 éd. Oxford [Oxfordshire]: Clarendon Press, 1986.
- [53] J. Frenkel, "Zur Theorie der Elastizitätsgrenze und der Festigkeit kristallinischer Körper," *Zeitschrift für Physik*, vol. **37**, n° 7, p. 572-609, 1926.
- [54] A. T. Paxton, P. Gumbsch, et M. Methfessel, "A quantum mechanical calculation of the theoretical strength of metals," *Philosophical Magazine Letters*, vol. **63**, n° 5, p. 267-274, 1991.
- [55] A. B. Mann et J. B. Pethica, "The effect of tip momentum on the contact stiffness and yielding during nanoindentation testing," *Philosophical Magazine A*, vol. **79**, n° 3, p. 577-592, 1999.
- [56] J. Mason, A. Lund, et C. Schuh, "Determining the activation energy and volume for the onset of plasticity during nanoindentation," *Physical Review B*, vol. **73**, n° 5, 2006.
- [57] P. Wo, L. Zuo, et A. Ngan, "Time-dependent incipient plasticity in Ni<sub>3</sub>Al as observed in nanoindentation," *Journal of Materials Research*, vol. **20**, n° 2, p. 489-495, 2005.
- [58] D. Lorenz, A. Zeckzer, U. Hilpert, P. Grau, H. Johansen, et H. Leipner, "Pop-in effect as homogeneous nucleation of dislocations during nanoindentation," *Physical Review B*, vol. **67**, n° 17, 2003.
- [59] A. Barnoush, M. T. Welsch, et H. Vehoff, "Correlation between dislocation density and pop-in phenomena in aluminum studied by nanoindentation and electron channeling contrast imaging," *Scripta Materialia*, vol. **63**, n° 5, p. 465-468, 2010.
- [60] J. Zimmerman, C. Kelchner, P. Klein, J. Hamilton, et S. Foiles, "Surface Step Effects on Nanoindentation," *Physical Review Letters*, vol. **87**, n° 16, 2001.
- [61] J. Kiely, R. Hwang, et J. Houston, "Effect of Surface Steps on the Plastic Threshold in Nanoindentation," *Physical Review Letters*, vol. **81**, n° 20, p. 4424-4427, 1998.
- [62] A. Gouldstone, K. J. Van Vliet, et S. Suresh, "Nanoindentation. Simulation of defect nucleation in a crystal," *Nature*, vol. **411**, n° 6838, p. 656, Jun. 2001.
- [63] M. D. Uchic, D. M. Dimiduk, J. N. Florando, et W. Nix, "Sample Dimensions Influence Strength and Crystal Plasticity," *Science*, vol. **305**, n° 5686, p. 986-989, 2004.
- [64] J. Greer, W. Oliver, et W. Nix, "Size dependence of mechanical properties of gold at the micron scale in the absence of strain gradients," *Acta Materialia*, vol. **53**, n° 6, p. 1821-1830, 2005.
- [65] V. Navarro, O. R. De La Fuente, A. Mascaraque, et J. M. Rojo, "Uncommon dislocation processes at the incipient plasticity of stepped gold surfaces," *Physical Review Letters*, vol. **100**, n° 10, 2008.
- [66] G. Ziegenhain et H. Urbassek, "Reversible plasticity under nanoindentation of

- atomically flat and stepped surfaces of fcc metals,” *Philosophical Magazine Letters*, vol. **89**, n°. 11, p. 717-723, 2009.
- [67] J. Knap et M. Ortiz, “Effect of Indenter-Radius Size on Au(001) Nanoindentation,” *Physical Review Letters*, vol. **90**, n°. 22, 2003.
- [68] H. Hertz, “Über die Berührung fester elastischer Körper.,” *Journal für die reine und angewandte Mathematik (Crelles Journal)*, vol. **1882**, n°. 92, p. 156-171, 1882.
- [69] J. L. Loubet, J. M. Georges, O. Marchesini, et G. Meille, “Vickers Indentation Curves of Magnesium Oxide (MgO),” *Journal of Tribology*, vol. **106**, n°. 1, p. 43, 1984.
- [70] P. Haasen, “Dislocations and the plasticity of ionic crystals,” *Materials science and technology*, vol. **1**, n°. 12, p. 1013-1024, 1985.
- [71] P. Haasen, C. Barthel, et T. Suzuki, “Choice of slip system and Peierls in NaCl structure,” in *Dislocations in solids*, Tokyo: University of Tokyo Press, 1985.
- [72] P. Carrez, D. Ferré, et P. Cordier, “Peierls–Nabarro modelling of dislocations in MgO from ambient pressure to 100 GPa,” *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, vol. **17**, n°. 3, p. 035010, 2009.
- [73] M. A. Velednitskaya, V. N. Rozhanskii, L. F. Comolova, G. V. Saparin, J. Schreiber, et O. Bruemmer, “Investigation of the deformation mechanism of MgO crystals affected by concentrated load,” *Physica Status Solidi (A) Applied Research*, vol. **32**, n°. 1, p. 123, 1975.
- [74] Y. Gaillard, “Initiation de la plasticité sous nanoindentation dans MgO et LiF : étude de l’organisation des dislocations et des contraintes associées,” *Thèse de Doctorat*, Université de Poitiers, 2004.
- [75] C. Tromas, Y. Gaillard, et J. Woïrgard, “Nucleation of dislocations during nanoindentation in MgO,” *Philosophical Magazine*, vol. **86**, n°. 33, p. 5595, 2006.



---

## **Chapitre 2**

# **Techniques d'analyse et développements expérimentaux**

**Sommaire :**

<b>1. La nanoindentation .....</b>	<b>47</b>
1.1. Contact élastique sphère-plan : loi de Hertz .....	47
1.2. Dépouillement d'une courbe de nanoindentation .....	50
1.3. L'appareillage .....	54
1.4. Etalonnage .....	57
1.4.1. Complaisance machine .....	57
1.4.2. Etalonnage en force .....	58
1.4.3. Rayon de courbure des indenteurs sphériques .....	59
1.4.3.1. Etalonnage par indentation dans la silice .....	59
1.4.3.2. Etalonnage par microscopie à force atomique .....	60
<b>2. Préparation de surface .....</b>	<b>62</b>
2.1. Exigences sur l'état de surface .....	62
2.2. Polissage mécano-chimique .....	63
2.2.1. Le principe .....	63
2.2.2. L'appareillage .....	64
2.2.3. Contrôle de l'état chimique des surfaces polies .....	64
<b>3. Observation des dislocations .....</b>	<b>66</b>
3.1. La microscopie à force atomique .....	67
3.1.1. L'appareillage .....	67
3.1.2. Application à l'étude de la plasticité .....	70
3.2. Attaque chimique .....	70
3.2.1. Protocole expérimental .....	70
3.2.2. Apport de l'attaque chimique .....	71
3.3. Couplage attaque chimique et polissage .....	72
<b>4. Récapitulatif du protocole expérimental .....</b>	<b>74</b>
<b>Références bibliographiques .....</b>	<b>75</b>

## Chapitre 2

# Techniques d'analyse et développements expérimentaux

## 1. La nanoindentation

### 1.1. Contact élastique sphère-plan : loi de Hertz

La théorie de Hertz [1-3] donne une description du contact élastique entre deux sphères. Cette théorie se limite aux hypothèses d'une déformation élastique, et d'une pénétration  $h$  de l'indenteur très petite devant le rayon de contact  $r_c$ .

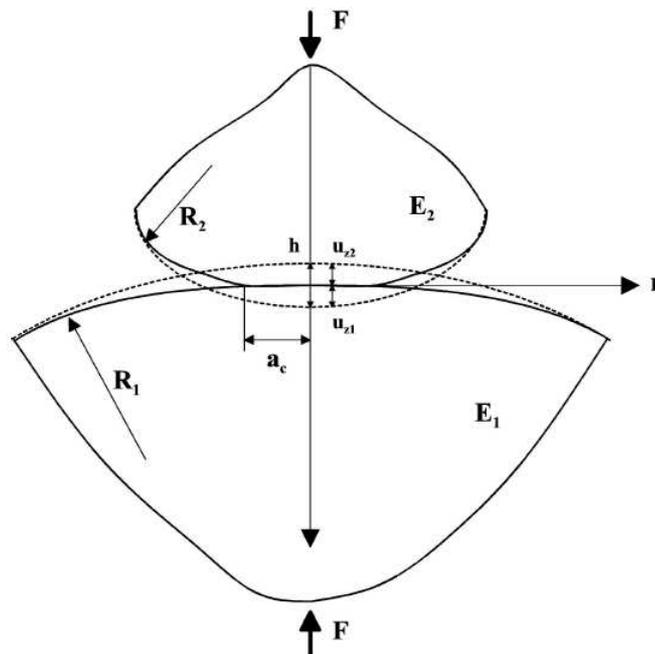


Figure 2-1. : Représentation schématique de deux sphères pressées l'une contre l'autre.

## Chapitre 2 : Techniques d'analyse et développements expérimentaux

Hertz a relié les déplacements élastiques  $u_{z1}$  et  $u_{z2}$  de la surface des sphères aux rayons des sphères  $R_1$  et  $R_2$  (figure 2-1.) :

$$u_{z1} + u_{z2} = h - \left(\frac{1}{2R}\right)r^2$$

où  $R$  est le rayon de courbure équivalent :

$$\frac{1}{R} = \frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2}$$

Pour l'étude du contact sphère-plan il suffit de se placer dans le cas où  $R_2 \rightarrow \infty$ . C'est le cas auquel se limitera l'étude qui suit.

Hertz [1] propose alors la distribution de pression sous un indenteur sphérique (figure 2-2.) :

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

où  $p_0$  est le maximum de la distribution de pression :

$$p_0 = \frac{3F}{2\pi r_c^2} = \left(\frac{6FE^*2}{\pi^3 R^2}\right)^{1/3}$$

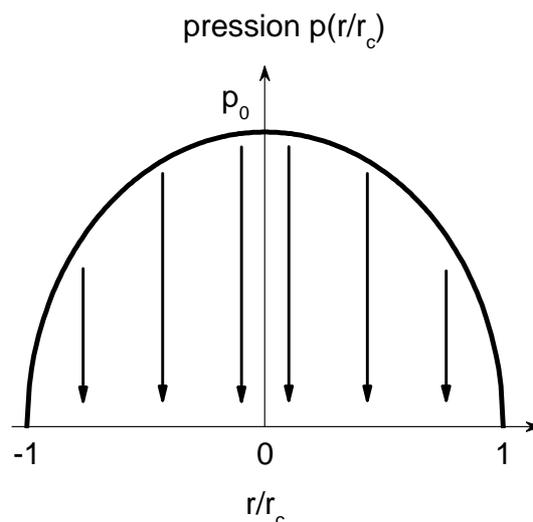


Figure 2-2. : Distribution de pression sous un contact élastique sphère-plan.

Il établit également les relations donnant le rayon de contact  $r_c$  ainsi que la profondeur de pénétration  $h$  en fonction de la force d'indentation  $F$  :

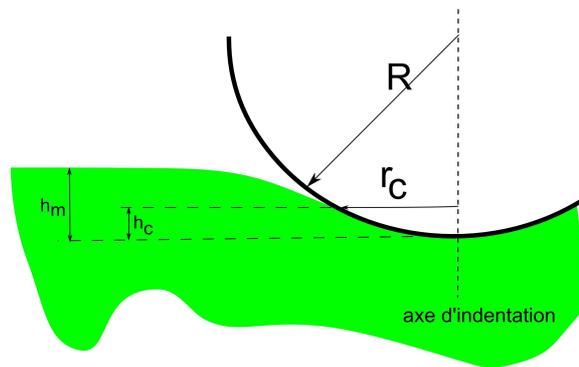
$$r_c = \left( \frac{3FR}{4E^*} \right)^{1/3}$$

$$h = \frac{r_c^2}{R} = \left( \frac{9F^2}{16RE^{*2}} \right)^{1/3}$$

où  $E^*$  est le module réduit ou équivalent :

$$\frac{1}{E^*} = \frac{1-\nu^2}{E} + \frac{1-\nu_i^2}{E_i}$$

avec  $E$ ,  $\nu$ ,  $E_i$ ,  $\nu_i$ , module d'Young et coefficient de Poisson du matériau et de l'indenteur respectivement.



**Figure 2-3. : Profil du contact élastique entre un plan et une sphère.**

La précédente équation peut également s'écrire sous la forme :

$$F = \frac{4}{3} E^* R^{1/2} h^{3/2}$$

En contact élastique sphère-plan, la hauteur sous contact  $h_c$  est très facile à déterminer puisqu'elle est égale à la moitié de la profondeur maximale de pénétration  $h_m$  :

$$h_c = \frac{h_m}{2}$$

Il est alors aisé à l'aide de relations géométriques (figure 2-3.), de calculer le rayon de contact  $r_c$  en fonction de la hauteur sous contact :

$$r_c \approx \sqrt{2Rh_c} \quad h_c \ll R$$

où  $r_c \approx \sqrt{Rh_m}$

Yoffe [4] a montré que pour  $r_c/R > 0,2$  la loi de Hertz n'est plus valide et qu'il faut y apporter une correction. Elle propose que la distribution de pression donnée par Hertz soit combinée à une distribution parabolique.

### 1.2. Dépouillement d'une courbe de nanoindentation

Le dépouillement d'une courbe de nanoindentation est une étape importante car c'est elle qui donne accès aux caractéristiques mécaniques de l'échantillon telle que la dureté ou encore le module d'Young. Toutefois cette étape nécessite de connaître précisément l'aire de contact projetée sous charge dont la détermination n'est pas triviale. En effet, il n'est pas possible de la lire directement sur une courbe de nanoindentation. En revanche, si le profil exact de l'indenteur est parfaitement connu, alors en évaluant la hauteur sous contact  $h_c$  et à partir de relations géométriques il est possible de déterminer l'aire de contact projetée.

Même si dans cette thèse, nous nous sommes essentiellement intéressés au contact de Hertz, nous rappelons ici les méthodes usuelles de dépouillement utilisées pour extraire les valeurs de dureté et de module d'indentation à partir d'une courbe conventionnelle de nanoindentation pour une forme d'indenteur quelconque.

#### ***Contact élastique indenteur – surface plane***

Sneddon [5] proposa deux relations afin de décrire le comportement élastique d'un matériau indenté par un indenteur axisymétrique. Elles permettent de déterminer la profondeur  $h$  de pénétration ainsi que la force appliquée  $F$ , à partir du rayon de contact  $r_c$ . Ces relations s'appliquent pour tout indenteur axisymétrique dont le profil géométrique (figure 2-4.) peut être décrit par la fonction  $z = f(x)$  où  $x = r/r_c$  :

$$h = \int_0^1 \frac{f'(x)dx}{\sqrt{(1-x^2)}}$$

$$F = 2E^* r_c \int_0^1 \frac{x^2 f'(x)dx}{\sqrt{(1-x^2)}}$$

avec  $E^*$  le module équivalent défini précédemment :  $\frac{1}{E^*} = \frac{(1-\nu^2)}{E} + \frac{(1-\nu_i^2)}{E_i}$ , avec :  $E$ ,  $\nu$ ,

$E_i$ ,  $\nu_i$ , respectivement le module d'Young et le coefficient de Poisson de l'échantillon et de l'indenteur.

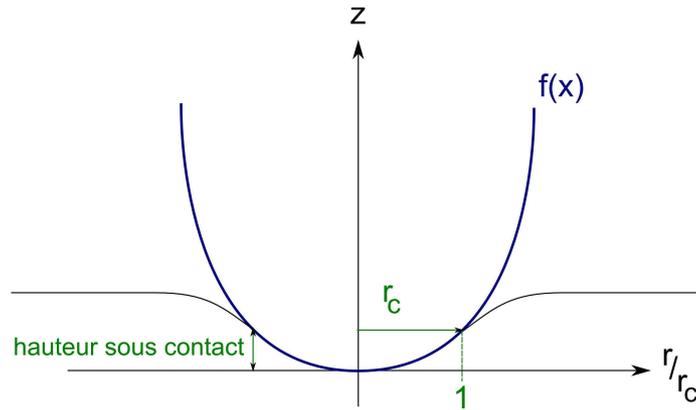


Figure 2-4. : Profil d'indentation pour un indenteur axisymétrique quelconque.

Sneddon [5] a également traité le problème du poinçon plat axisymétrique de rayon  $a$ , dans le cas d'un contact élastique avec une surface plane. Il montre que la force  $F$  et la profondeur de pénétration  $h$  sont reliées par :

$$F = 2aE^* h = 2E^* h \sqrt{\frac{A_c}{\pi}}$$

En dérivant cette expression par rapport à  $h$ , on obtient la pente  $S$  de la courbe de décharge :

$$S = \frac{dF}{dh} = 2E^* \sqrt{\frac{A_c}{\pi}}$$

La formule de Sneddon est, en fait, valable pour tout indenteur axisymétrique. Plus tard, King [6] a montré que cette relation pouvait être également valable pour d'autres indenteurs de section non-circulaire. Il propose d'introduire un facteur correctif  $\beta$  qui tient compte de la non-axisymétrie de l'indenteur :

$$S = \frac{dF}{dh} = 2\beta E^* \sqrt{\frac{A_c}{\pi}}$$

King donne une valeur de  $\beta$ , déterminée par éléments finis, en fonction de la géométrie de l'indenteur :

$\beta = 1.034$  pour une section triangulaire (par exemple Berkovich)

$\beta = 1.012$  pour une section quadrilatérale (par exemple Vickers)

$\beta = 1.000$  pour une section circulaire

Ces valeurs sont toujours en débat à l'heure actuelle, des travaux plus récents basés sur des calculs des potentiels élastiques proposent des valeurs légèrement différentes [7].

Cette relation est essentielle en nanoindentation. Elle va permettre, à partir de la courbe de décharge supposée parfaitement élastique, de mesurer les propriétés mécaniques du matériau. La dureté  $H$  et le module d'Young  $E$  de l'échantillon peuvent donc être extraits des relations suivantes :

$$H = \frac{F}{A_c}$$

$$S = \frac{dF}{dh} = 2\beta E^* \sqrt{\frac{A_c}{\pi}}$$

Or si  $F$  et  $S$  peuvent être déterminés directement sur une courbe d'indentation, ce n'est pas le cas pour l'aire de contact projetée à chargement maximum  $A_c$ . Différentes méthodes ont été proposées afin de remonter à cette aire de contact, la plupart utilise l'hypothèse d'une décharge élastique.

### Analyse de la courbe d'indentation

Une courbe d'indentation est un cycle de charge-décharge, non superposées lorsque l'essai laisse une empreinte permanente en surface (figure 2-5.a). Différentes profondeurs sont définies (figure 2-5.b). Certaines d'entre elles sont accessibles par simple lecture sur la courbe d'indentation : la profondeur de pénétration totale  $h_m$ , et la profondeur de l'empreinte résiduelle  $h_p$ . L'enfoncement de la ligne de contact par rapport à la surface initiale est désigné par  $h_s$ . La quantité  $h_m - h_p$  est la relaxation élastique totale à l'intérieur et à l'extérieur de

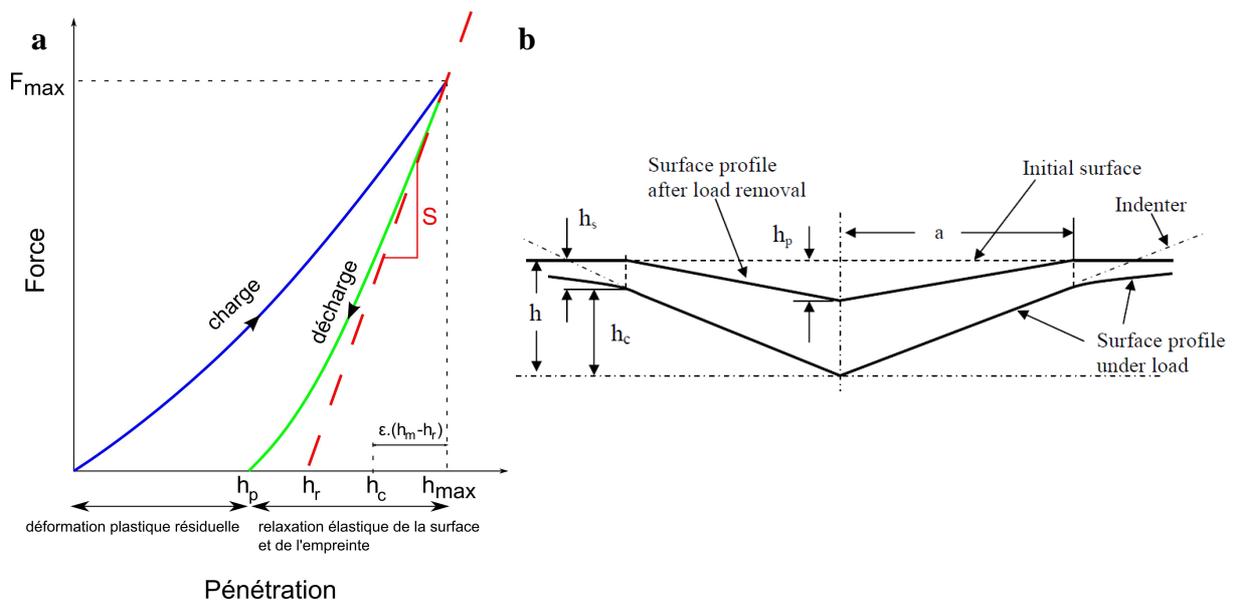


Figure 2-5. : (a) Courbe typique de nanoindentation, (b) représentation schématique du contact indenteur-échantillon.

l'empreinte au cours de la décharge. Toute la difficulté réside dans la décorrélation de la relaxation ayant lieu sous l'empreinte de celle provenant de la relaxation de surface, c'est-à-dire qu'il s'agit de déterminer la profondeur sous contact ou profondeur vraie  $h_c$  à charge maximale ( $h_c = h_m - h_s$ ). La raideur du contact  $S$  est définie comme la tangente à la courbe de décharge à chargement maximal.

A l'aide des travaux de Loubet *et al.* [8], Doerner et Nix [9] proposèrent une méthode simple qui consiste à assimiler la courbe de décharge à sa tangente à charge maximale, ce qui revient à se positionner dans le cas d'une décharge d'un poinçon plat ( $A_c$  constante). Cette méthode provient du fait expérimental que, sur la plupart des métaux, la courbe de décharge se rapproche effectivement d'une droite, ce qui revient à faire l'hypothèse  $h_p = h_r$ . Cependant cette méthode très simple ne prend en compte ni la relaxation de l'empreinte au cours de la décharge, ni la variation de surface de contact associée.

**Poinçon équivalent**

Solomon [10] montra que la décharge élastique d'un indenteur dans une empreinte pouvait être assimilée, en termes de contrainte, à un indenteur de forme modifiée en contact avec une surface plane (figure 2-6.). Oliver et Pharr [11] proposent d'exprimer la pénétration vraie de ce poinçon équivalent en fonction de la raideur du contact  $S$  :

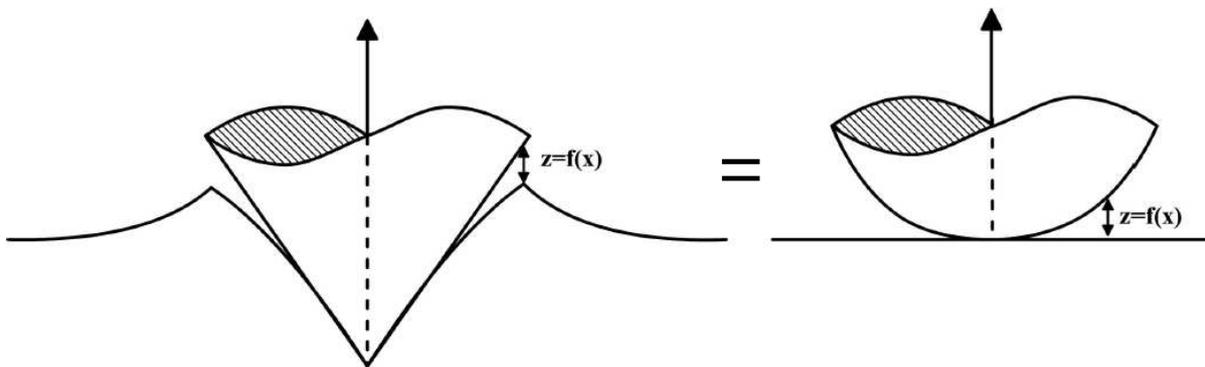
$$h_c = h_m - \varepsilon \frac{F_{\max}}{S} = h_m - \varepsilon.(h_m - h_r)$$

avec  $\varepsilon$  un coefficient qui dépend de la forme de l'indenteur :

$\varepsilon = 1.00$  pour un poinçon plat

$\varepsilon = 0.75$  pour un poinçon sphérique ou parabolique

$\varepsilon = 0.72$  pour un poinçon parfaitement conique



**Figure 2-6. : Poinçon équivalent de Solomon.**

Woirgard et Dargenton [12], reprenant l'idée du poinçon équivalent de Solomon [10], proposèrent de modéliser la forme du poinçon équivalent par un polynôme, ce qui permet de prendre en compte l'évolution réelle de la surface de contact pendant la décharge :

$$f(x) = \sum_{n=1}^{\infty} c_n r_c^n x^n$$

$$\text{avec } x = \frac{r}{r_c} \quad 0 \leq x \leq 1$$

Plus simplement ils montrent qu'en prenant un exposant  $n$  non entier, le profil du poinçon équivalent peut être décrit par une simple loi puissance (l'exposant  $n$  étant caractéristique de la forme de l'indenteur :  $n = 2$  pour une sphère) :

$$f(x) = Bx^n$$

La courbe de décharge peut être elle aussi décrite par une loi puissance :

$$F = k(h - h_p)^m$$

Woirgard et Dargenton montrent que l'exposant  $m$  de la courbe de décharge élastique peut être relié à l'exposant  $n$  de la fonction de forme de l'indenteur équivalent par la relation ( $m = 1,5$  pour une sphère) :

$$m = 1 + 1/n$$

A partir des travaux de Sneddon [5] et Segedin [13], ils montrent alors que la profondeur d'indentation vraie  $h_c$  prend la forme :

$$h_c = h_p + \gamma(h_m - h_p)$$

$$\text{avec } \gamma = \frac{1}{\sqrt{\pi}} \frac{\Gamma\left(\frac{1}{2}n + \frac{1}{2}\right)}{\Gamma\left(\frac{1}{2}n + 1\right)} = \frac{1 - \varepsilon}{m}$$

### **1.3. L'appareillage**

Les essais de nanoindentation ont été réalisés avec le Nano Hardness Tester (NHT) de CSM Instruments (Pezeux, Suisse). Cet appareil fonctionne en mode de force imposée. La figure 2-7. représente le schéma de principe du NHT. L'indenteur (1) est solidement fixé sur la colonne d'indentation (2). Le déplacement de cette colonne est assuré par la répulsion

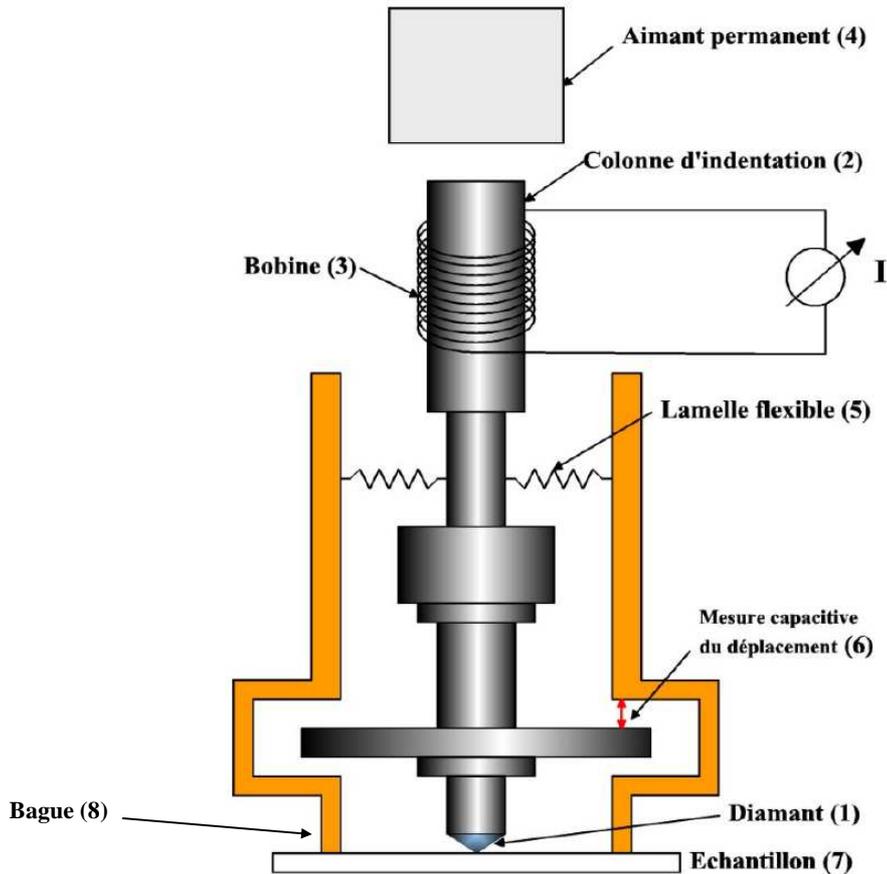


Figure 2-7. : Schéma de principe du nanoindenteur NHT.

électromagnétique entre un aimant permanent (4) et le champ magnétique induit par une bobine (3). Connaissant la valeur du courant qui parcourt la bobine, on détermine la force électromagnétique qui s'exerce sur la colonne, à laquelle on soustrait la force de rappel des lamelles flexibles (5). Ainsi on connaît précisément la force qui s'exerce sur l'échantillon (7). Le déplacement de la pointe est déterminé par mesure capacitive (6) et est continuellement enregistré en fonction de la force exercée sur l'indenteur. La référence pour la mesure du déplacement est donnée par une bague (8) en contact avec la surface de l'échantillon.

Le NHT est doté d'un microscope optique permettant de sélectionner la zone à indenter. Une table motorisée **X-Y** avec une précision de repositionnement de  $1\ \mu\text{m}$  permet de programmer des réseaux complexes d'indentation. L'automatisation permet de réaliser les essais dans les meilleures conditions de stabilité thermique et mécanique.

### ***Déroulement d'un essai***

Lors de l'essai de nanoindentation la tête de mesure descend jusqu'à ce que la bague soit au contact de l'échantillon. Puis l'indenteur est amené au contact de l'échantillon avec une vitesse définie, entre 500 et 4 000 nm/min. Le contact avec la surface est déterminé grâce

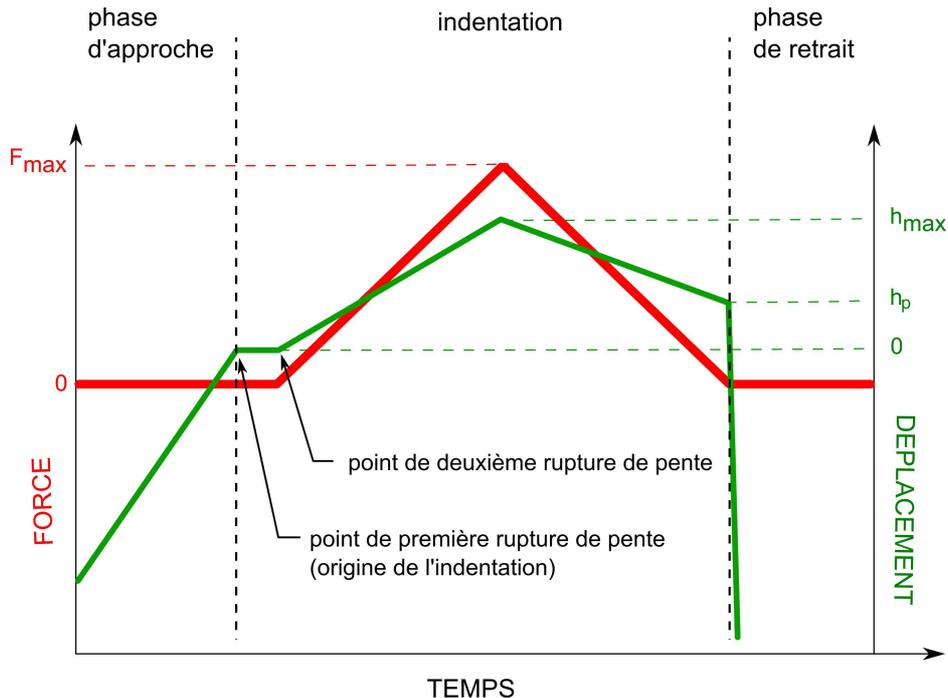


Figure 2-8. : Courbes force-temps et déplacement-temps.

à la rupture de pente de la courbe pénétration-temps (figure 2-8.). Une fois au contact, l'appareil applique une rampe linéaire de force définie par l'utilisateur. Afin de réduire la dérive thermique, mais malgré tout de conserver un nombre de point suffisant pour avoir une bonne résolution sur les courbes, nous avons choisi de réaliser les essais de nanoindentation à durée constante. Les durées de charge et de décharge sont de 30 secondes chacune, quelle que soit la charge maximale programmée.

La détermination du point de contact, et donc de l'origine de l'indentation, correspond au point de première rupture de pente sur la courbe déplacement-temps (figure 2-8.). La partie précédente est l'approche de l'indenteur. La deuxième rupture de pente intervient au moment où le nanoindenteur applique la vitesse de chargement programmée par l'utilisateur.

Les résolutions annoncées du nanoindenteur sont de 0,3 nm en déplacement pour des pénétrations ne pouvant pas excéder 20  $\mu\text{m}$ , et de 1  $\mu\text{N}$  en force pour des charges comprises entre 0,08 et 300 mN.

Le NHT peut être équipé indifféremment d'indenteurs Berkovich, Vickers ou encore sphérique. Pour cette étude nous avons utilisé deux indenteurs sphériques en diamant dont l'étalonnage est donné dans le paragraphe suivant.

## 1.4. Etalonnage

### 1.4.1. Complaisance machine

La machine n'est pas infiniment rigide. Une part du déplacement mesuré correspond à la déformation de la machine qui doit être soustraite lors du dépouillement. L'analyse d'une courbe de nanoindentation nécessite donc de connaître la raideur de l'appareil.

La complaisance  $C$  est définie comme l'inverse de la raideur du contact  $S$  (voir paragraphe 1.2. de ce chapitre). La complaisance totale  $C_t$  mesurée sur une courbe d'indentation est la somme de la complaisance machine  $C_m$  et de la complaisance échantillon  $C_e$  :

$$C_t = \frac{\partial h}{\partial F} = \frac{1}{S_t} = C_m + C_e = C_m + \frac{1}{S_e}$$

avec  $S_e = 2\beta E^* \sqrt{\frac{A_c}{\pi}}$

Afin d'avoir accès à la raideur du contact  $S_e$  de l'échantillon il est impératif de connaître la complaisance machine  $C_m$ . Elle est déterminée expérimentalement :

$$H_{IT} = \frac{F_{\max}}{A_c}$$

donc  $S_e = 2\beta \frac{E^*}{\sqrt{H_{IT}}} \frac{\sqrt{F_{\max}}}{\sqrt{\pi}}$

d'où  $C_t = C_m + \frac{\sqrt{\pi H_{IT}}}{2E^* \beta} \frac{1}{\sqrt{F_{\max}}}$

Dans le cas d'un matériau de référence dont le module et la dureté ne dépendent pas de la force appliquée, il suffit d'effectuer une série d'indentation à force croissante, et de tracer la droite  $C_t \left( \frac{1}{\sqrt{F_{\max}}} \right) = K \frac{1}{\sqrt{F_{\max}}} + C_m$ , l'ordonnée à l'origine correspondant alors simplement à la complaisance machine  $C_m$  (figure 2-9.).

Dans le cas du NHT utilisé pour cette étude la complaisance est de 0,2 nm/mN.

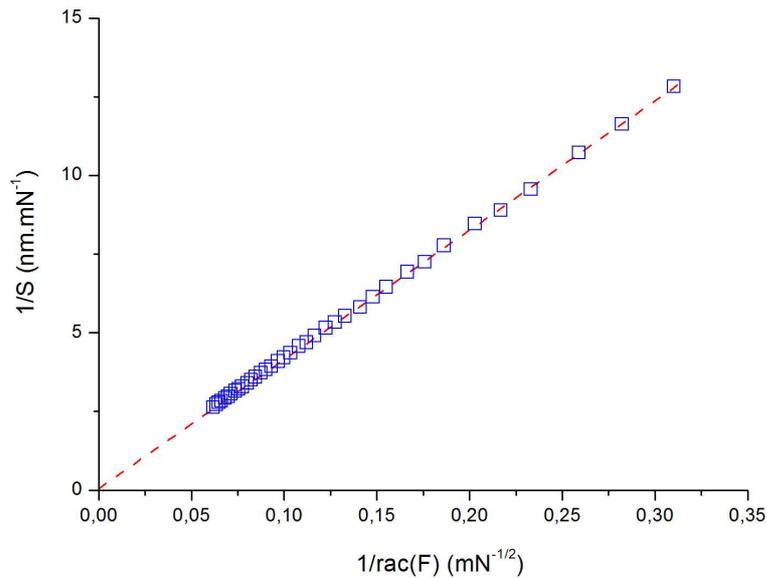


Figure 2-9. : Evolution de la complaisance mesurée en fonction de l'inverse de la racine carrée de la force maximale appliquée.

### 1.4.2. Etalonnage en force

Une balance de grande précision a été placée sous l'indenteur et différents essais d'indentation ont été effectués (figure 2-10.). L'étalonnage en force a ainsi pu être vérifié.

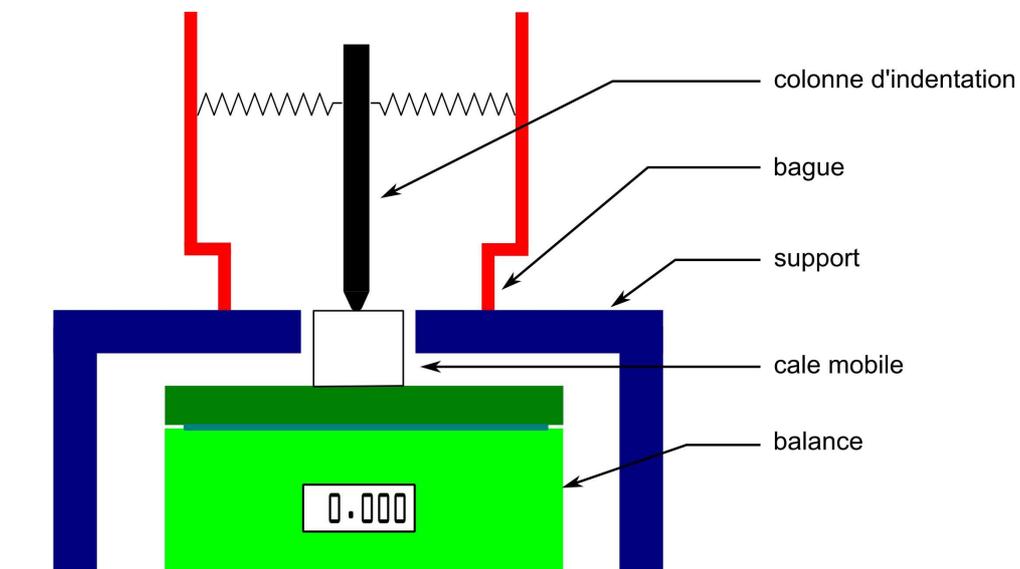


Figure 2-10 : schéma du montage réalisé pour vérifier la force exercée par l'indenteur.

### 1.4.3. Rayon de courbure des indenteurs sphériques

Les indenteurs sphériques présentent plusieurs avantages pour l'étude des mécanismes fins de plasticité :

- les champs de contraintes et de déformation correspondant au contact sphère plan en régime élastique sont connus
- l'absence d'arrête : pas de concentration locale de contraintes
- pour atteindre un même niveau de contrainte dans le matériau, il faut une charge plus élevée avec une sphère, ce qui conduit à une surface de contact plus grande

La validité des résultats obtenus à partir du dépouillement d'une courbe et de sa modélisation par la loi de Hertz est soumise à la condition que le profil de l'indenteur soit parfaitement caractérisé. Dans le cas d'indentation avec une sphère, il s'agit de connaître avec précision le rayon de courbure de l'indenteur ainsi que son domaine de validité.

Deux indenteurs sphériques ont été utilisés dans cette étude, un premier d'un rayon de courbure d'environ 10  $\mu\text{m}$  que l'on nommera SPH1 et un second, SPH2, d'environ 1  $\mu\text{m}$  de rayon.

#### 1.4.3.1. Etalonnage par indentation dans la silice

L'étalonnage par indentation consiste à indenter à différentes charges et en régime élastique un matériau de référence, la silice fondue, de propriétés mécaniques connues :

$$E_{\text{SiO}_2} = 72 \text{ GPa}$$

$$\nu_{\text{SiO}_2} = 0,17$$

Les courbes ainsi obtenues sont modélisées par la loi élastique du contact sphère-plan (loi de Hertz, voir paragraphe 1.1. de ce chapitre) :

$$F = \frac{4}{3} E^* R^{1/2} h^{3/2}$$

La modélisation des courbes expérimentales montre une légère déviation au modèle théorique de Hertz pour les fortes profondeurs de pénétration (figure 2-11.a). Pour déterminer la profondeur limite, l'écart entre la profondeur calculée avec la loi de Hertz  $h_{Hc}$  et la profondeur expérimental  $h_{exp}$  a été tracé en fonction de la profondeur de pénétration (figure 2-11.b). La figure b montre un écart non nul pour des profondeurs de pénétration supérieures à 200 nm. Cet écart est dû au profil de l'indenteur qui s'écarte légèrement d'une sphère. Les

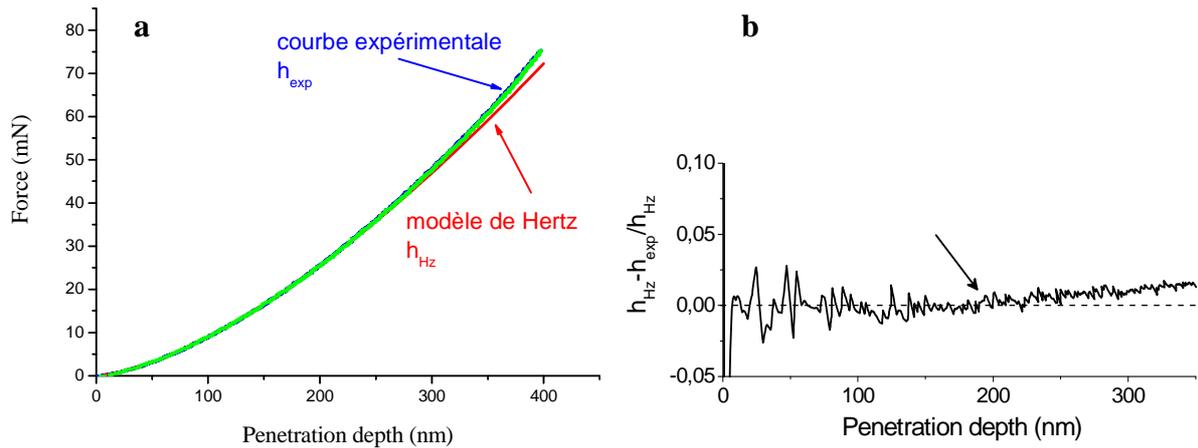


Figure 2-11. : Indentation dans la silice avec SPH1 (a) courbe expérimentale avec le modèle de Hertz ; (b) écart à la loi de Hertz en fonction de la profondeur de pénétration. La flèche indique lorsque le profil de l'indenteur dévie du profil d'une sphère.

courbes d'indentation sont alors modélisées de 0 à 200 nm de profondeur et renvoient à une valeur moyenne de  $R$ .

La valeur du rayon de courbure obtenue par cette méthode pour SPH1 est de  $9,5 \pm 0,3 \mu\text{m}$  pour des profondeurs de pénétration n'excédant pas les 200 nm. De la même manière le rayon de courbure de SPH2 est de  $0,62 \pm 0,02 \mu\text{m}$  pour des profondeurs de pénétration ne dépassant pas les 40 nm.

### 1.4.3.2. Etalonnage par microscopie à force atomique

Une autre méthode d'étalonnage consiste à observer directement l'indenteur par AFM pour avoir sa forme exacte. L'utilisation de ce type de microscope pour étalonner une pointe sphérique présente cependant quelques difficultés : la dérive thermique et l'effet de courbure d'image lié à la géométrie (tube) du piézoélectrique assurant le balayage (paragraphe 3.1. de

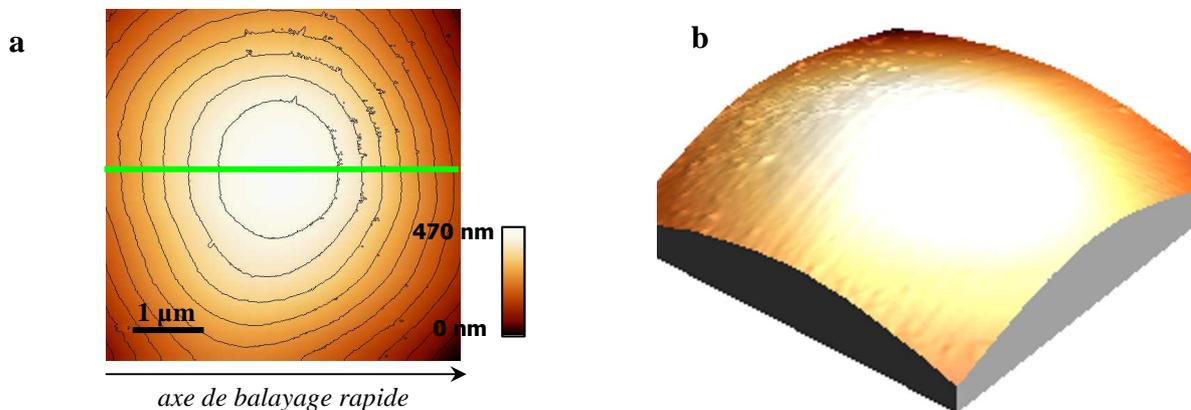


Figure 2-12. : Image AFM de la pointe sphérique SPH1 (a) image de topographie avec les isohypses et axe de coupe, (b) vue 3D de la sphère.

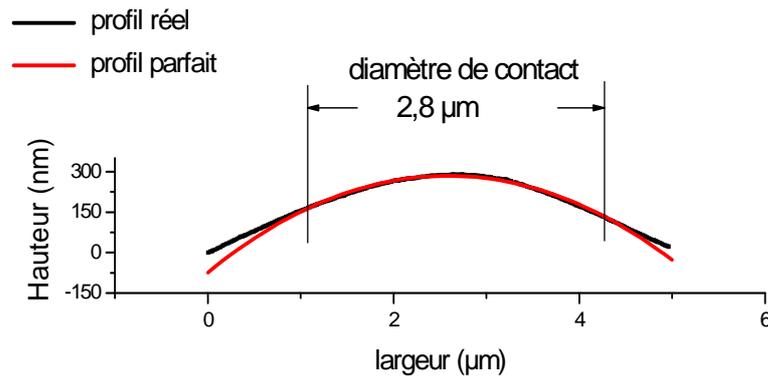


Figure 2-13. : Profil de SPH1, modélisation pour un rayon de contact de 1,4 µm.

ce chapitre). Dans la plupart des cas la courbure du piézoélectrique est corrigée par un post traitement numérique, malheureusement dans le cas de l'image d'une sphère il est difficile de décorrélérer complètement la courbure due à la torsion du piézoélectrique de la courbure réelle de l'échantillon par absence de surface plane de référence. Afin de s'affranchir au mieux des effets de la dérive, les coupes sont réalisées dans la direction de balayage rapide (figure 2-12.). Pour obtenir une bonne caractérisation de l'indenteur, les profils sont extraits de deux séries d'images réalisées dans deux directions orthogonales de balayage. Les profils ainsi obtenus sont modélisés par l'équation d'une sphère (figure 2-13.).

L'observation par AFM ainsi que l'étude des coupes montrent que l'indenteur n'est pas parfaitement axisymétrique, et présente, selon la direction de coupe, des rayons de courbure légèrement différents. Cependant ces écarts n'excèdent pas les 20 % pour SPH1 et 10 % pour SPH2.

Le profil s'écarte très légèrement du modèle d'une sphère pour un rayon de contact supérieur à 1,4 µm, ce qui correspond à la valeur donnée par étalonnage dans la silice. Selon la direction de balayage, deux rayons de courbure sont déterminés :  $R_{0^\circ} = 8,5 \pm 0,1 \mu\text{m}$  et  $R_{90^\circ} = 10,6 \pm 0,1 \mu\text{m}$ . A l'issue de cette analyse nous retiendrons un rayon équivalent de  $9,6 \pm 0,1 \mu\text{m}$  pour SPH1. Cette valeur est en accord avec celle déterminée par indentation dans la silice.

Les mêmes études ont été réalisées sur SPH2 qui présente également un léger défaut d'axisymétrie. Le rayon de courbure équivalent est de  $0,62 \pm 0,01 \mu\text{m}$ .

**Tableau récapitulatif des rayons de courbure des indenteurs :**

Indenteur	Rayon de courbure ( $\mu\text{m}$ )	Domaine de validité (nm) (pénétration maximale)
SPH1	9,5	200
SPH2	0,62	40

## 2. Préparation de surface

Les échantillons d'oxyde de magnésium proviennent de deux fournisseurs : ceux de Crystal (Berlin, Allemagne), achetés chez HTC (High Tech Company, Les Mureaux, France), et ceux de Crystec (Berlin, Allemagne). Selon les tests comparatifs menés sur les échantillons des deux provenances, il n'existe pas de différence entre les échantillons des deux fournisseurs. Les contrôles ont porté sur la rugosité de surface à la réception, la densité de dislocations ainsi que sur le comportement sous nanoindentation.

### 2.1. Exigences sur l'état de surface

Il a été vu dans la première partie que dans le cas d'essais locaux de déformation, la rugosité de surface pouvait avoir une influence prépondérante sur les mécanismes de déformation [14] ; il en est de même pour la présence de marche en surface [15, 16]. De plus la validité des résultats obtenus lors du dépouillement des courbes de nanoindentation est fortement dépendante de la rigueur avec laquelle est déterminé le point de contact, ce qui est difficile dans le cas d'indentation sur une surface rugueuse ou polluée. Nous nous attacherons donc par la suite à avoir une surface parfaitement plane afin de déterminer sans ambiguïté le point de contact initial de l'indenteur avec la surface.

La faible rugosité n'est pas le seul point important dans la préparation des surfaces pour un essai de nanoindentation. Il a également été vu que des dislocations sous le contact pouvaient modifier fortement le comportement sous indentation [17-19]. Dans le cas où l'on s'intéresse à la nucléation de dislocation il faut être certain que le protocole de préparation ne modifie pas la structure préexistante de dislocations, et n'en introduit pas de nouvelles.

## 2.2. Polissage mécano-chimique

Contrairement aux techniques classiques de polissage par abrasion qui se font par rayures successives, le polissage mécano-chimique n'introduit aucune dislocation et permet d'obtenir des surfaces planes sur de grandes superficies (supérieures à  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ ). Le polissage mécano-chimique (CMP) est une technique développée à l'origine pour l'industrie des semi-conducteurs. Le protocole mis au point pour cette étude en est directement inspiré, ainsi que des travaux de Gaillard *et al.* [20].

### 2.2.1. Le principe

Le principe est de polir la surface de l'échantillon à l'aide d'une solution de silice colloïdale. Les mécanismes impliqués dans le polissage de la surface ne sont pas parfaitement connus, mais la figure 2-14. présente un schéma de principe d'un des mécanismes proposés [21]. Sous l'action de la charge appliquée sur l'échantillon, la silice contenue dans les alvéoles du disque de polissage remonte à la surface de l'échantillon (1). Les particules de silice s'adsorbent à la surface de l'échantillon (2). Sous l'effet mécanique de la rotation du disque les particules restées en solution arrachent celles adsorbées en surface, emmenant avec elles les atomes de l'échantillon (3). Dans le cas de la silice colloïdale, un pH supérieur à 9 est requis pour que la solution reste sous forme colloïdale. L'action chimique de la solution reste mal connue, l'influence, entre autres, du pH n'ayant pas été quantifiée [22].

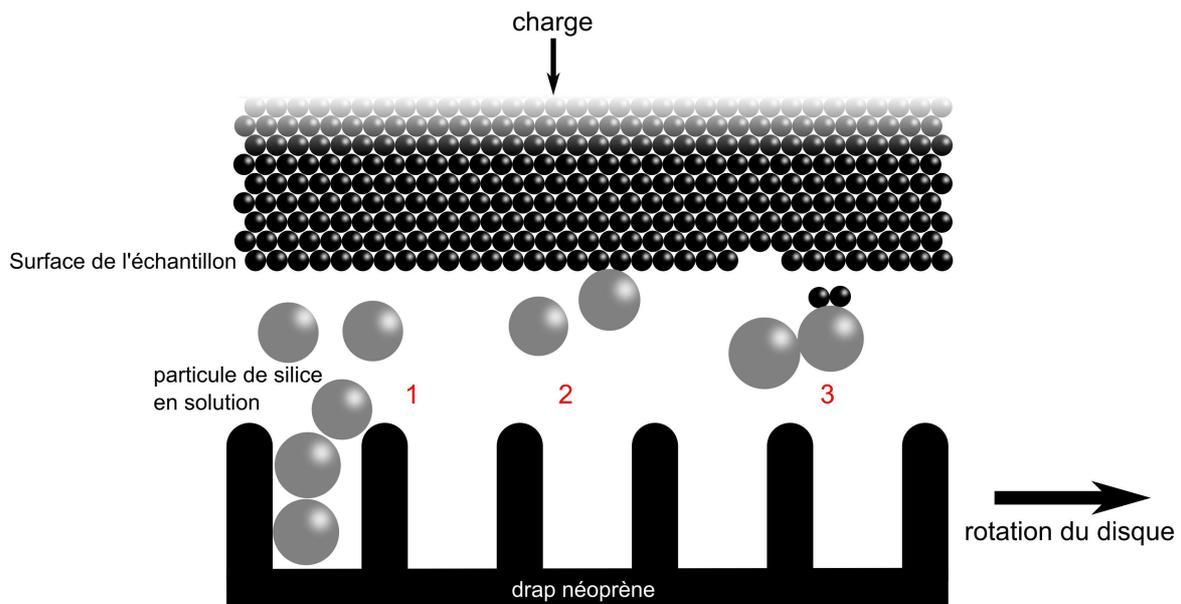


Figure 2-14. : Principe du polissage mécano-chimique (1) désabsorption des particules de silice, (2) adsorption des particules de silice sur la surface de l'échantillon, (3) les particules de silice adsorbées sont arrachées par celles restées en solution ainsi que par l'action mécanique du drap de polissage.

### 2.2.2. L'appareillage

La polisseuse utilisée pour cette étude est la PM5 de chez Logitech (Glasgow, Ecosse). Le montage expérimental figure 2-15. montre les principaux éléments de la polisseuse. Le réservoir de silice (1) dépose la solution au goutte à goutte sur le drap néoprène (3). La colonne de polissage (*jig*) (2) en dessous de laquelle est fixé l'échantillon (8). L'ensemble colonne-échantillon est maintenu par un bras oscillant (4) sur le plateau tournant (5). Le ressort du *jig* applique une force sur l'échantillon, réglable par une vis (6). Un comparateur permet de contrôler l'épaisseur décapée (7). Les paramètres mis au point pour cette étude sont les suivants :

- drap de polissage néoprène MDChem (Struers)
- agent abrasif : silice colloïdale SF1 (particules inférieures à 50 nm en solution basique : pH = 9-10 (Logitech)
- rotation : 60 tours/min avec balayage
- force d'appui : entre 800 et 1 000 grammes (sur 1 cm<sup>2</sup>)

La vitesse d'abrasion est de 3 µm/h sur MgO. Grâce aux réglages fins des paramètres de la machine cette technique est parfaitement reproductible et conduit à des surfaces de rugosité RMS comprise entre 1 et 3 angströms.

La difficulté de cette technique réside dans le nettoyage de l'échantillon. En effet, d'une part des particules de silice restent adsorbées en surface et d'autre part la silice recristallise si la solution s'évapore ou si le pH diminue [22]. A la fin du polissage, l'échantillon est nettoyé à l'eau en laissant tourner la polisseuse pendant 10 min. Puis un deuxième rinçage à l'eau est effectué sur un drap propre en maintenant l'échantillon fermement à la main. Cette étape est très importante, sans elle une couche passivée recouvre l'échantillon et empêche le déroulement correct de l'attaque chimique. Cependant il peut rester encore des traces de silice en surface. Une solution d'ammoniaque (0,5 %) est brossée sur l'échantillon à l'aide d'une éponge en polyvinyle d'alcool (PVA). L'action mécanique de l'éponge décolle les particules de la surface et l'ammoniaque basique empêchent leur re-adsorption.

### 2.2.3. Contrôle de l'état chimique des surfaces polies

Les surfaces polies par CMP ont été analysées par XPS (X-ray Photoemission Spectrometry) et REELS (Reflection Electron Energy Loss Spectroscopy) afin de s'assurer que le protocole de polissage n'introduisait pas de modification de la nature chimique des

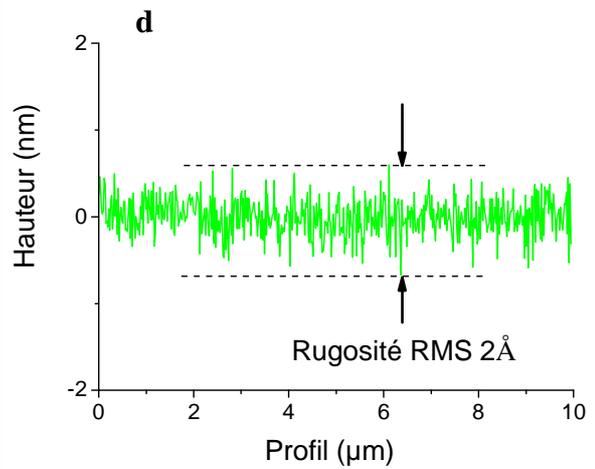
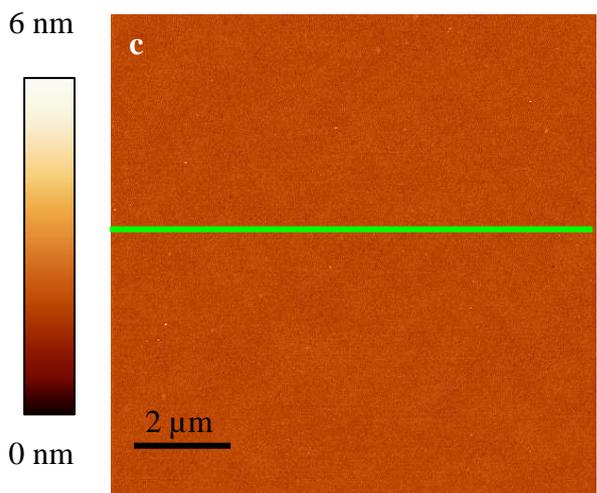
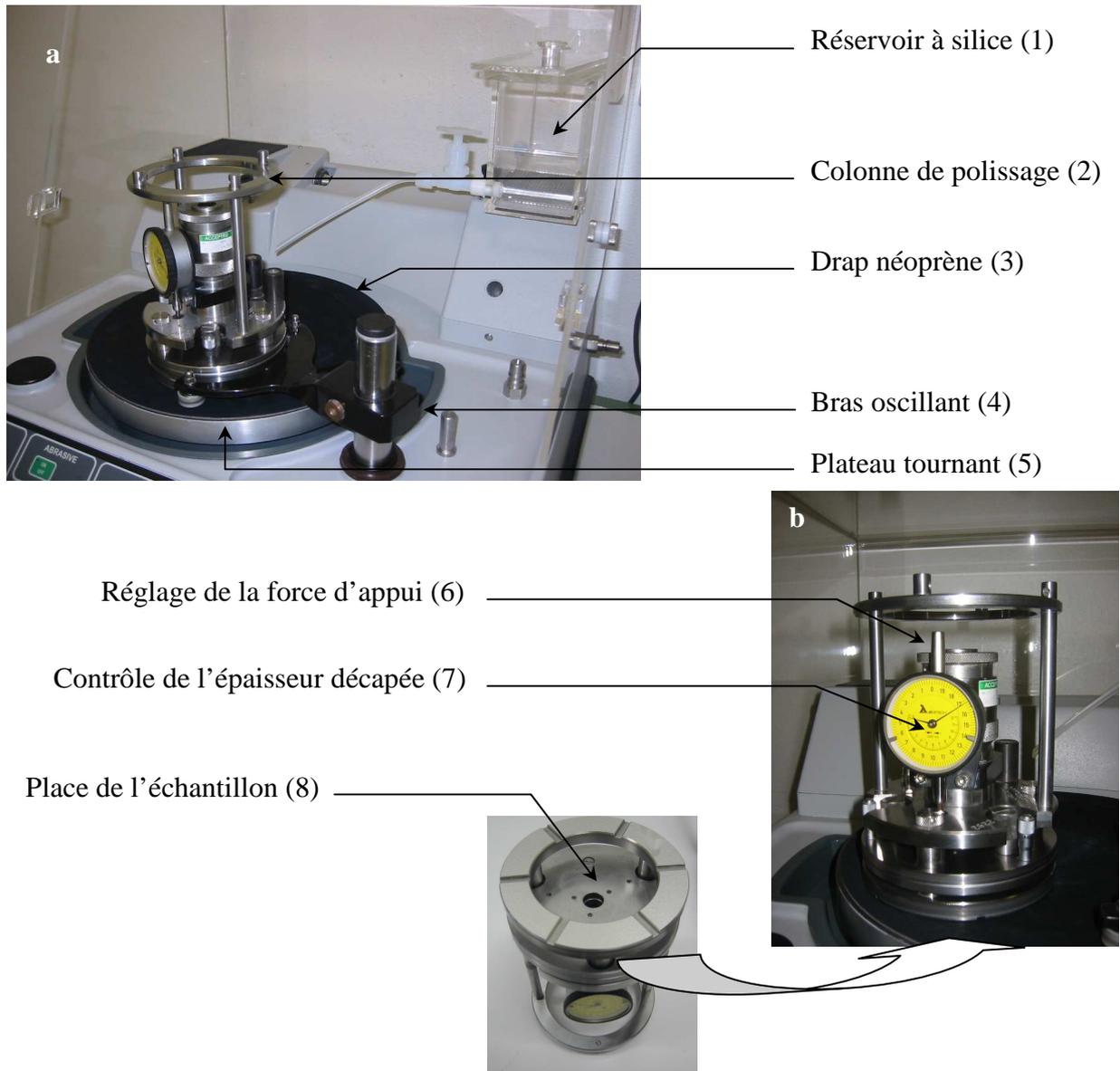


Figure 2-15. : Photographies de la polisseuse PM5 (a) polisseuse, (b) colonne de polissage, (c) image AFM d'une surface de MgO après polissage mécano-chimique, (d) profil de la surface indiqué en (c) par un trait.

surfaces, et de vérifier que le protocole de nettoyage faisait disparaître toute trace de silice. A titre de comparaison, un échantillon témoin de MgO, préparé par clivage afin d'obtenir une surface fraîche, a été analysé en parallèle.

La technique XPS est une technique d'analyse chimique par rayons X. Un faisceau monochromatique de rayons X est envoyé en incidence rasante sur la surface de l'échantillon et un détecteur enregistre les pics de diffraction X. L'énergie des pics est caractéristique de la nature chimique des atomes rencontrés dans l'échantillon. Cette technique permet de sonder les couches atomiques de la très proche surface (1 à 2 couches). L'analyse a permis d'identifier les espèces chimiques présentes sur les deux surfaces. Aucune trace de l'élément silicium n'a été observée sur les spectres obtenus sur l'échantillon poli par CMP, ce qui démontre que les protocoles de polissage et de nettoyage ne laissent pas de silice résiduelle. On peut noter toutefois un très léger élargissement des pics obtenus par REELS dans le cas de l'échantillon poli par CMP, par rapport à l'échantillon clivé, indiquant un possible désordre cristallin sur les premières couches atomiques induit par le CMP.

### 3. Observation des dislocations

L'observation précise des structures de dislocations formées lors d'un essai d'indentation est un défi expérimental très important de cette étude. Il existe plusieurs méthodes expérimentales développées pour l'observation de la distribution de dislocations, la plus utilisée est la microscopie électronique en transmission (MET) [23, 24].

Cependant la préparation de la lame mince pour observer par MET les structures de dislocations autour d'empreintes de nanoindentation présente plusieurs difficultés expérimentales. Nous pouvons citer, entre autres, la phase d'amincissement de l'échantillon à quelques centaines de nanomètres juste sous le réseau d'indentation et, la difficulté d'identifier individuellement chaque empreinte. De plus, lors du polissage, de nouvelles surfaces libres sont créées, ce qui peut modifier l'équilibre des dislocations par la présence des forces images. Ce problème est d'autant plus vrai sur un essai de nanoindentation où les dislocations sont générées sous très fort gradient de contrainte.

Depuis quelques années la démocratisation de la technique FIB (Focused Ion Beam) pour la préparation de lame mince, permet de sélectionner avec précision la partie indentée de l'échantillon qui doit être observée. Cependant l'utilisation d'un faisceau d'ions à également pour effet d'implanter des ions dans l'échantillon. De plus la technique FIB nécessite des

micromanipulations qui ne sont pas simples, et le problème des forces images n'est pas résolu pour autant.

### 3.1. La microscopie à force atomique

#### 3.1.1. L'appareillage

Contrairement aux autres techniques qui utilisent un faisceau (de photons, d'électrons) pour sonder l'échantillon (en surface ou en volume), la microscopie en champ proche utilise une pointe très fine qui balaye la surface de l'échantillon. Les interactions entre la pointe et la surface sont utilisées pour asservir le déplacement de la pointe au-dessus de la surface. Ici nous utiliserons le microscope à force atomique (AFM) qui est une des techniques de microscopie en champ proche [25, 26].

Dans le cas du microscope à force atomique (figure 2-16.), la pointe est fixée à l'extrémité d'un bras de levier, aussi appelé *cantilever*. Un laser se réfléchit sur l'arrière du bras de levier, à l'aplomb de la pointe, et est ensuite détecté par une photodiode à quatre cadrans : ce système permet de mesurer la déflexion du bras de levier et ainsi de déterminer les forces d'interaction point-surface. L'ensemble pointe-levier est solidaire d'un tube piézoélectrique qui assure le mouvement de l'ensemble dans les trois directions de l'espace.

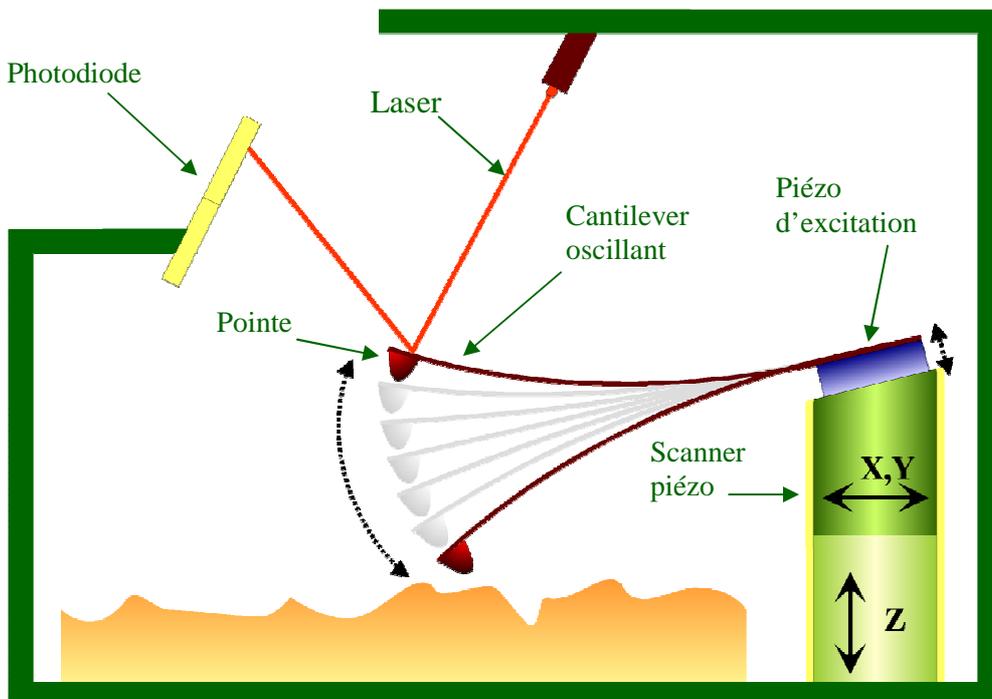


Figure 2-16. : Schéma de principe de fonctionnement d'un AFM en mode Tapping.

Lors de l'acquisition de l'image, le microscope commande l'extension en  $Z$  du piézoélectrique afin d'asservir la déflexion ou l'amplitude d'oscillation du cantilever à une valeur de référence. Les mouvements verticaux du piézoélectrique sont enregistrés point par point pour former une image. En réalité deux types d'images sont enregistrés simultanément, une image de topographie et une image de signal d'erreur :

- Image de topographie : image obtenue en enregistrant l'extension en  $Z$  du piézoélectrique en tout point de la surface. Elle traduit la topographie de l'échantillon et porte une information quantitative en  $Z$ . Cette image peut être représentée en mode 2D (figure 2-17.a) en associant une échelle de couleur à l'altitude des points ; elle peut être également représentée en 3D (figure 2-17.b).
- Image signal d'erreur : c'est une image enregistrée conjointement à l'image de topographie, elle traduit les variations instantanées de déflexion ou d'amplitude d'oscillation du bras de levier par rapport à la valeur de consigne. Cette image ne porte pas d'information quantitative en  $Z$ , mais offre l'avantage de renforcer le contraste sur les brusques variations de relief. Cette image peut être assimilée à la dérivée de l'image de topographie (figure 2-17.c).

Différents modes d'acquisition existe en AFM. Les images AFM présentées ici ont uniquement été réalisées en mode Tapping. Dans ce mode un second piézoélectrique excite le bras de levier qui oscille à une fréquence proche de sa fréquence de résonance. Le *cantilever* oscille avec une amplitude de quelques centaines de nanomètres, et touche la surface en chaque fin de cycle d'oscillation. L'asservissement se fait sur l'amplitude d'oscillation. Les forces attractives et répulsives qui existent entre la pointe et la surface ont globalement pour effet de diminuer l'amplitude d'oscillation au fur et à mesure que la position moyenne de la

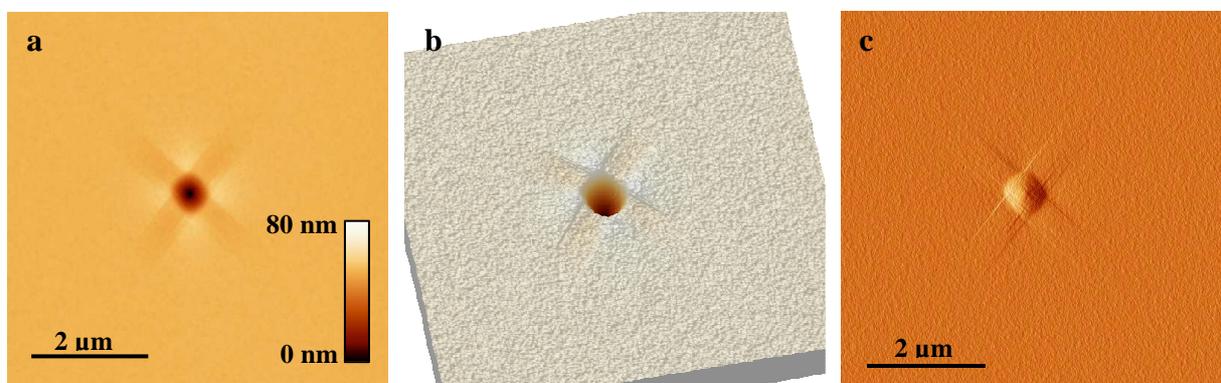


Figure 2-17. : Images AFM d'une empreinte de nanoindentation (a) image de topographie en vue 2D, (b) image de topographie représentée en 3D, (c) image en mode signal d'erreur.

pointe se rapproche de la surface. Ce mode présente l'avantage de s'affranchir des forces de friction (contact non permanent), et de limiter le piégeage de la pointe en surface par une couche d'eau adsorbée (grandes amplitudes d'oscillation), cependant l'acquisition est relativement lente (problème de dérive cumulée).

Les résolutions pour ce fonctionnement sont typiquement d'un dixième d'angström en **Z** et de l'ordre du nanomètre en latéral, bien que cette dernière dépende très fortement du rayon de courbure de la pointe.

Le microscope utilisé pour cette étude est le D3100 de Veeco (Californie, USA). Il présente l'avantage de posséder une table motorisée **X-Y** et d'être couplé à un microscope optique, ce qui permet de déplacer la pointe et de choisir très précisément la zone d'intérêt de l'échantillon. De plus, le tube piézoélectrique permettant les déplacements dans le plan **X-Y** couvre une zone allant jusqu'à  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ . Ainsi il sera aisé de retrouver optiquement les empreintes de repérage, puis d'observer par AFM le réseau d'indentation en identifiant individuellement chaque zone indentée.

L'étalonnage du piézoélectrique a été vérifié en réalisant des images sur un réseau périodique d'une structure en créneaux à échelle nanométrique.

L'utilisation d'un tube pour les déplacements **X-Y** pose cependant un problème. En effet, le tube se « tord » pour balayer dans une direction (figure 2-18.). La pointe perçoit ainsi un éloignement de la surface qui est enregistré comme une modification de la topographie. Malgré un étalonnage très précis du piézoélectrique, cet artefact n'est pas complètement éliminé et nécessite parfois d'être corrigé numériquement après l'acquisition de l'image.

Les images obtenues par AFM ont été dépouillées avec le logiciel WSxM [27].

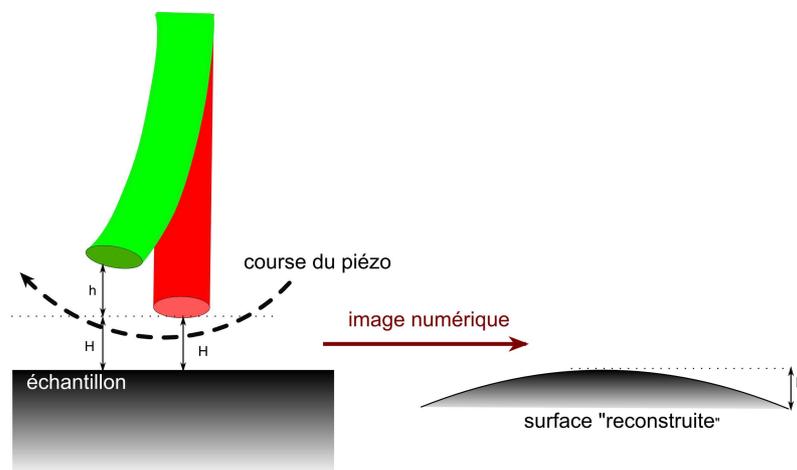


Figure 2-18. : Représentation schématique 2D de l'effet de courbure du tube piézoélectrique.

### 3.1.2. Application à l'étude de la plasticité

La capacité des microscopes à force atomique à mesurer la hauteur des très petites marches [28] permet une étude quantitative des lignes de glissement autour de l'empreinte [29], y compris lorsque celles-ci correspondent à l'émergence et au glissement d'une unique dislocation. L'étude fine des lignes de glissement permet de suivre le parcours complexe d'une dislocation au cours de l'essai de nanoindentation [30]. Dans MgO, lors d'un cisaillement parallèle au plan de surface, la propagation des dislocations associées ne laisse pas de marche en surface. Néanmoins, l'utilisation d'une solution d'attaque chimique adaptée forme une nano piqûre d'attaque aux points d'émergence de toutes les dislocations ; les nano piqûres sont facilement observables par AFM. Ce protocole sera détaillé dans le paragraphe sur l'attaque chimique (paragraphe 3.2. de ce chapitre).

Les échantillons de MgO testés sont des monocristaux orientés (001) avec des arêtes orientées dans les directions  $\langle 001 \rangle$  (figure 2-19.). La direction de la ligne de glissement peut être facilement déduite de son orientation par rapport aux bords de l'échantillon.

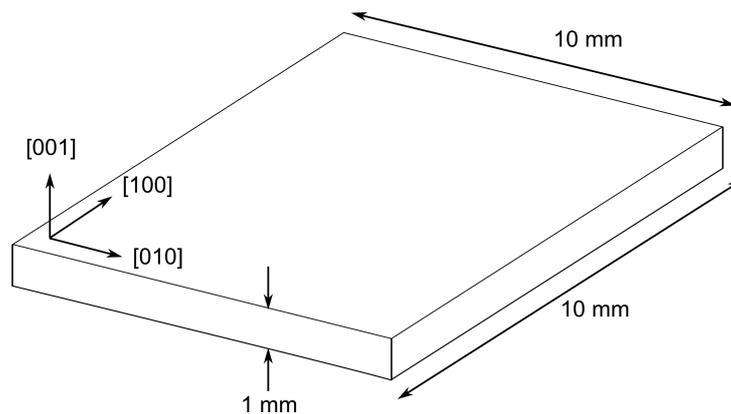


Figure 2-19. : Cotes et orientations des échantillons de MgO testés.

## 3.2. Attaque chimique

### 3.2.1. Protocole expérimental

L'attaque chimique est l'une des premières techniques développées pour l'observation des points d'émergence des dislocations [31]. La méthode consiste à produire des piqûres d'attaque aux points d'émergence des dislocations en utilisant une solution adaptée au matériau étudié. A la fin des années 50, cette technique a été largement utilisée pour caractériser les structures de dislocations, en particulier dans les cristaux ioniques, en produisant des piqûres sub-micrométriques, observables par microscopie optique.

Gaillard *et al.* [20], à partir des travaux de Gilman *et al.* [31] et de Shaw et Brookes [32], adaptèrent l'attaque chimique à l'observation par microscopie à force atomique. La réduction de la taille des piqûres à une taille nanométrique augmente ainsi considérablement la définition de la figure d'attaque, rendant ainsi possible l'étude des mécanismes d'interaction entre dislocations. Le protocole d'attaque utilisé dans la présente étude est le même que celui établi par Gaillard *et al.*. Seuls la concentration de la solution ainsi que les temps d'attaque ont été adaptés au nouvel état de surface. En effet, comme l'a montré Gaillard [33], la morphologie des piqûres est très dépendante de la préparation de surface.

La solution d'attaque utilisée est composée d'une solution diluée 10 fois d'acide sulfurique concentré (1/6), d'une solution saturée de chlorure d'ammonium (2/3) et d'eau (1/6). Le temps d'attaque est de 90 secondes, ce qui conduit à la formation de piqûres de l'ordre de 100 nm de diamètre pour 20 à 40 nm de profondeur sur des surfaces polies avec le protocole décrit au paragraphe précédent.

L'acide a pour rôle de dissoudre l'oxyde de magnésium aux points d'émergence des dislocations, là où le potentiel chimique de la surface est perturbé à cause de la modification de la contrainte élastique due à la présence de la ligne de dislocation. Le chlorure d'ammonium limite, quant à lui, l'extension latérale des piqûres et favorise ainsi l'attaque en profondeur. En jouant sur chacune des concentrations il est possible de contrôler la taille des piqûres et de l'adapter à la taille de la zone observée.

### 3.2.2. Apport de l'attaque chimique

L'avantage de cette technique est que toutes les dislocations sont révélées, et, lorsque la densité est suffisamment faible, chaque piqûre d'attaque est individualisée. De plus, avec un contrôle fin des concentrations de la solution d'attaque, il est possible de déterminer dans quel plan se propage la dislocation. Gilman et Johnson [34] ont montré que dans LiF la morphologie d'une piqûre dépend de l'orientation de la ligne de dislocation par rapport à la surface. Gaillard [33] a également montré que l'attaque chimique sur MgO permet aussi, à partir de la profondeur de la piqûre, de distinguer les dislocations se propageant dans les plans  $\{110\}_{45}$  de celles se propageant dans les plans  $\{110\}_{90}$ . Grâce au développement d'une nouvelle technique de préparation de surface, ainsi qu'au protocole d'attaque associé, nous avons pu améliorer la définition des piqûres. Nous pouvons ainsi déterminer l'orientation du plan dans lequel se propage la dislocation.

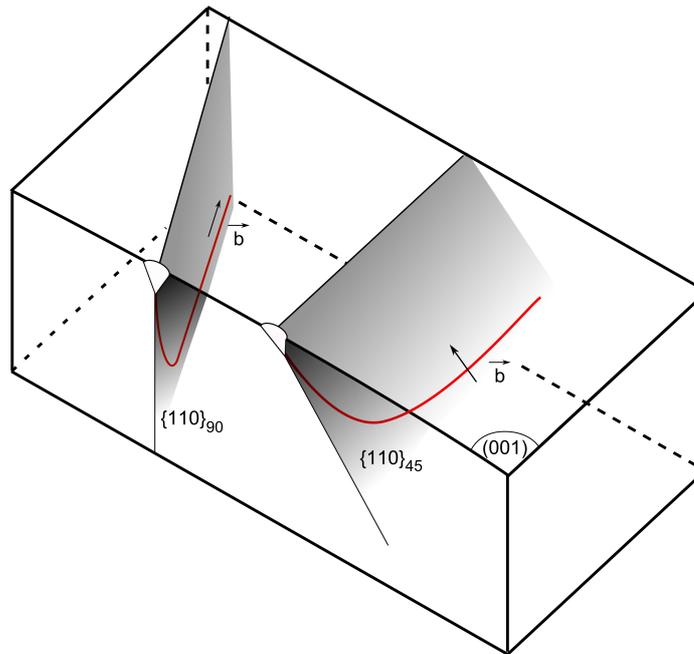


Figure 2-20. : Morphologie des piqûres en fonction de leur plan de glissement (vue en coupe).

La morphologie d'une nano piqûre d'attaque dans MgO est un cône (figure 2-20.). L'attaque chimique se propage le long de la ligne de dislocation. Pour les dislocations émergeant avec un caractère coin (dans des plans à  $90^\circ$  de la surface) le cône est symétrique alors que pour les dislocations émergeant avec un caractère vis (dans des plans à  $45^\circ$  de la surface) le cône est asymétrique. L'extrémité du cône pointe dans la direction du plan de glissement.

### 3.3. Couplage attaque chimique et polissage

Afin d'accéder à la structure en trois dimensions des dislocations, les échantillons sont successivement polis et attaqués [35]. A chaque niveau de polissage une image de la figure d'attaque est réalisée, en superposant ces images et en identifiant individuellement chacune

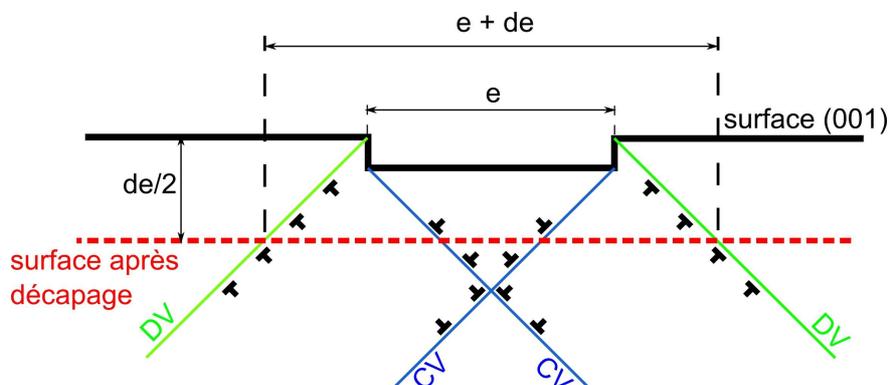
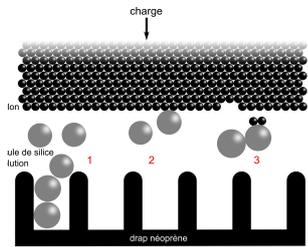


Figure 2-21. : Contrôle de l'épaisseur décapée sur une empreinte de référence, DV : plans divergents, CV : plans convergents.

des piqûres on obtient la distribution dans tout le volume. On réalise ainsi une tomographie de la zone déformée.

L'ajustement des paramètres d'attaque permet de contrôler la profondeur des piqûres, dans le protocole décrit ici les piqûres font environ 30 nm de profondeur. Les coupes peuvent donc être très resserrées, le décapage d'une couche de 50 nm suffit à effacer la totalité de la figure d'attaque. L'épaisseur décapée est calculée à partir de la durée de polissage et de la vitesse d'abrasion. De plus une vérification est faite en mesurant l'évolution de l'écartement des plans divergents d'une empreinte de référence (figure 2-21.). Entre deux étapes de polissage successives, les plans divergents s'écartent du double de l'épaisseur décapée.

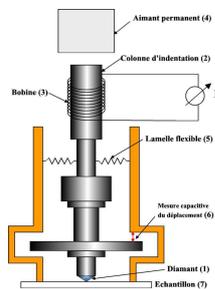
## 4. Récapitulatif du protocole expérimental



Préparation de surface

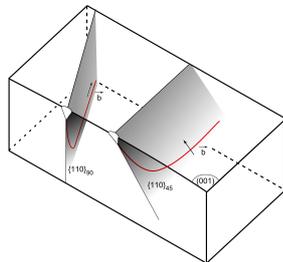
Cette étape de préparation par CMP permet d'obtenir des surfaces très planes (rugosité  $RMS < 3\text{\AA}$ ) et sans écrouissage :

- définition du point de contact
- pas d'introduction de dislocations
- pas de modification des structures de dislocations préexistantes



Nanoindentation

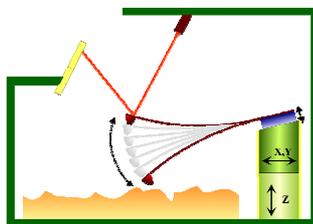
La nanoindentation sonde localement les propriétés mécaniques de l'échantillon, et dans notre cas particulier permet d'introduire une déformation locale.



Attaque chimique

L'attaque chimique révèle les points d'émergence de toutes les dislocations. Elle s'avère très utile, notamment après polissage lorsque les lignes de glissement ont disparu.

Couplée au polissage, l'attaque chimique est une technique performante pour réaliser une tomographie de la structure des dislocations.



Microscopie à force atomique

La sensibilité verticale de l'AFM autorise une résolution très fine des lignes de glissement en surface ainsi que des piqûres d'attaque.

## Références bibliographiques

- [1] K. L. Johnson, *Contact mechanics*. Cambridge, New York: Cambridge University Press, 1985.
- [2] H. Hertz, "Über die Berührung fester elastischer Körper.," *Journal für die reine und angewandte Mathematik (Crelles Journal)*, vol. **1882**, n°. 92, p. 156-171, 1882.
- [3] B. R. Lawn, "Indentation of ceramics with spheres: A century after Hertz," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. **81**, n°. 8, p. 1977, 1998.
- [4] E. H. Yoffe, "Modified Hertz theory for spherical indentation," *Philosophical Magazine A: Physics of Condensed Matter, Structure, Defects and Mechanical Properties*, vol. **50**, n°. 6, p. 813, 1984.
- [5] I. Sneddon, "The relation between load and penetration in the axisymmetric boussinesq problem for a punch of arbitrary profile," *International Journal of Engineering Science*, vol. **3**, n°. 1, p. 47-57, 1965.
- [6] R. King, "Elastic analysis of some punch problems for a layered medium," *International Journal of Solids and Structures*, vol. **23**, n°. 12, p. 1657-1664, 1987.
- [7] J. Woirgard, "Some results on the indentation of an elastic half space," *Philosophical Magazine*, vol. **86**, n°. 33, p. 5199-5217, 2006.
- [8] J. L. Loubet, J. M. Georges, O. Marchesini, et G. Meille, "Vickers Indentation Curves of Magnesium Oxide (MgO)," *Journal of Tribology*, vol. **106**, n°. 1, p. 43, 1984.
- [9] M. Doerner et W. Nix, "A method for interpreting the data from depth-sensing indentation instruments," *Journal of Materials Research*, vol. **1**, n°. 4, p. 601-609, 1986.
- [10] L. Solomon, *Elasticité linéaire*. Paris: Masson et compagnie, 1968.
- [11] W. C. Oliver et G. M. Pharr, "Improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments," *Journal of Materials Research*, vol. **7**, n°. 6, p. 1564, 1992.
- [12] J. Woirgard et J. Dargent, "An alternative method for penetration depth determination in nanoindentation measurements," *Journal of Materials Research*, vol. **12**, n°. 9, p. 2455-2458, 1997.
- [13] C. M. Segedin, "The relation between load and penetration for a spherical punch," *Mathematika*, vol. **4**, n°. 02, p. 156, 1957.
- [14] A. Gouldstone, K. J. Van Vliet, et S. Suresh, "Nanoindentation. Simulation of defect nucleation in a crystal," *Nature*, vol. **411**, n°. 6838, p. 656, Jun. 2001.
- [15] J. Kiely, R. Hwang, et J. Houston, "Effect of Surface Steps on the Plastic Threshold in Nanoindentation," *Physical Review Letters*, vol. **81**, n°. 20, p. 4424-4427, 1998.
- [16] J. Zimmerman, C. Kelchner, P. Klein, J. Hamilton, et S. Foiles, "Surface Step Effects on Nanoindentation," *Physical Review Letters*, vol. **87**, n°. 16, 2001.
- [17] D. F. Bahr, D. E. Kramer, et W. W. Gerberich, "Non-linear deformation mechanisms during nanoindentation," *Acta Materialia*, vol. **46**, n°. 10, p. 3605, 1998.
- [18] D. Lorenz, A. Zeckzer, U. Hilpert, P. Grau, H. Johansen, et H. Leipner, "Pop-in effect as

- homogeneous nucleation of dislocations during nanoindentation,” *Physical Review B*, vol. **67**, n°. 17, 2003.
- [19] A. A. Zbib et D. F. Bahr, “Dislocation nucleation and source activation during nanoindentation yield points,” *Metallurgical and Materials Transactions A: Physical Metallurgy and Materials Science*, vol. **38**, n°. 13, p. 2249, 2007.
- [20] Y. Gaillard, C. Tromas, et J. Woïrgard, “Study of the dislocation structure involved in a nanoindentation test by atomic force microscopy and controlled chemical etching,” *Acta Materialia*, vol. **51**, n°. 4, p. 1059, 2003.
- [21] C. Evans, E. Paul, D. Dornfeld, D. Lucca, G. Byrne, M. Tricard, F. Klocke, O. Dambon, et B. Mullany, “Material Removal Mechanisms in Lapping and Polishing,” *CIRP Annals - Manufacturing Technology*, vol. **52**, n°. 2, p. 611-633, 2003.
- [22] K. Wang, R. K. Kang, Z. J. Jin, et N. H. Wang, “An experimental study of the polishing process for MgO single crystal substrate,” *Key Engineering Materials*, vol. **329**, p. 225, 2007.
- [23] M. A. Veleznitskaya, V. N. Rozhanskii, L. F. Comolova, G. V. Saporin, J. Schreiber, et O. Bruemmer, “Investigation of the deformation mechanism of MgO crystals affected by concentrated load,” *Physica Status Solidi (A) Applied Research*, vol. **32**, n°. 1, p. 123, 1975.
- [24] T. F. Page, W. C. Oliver, et C. J. McHargue, “Deformation behavior of ceramic crystals subjected to very low load (nano)indentations,” *Journal of Materials Research*, vol. **7**, n°. 2, p. 450, 1992.
- [25] G. Binnig, C. Quate, et C. Gerber, “Atomic Force Microscope,” *Physical Review Letters*, vol. **56**, n°. 9, p. 930-933, 1986.
- [26] C. Quate, “The AFM as a tool for surface imaging,” *Surface Science*, vol. **299**, p. 980-995, 1994.
- [27] I. Horcas, R. Fernandez, J. Gomez-Rodriguez, J. Colchero, J. Gomez-Herrero, et A. M. Baro, “WSXM: A software for scanning probe microscopy and a tool for nanotechnology,” *Review of Scientific Instruments*, vol. **78**, n°. 1, 2007.
- [28] C. Coupeau, “Slip line analysis in Ni3Al by atomic force microscopy,” *Scripta Materialia*, vol. **41**, n°. 9, p. 945-950, 1999.
- [29] C. Tromas, J. C. Girard, V. Audurier, et J. Woïrgard, “Study of the low stress plasticity in single-crystal MgO by nanoindentation and atomic force microscopy,” *Journal of Materials Science*, vol. **34**, n°. 21, p. 5337, 1999.
- [30] C. Tromas, J. C. Girard, et J. Woïrgard, “Study by atomic force microscopy of elementary deformation mechanisms involved in low load indentations in MgO crystals,” *Philosophical Magazine A*, vol. **80**, n°. 10, p. 2325-2335, 2000.
- [31] J. J. Gilman, W. G. Johnston, et G. W. Sears, “Dislocation Etch Pit Formation in Lithium Fluoride,” *Journal of Applied Physics*, vol. **29**, n°. 5, p. 747, 1958.
- [32] M. P. Shaw et C. A. Brookes, “Dislocations produced in magnesium oxide crystals due to contact pressures developed by softer cones,” *Journal of Materials Science*, vol. **24**, n°. 8, p. 2727-2734, 1989.
- [33] Y. Gaillard, “Initiation de la plasticité sous nanoindentation dans MgO et LiF : étude de l'organisation des dislocations et des contraintes associées,” *Thèse de Doctorat*, Université de Poitiers, 2004.

- [34] J. J. Gilman et W. G. Johnston, "Observations of dislocation glide and climb in lithium fluoride crystals," *Journal of Applied Physics*, vol. **27**, n°. 9, p. 1018, 1956.
- [35] J. F. Barbot, G. Rivaud, et J. C. Desoyer, "Microhardness and polarity in  $\text{Cd}_x\text{Hg}_{1-x}\text{Te}$ ," *Journal of Materials Science*, vol. **23**, n°. 5, p. 1655-1659, 1988.



---

## **Chapitre 3**

# **Mécanismes de déformation précédant le pop-in**

**Sommaire :**

<b>1. Introduction .....</b>	<b>81</b>
<b>2. Influence de l'état de surface sur les premiers stades de plasticité .....</b>	<b>82</b>
2.1. <i>Caractérisation de l'état initial.....</i>	82
2.2. <i>Evolution du comportement au cours des différentes étapes de polissage CMP</i>	83
<b>3. Etude des comportements réversibles .....</b>	<b>86</b>
3.1. <i>Topographie de surface associée à un cycle d'indentation réversible .....</i>	86
3.1.1. <i>Comportement réversible à faible charge.....</i>	86
3.1.2. <i>Comportement réversible à très forte charge .....</i>	88
3.2. <i>Etude des cycles réversibles : confrontation au modèle de Hertz .....</i>	93
3.3. <i>Carte du champ de contrainte sous un indenteur sphérique.....</i>	95
<b>4. Contrôle des structures de dislocations associées au pop-in pour des contraintes plus élevées.....</b>	<b>97</b>
<b>Références bibliographiques .....</b>	<b>101</b>

# Chapitre 3

## Mécanismes de déformation précédant le pop-in

### 1. Introduction

L'oxyde de magnésium est un matériau modèle pour l'étude des premiers stades de plasticité sous indentation. Cette thèse s'inscrit dans la continuité de précédents travaux développés au laboratoire. La figure 3-1. représente schématiquement le positionnement de notre étude par rapport aux travaux antérieurs. Dans une première étude, Tromas [1] s'est notamment intéressé aux premiers stades de plasticité induits par un essai de nanoindentation dans MgO. Gaillard [2] s'est ensuite focalisé sur l'initiation de la plasticité sous nanoindentation. Il a étudié en particulier l'organisation des dislocations et des contraintes associées. Il a montré, qu'au moment du pop-in, la nucléation de dislocations avait lieu au point de contrainte projetée maximum.

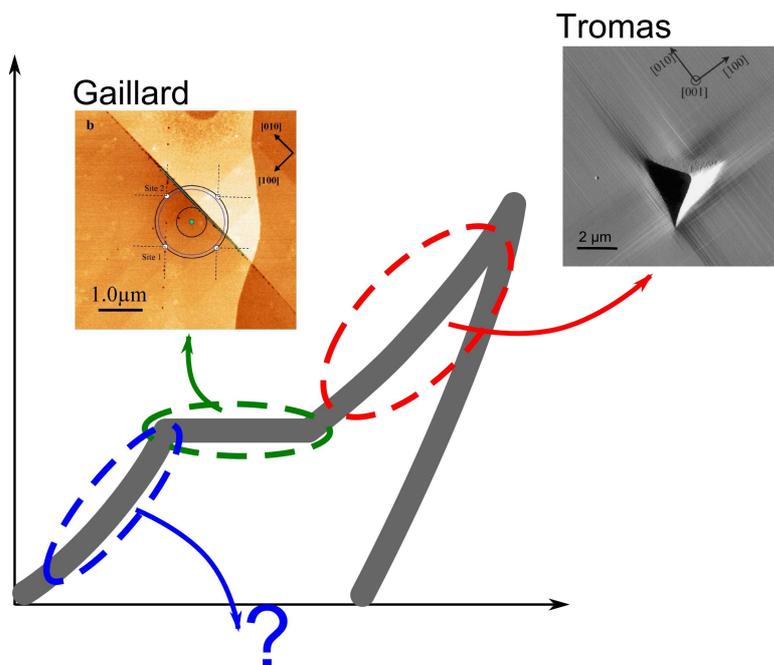


Figure 3-1. : Récapitulatif des précédentes études menées au laboratoire.

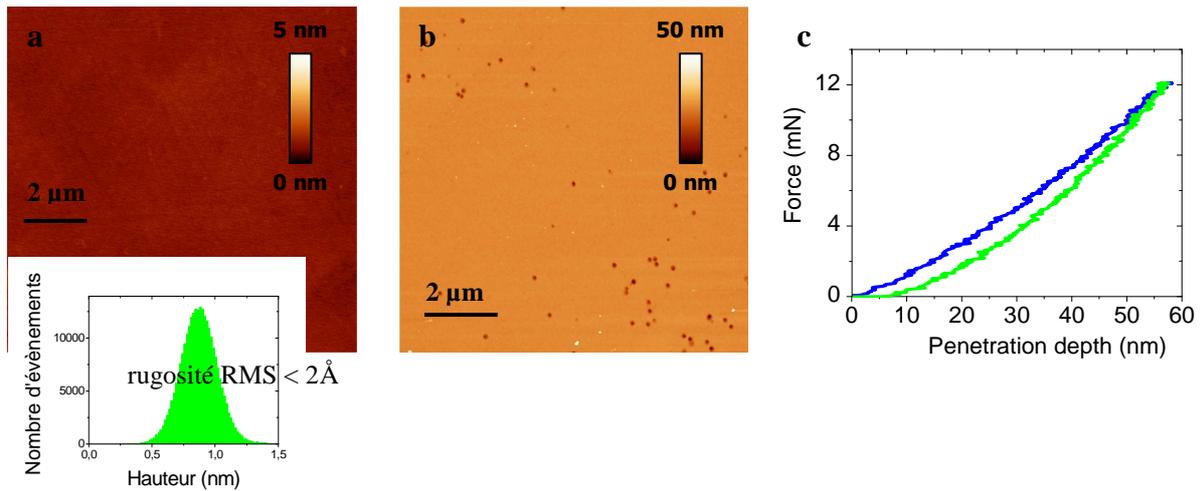
Ces précédentes études ont été menées sur des surfaces clivées qui présentent de larges terrasses planes et correctement orientées. Elles ont cependant l'inconvénient d'avoir un relief de surface constitué de marches de clivage qui peuvent influencer le comportement mécanique. L'objectif de cette étude est d'explorer les stades de déformation précédant et accompagnant le pop-in, en utilisant un indenteur sphérique afin d'accéder en même temps au champ de contrainte induit dans le matériau. Si l'on veut caractériser finement cette première étape de déformation, il faut être capable, à la fois, de décrire correctement le contact sphère-plan et d'observer précisément les traces résiduelles de déformation. Pour cela, nous avons été amené à développer une technique de polissage mécano-chimique (CMP) spécifiquement adaptée à MgO, telle que décrite dans le chapitre 2. Contrairement au clivage, le CMP produit des surfaces très planes avec une très faible rugosité (inférieure à 3Å) qui répondent aux exigences expérimentales de cette étude.

Dans ce chapitre, nous commencerons par présenter les caractéristiques des surfaces préparées par CMP, et nous étudierons l'évolution de la réponse mécanique de l'échantillon au cours des étapes successives de polissage, alors que la densité de défauts préexistants diminue. Dans un second temps, sur des surfaces préparées par CMP, alors que le pop-in n'apparaît qu'à partir de très fortes charges appliquées, nous nous attacherons à décrire la phase de chargement réversible précédant le pop-in en regard de la théorie du contact élastique de Hertz, et des déformations observées en surface par AFM. Enfin, nous présenterons quelques résultats obtenus avec un indenteur sphérique de plus petit rayon de courbure, de manière à induire des contraintes plus élevées. Nous vérifierons ainsi les structures de dislocations introduites au moment du pop-in en regard des précédents travaux de la littérature.

## **2. Influence de l'état de surface sur les premiers stades de plasticité**

### **2.1. Caractérisation de l'état initial**

Pour rappel, les échantillons sont des substrats monocristallins de MgO orientés (001) polis sur une face. Dans la suite de cette étude nous nommerons « surface industrielle », la surface polie de l'échantillon tel qu'il est reçu. La figure 3-2.a est une image AFM de la topographie de la surface industrielle. La rugosité est de quelques angströms seulement. Après



**Figure 3-2. :** (a) Topographie de la surface industrielle et distribution statistique de la hauteur des points, (b) image AFM de la même surface après attaque chimique, densité de dislocations  $30.10^6.cm^{-2}$ , (c) comportement typique sous indentation des surfaces industrielles.

attaque chimique, l'image AFM figure 3-2.b montre la présence de nano piqûres, caractéristiques de l'émergence de dislocations. Sur l'image, 60 piqûres sont visibles, soit une densité d'environ  $60.10^6$  dislocations par centimètre carré. Cette densité est élevée pour un matériau céramique tel que MgO : elle est vraisemblablement liée à la préparation de surface et non à la croissance.

Le comportement mécanique de ces surfaces sous indentation, décrit sur la figure 3-2.c, montre un comportement élasto-plastique dès les faibles charges (5 mN), sans qu'il ne soit possible de mettre en évidence une phase de chargement élastique, ni un phénomène de pop-in. La rugosité de surface (quelques angströms) ne pouvant être mise en cause, il apparaît donc clairement que les dislocations préexistantes jouent un rôle majeur dans ce comportement.

## 2.2. Evolution du comportement au cours des différentes étapes de polissage CMP

L'échantillon « industriel » a ensuite été poli par CMP en plusieurs étapes, de façon à retirer progressivement les défauts observés sur la surface industrielle et à se rapprocher progressivement d'un cristal « parfait ». A chaque nouvelle étape de polissage CMP, la surface est caractérisée par AFM (topographie) et nanoindentation (réponse mécanique). Le niveau 0 correspond à la surface industrielle, et les profondeurs de polissage indiquées par la suite se rapportent toutes au niveau 0.

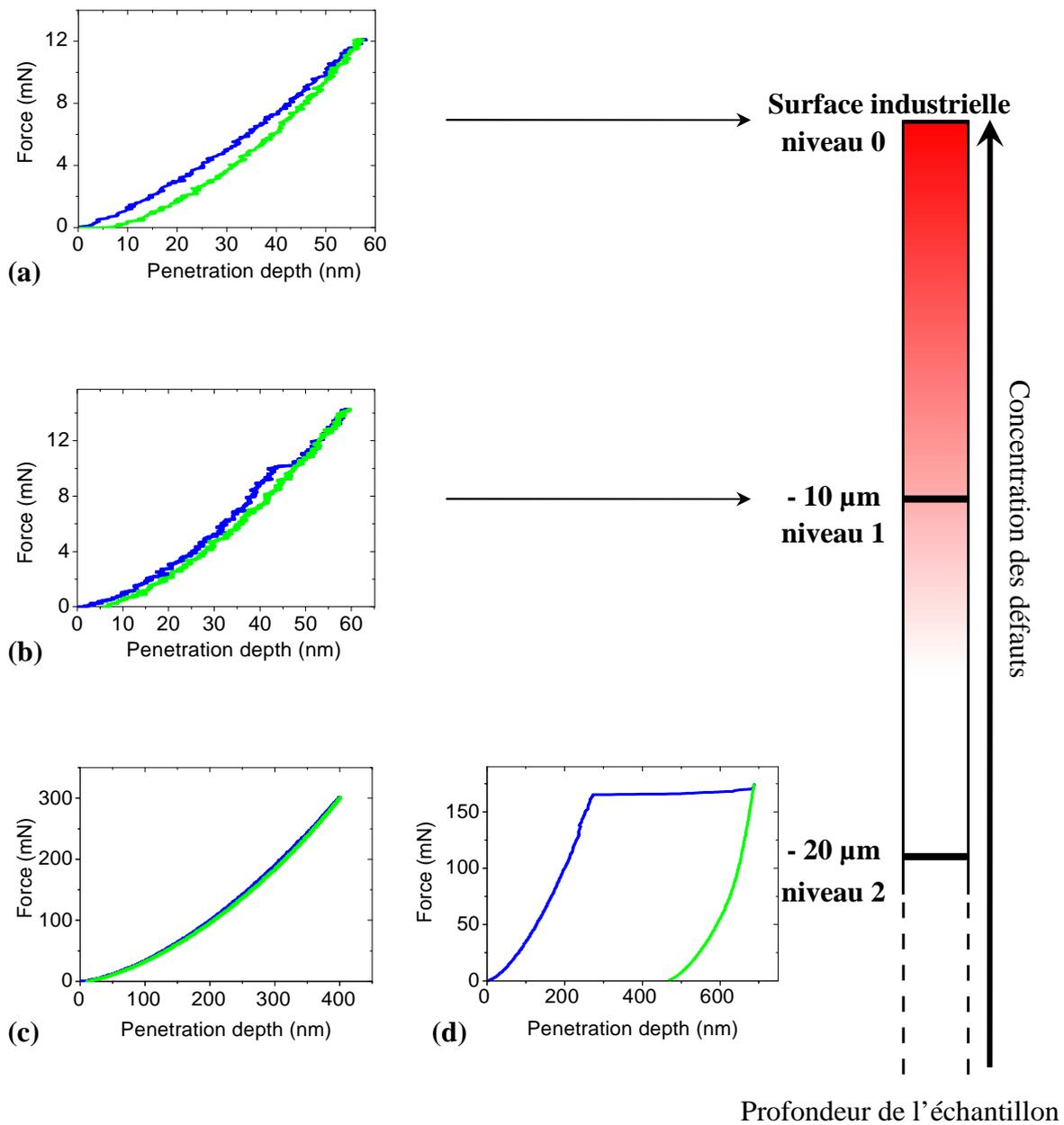
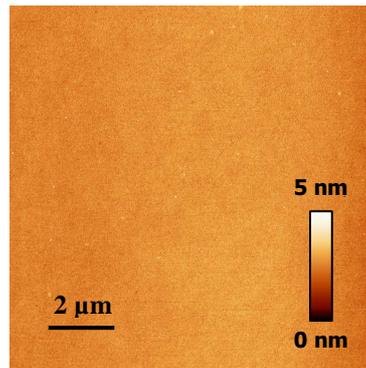


Figure 3-3. : Courbes d'indentation pour différents niveaux de polissage (a) sur la surface initiale, préparation industrielle, les courbes ne présentent aucun comportement réversible et la plasticité apparaît même pour de très faibles charges, (b) 10 µm sous la surface initiale, les courbes présentent un comportement réversible à faible charge ainsi qu'un pop-in marquant la transition élastique élasto-plastique, (c) 20 µm et plus sous la surface initiale, les courbes ont un comportement réversible même à très forte charge, (d) dans de rares cas un pop-in de large amplitude peut apparaître à forte charge.



**Figure 3-4. : Image AFM après attaque chimique d'une surface obtenue au niveau 2, aucune dislocation n'est révélée.**

Comme le montre la figure 3-3.b, après un premier polissage CMP de 10 µm sous le niveau 0, l'échantillon présente un comportement sous indentation différent. Des pop-ins sont observés pour des charges d'environ 10 mN. Si l'indenteur est retiré avant le pop-in, charge et décharge sont superposées. Si le chargement se poursuit après le pop-in alors l'indenteur laisse une empreinte résiduelle en surface. Le comportement au-delà du pop-in, quelle que soit la charge d'apparition du pop-in, suit la courbe maîtresse de déformation élasto-plastique. Ces observations sont en accord avec la description qui est classiquement faite du pop-in et avec les observations déjà rapportées sur des échantillons clivés de MgO [2-5].

La figure 3-3.c montre qu'après un second polissage CMP de 10 µm, soit 20 µm sous la surface initiale (niveau 2), le pop-in est repoussé à des charges très élevées et n'est presque plus observé lorsque la charge appliquée n'excède pas 300 mN (charge maximale accessible par le nanoindenteur). Dans de très rares cas où un pop-in est malgré tout observé, il apparaît sous la forme d'un pop-in unique, de très forte amplitude, afin de rattraper la courbe maîtresse de déformation élasto-plastique (figure 3-3.d). Les images AFM réalisées après attaque chimique sur ces surfaces de niveau 2 (figure 3-4.) ne font apparaître aucune piqure d'attaque. Les 20 µm retirés par CMP depuis la surface initiale, ont permis d'éliminer les défauts introduits lors de la préparation industrielle, et d'atteindre un cristal sans dislocation préexistante.

Dans les limites du nanoindenteur (300 mN charge maximale), plus aucune évolution du comportement sous indentation n'est observée au fur et à mesure des polissages suivants.

La rugosité ainsi que la topographie de surface ont été rigoureusement contrôlées à chaque niveau de polissage, chaque surface présentait les mêmes caractéristiques. L'évolution du comportement observé ici, ne peut donc être reliée à des différences de topographie ; seules des différences dans le cœur de l'échantillon peuvent expliquer ces changements.

Le nettoyage de surface ne peut non plus être mis en cause, puisque certaines des surfaces initiales ont été soumises au même protocole de nettoyage que celles ayant été polies. Qu'elles soient nettoyées ou pas, les surfaces industrielles présentent le même comportement sous indentation. De plus, cela tend à prouver que le protocole de nettoyage établi en 2-3. ne modifie pas les propriétés sous indentation. Rappelons que l'XPS (chapitre 2-2.2.3.) avait déjà confirmé que le CMP ne modifiait pas la nature des espèces chimiques présentes en surface.

Ces observations montrent que la technique industrielle de préparation de surface que subit l'échantillon introduit des défauts profondément sous la surface initiale, avec des effets perceptibles sur plus d'une dizaine de microns. Une fois que la couche chargée de défauts est retirée par polissage mécano-chimique, le cristal présente un comportement parfaitement adapté à notre étude.

### **3. Etude des comportements réversibles**

L'un des objectifs de cette étude est de mieux comprendre les mécanismes de déformation précédant le pop-in. Au fur et à mesure des niveaux de polissage, la charge d'apparition du pop-in s'est vue repoussée vers les hautes valeurs. L'étude de la partie réversible des cycles de charge-décharge se trouve ainsi facilitée. Nous allons nous intéresser à quelques empreintes pour lesquelles le pop-in ne s'est pas encore déclenché, et dans ce cas, charge et décharge sont superposées.

#### **3.1. Topographie de surface associée à un cycle d'indentation réversible**

##### **3.1.1. Comportement réversible à faible charge**

L'essai d'indentation présenté figure 3-5. a été réalisé à un niveau intermédiaire de polissage (entre le niveau 0 et 1). La charge maximale de cet essai est inférieure à la charge de déclenchement du pop-in, la courbe d'indentation présente donc un comportement réversible (figure 3-5.c). L'observation par AFM de la zone indentée (figure 3-5.a) révèle des sillons (figure 3-5.b) dans les directions [100] et [010]. Il a été vu précédemment que, dans MgO, ces directions correspondent aux directions des lignes de glissement associées à l'émergence et à la propagation de dislocations glissant dans des plans  $\{110\}_{45}$ . Le profil 3-5.b montre pourtant sans aucune ambiguïté qu'il ne s'agit pas de marche mais d'un creux de deux angströms de

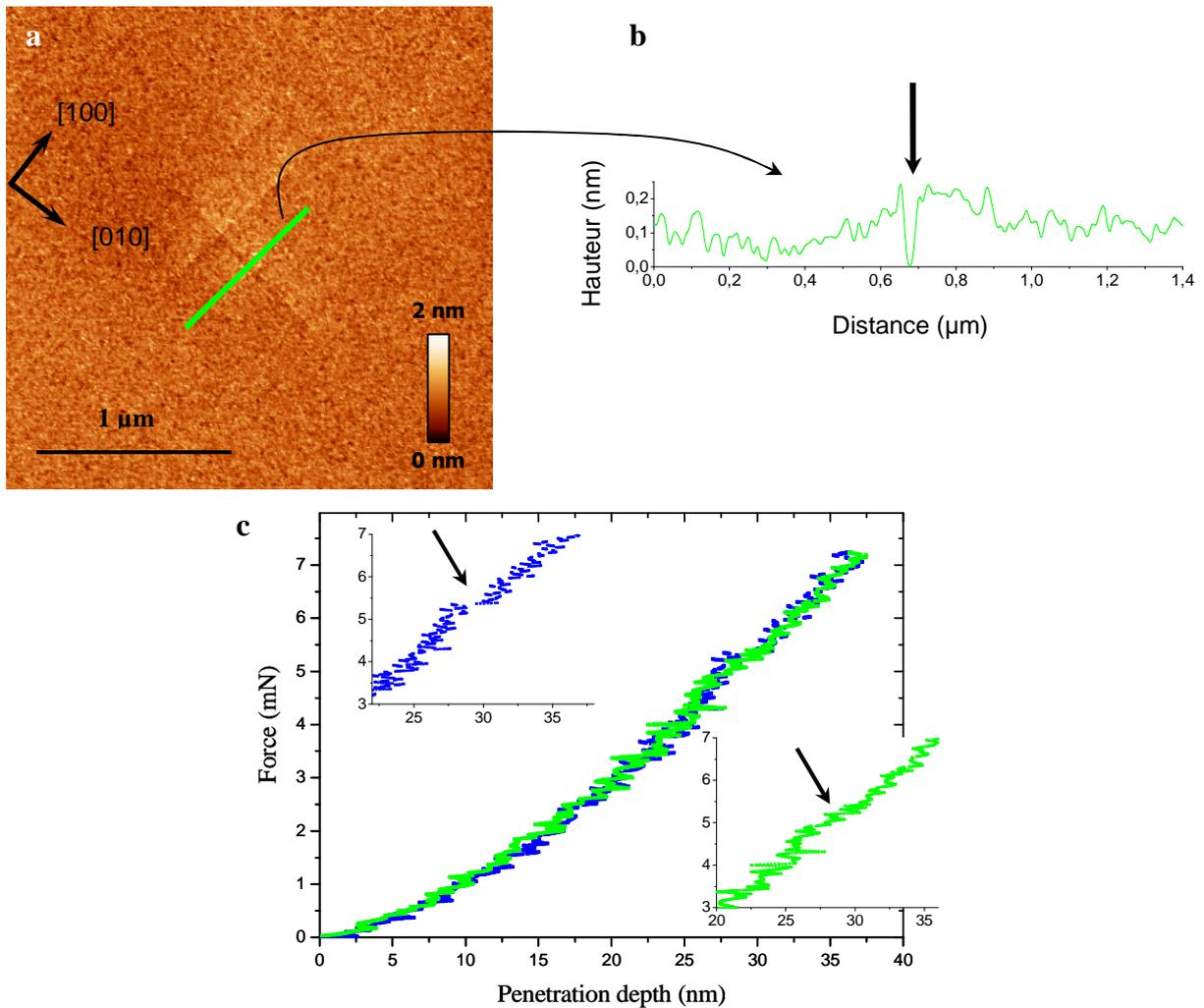


Figure 3-5. : (a) Image AFM de topographie de la zone indentée, (b) profil selon la direction indiquée sur (a), (c) courbe réversible de l'essai d'indentation, les deux événements singuliers observés à la charge et à la décharge sont indiqués par des flèches, la charge est tracée en bleu et la décharge en vert.

hauteur. Le léger contraste clair observé sur la zone d'indentation figure 3-5.a. est probablement dû à de la contamination chimique de surface. Les surfaces d'oxyde de magnésium sont très réactives à l'air et à l'humidité [6]. L'effet de la déformation a laissé une marque dans la contamination de surface.

Une observation attentive de la courbe d'indentation (figure 3-5.c) révèle deux événements singuliers à la charge et à la décharge. Ils sont difficiles à distinguer car la très faible amplitude du saut est de l'ordre de grandeur de la limite de résolution. A la charge, le pop-in peut être associé à la nucléation de dislocations. A la décharge, le saut pourrait être associé à la fermeture brutale de la marche, liée à la sortie de dislocations du cristal. Toutefois, la présence d'une couche modifiée en surface permet également d'envisager pour le pop-in initial un mécanisme du type rupture de couche d'oxyde [7-14].

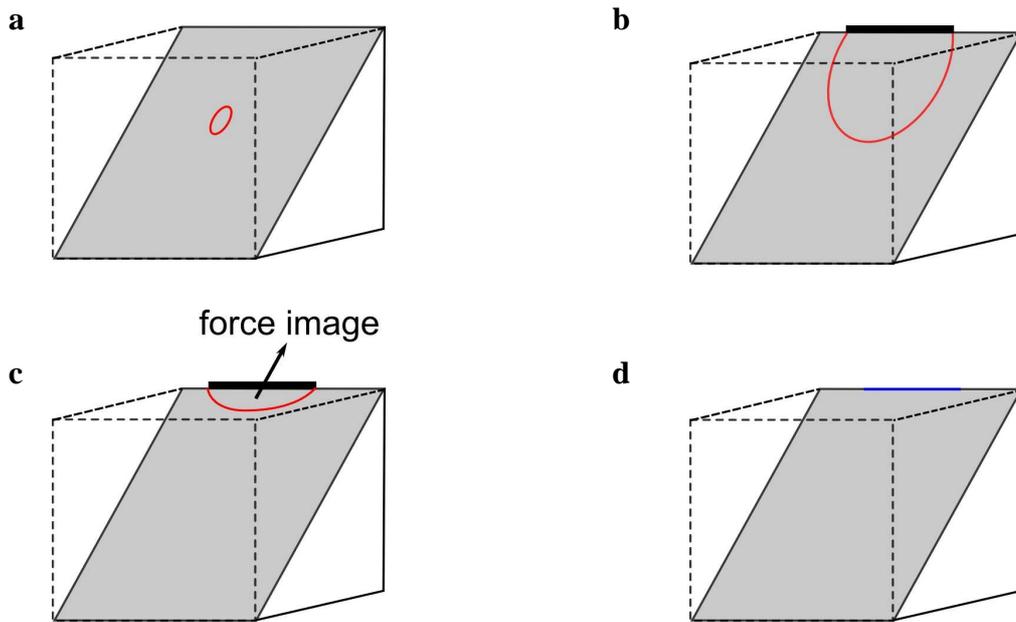


Figure 3-6. : Modèle de formation des traces observées sur la figure 3-5.a : (a) nucléation en volume d'une boucle de dislocation, (b) sous l'effet du champ de contrainte la boucle glisse et émerge en surface en laissant derrière elle une marche, (c) lors du retrait de l'indenteur la diminution des contraintes associée aux forces images drainent la dislocation vers la surface, (d) en fin d'indentation la dislocation est ressortie par la surface en fermant la marche et ne laisse qu'une trace de son passage dans la contamination de surface.

La figure 3-6. représente schématiquement un modèle permettant de rendre compte de la formation de ces sillons ainsi que des deux événements observés sur la courbe charge-décharge. Tout d'abord, faisons l'hypothèse de la nucléation d'une boucle de dislocation dans le cœur du matériau, au point de contrainte projetée maximum (figure 3-6.a). Puis sous l'effet de la contrainte de l'indenteur, la boucle croît et émerge en surface, créant ainsi une marche (figure 3-6.b). Lors du retrait de l'indenteur, sous l'effet de l'évolution du champ de contrainte et de la tension de ligne, la boucle de dislocation est drainée vers la surface (figure 3-6.c). En fin d'indentation, la dislocation est totalement ressortie et referme la marche (figure 3-6.d). L'ouverture puis la fermeture de la marche peut ainsi expliquer la formation des sillons dans la contamination de surface.

### 3.1.2. Comportement réversible à très forte charge

Intéressons nous maintenant à la caractérisation des mécanismes de déformation avant le pop-in sur les échantillons préparés par CMP au niveau 2. Dans ce cas, le pop-in n'apparaît qu'à charge très élevée ce qui permet d'étudier plus facilement et avec plus de précision le comportement avant le pop-in. Après un essai d'indentation réversible (courbe type : figure 3-3.c) la majorité des zones étudiées ne présentent aucune trace de déformation résiduelle en

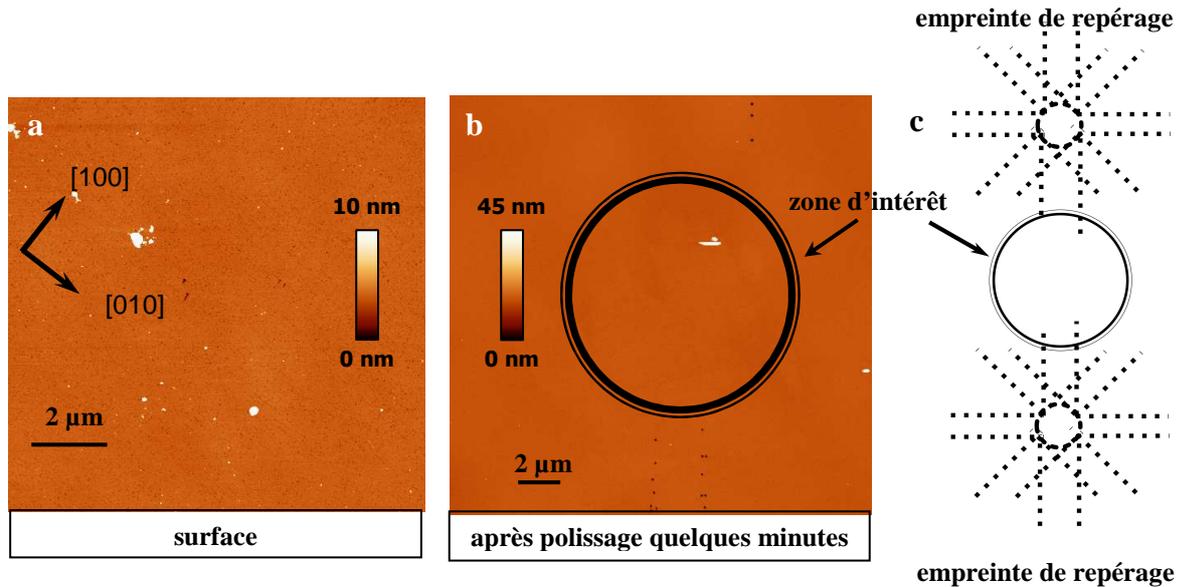
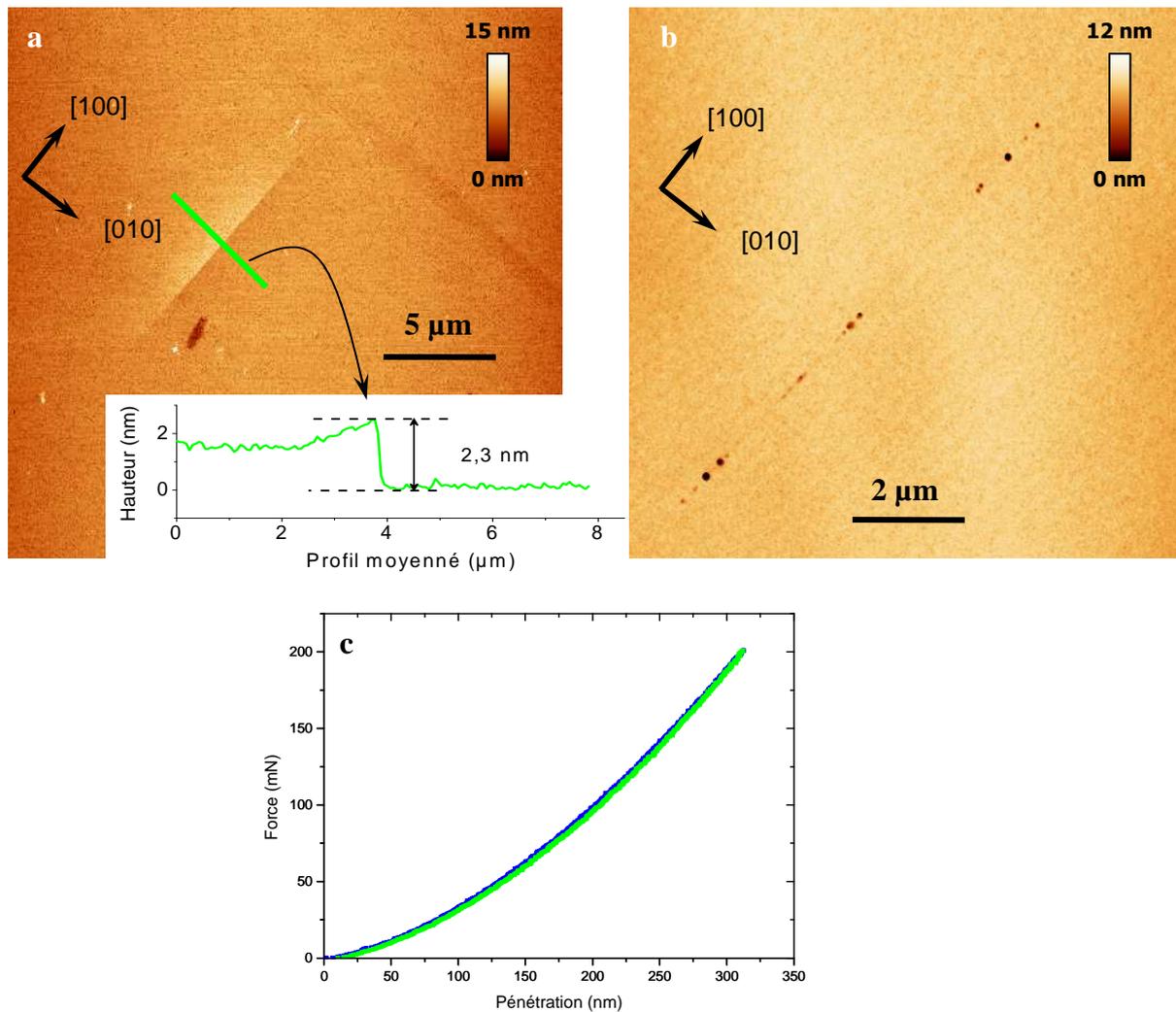


Figure 3-7. : Observations AFM de la zone indentée après un essai d'indentation similaire à celui présenté figure 3-3.c (a) surface, (b) après polissage et attaque chimique, (c) position de la zone d'intérêt par rapport aux empreintes de repérage dont l'extrémité de certains empilements est visible en (b).

surface (figure 3-7.a). L'attaque chimique de surface ne s'étant pas convenablement déroulée, nous avons été obligé d'effectuer un polissage de quelques minutes avant de pouvoir réaliser une nouvelle attaque chimique. La figure 3-7.b montre que cette attaque chimique s'est correctement déroulée, et aucune piqûre n'est observée dans la zone indentée. Ces observations sont cohérentes avec la description classique du pop-in dans laquelle la partie réversible précédant le pop-in est purement élastique et donc sans dislocation.

Dans quelques cas, les observations AFM révèlent quelques lignes de glissement en surface autour du contact alors que les courbes présentaient un comportement réversible sans pop-in. La figure 3-8.a montre très clairement une ligne de glissement en surface, haute de 2,3 nm, ce qui correspond à l'émergence et au glissement d'une dizaine de dislocations. Cette observation montre la possible activité de dislocations avant le pop-in, tout en conservant un caractère réversible des courbes. Toutefois, compte tenu des fortes charges appliquées, la résolution sur le déplacement n'est pas suffisante pour écarter tout évènement singulier à la charge ou à la décharge (voir paragraphe précédent). L'attaque chimique de surface n'a pas offert la résolution escomptée, nous avons alors poli l'échantillon quelques minutes. La figure 3-8.b est l'image AFM de la zone indentée après polissage et attaque chimique. Elle révèle sans ambiguïté la position des dislocations ayant participé à la formation de la marche. L'alignement des piqûres ainsi que l'absence de piqûres en dehors prouvent que ces dislocations sont dues à l'essai d'indentation. A noter que le nombre de piqûres ne correspond



**Figure 3-8. :** (a) Image AFM de la surface après un essai réversible d'indentation, montrant des lignes de glissement. Insert : coupe moyennée au centre de la marche de surface, (b) Observation AFM de la même empreinte après polissage par CMP et attaque chimique. Aucune piqûre n'est observée en dehors de l'alignement, (c) courbe d'indentation réversible correspondant aux images (a) et (b), la charge est en bleu et la décharge en vert.

pas au nombre de dislocations estimé à partir de la hauteur de marche. En effet, certaines des dislocations de l'empilement ont probablement été éliminées lors du décapage d'une couche de quelques microns par polissage CMP.

Sur un nouvel essai présenté figure 3-9., malgré l'aspect réversible de la courbe d'indentation (figure 3-9.b), à nouveau, la présence de marches monoatomiques est identifiée (pointées par des flèches sur l'image). Sur la figure 3-9.a, une contamination de surface est visible sur l'image AFM (un agrandissement est donné en insert). Il s'agit d'un petit relief circulaire de seulement un angström de hauteur. Le diamètre de cette trace est d'environ 1,8 μm, ce qui correspond au rayon de contact à chargement maximum, tel que calculé à partir de la profondeur de pénétration maximale en supposant un contact élastique (voir

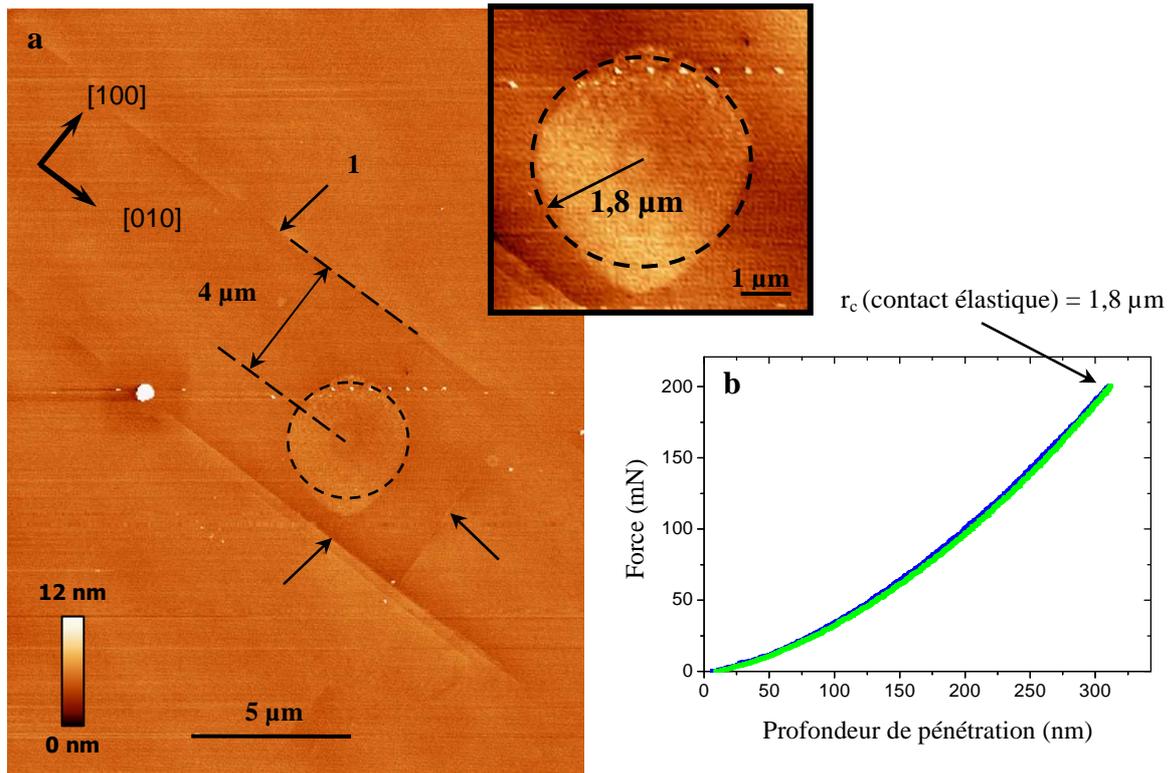


Figure 3-9. : (a) Image AFM après un essai d'indentation réversible, les lignes de glissement sont indiquées par des flèches. Le cercle de contact est représenté par le cercle discontinu. En insert : zoom sur le cercle de contamination ; (b) courbe d'indentation correspondante (charge en bleu et décharge en vert).

paragraphe 1.1. du chapitre 2). Cette trace de contamination chimique est clairement due au contact de l'indenteur sur la surface. Ce type de trace a été observé de façon assez régulière lors des différents essais d'indentation réalisés sur MgO, sans qu'il nous soit toutefois possible d'identifier sa nature chimique. Elle nous offre l'intérêt de déterminer précisément la position des lignes de glissement par rapport au cercle de contact. Ce dernier est matérialisé par un trait discontinu sur la figure 3-9.a.

Les lignes de glissement indiquées par des flèches sur la figure 3-9. sont très éloignées du cercle de contact. Par exemple, dans le cas de la ligne de glissement indiquée par la flèche 1, la dislocation responsable de la formation de la marche émerge hors du contact à  $4 \mu\text{m}$  de l'axe d'indentation, soit approximativement deux fois le rayon de contact. Le plan de glissement de cette dislocation n'est donc pas le plan qui contient la valeur maximale des contraintes projetées. Le même raisonnement peut être appliqué aux autres lignes de glissement. Le glissement de dislocations dans ce type de plan n'est pas attendu lors de la nucléation au moment du pop-in [3]. De plus ici, nous observons l'émergence de trois dislocations seulement, dans trois plans distincts, très loin de l'avalanche de dislocations vue au moment du pop-in.

Ces expériences montrent la possibilité d'observer la nucléation de boucles de dislocations mobiles pendant la phase de déformation précédant le pop-in, et que la nucléation de ces dislocations n'est pas incompatible avec un comportement réversible des courbes d'indentation. Ce type de comportement avait déjà été rapporté sur des échantillons d'aluminium [15], d'or [16], de tungstène et de fer-silicium [13].

Ainsi, ces expériences montrent que, sur MgO, des mécanismes initiaux de plasticité peuvent être observés, de façon sporadique, avant le pop-in, tout en conservant, dans la limite de résolution de l'appareillage, un cycle charge-décharge superposé. Cette activité plastique initiale n'est cependant pas synonyme d'une avalanche de dislocations comme lors du pop-in, dans la mesure où elle se limite à quelques dislocations individuelles. La dernière expérience présentée, apporte en plus, une information sur les plans activés lors de la phase réversible, ce ne sont pas ceux attendus lors de la nucléation au moment du pop-in. La première nucléation de dislocation et le phénomène de pop-in ne seraient donc pas nécessairement des événements concomitants.

Cependant, l'observation de lignes de glissement après un essai d'indentation réversible n'est pas systématique. Sur 81 essais réversibles réalisés au niveau 2 de polissage (charge maximale supérieure ou égale à 200 mN), 18 ont fait l'objet d'une caractérisation par AFM de la zone indentée, et 2 ont montré des lignes de glissement liées à l'essai d'indentation.

Ce dernier essai sera modélisé dans le dernier chapitre. En particulier, nous nous intéressons à la ligne de glissement indiquée par la flèche 1 sur la figure 3-9.

### **3.2. Etude des cycles réversibles : confrontation au modèle de Hertz**

Les essais d'indentation réalisés au niveau 2 de polissage présentent pour la plupart un comportement réversible de leur courbe d'indentation : charge et décharge sont superposées. Dans certains cas, l'observation AFM des zones indentées a révélé des lignes de glissement liées à l'essai d'indentation. Il paraît donc légitime de s'interroger sur la nature précise de ce comportement particulier. Le contact élastique sphère-plan est bien décrit par la théorie de Hertz, ce qui nous permet de confronter les comportements réversibles au modèle élastique. Les charges précédant le pop-in sont modélisées par l'équation (voir chapitre 2-2.3.) :

$$F = \frac{4}{3} E * R^{1/2} h^{3/2}$$

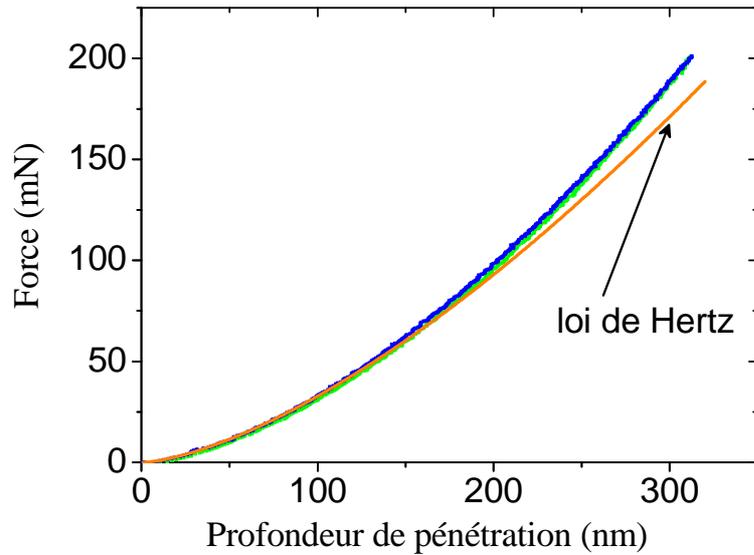


Figure 3-10. : Comparaison entre la loi élastique de Hertz (orange) et la charge expérimentale (bleu), la décharge est tracée en vert.

La figure 3-10. montre qu’au-delà d’une certaine charge, la courbe expérimentale et le comportement théorique attendu ne sont pas superposés. Afin de caractériser précisément ces différences, l’écart relatif entre le modèle de Hertz et les résultats expérimentaux a été représenté sur la figure 3-11.a en fonction de la profondeur de pénétration. Cette analyse a été faite pour une indentation caractéristique dans MgO ainsi que dans la silice (échantillon de référence pour le comportement élastique).

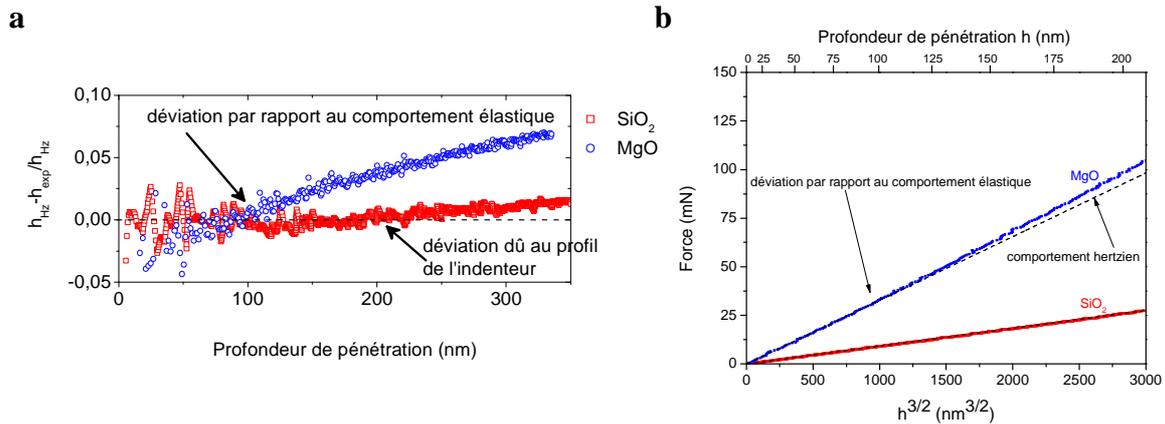


Figure 3-11. : (a) Ecart relatif entre les données expérimentales et la théorie de Hertz. La première flèche indique la déviation au modèle de Hertz due au comportement mécanique spécifique de MgO, alors que la deuxième indique la déviation par rapport au comportement hertzien due au changement de profil de l’indenteur. (b) Force appliquée  $F$  en fonction de  $h^{3/2}$ , pour des essais d’indentation dans MgO et SiO<sub>2</sub>. Dans cette représentation SiO<sub>2</sub> suit un comportement linéaire, caractéristique d’un contact Hertzien, tandis que MgO dévie de la loi de Hertz pour des profondeurs de pénétration supérieure à 100 nm. Cette représentation exclue toute influence du choix des constantes élastiques. Pour les deux représentations la courbe bleue est pour une indentation dans la silice (matériau de référence) et la courbe rouge pour MgO.

Dans le cas de la silice, la figure 3-11.a montre que les courbes suivent le modèle de Hertz, jusqu'à une profondeur de pénétration de 200 nm, à partir de laquelle un écart commence à apparaître. Cette déviation s'explique tout naturellement par le fait qu'au delà de 200 nm, la pointe n'est plus rigoureusement sphérique, ainsi que cela a été rapporté au chapitre 2-2.4.3, lorsque la forme de l'indenteur a été étudiée.

Dans le cas des courbes d'indentation sur MgO par contre, une déviation au comportement élastique apparaît dès 100 nm de profondeur de pénétration. Ainsi, les comportements réversibles observés sur les courbes d'indentation réalisées au niveau 2 de polissage ne sont pas des comportements purement élastiques.

Pour s'affranchir de l'utilisation des constantes élastiques qui apparaissent dans le modèle de Hertz, une deuxième représentation a été choisie, figure 3-11.b. Il s'agit simplement de tracer l'évolution de la force appliquée en fonction de la racine carrée du cube de la profondeur de pénétration, caractéristique de la loi de Hertz :  $F = K.h^{3/2}$ . Cette nouvelle représentation confirme le comportement mécanique particulier de MgO à partir de 100 nm de pénétration.

La confrontation des courbes expérimentales avec le modèle élastique de Hertz montre que le comportement mécanique pourtant réversible de MgO ne suit pas les lois prédites par l'élasticité linéaire. Dans certains cas, en dépit du comportement réversible de l'indentation, la nucléation et le glissement de dislocations ont pu être associés à ces essais. La présence de lignes de glissement en surface ne suffit cependant pas à expliquer la déviation à la loi élastique : des déformations en surface de 0,2 à 2 nm comparées aux différences de 20 nm entre les courbes théoriques et expérimentales. De plus, ce phénomène est commun à tous les essais d'indentations réversibles réalisés au niveau 2, y compris ceux ne présentant aucune trace de déformation résiduelle en surface.

Ces observations remettent en cause l'idée de déformation purement élastique avant le pop-in. Il est alors possible, pour expliquer ces écarts à la loi de Hertz, d'envisager une activité réversible de dislocations sous le contact. L'empreinte observée figure 3-5. nous a déjà amené à envisager cette hypothèse. De plus, le fait que dans certains cas quelques lignes de glissement puissent être observées atteste de la possibilité d'une activité sporadique de dislocations avant le pop-in. Dans le paragraphe suivant nous allons examiner cette hypothèse au regard de la nature du champ de contrainte induit par l'indenteur dans le matériau.

### 3.3. Carte du champ de contrainte sous un indenteur sphérique

L'activité de dislocations pendant la phase réversible de chargement justifie l'étude de cette phase réversible, notamment en examinant la carte de contrainte générée sous le contact. Le comportement des dislocations sous nanoindentation est complexe car le champ de contrainte présente des zones sous compression, d'autres en tension et des valeurs de contrainte très élevées avec localement de très forts gradients.

La figure 3-12.a représente la carte de contraintes résolues sur un système de glissement  $\langle 011 \rangle \{011\}_{45}$ , calculée analytiquement à charge maximale dans le cas d'un contact élastique, dans le plan  $\{110\}_{45}$  convergent qui contient le maximum global de contrainte. Ce plan débouche en surface à  $0,44.r_c$  de l'axe d'indentation [3]. La poche de contraintes favorables à l'extension des boucles de dislocations (positives) débouche en surface, la valeur maximale

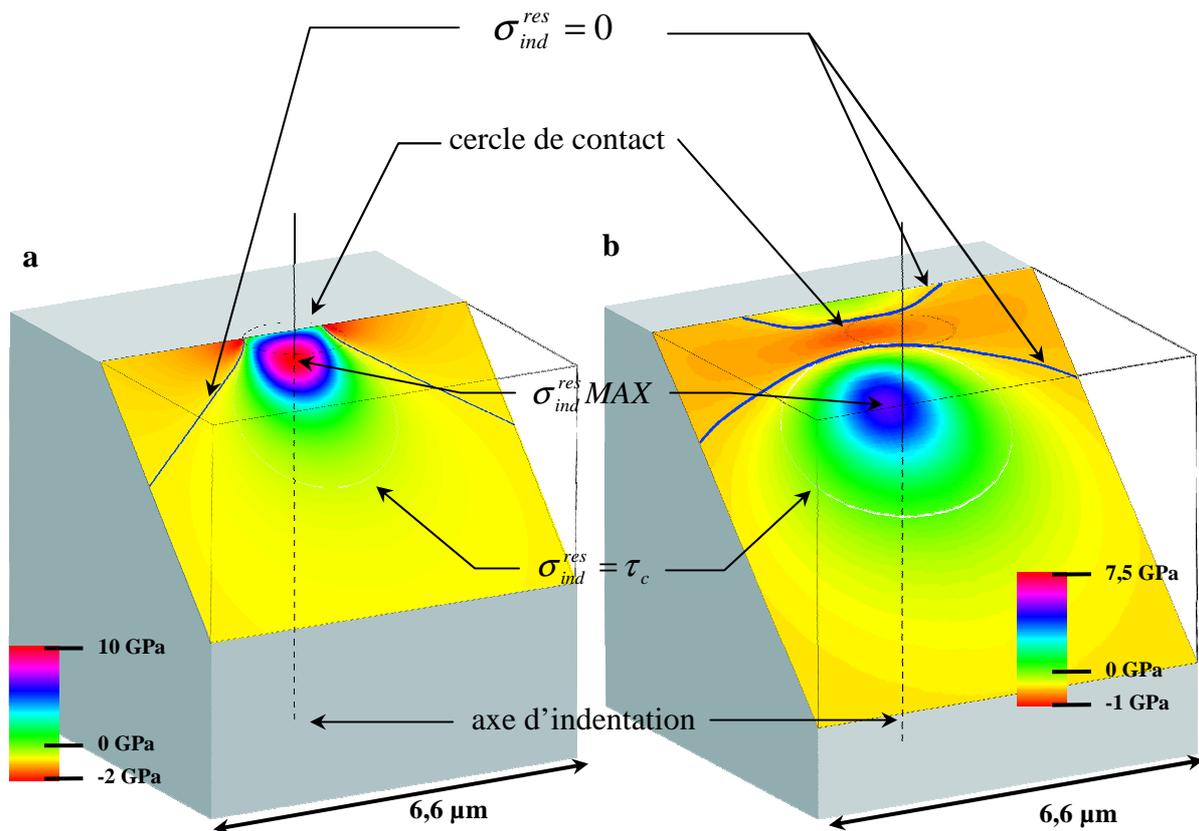


Figure 3-12. : Carte des contraintes résolues sur  $\langle 110 \rangle \{110\}_{45}$   $\sigma_{ind}^{res}$  pour un chargement de 200 mN avec SPH1 ( $R = 9,5 \mu\text{m}$ ) dans (a) le plan  $\{110\}$  contenant le maximum global de contrainte et (b) dans le plan  $\{110\}$  correspondant au plan de glissement indiqué par la flèche 1 sur la figure 3-9. La boucle blanche indique la région où  $\sigma_{ind}^{res} = \tau_c$ , où  $\tau_c$  est la force de friction de réseau (75 MPa).

de la contrainte est de 10 GPa. Cette première zone est encadrée par deux zones de contraintes limitant l'extension des boucles de dislocations (négatives). Dans cette configuration, si une boucle est nucléée au point de contrainte maximum, alors elle croît jusqu'à émerger en surface pour créer une marche sous le contact.

La figure 3-12.b représente la carte de contraintes résolues sur un système de glissement  $\langle 011 \rangle \{011\}_{45}$  correspondant aux conditions expérimentales, à charge maximale, de l'essai d'indentation détaillé figure 3-9. Le plan considéré est un plan de la famille  $\{110\}_{45}$ , qui, compte tenu de l'orientation de la marche 1 (figure 3-9.), passe sous le contact et émerge en surface à l'extérieur du cercle de contact. Les contraintes projetées ont été calculées dans l'approximation d'un contact élastique, justifié par l'éloignement de la marche par rapport au contact. Dans cet exemple précis, la distance entre la ligne de glissement et l'axe d'indentation est égale à 4  $\mu\text{m}$ . La carte de contrainte révèle une poche favorable à la croissance des boucles, avec une valeur maximale de 4,5 GPa, encadrée par une zone de contrainte de signe opposé qui au contraire empêche la propagation de ces mêmes boucles de dislocations. Si une dislocation est introduite au maximum du plan de glissement (maximum local), sous l'effet des contraintes positives la boucle croît jusqu'à atteindre sa forme d'équilibre : une boucle fermée qui ne débouche pas en surface (boucle blanche figure 3-12.b). La forme d'équilibre de la boucle correspond à la zone de l'espace où les contraintes dues à l'indenteur égalent la force de friction de réseau (valeur moyenne de 75 MPa [4]). La carte de contrainte montre qu'il est possible, à charge maximale, d'avoir au moins une boucle de dislocation en équilibre dans le champ de contrainte, prisonnière sous la surface.

Or, expérimentalement (figure 3-9.), des lignes de glissement sont observées autour du contact. Il a donc fallu un surplus de contrainte à la dislocation pour lui permettre de franchir la zone de contraintes négatives. Ce surplus de contrainte a pu être apporté par un empilement de dislocations, en arrière de la dislocation de tête. Et alors, seule la dislocation de tête émergerait, tandis que le reste de l'empilement resterait sous la surface, invisible en AFM. La présence d'un empilement de dislocations dans le champ de contrainte de l'indenteur permettrait également d'expliquer la déviation au modèle élastique de Hertz observée sur les courbes d'indentation réversible à forte charge (niveau 2). La non émergence de l'empilement principal expliquerait pourquoi tous les essais réversibles montrent une déviation à la loi de Hertz sur leurs courbes et que seuls quelques uns révèlent la présence de ligne de glissement en surface.

L'analyse statique du champ de contrainte sous charge ne tient cependant pas compte de l'évolution des contraintes au cours de la décharge et ne donne donc pas accès à la forme finale de la boucle de dislocation à chargement nul. Elle ne permet pas non plus de rendre compte de la forme d'équilibre des boucles de dislocations dans le cas de la nucléation d'un empilement ni de son évolution à la décharge. Toutefois, le fait que cet empilement ne soit pas non plus observable (après attaque chimique où aucune pique n'est observée) lorsque l'indenteur est complètement retiré (figure 3-7.), peut faire envisager des mécanismes d'annihilation à la décharge comme cela avait été déjà suggéré au début du chapitre (figure 3-5.).

Cette première analyse apporte un éclairage nouveau sur les premiers mécanismes de plasticité, en montrant notamment que la valeur absolue de la contrainte n'est pas un critère suffisant pour la nucléation. Le plan représenté figure 3-12.b et dans lequel la nucléation et le glissement d'au moins une dislocation a été observé (figure 3-9.), n'est pas le plan contenant le site du maximum des contraintes projetées. Pour aller plus avant dans l'interprétation des phénomènes observés, des modélisations utilisant un code de dynamique de dislocations discrètes couplé à un code de calcul par éléments finis a été utilisé. Les résultats de ces simulations sont présentés au chapitre 5.

## **4. Contrôle des structures de dislocations associées au pop-in pour des contraintes plus élevées**

Le grand rayon de courbure de SPH1 ( $R = 9,5 \mu\text{m}$ ) ainsi que l'amélioration de la préparation de surface nous ont permis d'observer des comportements réversibles sur de larges gammes de charge (jusqu'à 300 mN, maximum autorisé par le nanoindenteur), permettant ainsi l'étude des mécanismes de déformation précédant le pop-in. A chargement maximal les contraintes générées sous l'indenteur SPH1 ne sont pas suffisantes pour initier un pop-in. Cependant nous devons vérifier que sur le nouvel état de surface, les structures de dislocations introduites au moment du pop-in correspondent aux descriptions qui en ont déjà été faites [1, 2, 17]. Afin d'obtenir des contraintes sous indenteur plus élevées dans la gamme de charges explorables par notre nanoindenteur nous avons utilisé un indenteur sphérique de rayon de courbure plus petit : SPH2 ( $R = 620 \text{ nm}$ ) (chapitre 2-1.4.3.). La figure 3-13. montre

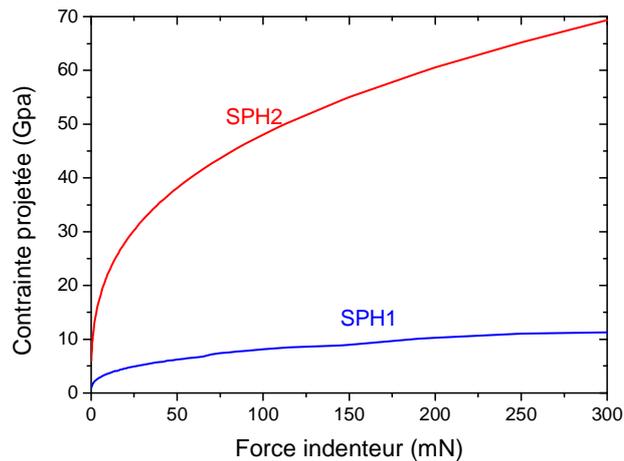


Figure 3-13. : Evolution du maximum global des contraintes projetées dans un plan de type  $\langle 110 \rangle \{ 110 \}_{45}$ , représentée en fonction de la force d'indentation avec SPH1 ( $R = 9,5 \mu\text{m}$ ) et SPH2 ( $R = 0,62 \mu\text{m}$ ).

que la contrainte maximale atteignable avec SPH1 (soit 11 GPa), est obtenue dès 1,5 mN avec SPH2. On accède donc, dans les limites de chargement autorisées par l'indenteur, à une nouvelle gamme de contraintes beaucoup plus élevée.

La figure 3-14. est un exemple typique des comportements sous indentation rencontrés avec l'utilisation de l'indenteur SPH2 : un pop-in apparaît systématiquement pour des charges de quelques milli newtons (figure 3-14.a) correspondant à un maximum de contrainte d'une quinzaine de giga pascals. Il est important de noter que les contraintes nécessaires au déclenchement d'un pop-in avec SPH2 sont supérieures à celles atteintes avec SPH1 à chargement maximum. De précédentes études ont également montré qu'une élévation de la

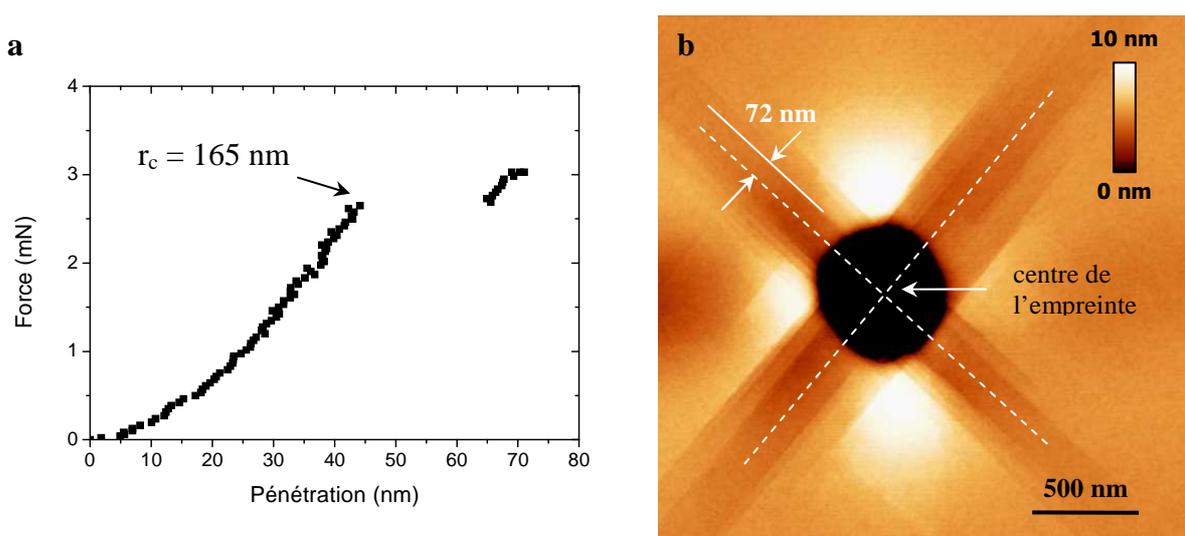


Figure 3-14. : (a) Courbe de nanoindentation au niveau 2 avec SPH2 (seule la courbe de charge a été représentée), (b) image AFM de l'empreinte correspondante.

vitesse d'indentation et donc une variation rapide des valeurs de contraintes (comme c'est le cas avec SPH2 dans la gamme de charge du pop-in) avait pour effet de repousser le pop-in vers les hautes valeurs [18, 19]. Il a également été montré que le rayon de courbure de l'indenteur, et donc du champ de contrainte associé, limitait l'extension des boucles de dislocations et qu'il fallait donc atteindre des contraintes plus élevées pour observer un pop-in [9, 20]. Nous ne sommes pas en mesure, ici, de décorrélérer l'influence de tous ces paramètres. L'observation AFM des zones indentées révèle la présence d'empreintes entourées de bras de Rosette (figure 3-14.b).

Sur la courbe d'indentation figure 3-14.a, au moment du pop-in le rayon de contact est de 165 nm (dans l'approximation élastique). Dans ce cas, le maximum global des contraintes projetées dans les plans de type  $\{110\}_{45}$ , est situé sur l'axe d'indentation à 72 nm sous le contact. La position d'émergence des dislocations nucléées au moment de ce pop-in est donc attendue à 72 nm de l'axe d'indentation [3]. L'image AFM figure 3-14.b, montre que les lignes de glissement les plus internes dans les bras de Rosette (et donc les premières dislocations nucléées) sont situées à 72 nm de l'axe d'indentation, à la position attendue dans le cas d'une nucléation au moment du pop-in. La même analyse a été répétée sur d'autres empreintes réalisées avec SPH2, et les mêmes résultats ont été systématiquement confirmés. Si la charge fluctue d'un essai à l'autre, la position des marches change en conséquence.

Les surfaces préparées par CMP (niveau 2) présentent un comportement mécanique précédant le pop-in particulier avec de la nucléation sporadique de dislocations. Ces comportements ne sont observables qu'avec un indenteur présentant un grand rayon de courbure. Les résultats des essais réalisés avec SPH2 sur ce même type de surface, montrent que la nucléation au moment du pop-in est située au point de contrainte maximum des plans  $\{110\}_{45}$ . Les mécanismes de nucléation sporadique et ceux en avalanche au moment du pop-in sont donc deux évènements totalement distincts.

#### **Synthèse :**

Le nouvel état de surface préparé par CMP présente un comportement mécanique réversible sous indentation, y compris sous très fortes contraintes (plusieurs gigapascals). La nucléation et le glissement de dislocations ont pu être observés durant cette phase précédant le pop-in. Nous avons alors proposés plusieurs hypothèses :

- la première activité de dislocation et le phénomène du pop-in ne sont pas nécessairement des évènements concomitants
- la nucléation de dislocations peut être observée dans des plans ne contenant pas le maximum global de contrainte
- même sous très forte contrainte, on peut observer la nucléation de quelques dislocations seulement sans avoir le phénomène d'avalanche observé au moment du pop-in

L'étude fine des courbes d'indentation a révélé qu'à partir de 100 nm de profondeur de pénétration pour tous les essais réversibles, y compris ceux ne présentant pas de ligne de glissement en surface, la pénétration expérimentale était supérieure à celle calculée dans le modèle de Hertz. L'analyse de la carte de contrainte a montré que sous charge dans certains plans émergeant hors contact, la distribution des contraintes permet d'observer une boucle de dislocation en équilibre dans le champ de contrainte de l'indenteur et qui n'émerge pas en surface. Nous avons alors fait l'hypothèse que la nucléation d'un empilement de dislocations dans ce type de plan conduirait à l'émergence de la dislocation de tête, tandis que les autres dislocations resteraient sous la surface. La présence d'un empilement de dislocations qui ne débouche pas expliquerait la déviation à la loi de Hertz observé sur les courbes de charges. L'hypothèse d'empilement de dislocation qui ne débouche pas en surface sera modélisée dans le dernier chapitre.

## Références bibliographiques

- [1] C. Tromas, “Etude par AFM et TEM des premiers stades de plasticité induits par un essai de nanoindentation sur une face (001) d'un monocristal d'oxyde de magnésium,” *Thèse de Doctorat*, Université de Poitiers, 2000.
- [2] Y. Gaillard, “Initiation de la plasticité sous nanoindentation dans MgO et LiF : étude de l'organisation des dislocations et des contraintes associées,” *Thèse de Doctorat*, Université de Poitiers, 2004.
- [3] C. Tromas, Y. Gaillard, et J. Woïrgard, “Nucleation of dislocations during nanoindentation in MgO,” *Philosophical Magazine*, vol. **86**, n°. 33, p. 5595, 2006.
- [4] Y. Gaillard, C. Tromas, et J. Woïrgard, “Quantitative analysis of dislocation pile-ups nucleated during nanoindentation in MgO,” *Acta Materialia*, vol. **54**, n°. 5, p. 1409, 2006.
- [5] Y. Gaillard, C. Tromas, et J. Woïrgard, “Study of the dislocation structure involved in a nanoindentation test by atomic force microscopy and controlled chemical etching,” *Acta Materialia*, vol. **51**, n°. 4, p. 1059, 2003.
- [6] B. I. Kim, J. W. Hong, G. Jeong, S. H. Moon, D. H. Lee, T. U. Shim, et Z. G. Khim, “Effect of Mg(OH)<sub>2</sub> on YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> thin film on MgO substrate studied by atomic force microscope,” *Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures*, vol. **12**, n°. 3, p. 1631, 1994.
- [7] J. Pethica et D. Tabor, “Contact of characterised metal surfaces at very low loads: Deformation and adhesion,” *Surface Science*, vol. **89**, n°. 1, p. 182-190, 1979.
- [8] W. W. Gerberich, S. Venkataraman, H. Huang, S. E. Harvey, et D. L. Kohlstedt, “The injection of plasticity by millinewton contacts,” *Acta Metallurgica Et Materialia*, vol. **43**, n°. 4, p. 1569, 1995.
- [9] Y. L. Chiu et A. H. W. Ngan, “Time-dependent characteristics of incipient plasticity in nanoindentation of a Ni<sub>3</sub>Al single crystal,” *Acta Materialia*, vol. **50**, n°. 6, p. 1599, 2002.
- [10] A. Gouldstone, H. J. Koh, K. Y. Zeng, A. E. Giannakopoulos, et S. Suresh, “Discrete and continuous deformation during nanoindentation of thin films,” *Acta Materialia*, vol. **48**, p. 2277-2295, 2000.
- [11] W. W. Gerberich, J. C. Nelson, E. T. Lilleodden, P. Anderson, et J. T. Wyrobek, “Indentation induced dislocation nucleation: The initial yield point,” *Acta Materialia*, vol. **44**, n°. 9, p. 3585, 1996.
- [12] A. B. Mann et J. B. Pethica, “The role of atomic size asperities in the mechanical deformation of nanocontacts,” *Applied Physics Letters*, vol. **69**, n°. 7, p. 907, 1996.
- [13] D. E. Kramer, K. B. Yoder, et W. W. Gerberich, “Surface constrained plasticity: Oxide rupture and the yield point process,” *Philosophical Magazine A*, vol. **81**, n°. 8, p. 2033-2058, 2001.
- [14] A. B. Mann et J. B. Pethica, “The effect of tip momentum on the contact stiffness and yielding during nanoindentation testing,” *Philosophical Magazine A*, vol. **79**, n°. 3, p. 577-592, 1999.

- [15] A. M. Minor, S. A. Syed Asif, Z. Shan, E. A. Stach, E. Cyrankowski, T. J. Wyrobek, et O. L. Warren, “A new view of the onset of plasticity during the nanoindentation of aluminium,” *Nature Materials*, vol. **5**, n°. 9, p. 697, 2006.
- [16] V. Navarro, O. R. De La Fuente, A. Mascaraque, et J. M. Rojo, “Uncommon dislocation processes at the incipient plasticity of stepped gold surfaces,” *Physical Review Letters*, vol. **100**, n°. 10, 2008.
- [17] A. S. Keh, “Dislocations in indented magnesium oxide crystals,” *Journal of Applied Physics*, vol. **31**, n°. 9, p. 1538, 1960.
- [18] C. A. Schuh, J. K. Mason, et A. C. Lund, “Quantitative insight into dislocation nucleation from high-temperature nanoindentation experiments,” *Nature Materials*, vol. **4**, n°. 8, p. 617-621, 2005.
- [19] J. Mason, A. Lund, et C. Schuh, “Determining the activation energy and volume for the onset of plasticity during nanoindentation,” *Physical Review B*, vol. **73**, n°. 5, 2006.
- [20] T. A. Michalske et J. E. Houston, “Dislocation nucleation at nano-scale mechanical contacts,” *Acta Materialia*, vol. **46**, n°. 2, p. 391, 1998.

---

## **Chapitre 4**

# **Influence des dislocations préexistantes**

**Sommaire :**

<b>Introduction .....</b>	<b>105</b>
<b>1. Génération de dislocations par clivage.....</b>	<b>106</b>
<b>2. Réponse mécanique sous indentation d'échantillons clivés .....</b>	<b>111</b>
2.1. <i>Topographie de surface .....</i>	<i>111</i>
2.2. <i>Densité de dislocations préexistantes .....</i>	<i>112</i>
<b>3. Protocole de double attaque pour étudier l'influence des dislocations préexistantes sur le pop-in.....</b>	<b>115</b>
3.1. <i>Principe de la double attaque .....</i>	<i>115</i>
3.2. <i>Détermination du plan de glissement.....</i>	<i>117</i>
3.3. <i>Localisation des empreintes.....</i>	<i>118</i>
<b>4. Influence de la structure de dislocations préexistantes sur le pop-in.....</b>	<b>119</b>
4.1. <i>Observations préliminaires.....</i>	<i>119</i>
4.2. <i>Cas de contacts réversibles.....</i>	<i>121</i>
4.3. <i>Cas des empreintes plastiques .....</i>	<i>122</i>
4.3.1. <i>Premier cas : empreinte 108 .....</i>	<i>122</i>
4.3.2. <i>Deuxième cas : empreinte 104 .....</i>	<i>128</i>
4.3.3. <i>Troisième cas : empreinte 64.....</i>	<i>132</i>
4.3.4. <i>Quatrième cas : empreinte 62.....</i>	<i>135</i>
4.3.5. <i>Cinquième cas : empreinte 117 .....</i>	<i>139</i>
4.3.6. <i>Sixième cas : empreinte 120.....</i>	<i>142</i>
<b>Références bibliographiques .....</b>	<b>147</b>

# Chapitre 4

## Influence des dislocations préexistantes

### Introduction

Le phénomène de pop-in traduit un accroissement brutal de la déformation, indéniablement associé à un phénomène de nucléation ou de multiplication de dislocations en avalanche. L'argument couramment invoqué dans la littérature pour expliquer ce phénomène, est que les volumes soumis à la déformation imposée par l'indenteur sont suffisamment faibles pour être exempts de dislocations préexistantes : le pop-in est alors vu comme un phénomène de nucléation homogène de dislocations. Cette hypothèse est souvent étayée par les très fortes contraintes, de l'ordre de la limite élastique théorique, rencontrées sous l'indenteur au moment du pop-in.

Au cours du chapitre précédant, grâce au développement d'une nouvelle technique de préparation, nous avons pu nous intéresser à l'étape de déformation précédant le pop-in, qui avait fait l'objet de très peu d'études jusque là. Il a été vu que les cycles charge-décharge réversibles observés en nanoindentation avant le pop-in ne traduisaient pas nécessairement un comportement élastique, et qu'une activité de dislocations était possible avant le pop-in. Ces observations posent ainsi la question de la nature homogène ou hétérogène de la nucléation de dislocations associée au pop-in. Par ailleurs, nous avons également montré que les défauts introduits par polissage conduisaient à une diminution de la charge d'apparition du pop-in, voir à l'absence même de pop-in avec une déformation immédiatement élasto-plastique. Les défauts présents dans le cristal semblent ainsi favoriser la nucléation de dislocations en avalanche, et amènent plutôt à considérer un mécanisme de nucléation hétérogène.

Différentes études se sont intéressées à l'influence des dislocations préexistantes sur le pop-in. Zbib et Bahr [1] ont introduit des dislocations par microindentation à fortes charges : en effectuant des empreintes de nanoindentation à plus ou moins grande distance de

l’empreinte de microindentation, ils montrent que la charge du pop-in est abaissée à mesure que l’on s’approche de la zone plastifiée induite par microindentation. Cette méthode présente cependant l’inconvénient d’induire des structures de dislocations préexistantes complexes et mal contrôlées. Par ailleurs, les déformations de surface occasionnées autour des empreintes de microindentation rendent l’analyse des essais de nanoindentation difficile.

Nous nous proposons dans ce chapitre de nous intéresser à la problématique de la nucléation hétérogène et de l’effet des dislocations préexistantes, en introduisant des dislocations de façon contrôlée avant indentation et en identifiant ces dislocations autour de chaque zone indentée. L’objectif est alors de déterminer la façon dont ces dislocations préexistantes modifient d’une part les processus de nucléation sous indentation (activation de sources ou pas) et d’autre part la structure des dislocations générées pendant le pop-in. Dans une première partie, nous montrerons, en nous appuyant sur les données bibliographiques, comment le clivage peut être utilisé pour introduire de façon contrôlée des dislocations dans l’échantillon. Une deuxième partie sera consacrée à la réponse sous indentation d’un échantillon avec des dislocations préexistantes. L’étude fine des interactions entre les dislocations préexistantes et celles nucléées par indentation sera présentée dans une troisième partie.

### **1. Génération de dislocations par clivage**

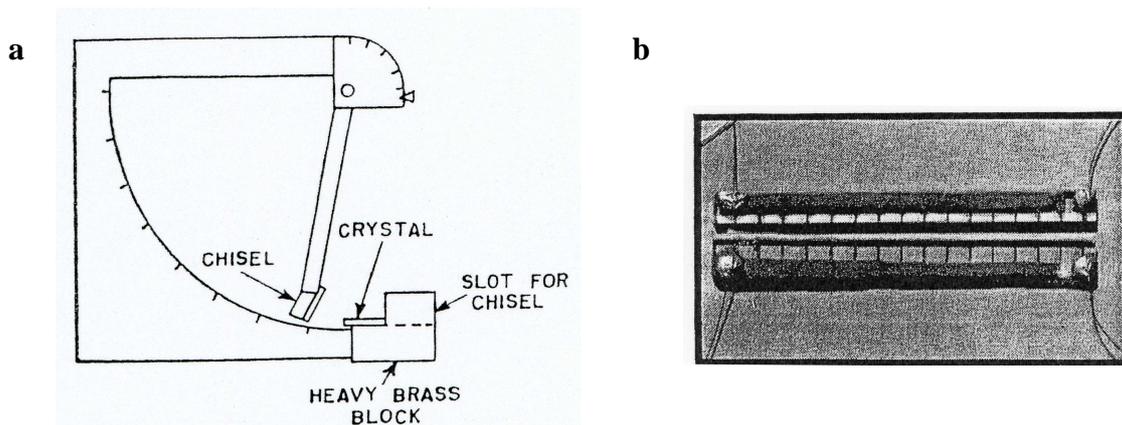
Nous rappellerons dans cette partie les processus de clivage et nous détaillerons plus particulièrement les points expliquant dans quelle mesure le clivage est une technique pertinente pour introduire des dislocations de façon contrôlée [2-9].

Le clivage est une des techniques les plus simples et les plus rapides à mettre en œuvre. Elle consiste à initier une fissure dans un plan cristallographique, en frappant le cristal à l’aide d’un marteau et d’une lame de rasoir. D’autres techniques, que nous ne présenterons pas ici, initient une fissure par choc thermique ou décollement. Le front de clivage se propage le long de l’échantillon à une vitesse qui dépend de la force de l’impact initial. L’échantillon est scindé en deux parties, ainsi, deux nouvelles surfaces planes et n’ayant jamais été exposées à l’air sont créées. Cette technique, quoique très simple, nécessite une certaine habileté, et peut induire de grandes hétérogénéités d’un clivage à l’autre.

### ***Propagation d'un front de fissure***

Gilman *et al.* [2, 3] se sont intéressés à la distribution des dislocations après le passage du front de fissure. Des cristaux de fluorure de lithium (LiF) ont été clivés mécaniquement dans leur épaisseur puis attaqués chimiquement afin de révéler la position des points d'émergence des dislocations. Comme MgO, LiF est un cristal ionique, et les deux composés présentent la même structure cristallographique.

Ils ont développé une technique originale permettant de contrôler la force de l'impact initial et donc la vitesse de propagation du front de fissure dans des cristaux de LiF. Une lame de rasoir est fixée à l'extrémité d'un pendule, dont la masse et la hauteur sont ajustables (figure 4-1.a). Des fils conducteurs régulièrement espacés sur la surface de l'échantillon sont coupés au fur et à mesure de la propagation de la fissure. La valeur de la résistance mesurée aux bornes des fils évolue par sauts à chaque rupture d'un des fils (figure 4-1.b). Ce montage conduit à des vitesses de propagation du front de fissure reproductibles à 10% près.



**Figure 4-1. : (a) Pendule de clivage, (b) circuit électrique sur échantillon de LiF, Gilman *et al.* (1958) [3].**

La majorité de l'énergie cinétique du pendule sert à initier la fissure, c'est-à-dire qu'il existe une énergie critique d'impact en dessous de laquelle aucune fissure ne se propage. Ces auteurs rapportent également trois vitesses critiques :

- la vitesse limite maximale de propagation de la fissure ( $2 \cdot 10^5 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$  dans LiF), égale au tiers de la vitesse du son
- la vitesse critique de nucléation de dislocations, en dessous de laquelle il commence à y avoir nucléation de dislocations ( $6 \cdot 10^3 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$  dans LiF)
- la vitesse instable de propagation en dessous de laquelle la propagation n'est pas uniforme mais avec des phases d'accélération et de ralentissement ( $3 \cdot 10^3 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$  dans LiF)

D'autres mesures sur les effets de l'angle de la lame, la taille ainsi que l'état précontraint de l'échantillon ont été testés. Il en ressort que pour obtenir une vitesse de propagation élevée il est préférable d'utiliser une lame assez fine, un échantillon peu large et peu long, plutôt épais et pauvre en dislocations préexistantes.

Les observations de Gilman *et al.* [3] ont montré que la densité de dislocations diminuait avec la vitesse de propagation du front de fissure. Le modèle proposé est que le champ de contrainte en tête de fissure (à quelques dizaines d'angströms) a suffisamment de temps à basse vitesse pour former des boucles de dislocations qui se retrouvent sectionnées lors du passage de la fissure. C'est-à-dire qu'un « temps d'incubation » est nécessaire à la dislocation pour qu'elle croisse suffisamment afin d'atteindre une forme stable pour ne pas être attirée par les forces images une fois la surface créée.

Le processus de clivage est lui-même affecté par la nucléation de boucles de dislocation. Le travail nécessaire à la formation des dislocations provient de l'énergie cinétique du front de fissure ; donc, au fur et à mesure de la propagation et de la nucléation, le front perd en vitesse et ralentit, augmentant la densité de dislocations qu'il laisse derrière lui, et ainsi de suite.

### Nucléation de dislocations

Lors du clivage les dislocations sont produites grâce à un état de contrainte dans lequel la contrainte principale est perpendiculaire au plan de clivage (figure 4-2.b). Ainsi seules sont nucléées les dislocations permettant de relaxer cette contrainte, dans MgO et LiF ce sont les dislocations glissant dans les plans  $\{110\}_{45}$  (figure 4-2.d).

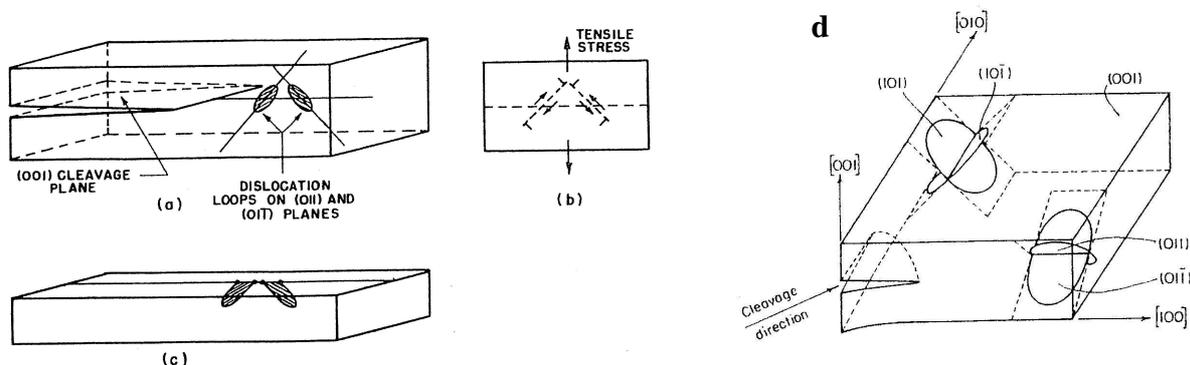


Figure 4-2. : (a) Nucléation de boucles de dislocations en avant du front de fissure, (b) contrainte associée au front de fissure, (c) demi-boucles restantes après clivage, Gilman (1957) [2], (d) représentation schématique de la nucléation de dislocations en avant du front de clivage, Robbins *et al.* (1966) [4].

Le fait que les boucles soient sectionnées par le front de fissure (figure 4-1.a), conduit à une structure de demi-boucles de dislocations émergées : il n'y a pas de boucles enterrées (figure 4-2.c). De part et d'autre du clivage les 4 extrémités des deux demi-boucles correspondent deux à deux. Entre deux piqûres d'une même boucle aucune autre piqûre n'est observée, ce qui tend à montrer que les dislocations ne se sont pas multipliées par une source de type Frank-Read.

### ***Principe de la double attaque***

Afin de comprendre l'influence des dislocations préexistantes sur le comportement mécanique sous indentation nous réaliserons une expérience de double attaque, inspirée des travaux de Gilman [2]. Gilman a réalisé une première attaque sur un échantillon fraîchement clivé, puis l'échantillon a été soumis à une contrainte uniaxiale ( $\sim 1\text{kg/mm}^2$ ) et enfin réattaqué. Les anciennes et les nouvelles positions des dislocations sont alors observables en optique et totalement différenciables (figure 4-3.). La position des dislocations n'ayant pas bougé est indiquée par de larges piqûres pointues. La nouvelle position des dislocations qui se sont déplacées est indiquée par une petite piqûre pointue et leur ancienne position par une large piqûre à fond plat. Cet aspect est mis à profit pour déterminer le chemin parcouru par les dislocations sous contrainte. Sur la figure 4-3. Gilman a associé la position 1a et 1b à la même dislocation qui s'est déplacée de a à b (idem pour 2). Le mouvement de ces dislocations sous contrainte montre qu'elles sont mobiles et qu'elles peuvent participer aux propriétés mécaniques de l'échantillon.

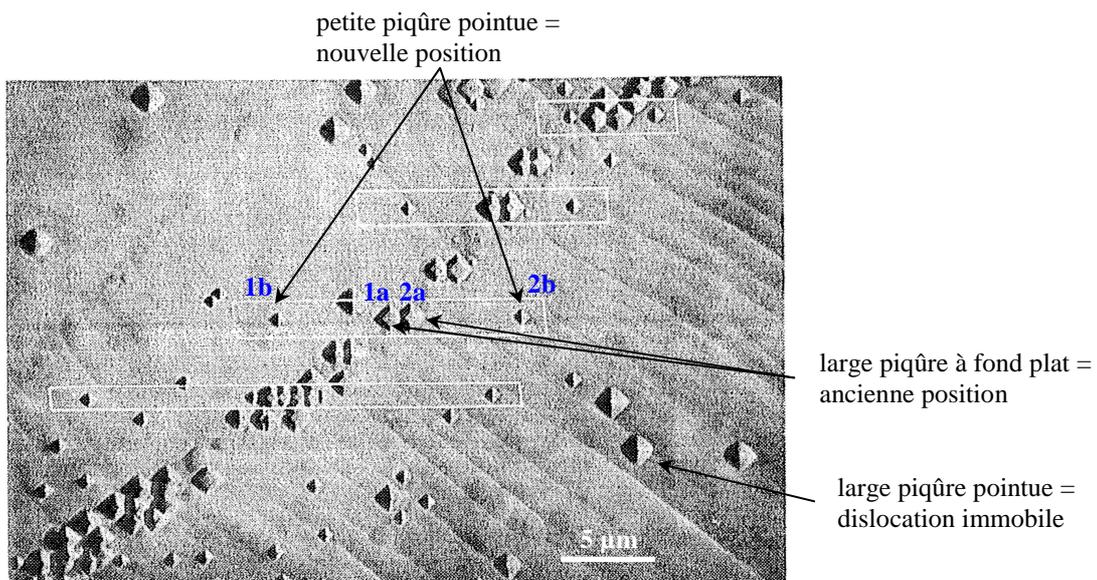


Figure 4-3. : Expansion des boucles de dislocations sous une contrainte uniaxiale, observations optiques dans LiF, d'après Gilman (1957) [2].

### ***Structures formées en surface***

Selon le niveau d'observation, le relief créé par le clivage revêt des orientations très différentes [2-4]:

- à l'œil nu : grandes rivières de clivages qui épousent le front de fissure (radiales)
- en optique : grandes marches perpendiculaires au front de clivage
- échelle micrométrique : marches parallèles au front de clivage
- échelle nanométrique : petites lignes dans les directions cristallographiques

Robins et al. [4] ont étudié les structures de dislocations dans MgO, en révélant les points d'émergence des dislocations par une technique de décoration. Leur technique, plus fine que celle de Gilman, permet une observation à petite échelle et ainsi de s'intéresser aux marches monoatomiques. Leurs observations, par microscope électronique, ont révélé deux types principaux de lignes. Le premier type correspond aux lignes parfaitement droites et dans les directions de glissement attendues de MgO. Ce sont alors des lignes de glissement correspondant à l'émergence et à la propagation des dislocations. Les lignes du second type suivent la direction de propagation du front de fissure, et ne sont donc pas nécessairement dans les directions cristallographiques du cristal ni rectilignes, on les appelle alors marches de clivage. Dans les faits, le terme « marche de clivage » est appliqué à toutes les marches quelles que soient leurs natures et leurs origines.

Burns et Webb [6, 7] ont montré dans LiF, que lors de la propagation de la fissure une extrémité de la dislocation est coupée très vite et l'autre extrémité est poussée par le champ de contrainte en avant du front de fissure. Ce phénomène conduit à la formation de demi-boucles de dislocations présentant une très grande extension latérale (jusqu'à un centimètre) et une faible profondeur.

### ***Synthèse :***

Il est possible de contrôler la densité de dislocations introduite par clivage en maîtrisant la vitesse de propagation du front de fissure, c'est-à-dire la force de l'impact initial. De plus le clivage conduit à une structure bien définie : des dislocations dans les systèmes  $\langle 110 \rangle \{ 110 \}_{45}$  très étendues latéralement et très peu en profondeur.

## 2. Réponse mécanique sous indentation d'échantillons clivés

### 2.1. Topographie de surface

La figure 4-4. présente deux images AFM de topographie de surfaces clivées de MgO. Dans le cas de la figure 4-4.a le front de clivage s'est propagé rapidement, on attend donc une faible densité de dislocations. La surface présente un réseau ordonné de marches parallèles de faible hauteur (1 à 2 nm). *A contrario*, sur la figure 4-4.b le front de fissure s'est propagé lentement, une densité de dislocations plus importante est attendue. La surface montre un quadrillage de marche dont les hauteurs sont très hétérogènes (de 1 nm jusqu'à 10 nm).

L'essai d'indentation matérialisé par le cercle de contact à chargement maximum (50 mN) figure 4-4.a montre la présence de marches sous le contact. Pourtant le pop-in se

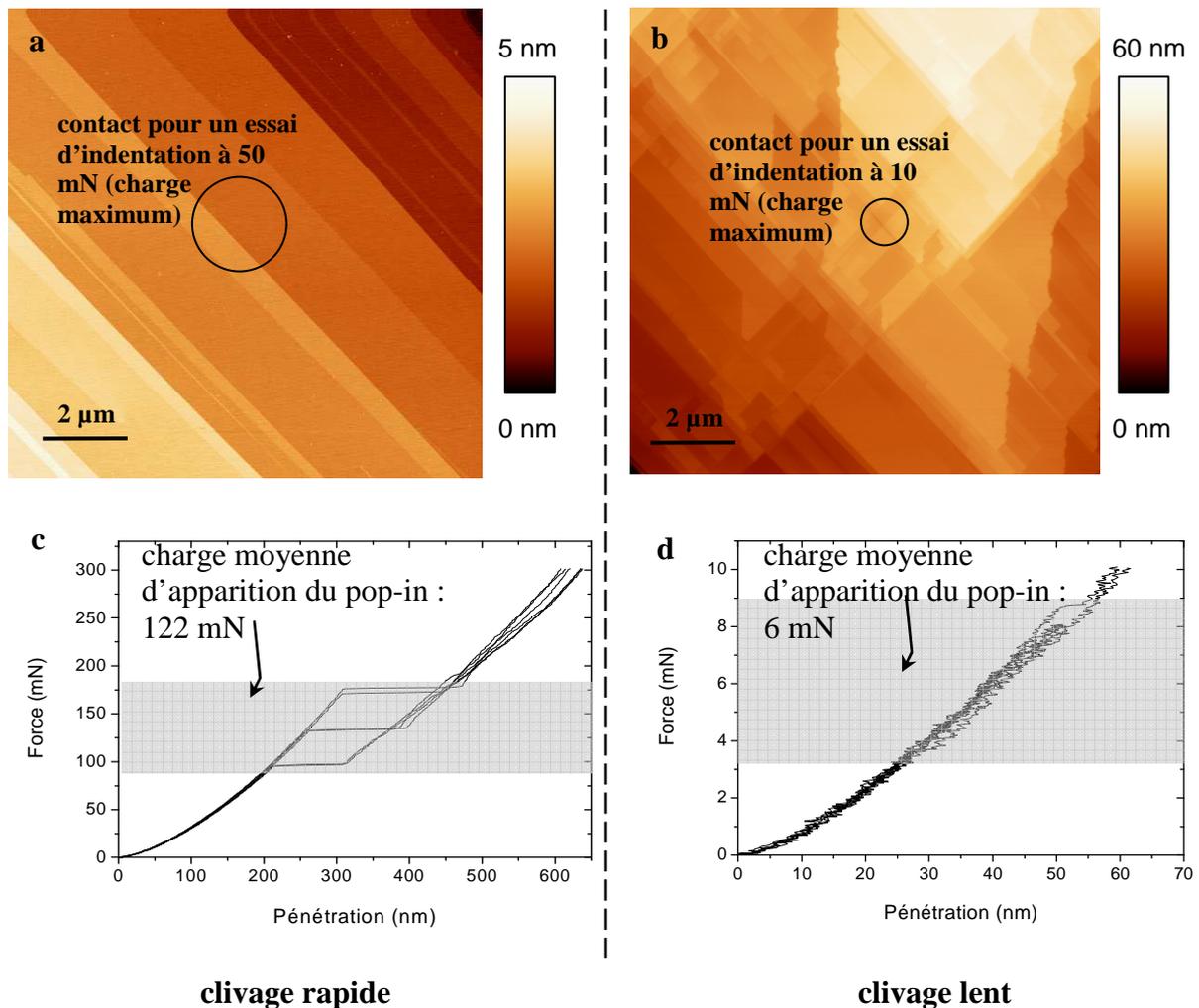


Figure 4-4. : (a) et (b) Images AFM de topographie de surface après clivage, (c) et (d) échantillon représentatif du comportement mécanique sous indentation, (a) et (c) clivage rapide, (b) et (d) clivage lent.

déclenche pour des charges d'un peu plus d'une centaine de millinewtons en moyenne. La figure 4-4.c représente un échantillonnage des courbes typiques d'indentation obtenues sur cette surface. Elle montre un pop-in unique apparaissant à charge intermédiaire. De même, sur la figure 4-4.b le cercle de contact à chargement maximal a été tracé (10 mN). La figure 4-4.d montre que le pop-in sur ce type de surface apparaît pour des charges d'environ 6 mN, soit beaucoup plus faibles que sur un échantillon dont le front de clivage s'est propagé rapidement. Les différences de comportement sous indentation observées pour les deux types d'échantillons peuvent provenir à la fois de la topographie de surface (marches) et de la densité de dislocations préexistantes introduites par la propagation du front de fissure.

### 2.2. Densité de dislocations préexistantes

Un échantillon clivé identique à celui présenté figure 4-4.b a été poli à différentes reprises. Les différents niveaux de polissage ont pour objectifs de retirer progressivement les dislocations introduites par clivage afin de faire baisser la densité de dislocations et de tester la réponse mécanique de l'échantillon en fonction de cette dernière. Les durées de polissage sont reportées sur la figure 4-5. A chaque niveau de polissage un grand nombre d'essais d'indentation ont été réalisés sur la surface qui, par la suite, est attaquée afin de révéler la position des dislocations.

La figure 4-5.a est obtenue après 5 minutes de polissage et attaque chimique d'une surface similaire à la figure 4-4.a. Une multitude de piqûres est présente à la surface de l'échantillon, ce qui traduit la présence de dislocations, avec une densité de  $12 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$ . La figure 4-5.b est un échantillonnage des courbes d'indentation obtenues sur cette surface. Le pop-in apparaît pour des charges relativement faibles (5 mN environ) avec une dispersion de 4 mN autour de cette valeur moyenne.

La figure 4-5.c a été obtenue après un polissage de 10 minutes de la surface précédente. Une diminution de la densité de dislocations est observée, elle est maintenant de  $4,8 \cdot 10^6 \cdot \text{cm}^{-2}$ . Cette diminution de la densité de boucles de dislocations s'accompagne d'une augmentation de la charge moyenne d'apparition du pop-in à 35 mN, avec une dispersion de 70 mN (figure 4-5.d).

L'image AFM 4-5.e a été réalisée après un polissage de 5 minutes de la surface précédente et attaque chimique. La densité de dislocations est de  $3 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$ . La figure 4-5.f montre une charge moyenne d'apparition du pop-in de 48 mN avec une dispersion de 60 mN.

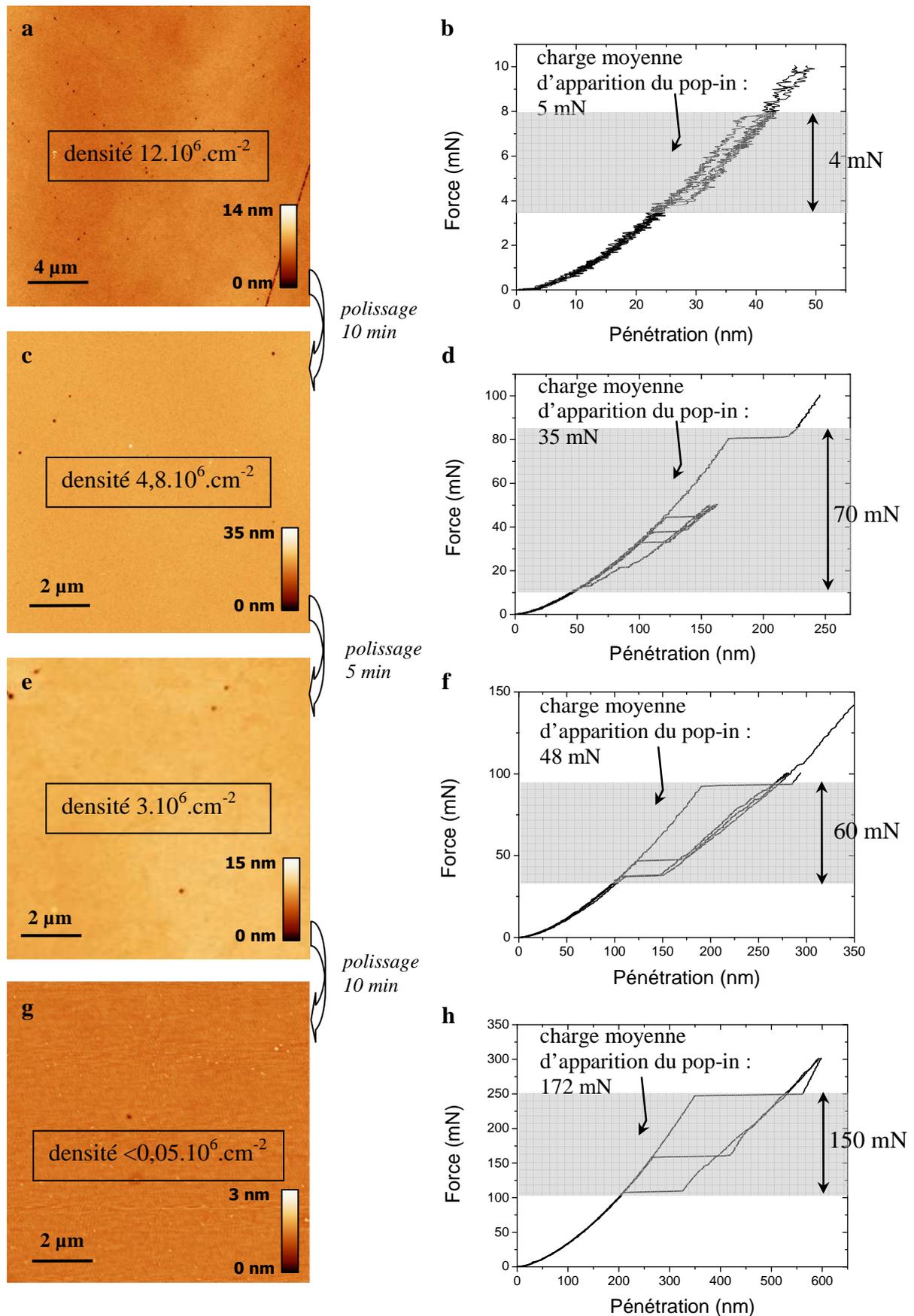


Figure 4-5. : Evolution de la charge moyenne d'apparition du pop-in en fonction de la densité de dislocation préexistante, nombre de courbes sur lesquelles a été calculée la moyenne du pop-in (b) 12, (d) 34, (f) 17, (h) 3.

Après un nouveau polissage de 10 minutes (figure 4-5.g), la densité de dislocations est inférieure à  $0,05 \cdot 10^6 \text{ cm}^{-2}$ . Les essais d'indentation sur cette surface présentent presque tous un comportement réversible à forte charge (300 mN). Sur les 25 essais de cette série, seuls 3 présentent un pop-in. A partir de ces trois courbes, le niveau moyen d'apparition du pop-in est de 172 mN avec une dispersion assez importante de 150 mN (limite basse).

Dans chacun des cas testés, si l'indenteur est retiré avant l'apparition du pop-in alors charge et décharge sont superposées. La première conclusion est que le niveau de pop-in est clairement affecté par la concentration en dislocations initiales, plus la densité baisse, plus le niveau moyen d'apparition du pop-in augmente. Cette tendance est représentée graphiquement sur la figure 4-6. L'augmentation significative de la charge moyenne du pop-in avec la diminution de la densité de dislocations est mise en évidence. Le point rouge sur le graphique correspond aux comportements réversibles à fortes charges observés au chapitre précédent. La quasi-totalité des essais d'indentation ( $> 95\%$ ) présentent un comportement réversible jusqu'à au moins 300 mN (limite de l'appareil), d'où la flèche indiquant que le niveau de pop-in est repoussé au-delà des 300 mN, mais insondable avec notre nanoindenteur. Deuxièmement, la dispersion dans la charge d'apparition du pop-in augmente au fur et à mesure que diminue la densité de dislocations préexistantes. Cela traduit la probabilité de présence d'une dislocation sous le contact à chaque essai d'indentation. Si une dislocation est présente sous le contact ou au voisinage alors un pop-in peut apparaître à faible charge. Si en revanche aucune dislocation n'est présente, alors la charge réversible va pouvoir se

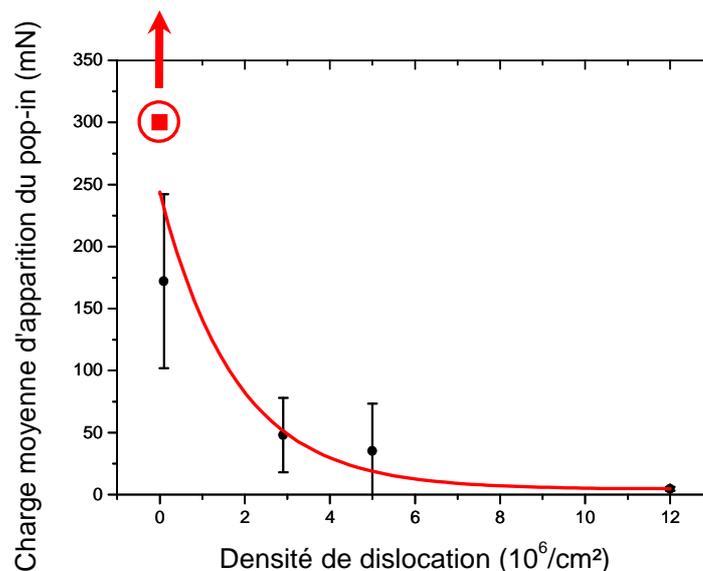


Figure 4-6. : Evolution de la charge moyenne d'apparition du pop-in en fonction de la densité de dislocations préexistantes, à densité nulle la charge d'apparition du pop-in est repoussée au-delà de 300 mN.

poursuivre, jusqu'à ce que l'aire de contact devienne suffisamment grande pour approcher une dislocation préexistante. Et si la densité est suffisamment faible, même à charge maximale, aucune dislocation n'est présente sous le contact et la charge est réversible.

La diminution très rapide du nombre de piqûres avec les polissages successifs indique que la densité de dislocations décroît très rapidement avec la profondeur décapée. Cela apporte une information supplémentaire sur les dislocations introduites par le clivage : elles sont très peu étendues en profondeur, de l'ordre de 2  $\mu\text{m}$ .

Cette première étude statistique montre l'étroite relation qu'il existe entre la présence de dislocations préexistantes et le comportement sous indentation, notamment sur la charge d'apparition du pop-in. Cependant, même si il est question ici de nucléation hétérogène, elle peut être due à l'activation de sources, à la contrainte locale des dislocations préexistantes ou autres.

### **3. Protocole de double attaque pour étudier l'influence des dislocations préexistantes sur le pop-in**

Précédemment nous avons vu que la densité de dislocations préexistantes modifie le niveau de pop-in. Dans cette partie nous établissons un protocole expérimental qui nous permet d'étudier en quoi les premières dislocations nucléées au moment du pop-in dépendent des dislocations préexistantes.

#### **3.1. Principe de la double attaque**

La figure 4-7. récapitule les étapes du protocole. Un échantillon de MgO est clivé dans un plan (001). Afin d'éliminer la topographie de surface due aux marches de clivage, l'échantillon est poli quelques minutes par CMP. Puis l'échantillon est attaqué une première fois (première attaque) pour révéler les points d'émergence des dislocations introduites par clivage. L'échantillon est ensuite indenté (SPH1), et les zones indentées observées par AFM. Sur ces images on distingue la position des dislocations préexistantes avant indentation ainsi que les lignes de glissement dues aux dislocations nucléées lors de l'essai.

L'échantillon est attaqué une seconde fois (deuxième attaque) sans repolissage. Les mêmes zones sont à nouveau observées par AFM. Trois informations sont visibles sur les images : les positions initiales des dislocations préexistantes (piqûres de première attaque), les

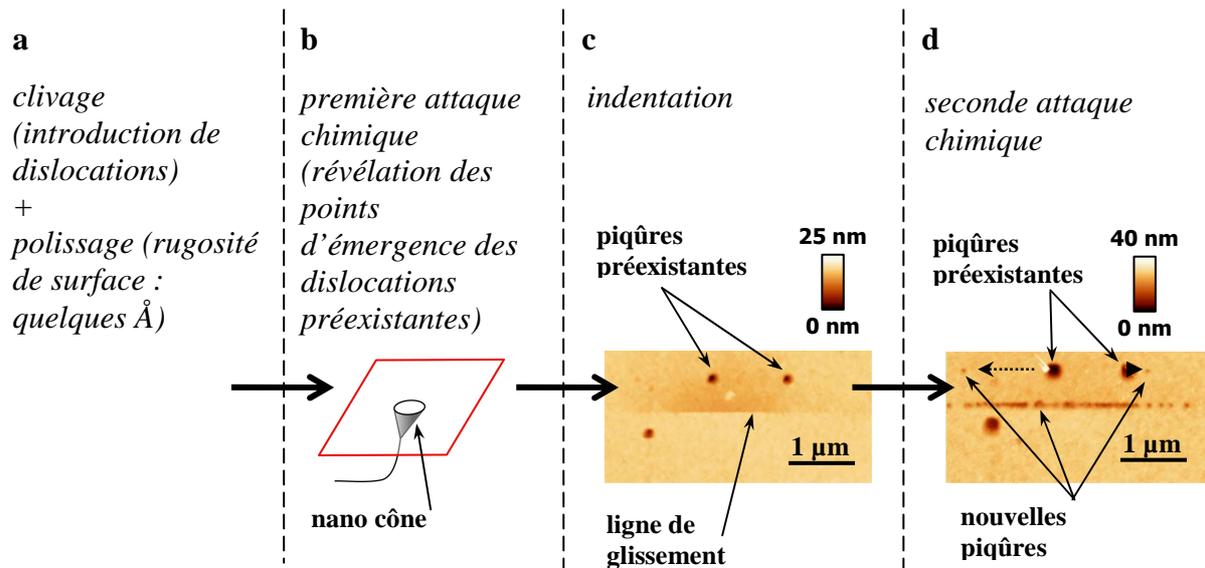


Figure 4-7. : Protocole de la double attaque, (a) introduction de dislocations puis élimination des marches de clivage, (b) première attaque chimique, (c) indentation et observations AFM, (d) seconde attaque chimique et observations AFM.

éventuelles nouvelles positions des dislocations préexistantes qui ont bougé (piqûres de deuxième attaque) et les positions des dislocations nucléées par indentation.

La première attaque a pour conséquence de passiver la surface et de la rendre moins réactive à la seconde attaque. Les piqûres de seconde attaque sont donc plus petites que les premières ce qui permet de discerner sans ambiguïté les positions initiales des positions finales (tableau 4-1.).

L'échantillon a ensuite été tomographié par la technique polissage-attaque-observation, afin de suivre l'évolution de la structure de dislocations en volume.

Attaque chimique	Configuration	Taille des piqûres	
		Largeur (nm)	Profondeur (nm)
Première attaque	Position initiale	230	20
	Nouvelle position	130	7
Deuxième attaque	Ancienne position avec dislocation	310	45
	Ancienne position sans dislocation	330	30

Tableau 4-1. : Taille des piqûres en fonction de la configuration des dislocations.

### 3.2. Détermination du plan de glissement

La très grande précision de l'attaque chimique permet d'identifier l'orientation des plans de glissement contenant les dislocations considérées. Nous avons vu dans le chapitre 2

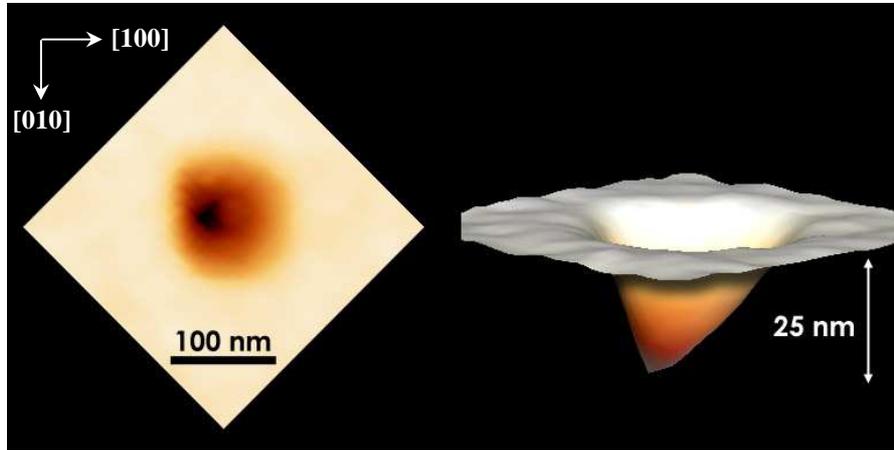


Figure 4-8. : Piqûre d'attaque correspondant à une dislocation dans un plan de type  $\{101\}_{45}$ . Le fond de la piqure conique pointe dans la direction de ligne de la dislocation.

que l'attaque chimique se concentre le long de la ligne de dislocation et, que dans MgO, cela conduit à la formation d'une piqûre conique. La figure 4-8. est une image AFM d'une piqûre d'attaque. Les nano piqûres prennent une géométrie particulière en fonction de l'orientation de la ligne de la dislocation par rapport à la surface : la piqûre conique pointe dans la direction de la ligne de dislocation. La pointe du cône, plus sombre, est bien visible. La nature des plans de glissement est déterminée à partir de l'image de topographie et est représentée avec la convention présentée figure 4-9.

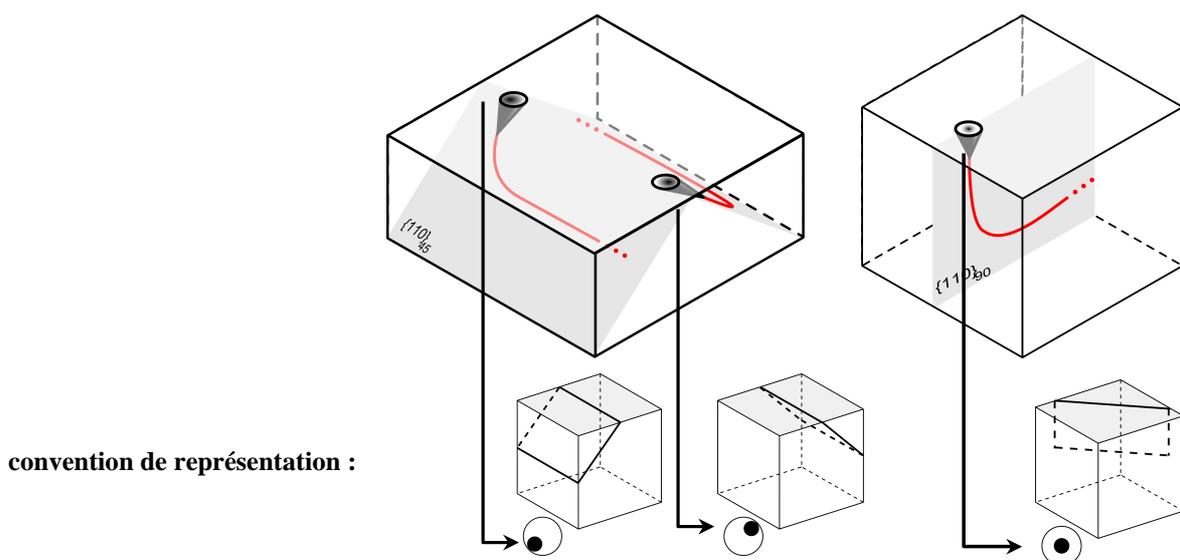


Figure 4-9. : Morphologie de la piqûre d'attaque en fonction de l'orientation de la ligne par rapport à la surface, seuls deux des quatre types de plans  $\{110\}_{45}$  sont représentés.

### 3.3. Localisation des empreintes

Dans le réseau régulier, chaque empreinte (plastique ou non) est identifiée afin de l'associer à la courbe charge-décharge correspondante, et la surface de contact est localisée. La figure 4-10. est un extrait d'une image à grande échelle ( $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ ) d'un réseau d'indentations. La grille superposée à l'image AFM symbolise le réseau d'indentations dont les nœuds correspondent à un point de contact entre l'indenteur et la surface. La position précise de l'axe d'indentation est déterminée grâce aux positions relatives des empreintes et grâce à une petite trace de contamination en surface (figure 4-10.). La grille d'indentation est légèrement distordue, il s'agit d'un problème de parallélisme entre le plan de référence de l'indenteur et le plan de l'échantillon ce qui donne une légère déformation au réseau d'indentations.

Par la suite, le cercle de contact sera superposé à l'image AFM, à l'échelle, dans plusieurs cas : au moment du (ou des) pop-in(s) (s'il y en a) et à chargement maximal. Le rayon de contact est déterminé dans l'approximation d'un contact élastique (voir chapitre 2). Dans le cas où la courbe présente un pop-in, le rayon de contact calculé à chargement maximum est donc une approximation qui se justifie du fait des faibles déformations qui seront étudiées ici.

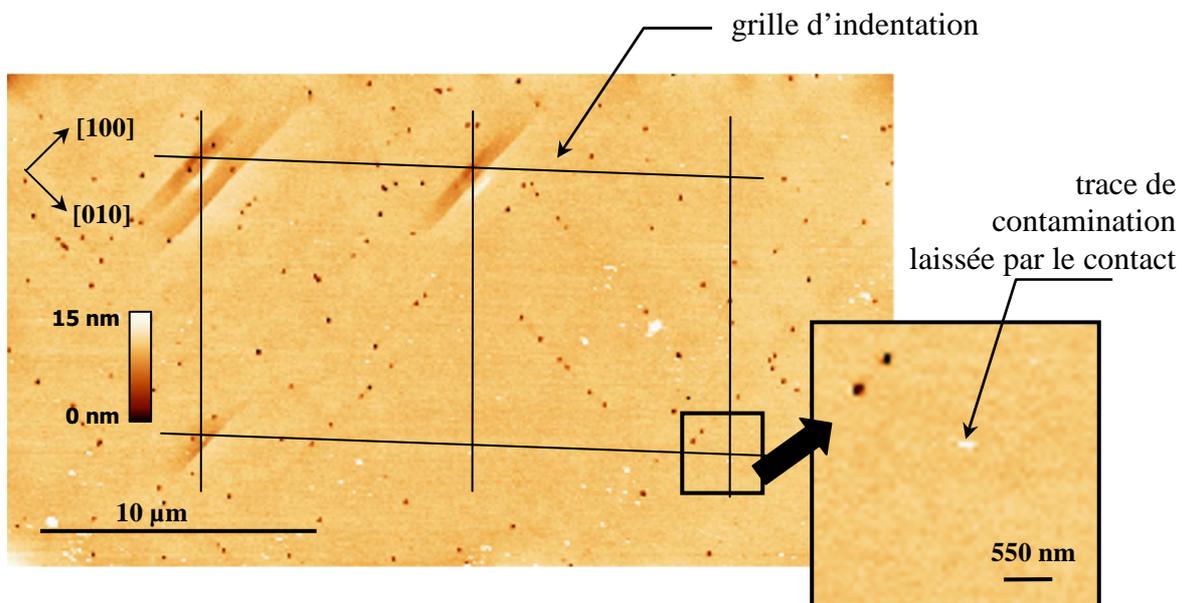


Figure 4-10. : Réseau périodique d'indentations, les nœuds de la grille correspondent au centre d'indentation de chaque essai. Dans le cas de certaines indentations, une trace de contamination est laissée par le contact indenteur-surface.

## 4. Influence de la structure de dislocations préexistantes sur le pop-in

### 4.1. Observations préliminaires

#### *Courbes avec et sans pop-in*

La figure 4-11. est le détail d'une image AFM à grande échelle ( $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ ) qui présente une partie du réseau d'indentations. De nombreuses piqûres sont visibles en surface, elles correspondent aux points d'émergence des dislocations introduites par le clivage, telles

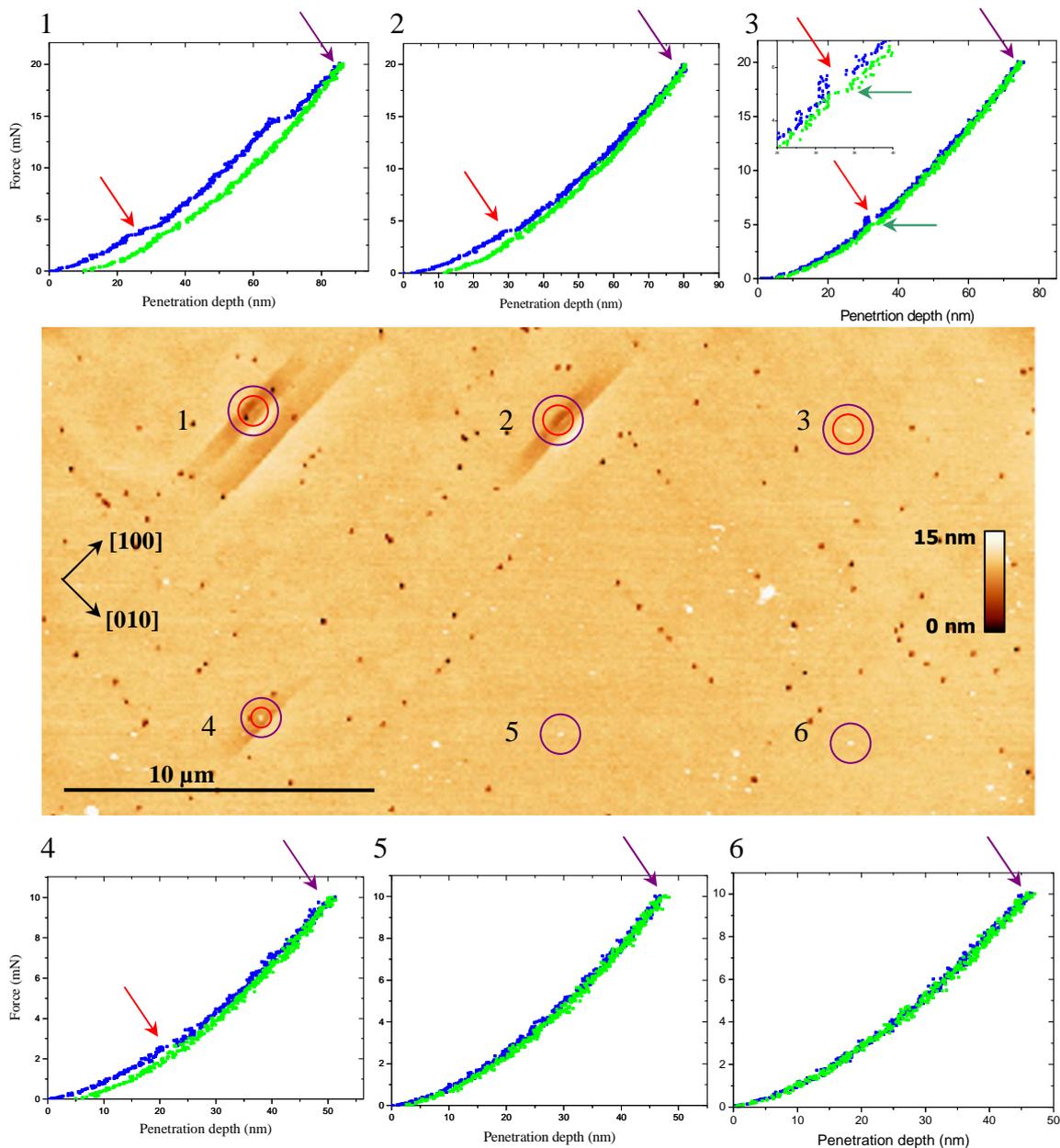


Figure 4-11. : Détail d'une image AFM à grande échelle ( $100 \times 100 \mu\text{m}^2$ ) présentant différentes zones après indentations, les cercles de contact représentés sur l'image ont été calculés aux instants indiqués par des flèches sur la courbe d'indentation associée.

qu'elles étaient avant l'essai d'indentation. Les courbes d'indentation 1, 2 et 4 montrent des comportements plastiques avec l'apparition d'un pop-in à la charge. Les zones indentées correspondantes présentent des lignes de glissement. Les courbes d'indentation 5 et 6 montrent des comportements réversibles, et l'observation des zones indentées ne révèle aucune ligne de glissement. Le cas de l'essai 3 est plus particulier. Un pop-in est observé à la charge (flèche bleue) et un pop-out (brusque diminution de la pénétration, flèche verte) à la décharge, en fin de cycle la profondeur résiduelle est nulle. La zone indentée correspondante ne montre aucune trace de déformation résiduelle. Ce type de comportement est analogue à celui présenté au chapitre 3-3.1.1. pour lequel la conclusion était que les dislocations ont été nucléées à la charge et se sont annihilées à la décharge. Cette nouvelle observation étaye l'hypothèse formulée au chapitre 3 où la déformation introduite au moment du pop-in obtenu à très faible charge s'est totalement résorbée à la décharge.

### ***Dislocations préexistantes au voisinage du cercle de contact***

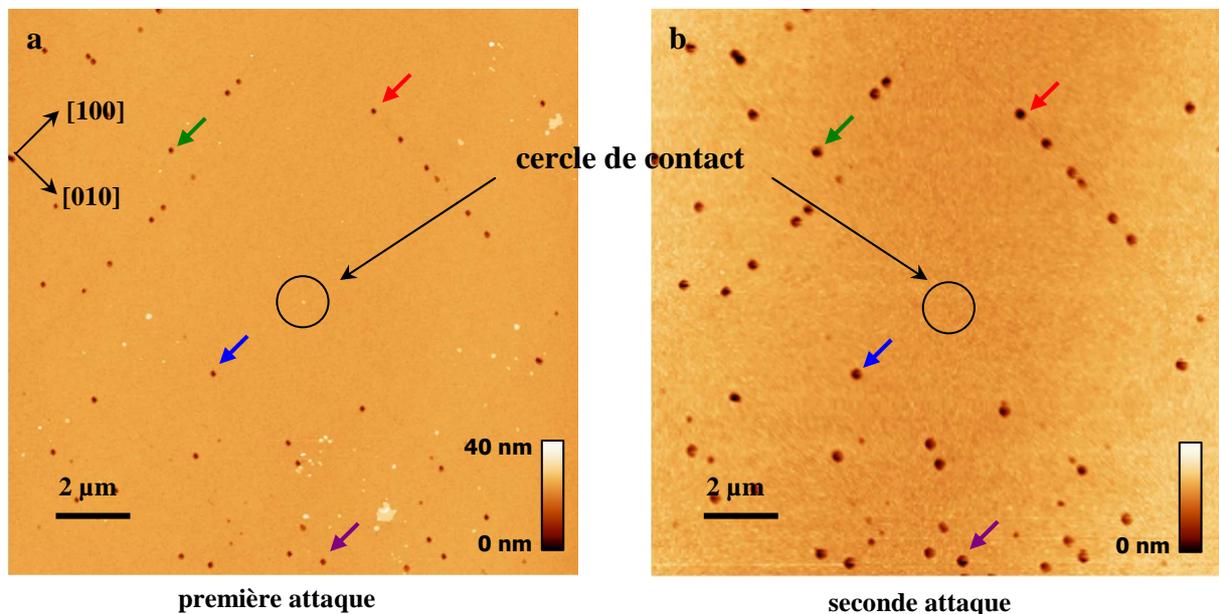
Les cercles de contact, calculés dans l'approximation d'un contact élastique sphère-plan au moment du pop-in et à chargement maximum, sont matérialisés sur l'image AFM. Les points correspondant sont pointés sur les courbes d'indentation, en utilisant le rouge pour le pop-in et le violet pour le chargement maximum. Le contact des essais 1, 2 et 4 a eu lieu sur une zone présentant des dislocations préexistantes. Ces essais présentent un pop-in ainsi qu'un cycle d'hystérésis. La zone de contact des essais 5 et 6 ne présente aucune dislocation préexistante. Les courbes associées ont un comportement réversible : charge et décharge sont superposées. L'observation par AFM confirme l'absence de ligne de glissement après indentation.

Dans la gamme de charges utilisée, la présence de dislocations sous le contact abaisse la charge de déclenchement du pop-in. De même, les zones d'indentations ne présentant pas de dislocations préexistantes montrent un comportement réversible jusqu'à quelques millinewtons. Ces observations corroborent l'analyse statistique faite au paragraphe précédent et au chapitre 3, où il avait été vu que la densité de dislocations ou de défauts favorisait l'apparition d'un pop-in.

L'étude des essais individuels a confirmé ce qui avait été envisagé avec l'étude statistique, c'est-à-dire que la présence de dislocations préexistantes sous le contact favorise l'apparition d'un pop-in à faible charge. Il s'agit maintenant de déterminer comment la structure de dislocations préexistantes aide à la nucléation de dislocations pendant le pop-in, et comment elle influe sur les structures de dislocations générées.

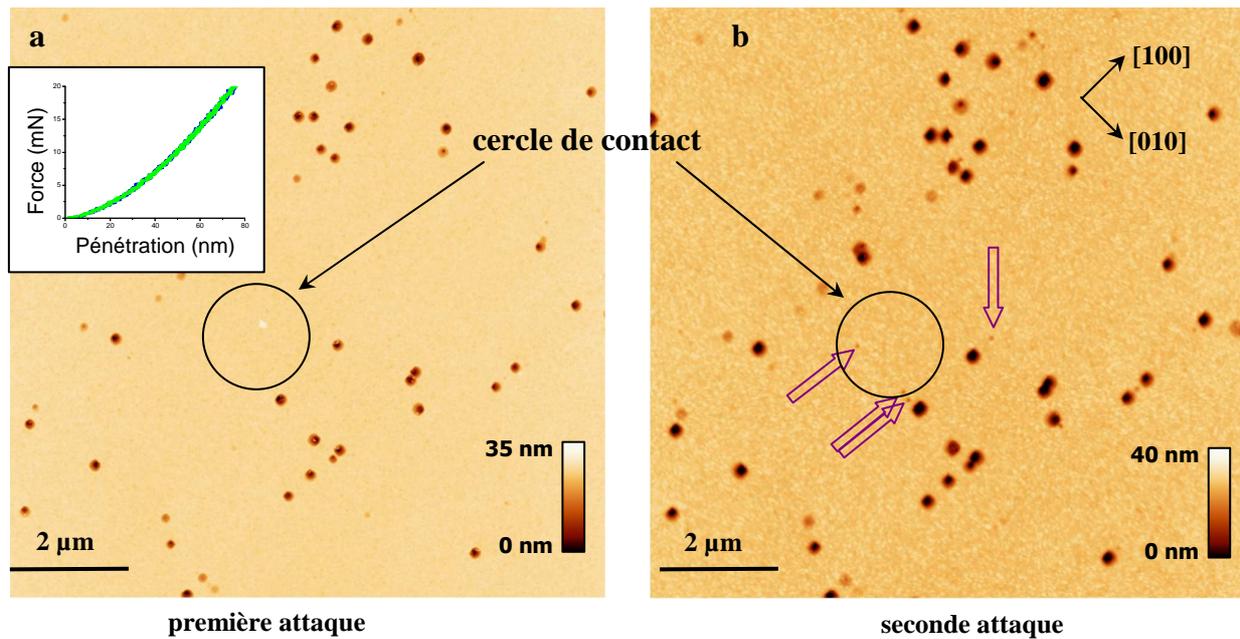
## 4.2. Cas de contacts réversibles

Intéressons nous plus en détail aux observations AFM des zones indentées dont la courbe d'indentation présente un comportement réversible. La figure 4-12., correspondant à l'essai 5 figure 4-11., montre la même zone après la première attaque chimique et indentation (figure 4-12.a) et après la deuxième attaque (figure 4-12.b). Le cercle de contact, calculé à chargement maximum à partir de la courbe d'indentation, a été représenté sur les deux figures. Le contact se situe dans une zone ne présentant pas de dislocations préexistantes. La plus proche piqûre est située à 3  $\mu\text{m}$  du cercle de contact. Les flèches sur la figure 4-12. indiquent quelques piqûres particulières, dont la position n'a pas changé entre les deux images. Cela montre qu'il n'y a pas eu de mouvement de dislocations préexistantes au cours de l'essai d'indentation.



**Figure 4-12. : Images AFM de l’empreinte 5 (a) de première attaque et de (b) seconde attaque d’une zone présentant un comportement réversible sur la courbe d’indentation, le cercle de contact à chargement maximal a été représenté, les flèches indiquent quelques piqûres particulières, pas de changement de position.**

La figure 4-13. montre un essai réversible similaire au précédent, c'est-à-dire un cercle de contact dans une zone exempte de dislocations préexistantes. Cependant, l'image 4-13.b, réalisée après la seconde attaque, révèle de nouvelles piqûres. Elles sont associées aux dislocations préexistantes qui se sont déplacées lors de l'essai d'indentation. Dans ce second cas les dislocations qui ont été mises en mouvement sont situées à quelques centaines de nanomètres du contact. Cela montre une influence à courte portée du champ de contrainte de l'indenteur sur l'équilibre des dislocations préexistantes.



**Figure 4-13. :** Images AFM (a) de première attaque et de (b) seconde attaque d'une zone présentant un comportement réversible sur la courbe d'indentation ; le cercle de contact à chargement maximal a été représenté, les nouvelles piqûres autour du contact sont indiquées par des flèches creuses.

Cependant la mise en mouvement de ces dislocations préexistantes à proximité du contact n'induit ici, ni l'activation de sources ni la nucléation de dislocations : les courbes conservent un comportement réversible sans pop-in, et la surface ne fait pas apparaître de trace de déformation résiduelle sous le contact.

### 4.3. Cas des empreintes plastiques

Nous allons nous intéresser aux empreintes plastiques (courbes avec pop-in) en étudiant le rôle joué par les dislocations préexistantes. Pour rappel, nous avons vu aux paragraphes 4-2.2. et 4-4.1. de ce chapitre, que la présence de dislocations préexistantes abaissait la charge d'apparition du pop-in et jouait donc un rôle particulier dans les premiers stades de plasticité sous nanoindentation.

*N.B. : Par la suite, les empreintes seront désignées par leur numéro d'étude, dans un souci de simplicité pour identifier les observations multiples sur une même empreinte.*

#### 4.3.1. Premier cas : empreinte 108

Nous allons nous intéresser à l'empreinte 108 dont la courbe d'indentation est présentée figure 4-14. La courbe présente très nettement un pop-in à la charge à 3 mN (indiqué par la flèche rouge) ainsi qu'une déformation résiduelle en fin de cycle. Les observations AFM de

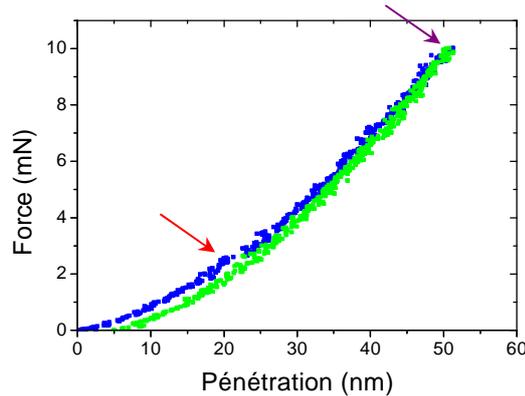
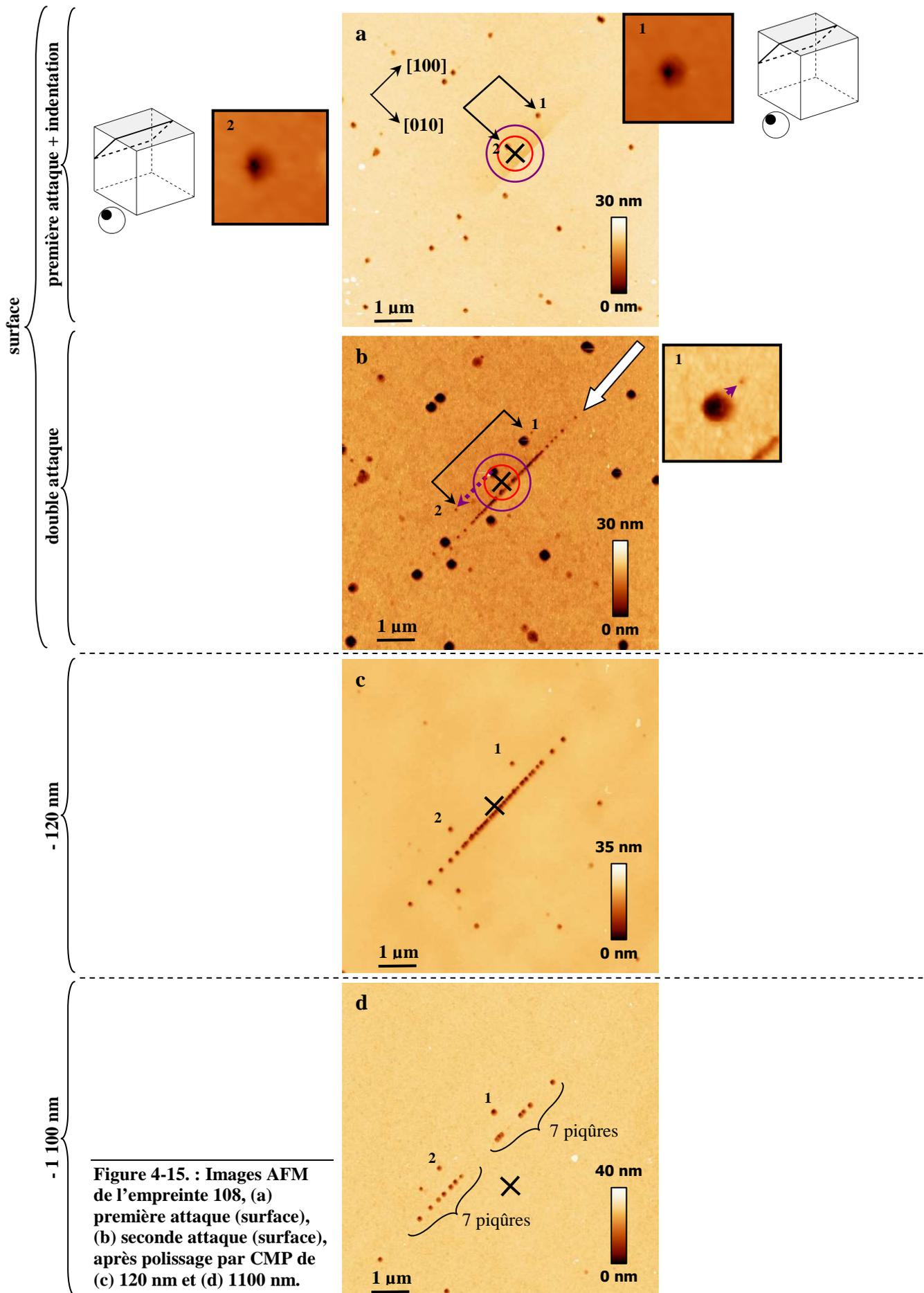


Figure 4-14. : Courbe d'indentation correspondant à l'empreinte 108.

la surface correspondant à cet essai sont récapitulées sur la figure 4-15. Les cercles de contact aux moments du pop-in (en rouge) et à chargement maximum (en violet) ont été représentés sur les images AFM avec la position de l'axe d'indentation matérialisé par un « X ». La figure 4-15.a montre une unique ligne de glissement due à l'essai d'indentation, elle émerge à 0,44 fois le rayon de contact au moment du pop-in. Cette position d'émergence du plan de glissement est cohérente avec une nucléation au point de contrainte résolue maximum sur les systèmes  $\langle 011 \rangle \{110\}_{45}$  au moment du pop-in, comme l'ont observé Gaillard et Tromas [10, 11]. Des piqûres correspondant aux dislocations introduites par clivage sont également visibles, l'une d'entre elles (n°2) est sous le contact au moment du pop-in. De plus les piqûres 1 et 2 sont appariées et correspondent à une demi-boucle de dislocation dans un plan divergent comme le montre le détail de l'analyse des piqûres.

A la seconde attaque, figure 4-15.b, deux nouvelles piqûres sont apparues à proximité des anciennes 1 et 2. Les anciennes piqûres font apparaître un fond plat, ce qui indique que la dislocation n'y est plus. La dislocation associée aux piqûres 1 et 2 s'est équilibrée dans le champ de contrainte de l'indenteur. Le mouvement des points d'émergence des dislocations est symbolisé par des flèches discontinues. Cette attaque a également révélé les points d'émergence des dislocations introduites pendant l'essai d'indentation (alignement indiqué par une flèche creuse). Ces piqûres sont alignées le long de la marche observée en surface et correspondent à des demi-boucles de dislocations concentriques telles que classiquement observées par Gaillard et Tromas [10-13].

La figure 4-15.c montre l'attaque chimique après polissage CMP d'une fine couche de 120 nm d'épaisseur. L'empilement généré pendant l'indentation ainsi que la demi-boucle de dislocation 1-2 sont identifiés à nouveau. La distance entre la demi-boucle 1-2 et l'empilement n'a pas évolué avec la profondeur, ce qui indique qu'ils évoluent dans des



plans parallèles. Cette configuration est représentée figure 4-16. La plupart des piqûres associées aux dislocations préexistantes ont disparu ce qui correspond au fait que les dislocations introduites par clivage ne s'étendent que très peu en profondeur (sur une centaine de nanomètres), tel que présenté au début de ce chapitre.

La dernière étape figure 4-15.d, après un second polissage et une nouvelle attaque chimique, ne montre plus que 14 piqûres correspondant à l'empilement initial. Le polissage a eu pour effet d'éliminer les demi-boucles centrales, qui s'étendaient sur une profondeur inférieure à 1100 nm. Ces 14 piqûres peuvent être décomposées en deux sous groupes de 7 piqûres chacun. La répartition symétrique des piqûres autour de l'axe d'indentation montre bien l'agencement de dislocations sous forme de demi-boucles concentriques. Si la demi-boucle 1-2 issue du clivage est encore visible, c'est probablement parce qu'étant située dans un plan passant sous le contact de l'indenteur, elle s'est étendue en profondeur sous l'effet du champ de contrainte.

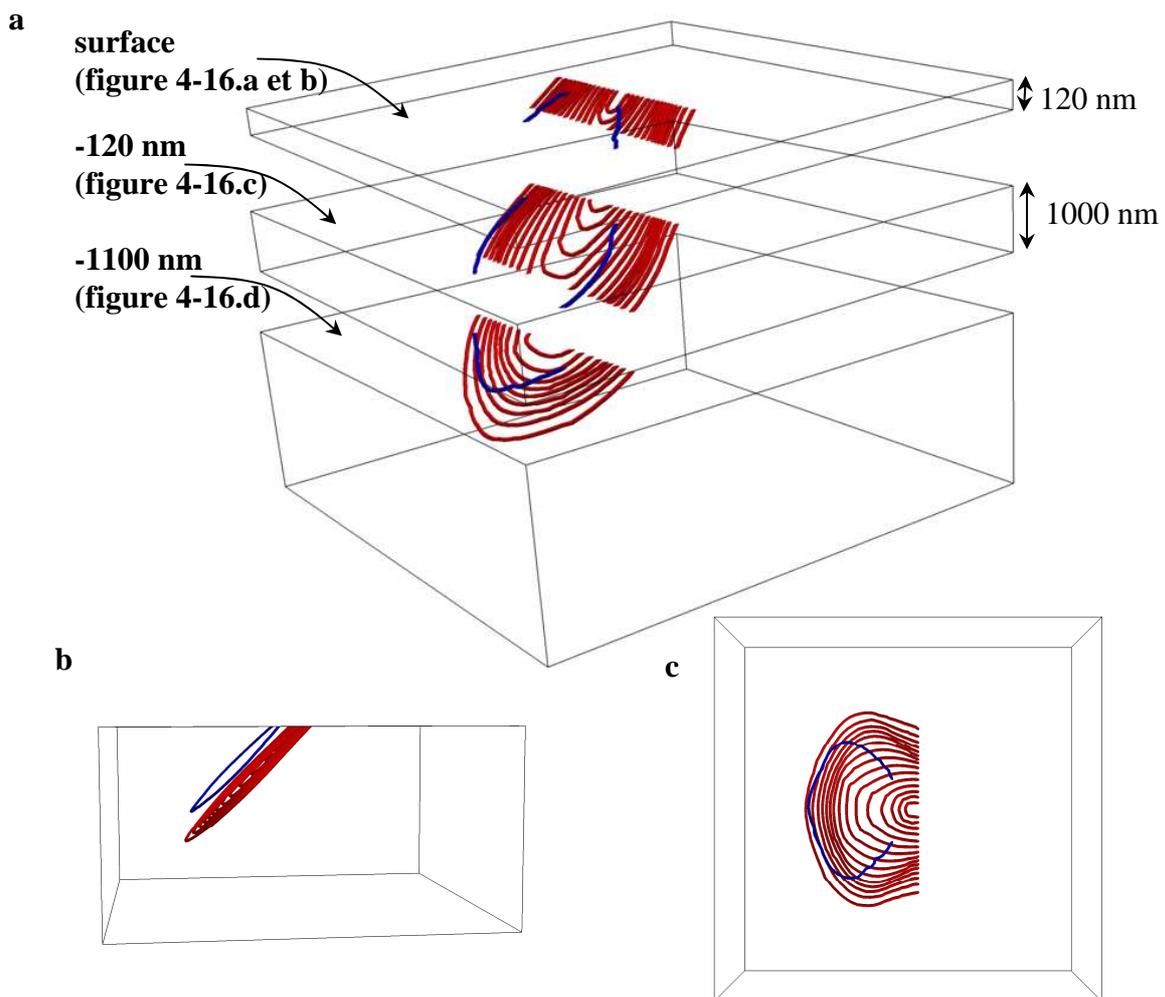
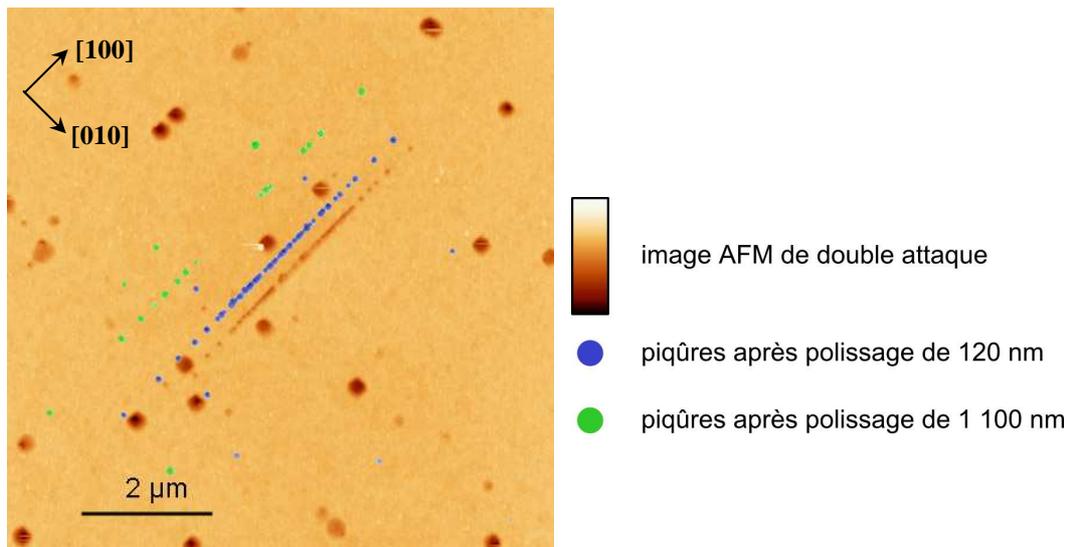


Figure 4-16. : (a) Vue 3D des différents plans de coupe de l'empreinte 108, (b) vue de profil, (c) vue de dessus, en bleu la demi-boucle préexistante et en rouge les demi-boucles nucléées sous indentation.



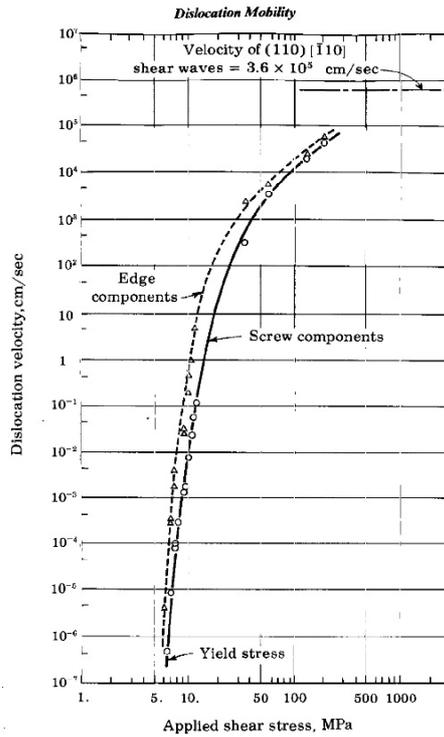


Figure 4-18. : Vitesses de propagation des dislocations dans LiF en fonction de la contrainte appliquée, d'après Johnston et Gilman (1959) [14].

100 nm de celui des boucles concentriques. L'influence de la dislocation 1-2 à une telle distance serait de l'ordre d'une vingtaine de mégapascals, ce qui est extrêmement faible en regard des quelques gigapascals (4 à 5) induits par l'indenteur.

Proposition 2 : Une autre solution serait d'envisager des effets dynamiques engendrés par la mise en mouvement de la dislocation 1-2. Sous l'effet des très fortes contraintes (plusieurs GPa) induites par l'indenteur et des très forts gradients, les dislocations préexistantes sous le contact (ici la demi boucle 1-2) sont soumises à de très fortes accélérations et peuvent atteindre des vitesses très élevées, de l'ordre de la vitesse limite d'une dislocation dans un cristal (c'est-à-dire la vitesse de propagation du son dans ce cristal). La figure 4-18. est un exemple des vitesses de propagation de dislocations rencontrées dans LiF en fonction de la contrainte appliquée [14] : à 300 MPa les vitesses de propagation sont déjà de  $5 \cdot 10^4 \text{ cm} \cdot \text{s}^{-1}$ , à 1 GPa la vitesse limite est atteinte. Considérons une dislocation vis le long de l'axe z, se déplaçant dans la direction x. Dans le cas des vitesses de glissement élevées, les calculs montrent une déformation du champ de contrainte autour de la dislocation, qui se contracte le long de l'axe y [15] (figure 4-19.). Dans le cas limite  $v = Ct$ , avec  $Ct$  la vitesse de propagation d'une onde acoustique transverse, la contrainte de cisaillement  $\sigma_{\theta z}$  s'annule partout, sauf le long de l'axe y où elle devient infinie. Il faut rester prudent quand à ce type de calcul, car pour des vitesses proches de  $Ct$ , on sort du cadre de l'élasticité linéaire. Cependant une application importante de ce calcul concerne les forces d'interaction entre

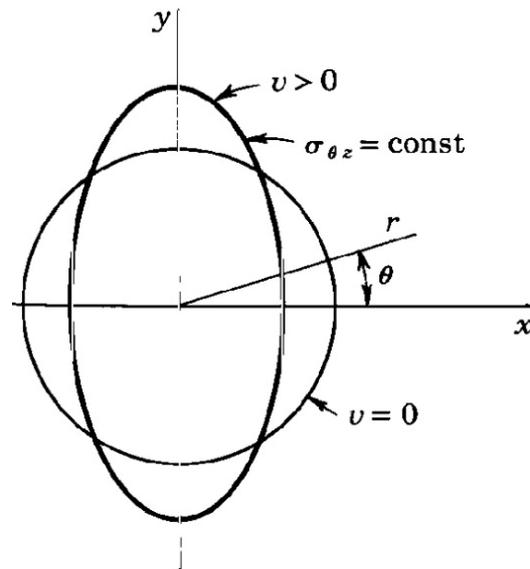


Figure 4-19. : Contrainte de cisaillement  $\sigma_{\theta z}$  associée à une dislocation vis (positionnée sur  $z$ ) en mouvement sur  $x$  ( $v > 0$ ) et à une dislocation statique ( $v = 0$ ). Un contour d'isocontrainte est représenté dans chaque cas, Hirth et Lothe (1982) [15].

dislocations en mouvement. Ainsi, ce calcul indique que les forces d'interaction entre deux dislocations vis glissant dans des plans parallèles augmentent très fortement lorsque leur vitesse de glissement tend vers  $Ct$  [15]. En conclusion, la mise en mouvement d'une dislocation préexistante à des vitesses très élevées peut conduire à l'apparition localement de très fortes contraintes, qui pourraient favoriser la nucléation de dislocations.

#### 4.3.2. Deuxième cas : empreinte 104

Comme dans le cas précédent, la courbe d'indentation de l'empreinte 104 présentée figure 4-20. montre un pop-in (indiqué par la flèche rouge) et une déformation résiduelle. Les conventions utilisées pour la représentation des cercles de contact et de l'axe d'indentation sont les mêmes que précédemment. La figure 4-21.a montre la présence à chargement

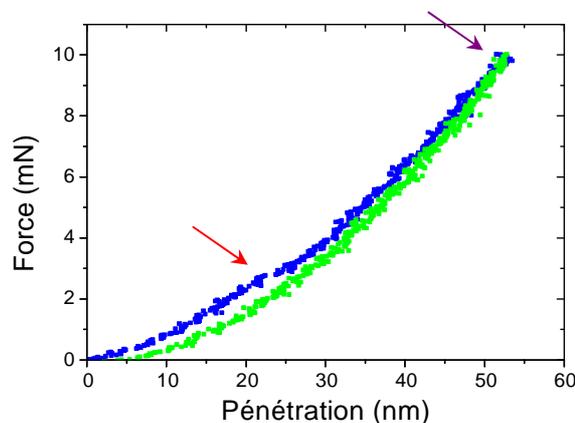


Figure 4-20. : Courbe d'indentation correspondant à l'empreinte 104.

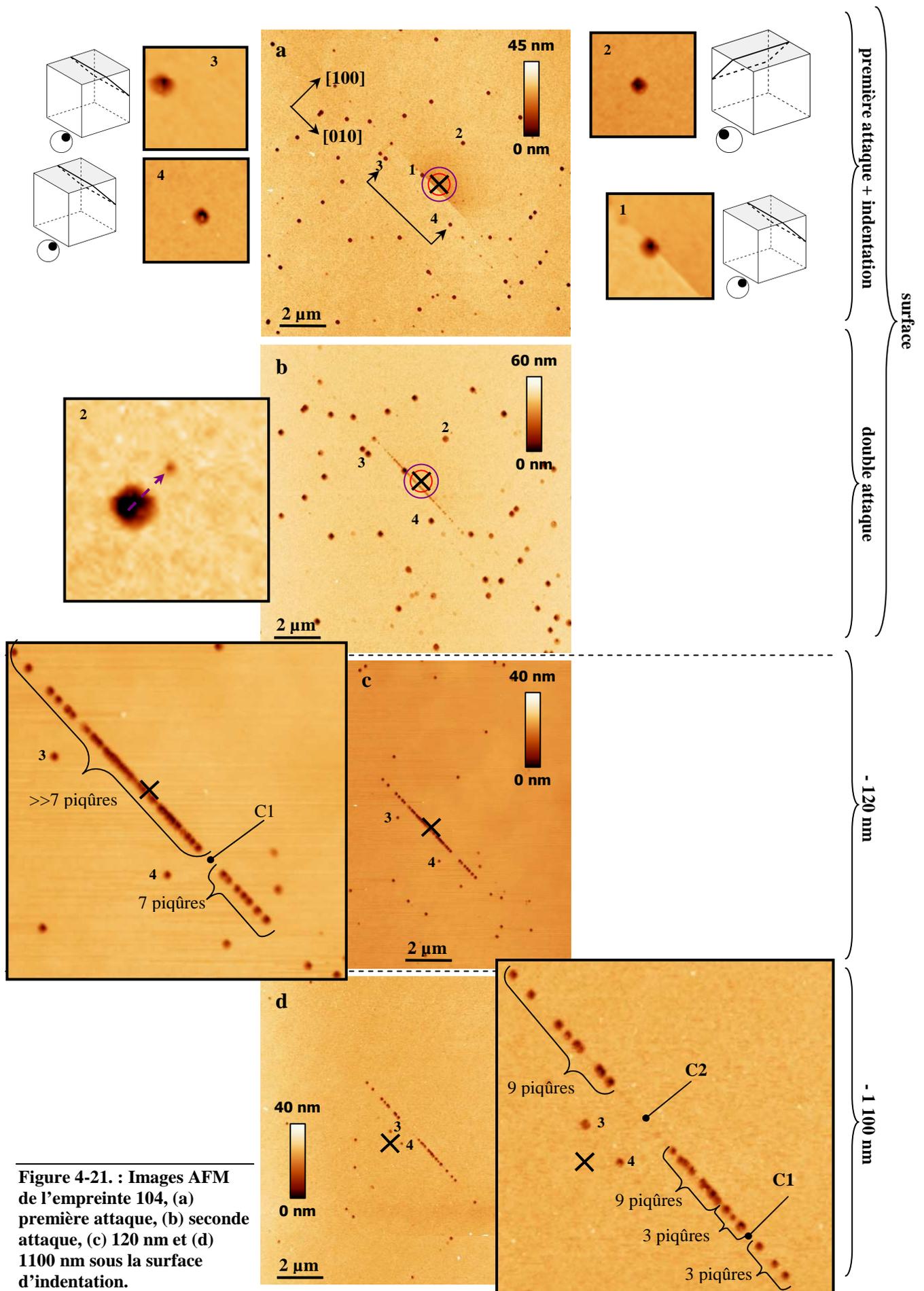


Figure 4-21. : Images AFM de l’empreinte 104, (a) première attaque, (b) seconde attaque, (c) 120 nm et (d) 1100 nm sous la surface d’indentation.

maximum d'une dislocation préexistante sous le contact (n°1). La demi-boucle de dislocation correspondant à la piqûre 1 est dans un plan convergent, comme l'indique l'analyse de la piqûre. Cette empreinte présente une configuration analogue à la précédente, les deux piqûres 3 et 4 sont appariées, comme le prouvent les étapes de polissage suivantes, et sont situées dans un plan convergent (qui passe sous le contact). L'image AFM révèle également la présence d'une unique ligne de glissement due à l'essai d'indentation. Contrairement au cas précédent, ici le nouvel empilement est situé dans le plan de la dislocation préexistante (n°1), et, en plus, émerge à 0,44 fois le rayon de contact. Ce qui correspond à un site de nucléation identique à celui attendu au moment du pop-in.

La seconde attaque, figure 4-21.b, révèle les points d'émergence des dislocations nucléées au cours de l'essai d'indentation. Elle montre également que la dislocation associée à la piqûre 2 s'est déplacée. Compte tenu de son éloignement au contact, il est peu probable que le mouvement de cette dislocation soit dû au champ de contrainte de l'indenteur. Il est plus raisonnable d'envisager un effet de la contrainte d'empilement des dislocations nucléées au cours de l'essai, dont le plan de glissement passe à l'aplomb de la piqûre 2.

La figure 4-21.c, après polissage et nouvelle attaque chimique, montre une très forte dissymétrie dans l'alignement des piqûres nucléées par indentation, avec un groupe de 7 piqûres isolées d'un coté de l'empilement. Celles-ci sont d'ailleurs séparées du reste de l'empilement par un espace noté C1 vide de piqûres. La demi-boucle de dislocation 3-4 s'est équilibrée dans le champ de contrainte de l'indenteur et ses deux extrémités sont situées de

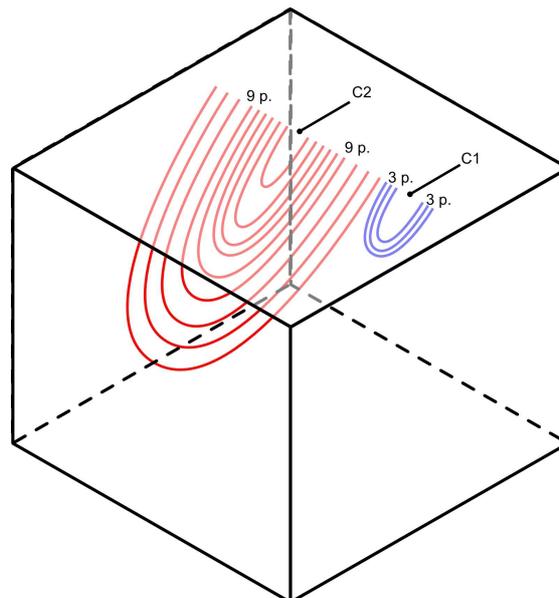


Figure 4-22. : Représentation schématique de la configuration de l'empreinte 104 telle que vue sur l'image 4-21.d.

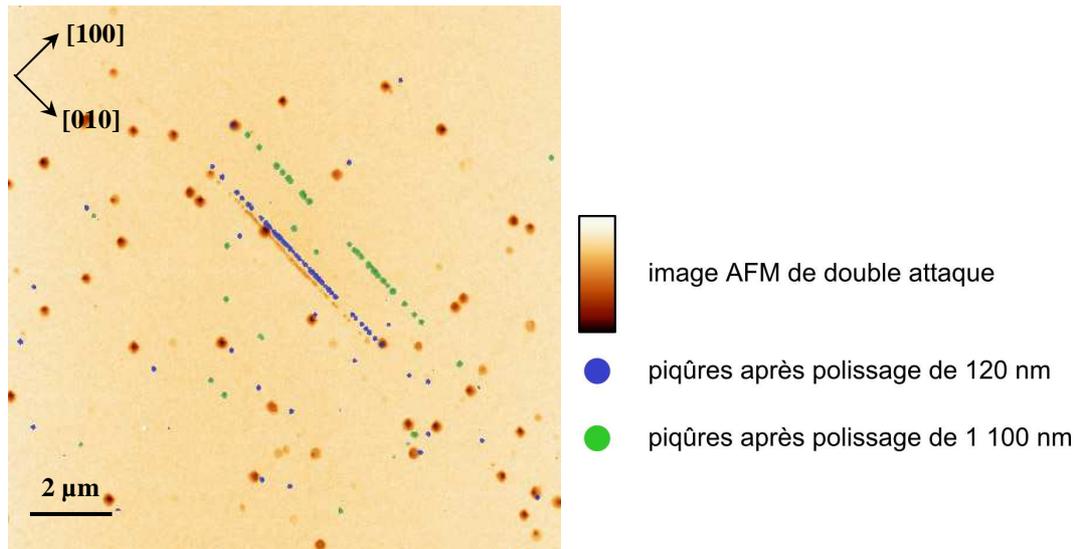


Figure 4-23. : Superposition des différents niveaux d'observation de l'empreinte 104, l'image AFM de la double attaque en surface est superposée aux piqûres après polissage de 120 nm (en bleu) et après 1100 nm (en vert).

part et d'autre de l'axe d'indentation. La distance entre l'alignement principal de piqûres et les piqûres 3-4 ne varie pas en fonction de la profondeur découpée, ce qui montre que les deux structures évoluent dans des plans parallèles.

Enfin, la dernière étape montre l'apparition d'un deuxième espace vide noté C2 en vis-à-vis de l'axe d'indentation sur l'alignement des piqûres nucléées par indentation. Comme dans le cas de l'empreinte 108, la zone C2 correspond aux demi-boucles centrales de l'empilement dont la profondeur n'excédait pas 1100 nm et qui ont ainsi disparu au cours du polissage. Cependant, le nombre de piqûres n'est pas réparti autour de C2. Si les piqûres sont appariées deux à deux, alors nous pouvons identifier la présence de deux empilements distincts : trois demi-boucles de dislocations centrées autour de C1, et un deuxième alignement de neuf demi-boucles centrées autour de C2 (figure 4-22.). La nucléation des demi-boucles de dislocations autour de C2 peut être attribuée aux mécanismes classiques de nucléation au moment du pop-in. En revanche, la présence de l'empilement autour de C1 est plus difficile à concevoir. Les deux sous empilements ne sont pas forcément dans un même et unique plan, mais peuvent être dans deux plans contigus très proches.

La figure 4-23. présente une superposition des plans de coupe de l'empreinte 104.

## Discussion

La présence d'une dislocation préexistante sous le contact a visiblement favorisé un pop-in à faible charge. Dans le cas présent, le nouvel empilement a été nucléé dans le même plan que la dislocation préexistante. L'émergence des dislocations de cet empilement

correspond à un site de nucléation identique à celui attendu au moment du pop-in. Autrement dit, l'avalanche de dislocations associée au pop-in s'est produite lors de la charge juste au moment où la zone de contrainte maximum induite par l'indenteur atteignait la dislocation préexistante. Il n'est pas possible de déterminer à partir des expériences effectuées s'il s'agit d'un mécanisme d'activation de sources de Frank-Read. Cependant, la contrainte vue par la dislocation préexistante au moment du pop-in est de l'ordre de quelques giga pascals. Si cette dislocation avait agi comme source de Frank-Read, elle aurait dû être activée bien plus tôt, à des valeurs de contrainte nettement plus faibles.

### 4.3.3. Troisième cas : empreinte 64

La figure 4-24. est la courbe d'indentation de l'essai 64 et présente un comportement similaire aux exemples précédents. A la différence près que le pop-in apparaît à une charge plus élevée, 10 mN environ. L'observation AFM figure 4-25.a révèle tout d'abord la formation d'une marche de 6 nm de haut dans une direction  $\langle 100 \rangle$  notée *C* sur la figure. L'orientation de la marche *C* montre qu'elle induit une déformation compatible avec la pénétration de l'indenteur et sa position est cohérente avec une nucléation au point de contrainte résolue dans les systèmes  $\langle 110 \rangle \{110\}_{45}$  maximum au moment du pop-in. Deux piqûres appariées 1 et 3 forment une demi-boucle de dislocation qui glisse dans un plan convergent (qui passe sous l'empreinte). Aucune piqûre n'est présente sous le contact, ce qui expliquerait la charge d'apparition du pop-in plus élevée que dans les cas précédents. Cependant l'absence de piqûre sous le contact ne signifie pas obligatoirement qu'aucune dislocation préexistante n'a été soumise au champ de contrainte de l'indenteur. Typiquement,

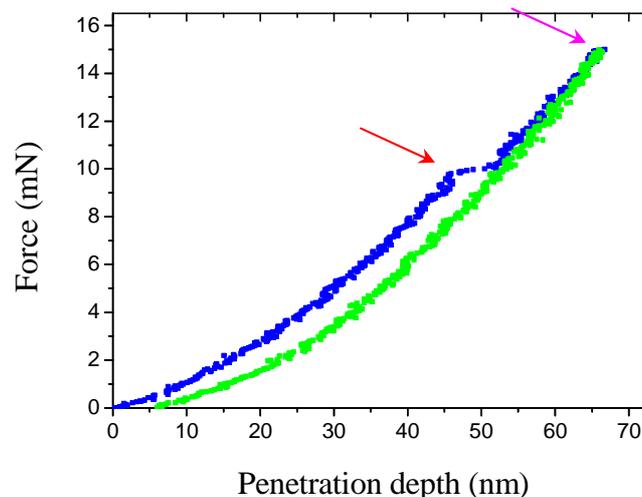


Figure 4-24. : Courbe d'indentation de l'empreinte 64.

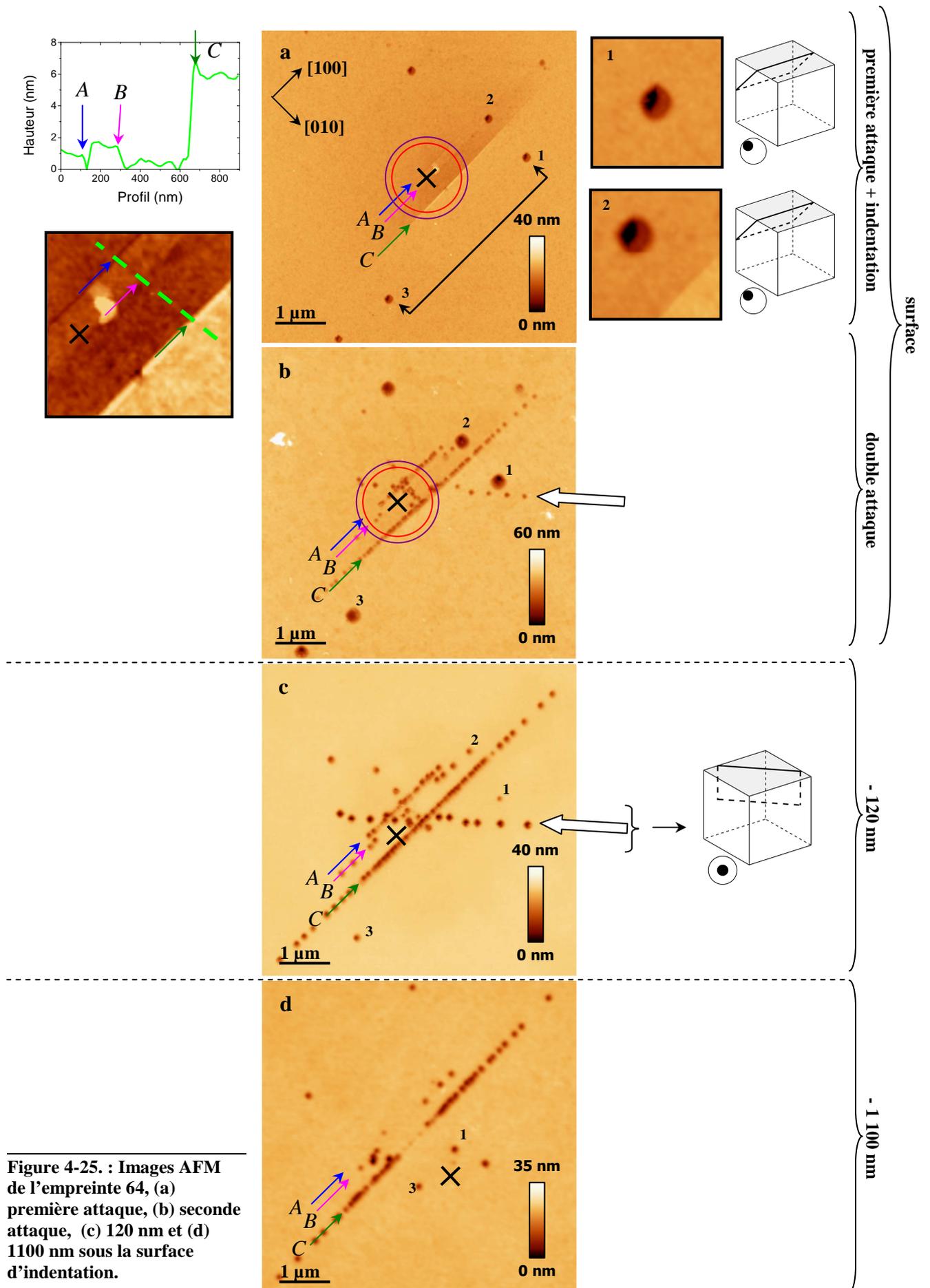


Figure 4-25. : Images AFM de l’empreinte 64, (a) première attaque, (b) seconde attaque, (c) 120 nm et (d) 1100 nm sous la surface d’indentation.

la demi-boucle 1-3 passe sous le contact. La piqûre la plus proche du contact (n°2) est située à approximativement un micron du contact à chargement maximum. L'orientation de la boucle de dislocation correspondant à la piqûre 2 est donnée sur la figure 4-25. Un agrandissement de la zone centrale révèle la présence de trois lignes de contraste *A*, *B* et *C* dans la direction de glissement [100]. La position de la marche *B*, 1,5 nm de haut, est difficile à déterminer, elle est soit sous le contact soit du même côté que *C* par rapport à l'axe d'indentation. Quelle que soit sa position précise, la formation d'une marche à cet endroit et dans cette direction, ne permet pas d'aider à l'enfoncement de l'indenteur. La marche *B* s'est formée dans l'alignement de la piqûre n°2, mais ici encore, la dislocation associée à la piqûre 2 et les dislocations de la marche *B* évoluent dans des plans opposés. Et enfin la ligne *A* forme une bande d'extrusion avec *B*. On distingue une petite marche (moins de 1 nm) au pied de laquelle est présent un sillon d'une profondeur de un nanomètre.

La seconde attaque chimique, figure 4-25 .b, montre un schéma de piqûres plus complexe que dans les cas précédents. Le fond de la piqûre 2 s'est aplati, ce qui veut dire que la dislocation préexistante, associée à cette piqûre, s'est déplacée lors de l'essai d'indentation. Des alignements de piqûres sont visibles le long de *B* et *C*, leur nombre correspond à la hauteur de la marche. En revanche, de nombreuses piqûres sont révélées sans aucune ambiguïté le long de la ligne *A*, en nombre bien supérieur à ce que permettait de prévoir la très faible hauteur de la marche *A*. Ceci montre que les déformations apportées par chacune des dislocations ne se cumulent pas pour former une haute marche. Ces demi-boucles de dislocation ne sont donc pas concentriques, mais nécessairement adjacentes, comme représenté schématiquement sur la figure 4-26. Quelques piqûres éparses sont également

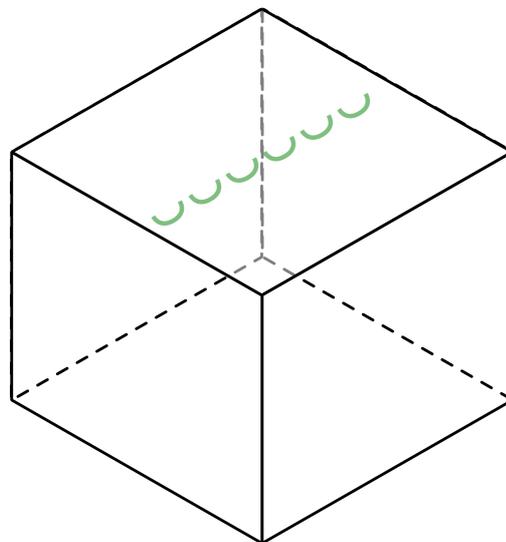


Figure 4-26. : Agencement des demi-boucles de dislocations adjacentes le long de la ligne *A*.

visibles sous le contact. Des piqûres alignées dans des directions  $\langle 110 \rangle$  et indiquées par une flèche creuse sont clairement visibles et ne peuvent cependant pas être associées à un relief de surface de la figure 4-25.a.

Après un polissage et une nouvelle attaque chimique, figure 4-25.c, l'observation AFM montre que les piqûres repérées par la flèche creuse sont symétriques, c'est-à-dire que la pointe du cône est au centre de la piqûre. Les dislocations correspondant à ces piqûres glissent dans des plans de type  $\{110\}_{90}$ . Le fait que ces piqûres ne soient pas toutes parfaitement alignées montre que plusieurs plans ont été activés. Cette attaque confirme la présence de piqûres et donc de demi-boucles de dislocations le long de A. En plus la distance entre les lignes A, B et C n'a pas évolué, les dislocations de ces trois empilements évoluent dans trois plans distincts parallèles.

Sur la figure 4-25.d plus aucune piqûre n'est observée le long de A ce qui montre que les dislocations associées étaient très peu profondes (moins de 1  $\mu\text{m}$ ). Cela renforce l'idée de demi-boucles non concentriques mais adjacentes. La même remarque peut être faite pour les piqûres correspondant aux dislocations des plans  $\{110\}_{90}$ . On voit également que la dislocation 1-3 a été poussée profondément par le champ de contrainte de l'indenteur.

### ***Discussion***

A nouveau sur cette empreinte, la position de la marche principale (C) est en accord avec une nucléation de dislocations en avalanche à partir du point de contrainte résolue maximale au moment du pop-in. Les dislocations préexistantes autour de cette empreinte ne sont pas dans le même plan que les dislocations de la marche C. Par ailleurs, cette empreinte est la seule à présenter des dislocations dans des plans  $\{110\}_{90}$ . Il est probable que les systèmes supplémentaire activés ici l'ont été pour raison de compatibilité géométrique. Le nombre important de dislocations sous la marche C, et donc un cisaillement local important, induit des contraintes supplémentaires qui peuvent favoriser la nucléation de dislocations dans les plans  $\{110\}_{90}$  à proximité de la marche.

#### **4.3.4. Quatrième cas : empreinte 62**

La figure 4-27. est la courbe d'indentation de l'essai 62 et présente une déformation résiduelle sans toutefois montrer de pop-in très net à la charge. Un « accident » plus net que les autres est pointé en rouge sur la courbe. Le cercle de contact correspondant à ce point particulier de la courbe de charge est matérialisé par un cercle rouge sur l'image 4-28.a . On remarque que la piqûre 2 est située à l'intérieur de ce cercle, indiquant ainsi que la dislocation

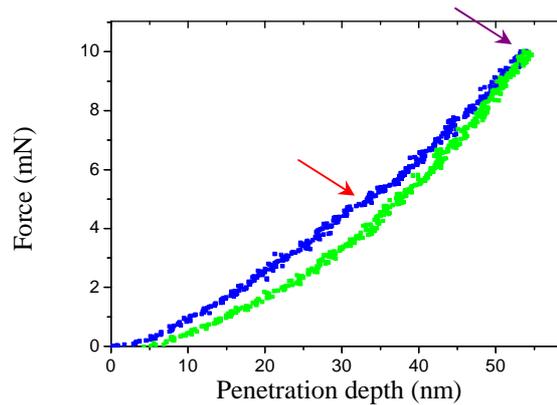


Figure 4-27. : Courbe d'indentation de l'empreinte 62.

associée à la piqûre 2 était sous le contact au moment du pop-in. Une autre piqûre (n°1) est également située à proximité du contact à chargement maximum.

L'image AFM 4-28.a montre la présence d'une marche  $D$ . Comme dans les cas précédents, celle-ci est située à une distance de l'axe d'indentation d'environ 0,44 fois le rayon de contact au moment du pop-in (voir cercle rouge). Ici encore, cette marche principale est liée à un empilement de demi-boucles de dislocations dans un plan  $\{110\}_{45}$ , qui ont pris naissance dans ce plan au point de contrainte résolue maximum au moment du pop-in. Il est à noter que cette marche prend appui sur trois dislocations préexistantes correspondant aux piqûres 2, 3 et 4. L'analyse de ces piqûres montre que les dislocations associées se propagent dans le même plan que les nouvelles dislocations nucléées ( $D$ ).

La figure 4-28.b, après la double attaque, révèle de nouvelles piqûres dont certaines correspondent aux dislocations de la marche  $D$ . D'autres piqûres forment également un second alignement perpendiculaire à la marche  $D$ , alignement noté  $E$  sur la figure. L'orientation de l'alignement  $E$  montre qu'il s'agit de dislocations dans un plan de type  $\{110\}_{45}$  et que donc, leur émergence devrait produire une marche en surface. La résolution limite de l'image précédente ne permet pas d'identifier clairement la marche correspondante. Une observation en détail de cet alignement montre que ces dislocations ont été nucléées dans un plan voisin de la dislocation correspondant à la piqûre 1. Le fond plat de cette piqûre indique que la dislocation préexistante correspondante s'est déplacée au cours de l'essai d'indentation. De plus les images suivantes montrent que les dislocations 1 et  $E$  sont dans deux plans parallèles. La très grande majorité des piqûres de l'alignement  $E$  sont situées d'un seul côté de  $D$ . Une telle configuration montre que l'empilement  $D$  s'est nucléé avant  $E$ . Il est possible que les premières dislocations nucléées en  $E$  se soient propagées librement, puis que

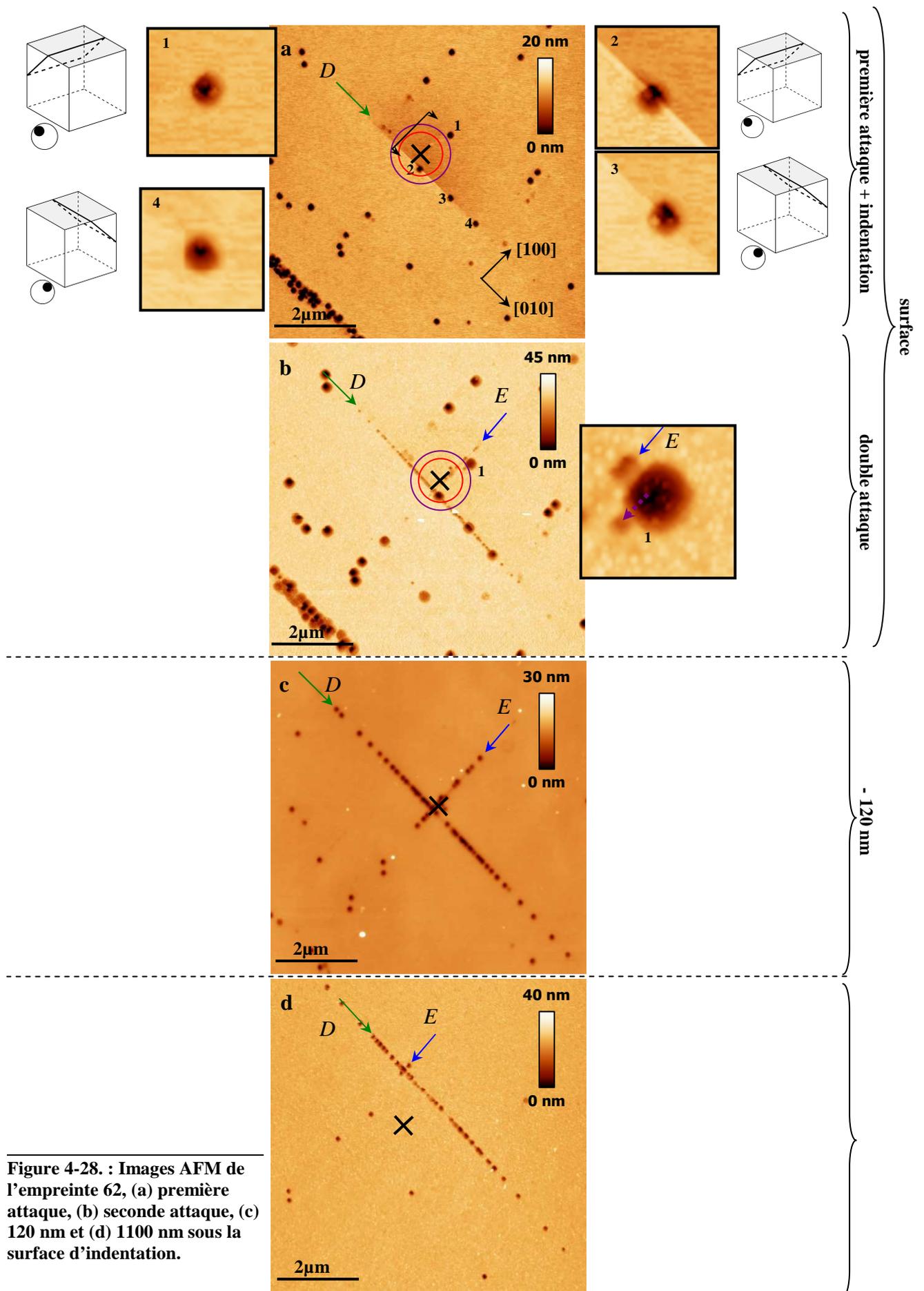


Figure 4-28. : Images AFM de l’empreinte 62, (a) première attaque, (b) seconde attaque, (c) 120 nm et (d) 1100 nm sous la surface d’indentation.

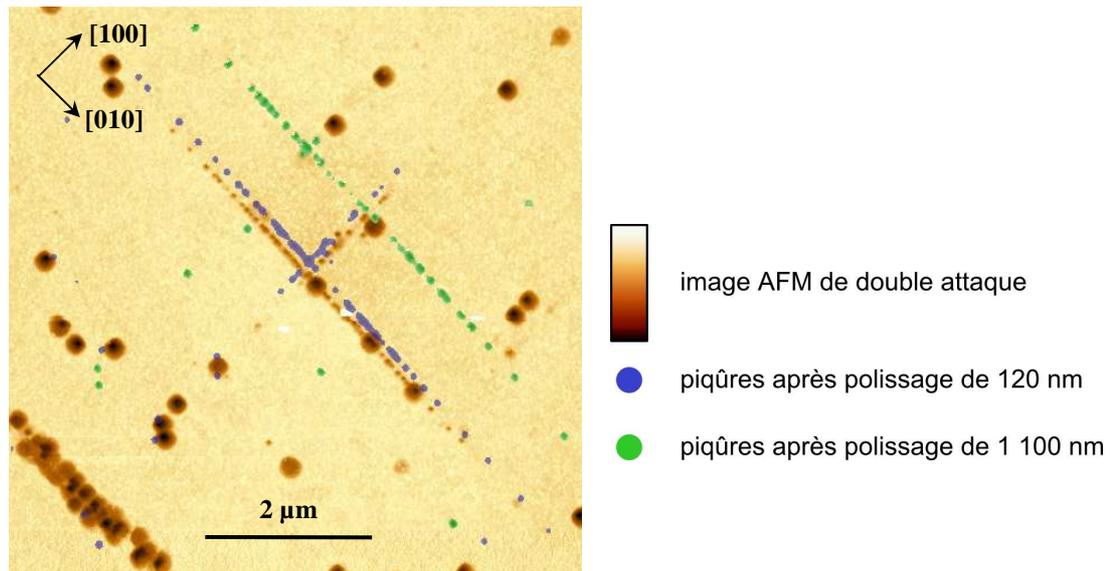


Figure 4-29. : Superposition des différents niveaux d'observation de l'empreinte 62, l'image AFM de la double attaque en surface est superposée aux piqûres après polissage de 120 nm (en bleu) et après 1100 nm (en vert).

la formation d'un segment sessile issu de la réaction entre une dislocation de  $D$  et une de  $E$  ait contribué à bloquer la propagation des nouvelles dislocations de  $E$ .

Après polissage et nouvelle attaque chimique (figure 4-28.c), on remarque que la dislocation associée à la piqûre 1 n'est plus à côté de  $E$  mais est probablement à proximité de l'axe d'indentation. On aurait pu s'attendre à ce que, compte tenu de sa position initiale, le champ de contrainte de l'indenteur la pousse plus en profondeur. Elle est visiblement restée en proche surface comme l'indique sa nouvelle position.

A la dernière étape, figure 4-28.d, seules deux piqûres sont encore visibles le long de  $E$ , elles correspondent à la première boucle de dislocation nucléée dans  $E$ . D'un autre côté le nombre de piqûres de  $D$  n'a pas varié. Le fait que les dislocations de  $E$  se soient moins étendues en volume que celles de  $D$  confirme l'affirmation initiale, à savoir que l'empilement  $E$  a été nucléé après  $D$ .

La figure 4-29. présente une superposition des différentes coupes de l'empreinte 62.

### **Discussion**

L'exemple que nous venons de détailler montre une nouvelle fois que la présence de dislocations favorise un pop-in à faible charge. Ici et comme dans le cas de l'empreinte 104, un empilement à été nucléé au point de contrainte maximum au moment du pop-in alors qu'une dislocation au moins (piqûres 3 et 4) était déjà présente dans ce plan. Un deuxième

empilement émergeant perpendiculairement au premier a également été observé. Cette empreinte est une des rares de la série à présenter ce type de configuration, par exemple dans le cas de l'empreinte 64 si plusieurs plans avaient été activés ils étaient tous parallèles les uns aux autres. Il est probable que le deuxième empilement ait été nucléé à cause de la configuration particulière (trois piqûres alignées et une quatrième dans un alignement orthogonal) des nombreuses piqûres autour du contact permettant des interactions (réaction, modification local du champ de contrainte,...) qui conduisent à la nucléation d'un nouvel empilement.

### 4.3.5. Cinquième cas : empreinte 117

La courbe de l'empreinte 117 figure 4-30. présente un comportement un peu différent des précédents. Il n'y a pas de réel pop-in sur la courbe de charge mais plutôt un « accident » qui apparaît à 4 mN. Le rechargement qui s'en suit n'est pas élastique (charge et décharge non superposées), et une déformation résiduelle est clairement observée en fin de cycle.

L'image de surface 4-31.a, montre la présence d'une dislocation préexistante sous le contact à chargement maximum. Une bande de matière s'est enfoncée sous le contact, elle est bordée par deux marches réparties de chaque côté de l'axe d'indentation.

La figure 4-31.b, après la seconde attaque, montre une très forte densité de piqûres sous le contact. Hors contact, seules sont observées les piqûres correspondant aux marches identifiées sur la figure précédente. On peut remarquer que tous les empilements sont dans la même direction [010]. Une observation plus approfondie des grands alignements de piqûres, montre une impression « d'incurvation » qui est bien réelle. Il ne s'agit, en fait, pas d'un seul

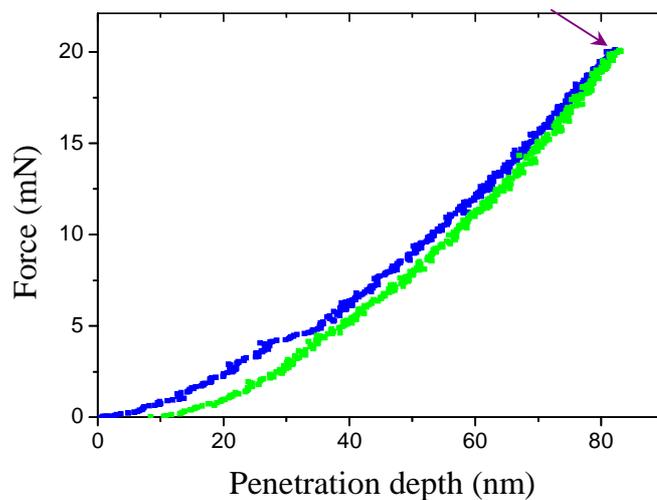
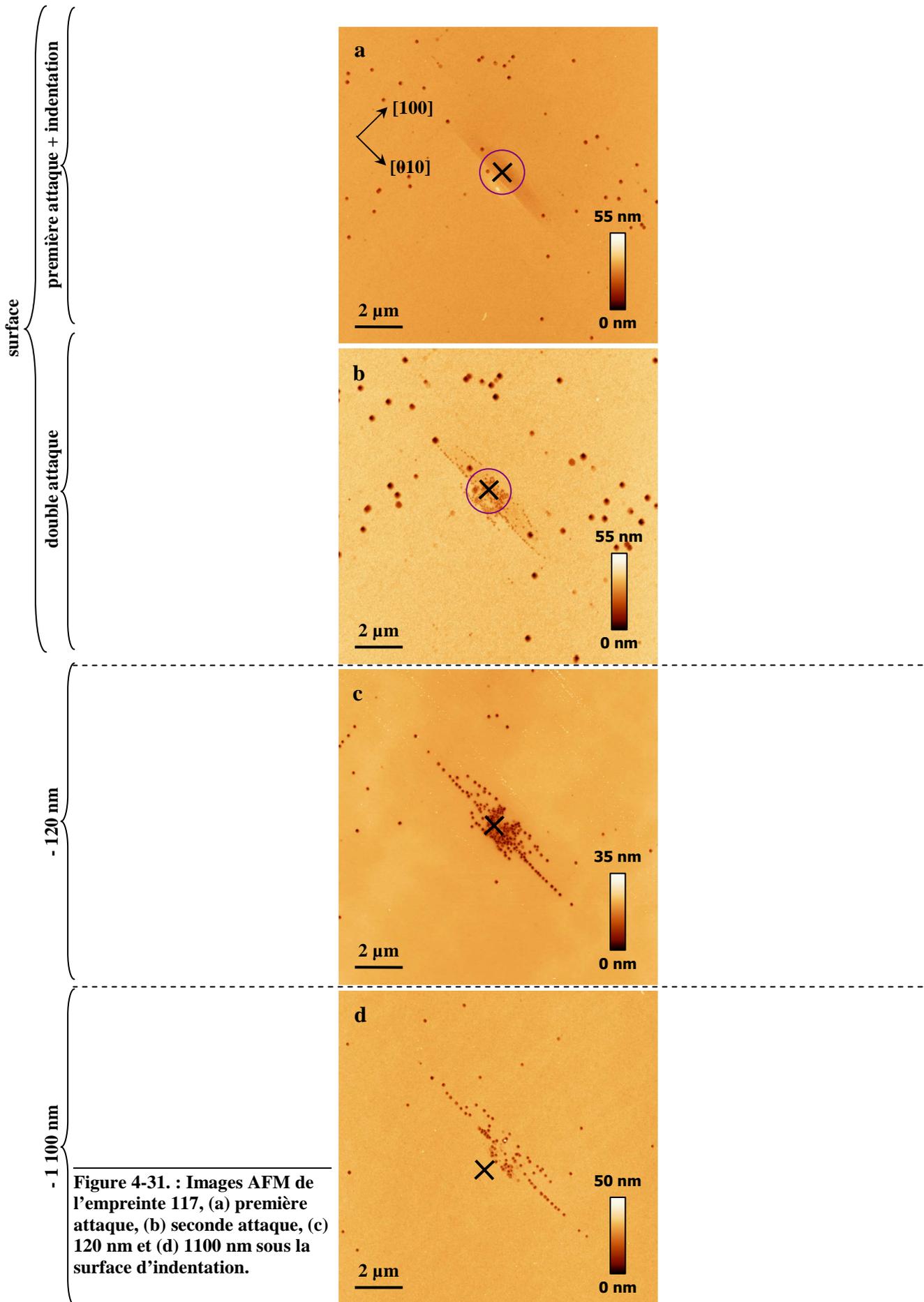


Figure 4-30. : Courbe d'indentation de l'empreinte 117.



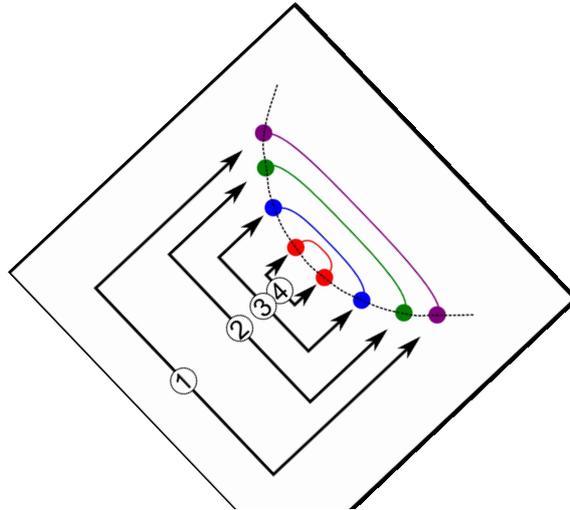


Figure 4-32. : Représentation schématique de l'émergence de demi-boucles de dislocations dans des plans adjacents. Les piqûres sont assorties par paires et le numéro correspond à leur ordre de nucléation.

plan qui est activé mais plusieurs plans voisins activés successivement : chaque ancienne dislocation voyant la contrainte d'empilement de la nouvelle, ce qui lui permet de glisser un peu plus loin du contact. La figure 4-32. représente schématiquement les piqûres des dislocations associées évoluant par paire dans des plans parallèles.

La figure 4-31.c confirme la très forte concentration de piqûres sous le contact et « l'incurvation » des alignements de piqûres.

A la dernière étape la grande majorité des piqûres sous le contact ont disparu, ce qui montre que les dislocations associées étaient très peu étendues en profondeur (inférieures à  $1 \mu\text{m}$ ).

### **Discussion**

Par rapport aux différents cas précédents, cette empreinte présente une grande concentration de dislocations qui ne se limitent pas à un ou deux empilements. De plus, sur la courbe, on observe une déformation plastique légère, mais continue après le pop-in (alors que dans les cas précédents la déformation est quasiment élastique après pop-in).

Tous les alignements sont dans la même direction [010], aucun n'est observé dans la direction [100]. L'observation « d'alignements courbes » laisse à penser à une propagation/multiplication de dislocations de plan en plan, dans des plans adjacents. Glissement dévié, sources spirales sont des possibilités qui expliqueraient à la fois la forme des alignements, l'allure de la partie plastique de la courbe et le fait qu'une seule direction d'alignements de piqûres est visible.

### 4.3.6. Sixième cas : empreinte 120

La courbe d'indentation de l'empreinte 120 présentée figure 4-33. montre plusieurs accidents à la charge, dont le premier est indiqué par la flèche rouge. Le cycle d'indentation montre une déformation résiduelle en fin de décharge. Les cercles de contact correspondant aux instants indiqués par des flèches sur la courbe ont été représentés sur les observations de surface figure 4-34.

L'image 4-34.a montre la présence d'une dislocation (piqûre n°2) sous le contact au moment du premier accident. Les lignes de glissement révélées par AFM sont réparties très étrangement autour du contact. Trois lignes principales dans la même direction sont discernables, deux sont situées presque au bord du contact au moment du premier accident, et une troisième hors contact est très éloignée de l'axe d'indentation (environ 2  $\mu\text{m}$ ). C'est sur cette dernière, indiquée par une flèche creuse, que se portera notre attention. Les observations et les remarques pour le reste de l'empreinte sont similaires à celles faites pour l'empreinte 117.

La figure 4-34.b, après la deuxième attaque, montre une très forte densité de piqûres juste sous le contact sans réel alignement visible. Hors contact, seuls sont visibles les alignements de piqûres correspondant aux lignes de glissement identifiées à l'étape précédente. L'alignement hors contact est soumis à des contraintes plus faibles, alors qu'il montre étrangement la plus forte densité de piqûres. Un cas similaire d'émergence de dislocation très loin du contact avait déjà été rapporté au chapitre 3, dans lequel trois dislocations avaient émergé autour du contact, dans trois plans différents.

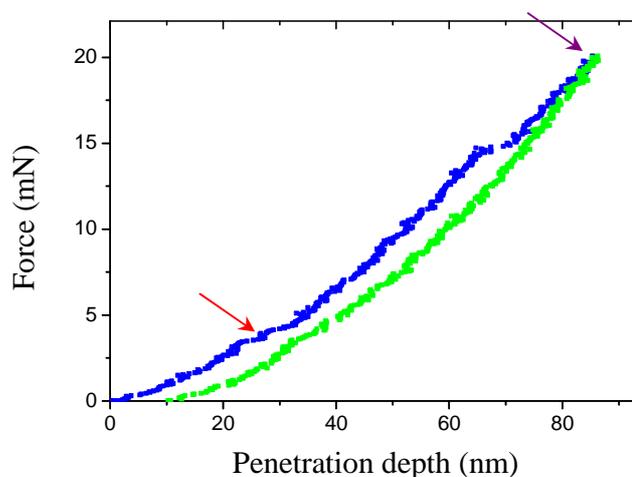


Figure 4-33. : Courbe d'indentation de l'empreinte 120.

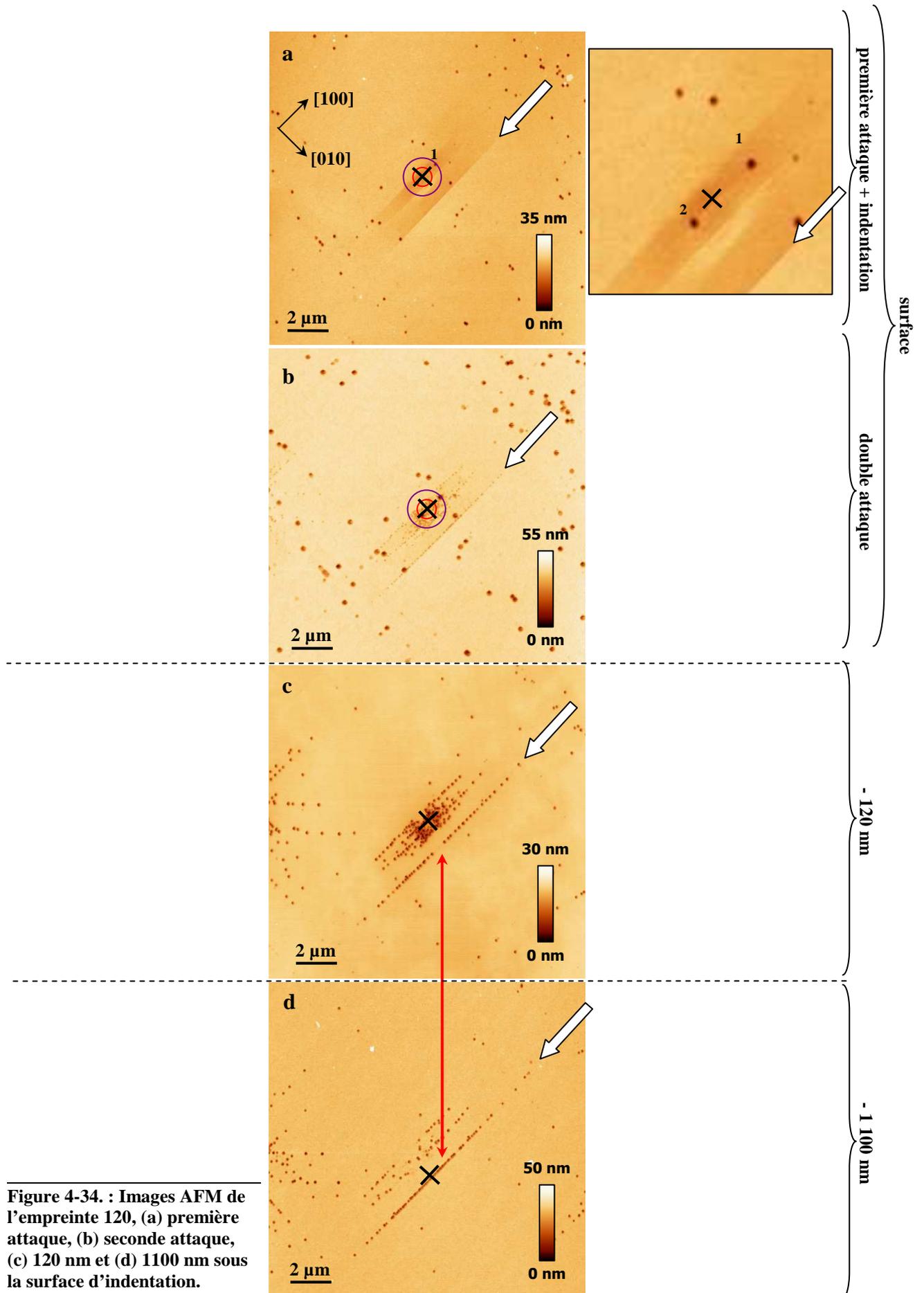
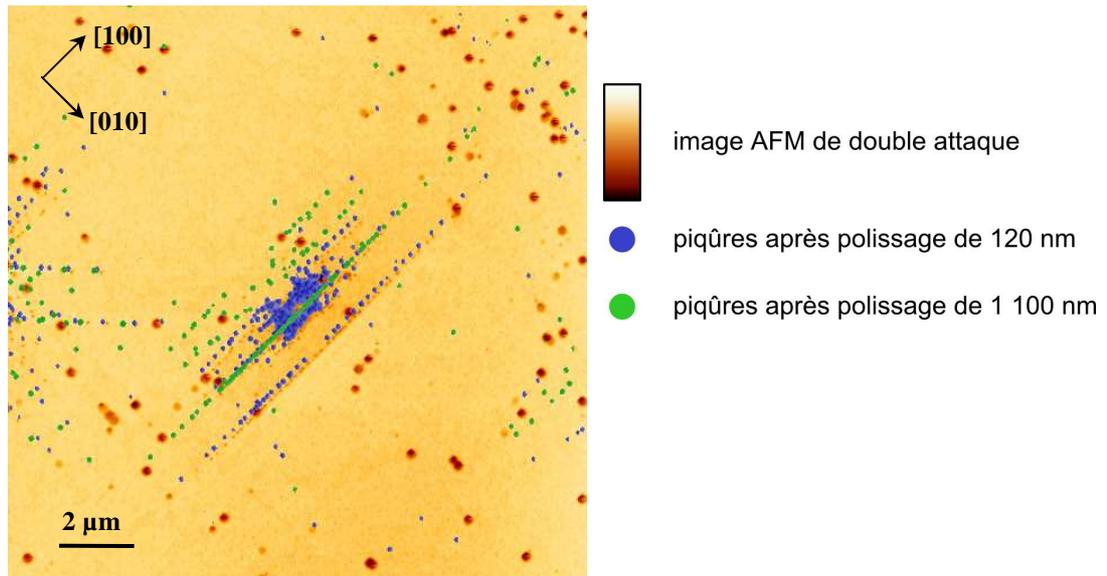


Figure 4-34. : Images AFM de l’empreinte 120, (a) première attaque, (b) seconde attaque, (c) 120 nm et (d) 1100 nm sous la surface d’indentation.



nucléées sous et autour de la zone de contact. De plus, dans l'empilement qui nous intéresse, de nombreuses dislocations émergent en surface.

Une nouvelle fois, le résultat important des observations de l'empreinte 120 est la mise en évidence expérimentale de la nucléation de boucles de dislocations au cours de la charge qui ne débouchent pas en surface. Le comportement nouveau et très particulier de ces dislocations sera modélisé par dynamique de dislocations discrètes dans le chapitre suivant.

### **Synthèse**

L'étude de ces différents cas valide désormais sans ambiguïté les conclusions qui avaient été formulées à partir d'études statistiques : à savoir que la présence de dislocations préexistantes sous ou à proximité du contact a pour effet d'abaisser la charge d'apparition du pop-in. Paradoxalement, même si la nucléation d'un empilement est favorisée par la présence d'une dislocation préexistante, dans tous les cas le nouvel empilement émerge à une position cohérente avec un site de nucléation au point de contrainte résolue maximum au moment du pop-in. L'activation de sources de type Frank-Read ne peut donc pas être envisagée. De plus, dans la plupart des cas les nouvelles dislocations nucléées par indentation et celles introduites par clivage évoluent dans des plans parfaitement distincts qui ne se croisent pas.

Différentes propositions ont été avancées pour expliquer la corrélation entre la présence d'une dislocation préexistante et la nucléation de nouvelles dislocations lors d'un pop-in. Tout d'abord la modification locale du champ de contrainte de l'indenteur apportée par la dislocation préexistante, même si nous avons vu que le champ de contrainte associé aux dislocations préexistantes devient négligeable devant celui de l'indenteur dès que l'on s'éloigne d'une centaine de nanomètres de la dislocation. Une autre proposition est l'effet du champ de contrainte associé à la propagation de la dislocation. Il a été vu que ce champ dépend de la vitesse de propagation de la dislocation, et que sous forte contrainte (plusieurs gigapascals) la dislocation atteint très vite une vitesse de propagation limite proche de la vitesse du son.



## Références bibliographiques

- [1] A. A. Zbib et D. F. Bahr, "Dislocation nucleation and source activation during nanoindentation yield points," *Metallurgical and Materials Transactions A: Physical Metallurgy and Materials Science*, vol. **38**, n°. 13, p. 2249, 2007.
- [2] J. J. Gilman, "Nucleation of dislocation loops by cracks in crystals," *Journal of Metals*, vol. **212**, n°. 310, p. 449-454, 1957.
- [3] J. J. Gilman, C. Knudsen, et W. P. Walsh, "Cleavage Cracks and Dislocations in LiF Crystals," *Journal of Applied Physics*, vol. **29**, n°. 4, p. 601, 1958.
- [4] J. L. Robins, T. N. Rhodin, et R. L. Gerlach, "Dislocation Structures in Cleaved Magnesium Oxide," *Journal of Applied Physics*, vol. **37**, n°. 10, p. 3893, 1966.
- [5] A. S. Argon, "Brittle to ductile transition in cleavage fracture," *Acta Metallurgica*, vol. **35**, n°. 1, p. 185-196, 1987.
- [6] S. J. Burns et W. W. Webb, "Fracture Surface Energies and Dislocation Processes during Dynamical Cleavage of LiF. II. Experiments," *Journal of Applied Physics*, vol. **41**, n°. 5, p. 2086, 1970.
- [7] S. J. Burns et W. W. Webb, "Fracture Surface Energies and Dislocation Processes during Dynamical Cleavage of LiF. I. Theory," *Journal of Applied Physics*, vol. **41**, n°. 5, p. 2078, 1970.
- [8] A. J. Forty, "The generation of dislocations during cleavage," *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. **242**, n°. 1230, p. 392-399, 1957.
- [9] J. Rice, "Dislocation nucleation from a crack tip: An analysis based on the Peierls concept," *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, vol. **40**, n°. 2, p. 239-271, 1992.
- [10] Y. Gaillard, "Initiation de la plasticité sous nanoindentation dans MgO et LiF : étude de l'organisation des dislocations et des contraintes associées," *Thèse de Doctorat*, Université de Poitiers, 2004.
- [11] C. Tomas, Y. Gaillard, et J. Woïrgard, "Nucleation of dislocations during nanoindentation in MgO," *Philosophical Magazine*, vol. **86**, n°. 33, p. 5595, 2006.
- [12] Y. Gaillard, C. Tomas, et J. Woïrgard, "Quantitative analysis of dislocation pile-ups nucleated during nanoindentation in MgO," *Acta Materialia*, vol. **54**, n°. 5, p. 1409, 2006.
- [13] Y. Gaillard, C. Tomas, et J. Woïrgard, "Study of the dislocation structure involved in a nanoindentation test by atomic force microscopy and controlled chemical etching," *Acta Materialia*, vol. **51**, n°. 4, p. 1059, 2003.
- [14] W. G. Johnston et J. J. Gilman, "Dislocation Velocities, Dislocation Densities, and Plastic Flow in Lithium Fluoride Crystals," *Journal of Applied Physics*, vol. **30**, n°. 2, p. 129, 1959.
- [15] J. P. Hirth et J. Lothe, "Chapitre 7 : Dislocation dynamics," in *Theory of dislocations*, 2 éd., New York: John Wiley and Sons, 1982.



---

## **Chapitre 5**

# **Simulation multi échelle de l'essai de nanoindentation dans MgO**

**Sommaire :**

<b>1. Introduction .....</b>	<b>151</b>
<b>2. Les outils numériques .....</b>	<b>152</b>
2.1. <i>Historique.....</i>	<i>152</i>
2.2. <i>DDD : Discrétisation du système.....</i>	<i>153</i>
2.3. <i>Cinétique des dislocations .....</i>	<i>154</i>
2.4. <i>Maillage par éléments finis / Calculs des contraintes .....</i>	<i>156</i>
2.5. <i>Conditions limites et couplage DDD et FEM .....</i>	<i>157</i>
2.6. <i>Indentation .....</i>	<i>158</i>
2.7. <i>Nucléation de dislocations .....</i>	<i>158</i>
<b>3. Cas de boucles de dislocations dans un plan émergeant sous le contact : validation du modèle numérique .....</b>	<b>159</b>
3.1. <i>Exploration du champ de contrainte.....</i>	<i>159</i>
3.3. <i>Boucles de dislocations dans un plan émergeant sous le contact.....</i>	<i>161</i>
3.2. <i>Ajustement de la force de friction de réseau.....</i>	<i>162</i>
<b>4. Cas de boucles de dislocations dans un plan émergeant à l'extérieur du contact .....</b>	<b>163</b>
4.1. <i>Peu de dislocations émergées .....</i>	<i>164</i>
4.2. <i>Émergence d'un grand nombre de dislocations.....</i>	<i>167</i>
<b>5. Mise en mouvement d'une dislocation préexistante sous l'indenteur.....</b>	<b>172</b>
<b>Références bibliographiques .....</b>	<b>177</b>

# Chapitre 5

## Simulation multi échelle de l'essai de nanoindentation dans MgO

### 1. Introduction

Les expériences menées au long des chapitres précédents se prêtent particulièrement bien à la modélisation. L'utilisation d'un indenteur sphérique, les faibles densités de dislocations ainsi que la résolution individuelle des dislocations sont des atouts pour l'utilisation de modèles numériques. Ce type d'expériences a d'ailleurs déjà donné lieu à des simulations à deux dimensions dans MgO. Par exemple, Gaillard *et al.* [1] ont modélisé la relaxation d'un empilement de dislocation afin de déterminer la force de friction de réseau s'exerçant sur une dislocation. Toutefois, il est difficile de rendre compte du champ de contrainte complexe de l'indenteur. Les résultats rapportés dans les chapitres précédents ont permis de formuler plusieurs hypothèses qui nécessitent d'être éprouvées. Les outils de simulation peuvent nous permettre de répondre à ces interrogations en étudiant le comportement individuel de dislocations dans le champ de contrainte de l'indenteur.

Les simulations 3D à petite échelle (atomique), comme la dynamique moléculaire, ne permettent de s'intéresser qu'à des volumes de quelques centaines de nanomètres de côté et aux propriétés élémentaires des dislocations (nucléation, jonction, ...). Par exemple, un cristal de seulement 100 nm de côté contient déjà une centaine de millions d'atomes. L'utilisation de la dynamique moléculaire pour simuler des boucles de dislocations de plusieurs microns ne serait donc pas raisonnable en termes de temps de calcul.

A l'inverse, une simulation à plus grande échelle (macroscopique), par exemple par la méthode des éléments finis (FEM), ne permet pas de tenir compte, cette fois-ci, du comportement individuel de chacune des dislocations et de leurs interactions. Le volume simulé est traité comme un milieu continu et les mécanismes fins de plasticité sont alors inaccessibles.

L'échelle intermédiaire (mésoscopique) accessible par dynamique de dislocations (DDD), autorise l'étude des comportements collectifs d'un nombre important de dislocations dans des volumes de l'ordre de quelques dizaines de microns cubes. Dans cette description, les dislocations sont considérées individuellement tandis que le milieu dans lequel elles évoluent est traité comme un milieu élastique continu. Cependant, afin de tenir compte des effets de cœur, des règles locales sont ajoutées, notamment pour l'annihilation et la recombinaison de segments d'orientations opposées. Dans le cas d'un chargement complexe comme celui d'un essai de nanoindentation, la résolution du problème des contraintes n'est pas triviale et peut être résolue par la méthode des éléments finis (FEM). Les simulations décrites dans la suite de ce chapitre font appel à un couplage entre un code de dynamique de dislocations (Tridis) et un code de calcul par éléments finis (CAST3M) qui gère les contraintes.

## 2. Les outils numériques

### 2.1. Historique

Le développement des codes numériques, motivé par la compréhension des comportements collectifs des dislocations, remontent aux années 80. Ces premiers codes bidimensionnels ne permettaient pas de tenir compte de toutes les interactions [2-4].

Au début des années 1990, sous l'initiative de Kubin et Canova [5], le premier code de simulation 3D a été développé avec pour objectif de simuler des volumes de taille inaccessible par dynamique moléculaire. Le passage de deux à trois dimensions permet de rendre compte de l'ensemble des interactions entre dislocations et de simuler de façon plus réaliste les comportements expérimentaux observés. Plus tard, ce code s'est développé pour évoluer vers une simulation de dynamique des dislocations, basée sur le modèle vis-coin.

Différents codes de dynamique des dislocations sont apparus ces dernières années. Celui que nous avons utilisé (Verdier *et al.* [6]) avait été initialement développé pour l'étude de la plasticité dans les structures cubiques à faces centrées [7-10]. Ce code a été adapté à la structure de MgO et aux problématiques spécifiques imposées par notre étude. J'ai pu me former à son utilisation et aux moyens de la modifier grâce à l'aide de Marc Fivel\*.

---

\* SIMAP-GPM2, 101 rue de la Physique, BP 46, 38 402 St Martin d'Hères

Une description complète des détails et du principe du couplage DDD et éléments finis sont présentés de façon approfondie dans plusieurs études [6, 11-13], nous rapporterons ici les éléments principaux de fonctionnement de ce code.

### 2.2. DDD : Discrétisation du système

La simulation est basée à la fois sur la discrétisation du temps, de l'espace et du caractère des dislocations. Les segments de dislocations se déplacent alors, pas par pas, sur les nœuds d'un réseau nanométrique. La définition du réseau nanométrique permet d'établir une longueur d'échelle, en dessous de laquelle les propriétés des dislocations ne peuvent plus être décrites par la seule théorie élastique, et où l'on définit des lois locales pour décrire les interactions entre segments.

#### *Espace*

L'espace réel de  $30 \times 30 \times 15 \mu\text{m}^3$  est représenté sous forme d'un réseau discret de  $10.000 \times 10.000 \times 5.000$  nœuds dont les axes **X**, **Y** et **Z** correspondent respectivement aux directions cristallographiques [100], [010] et [001]. Le pas de ce réseau discret est défini par rapport à la distance critique d'annihilation, en deçà de laquelle deux segments de signes opposés ne peuvent pas coexister. Classiquement le pas du réseau discret est pris égal à une dizaine de fois la norme  $b$  du vecteur de Burgers, ce qui pour le cas de MgO correspond à un pas d'une trentaine d'angströms. Le choix d'une telle valeur du paramètre de maille pour le réseau discret, permet de s'affranchir des effets de cœur et de traiter le problème par la théorie élastique.

#### *Dislocations*

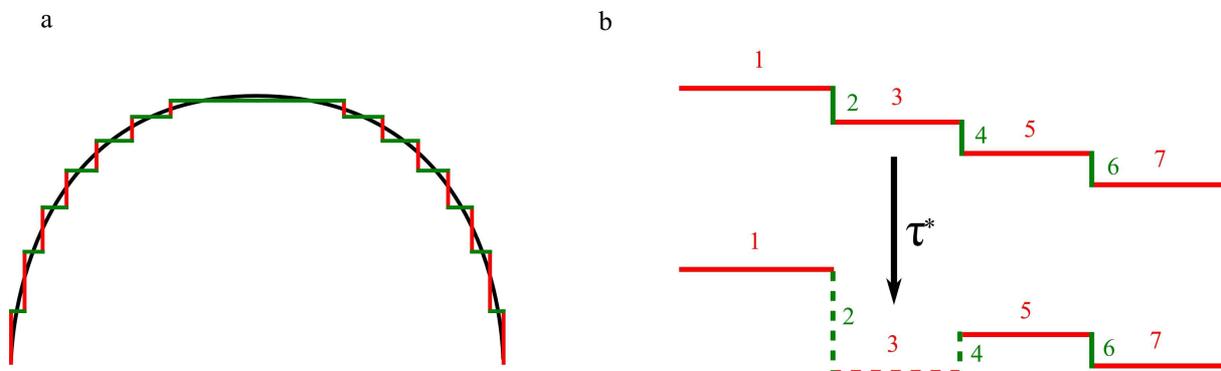


Figure 5-1. : (a) Discrétisation des dislocations en segments coin et vis, (b) glissement du segment 3, la norme est conservée et la longueur des segments voisins est ajustée.

Comme l'indique le schéma 5-1.a, les lignes de dislocations sont discrétisées en segments connectés les uns aux autres. Les extrémités des segments sont placées aux nœuds du réseau discret. Dans les cas simples de simulation de réseaux cubiques il est possible de n'utiliser que des segments de caractère vis ou coin. Ces segments étant orthogonaux entre eux, leurs déplacements en sont grandement simplifiés ; lorsqu'un segment se déplace, il suffit d'allonger les deux segments auxquels il est connecté (figure 5-1.b).

Les directions de ligne et les vecteurs de Burgers des segments sont définis en accord avec le réseau discret et la cristallographie du matériau.

### 2.3. Cinétique des dislocations

L'essai d'indentation est simulé pas par pas, de façon quasi-statique. Le mouvement de la ligne de dislocation est décomposé en une succession de sauts de chaque segment. La cinétique du mouvement d'un segment dépend de la contrainte effective  $\tau^*$  vue par ce segment. La contrainte effective locale trouve son origine dans plusieurs contributions :

- $\tau_{Peierls}$  : la friction de réseau qui provient des forces de Peierls. Cette contrainte est matérialisée par une cission critique en dessous de laquelle aucun mouvement de dislocation n'est possible. Dans le cadre de cette simulation elle est égale à 25 MPa pour les segments coins et vis (voir paragraphe 3.2. de ce chapitre).
- $\tau_l$  : la tension de ligne engendrée par le déplacement du segment concerné. Cette cission fait intervenir le gradient de l'énergie de ligne provoqué par l'allongement des deux segments voisins du segment en mouvement.
- $\sigma_{int}$  : le tenseur des contraintes internes engendrées par tous les autres segments de dislocations sur le segment en mouvement, calculé à partir des expressions de De Wit [14] modifiées par Devincre et Condat [15].
- $\sigma_{ext}$  : le tenseur des contraintes externes dues au contact de l'indenteur calculé par éléments finis.
- $\sigma_{im}$  : le tenseur des contraintes images dues à la présence de surfaces libres. Il reflète la prise en compte des conditions limites.

Pour  $N$  segments de dislocations, le nombre total d'interactions nécessaires au calcul de  $\sigma_{int}$  est de  $N^2-N$  pour chaque pas. Afin d'optimiser le temps de calcul, le champ de contrainte est supposé peu varier à longue distance dans le temps et l'espace. Le réseau discret est

subdivisé en petits cubes, dans lesquels la contrainte à longue distance est calculée au centre du cube et appliquée à l'ensemble des segments présents dans ce cube.

La contrainte effective projetée qui s'exerce sur un segment de dislocations de vecteur de Burgers  $\vec{b}$  et de vecteur de ligne  $\vec{l}$  est calculée en utilisant la formule de Peach et Koehler :

$$\tau = \left\{ \left[ \left[ \overset{=}{\sigma}_{int} + \overset{=}{\sigma}_{ext} + \overset{=}{\sigma}_{im} \right] \cdot \frac{\vec{b}}{b} \right] \wedge \vec{l} \right\} \cdot \vec{u} + \tau_l$$

Où :  $\vec{u}$  est le vecteur unitaire perpendiculaire à la ligne de glissement et  $b$  la norme du vecteur de Burgers.

En tenant compte de la force de friction de réseau :

$$\tau^* = \tau - \text{signe}(\tau) \cdot \tau_{Peierls}$$

La tension de ligne  $\tau_l$  est calculée à partir du rayon de courbure locale  $\rho$  de la ligne de dislocation. Dans les faits, le rayon de courbure d'un segment est déterminé à partir du rayon du cercle passant par le centre de ce segment et de celui de ses deux plus proches voisins (voir schéma 5-1.a). A partir des formulations de De Wit [14] la tension de ligne s'écrit :

$$|\tau_l| = \frac{\alpha G b}{\rho}$$

Où :  $G$  est le module de cisaillement (132 GPa pour MgO) et  $\alpha$  un coefficient dépendant du coefficient de Poisson.

L'évolution de la forme d'équilibre des dislocations est déterminée pas par pas. Le pas de temps doit être adapté en fonction de la mobilité des dislocations, afin que les segments parcourent une distance raisonnable entre chaque pas. Dans le cas de MgO cela correspond à un pas de temps de  $7.10^{-11}$  s. La vitesse  $v$  d'un segment est donnée par :

$$v = \frac{\tau^* b}{B}$$

Où :  $B$  est le coefficient de viscosité ( $9.10^{-5}$  Pa.s pour MgO).

Connaissant la vitesse de déplacement, il est alors aisé de déterminer l'amplitude du saut de déplacement du segment pour un pas de temps donné.

## 2.4. Maillage par éléments finis / Calculs des contraintes

Le problème des contraintes (de l'indenteur et des forces images) est résolu par la méthode des éléments finis (FEM) à l'aide du code CAST3M (développé et distribué gracieusement par le CEA). Le problème, traité en élasticité linéaire, donne la répartition des contraintes dans le matériau.

L'utilisation d'un code d'éléments finis pose toujours le dilemme entre un temps de calcul raisonnable et une bonne résolution des contraintes. Le problème auquel nous sommes confrontés dans le cas d'une simulation d'un essai d'indentation présente une double difficulté. Il faut que la simulation gère à la fois des champs de contrainte très étendus (plusieurs microns) et des gradients de contrainte très importants à proximité du contact. Compte tenu du problème à résoudre, nous avons fait le choix d'utiliser un maillage éléments finis très dense à proximité du contact et beaucoup plus lâche dans le reste du volume (figure 5-2.).

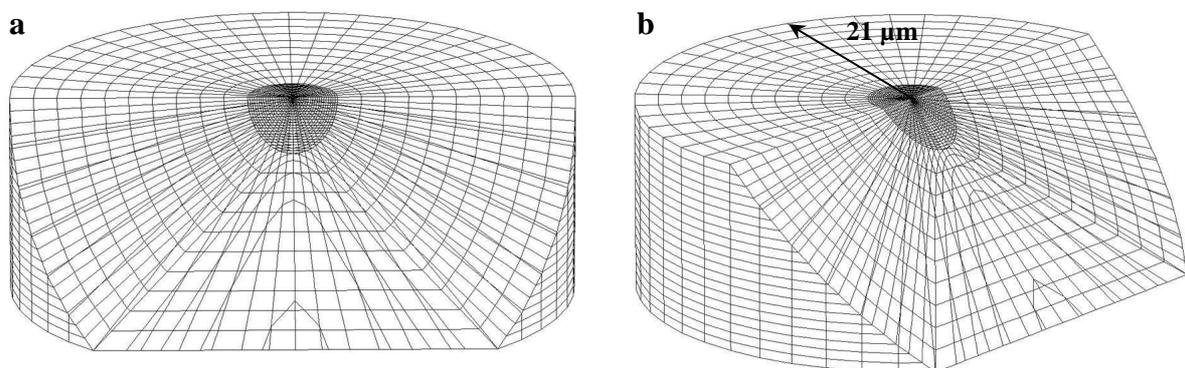


Figure 5-2. : Maillage des éléments finis, (a) vue de face, (b) vue de 3/4.

Cependant ce choix conduit à un maillage présentant des problèmes de continuité. La figure montre une coupe du maillage dans le plan à 45° de la surface et passant par le point de contact. Le maillage présente clairement des différences de densité dans ce type de plan.

Cet effet sera parfois visible sur le champ de contrainte, sans être *a priori* problématique, compte tenu de son éloignement du contact et du très faible gradient de contrainte dans cette zone.

## 2.5. Conditions limites et couplage DDD et FEM

Les conditions limites s'exerçant sur le volume éléments finis sont présentées figure 5-3. Deux conditions sont appliquées sur la face supérieure (figure 5-3.a) :

- une aire circulaire, correspondant au contact, où est appliqué le chargement de Hertz ( $F^H$ )
- l'aire complémentaire qui n'est soumise à aucune contrainte

Pour les nœuds des 5 autres faces le déplacement normal est imposé à zéro. Dans le code de DDD, les dislocations ne peuvent franchir que la face supérieure du cube dans le sens  $+Z$ , le sens inverse leur est interdit.

La méthode de superposition consiste à déterminer le champ de contrainte  $\sigma$  d'un problème complexe (figure 5-3.a) comme la somme de deux champs  $\hat{\sigma}$  et  $\tilde{\sigma}$ . La présence de dislocations dans un milieu infini crée un champ de contrainte  $\hat{\sigma}$  partout dans le volume (figure 5-3.b). Dans ce cas, les segments produisent alors une force  $F^D$  sur la surface libre. Le second champ  $\tilde{\sigma}$ , est la solution du problème élastique dans lequel le chargement élastique appliqué correspond au chargement désiré auquel est soustrait celui créé par les dislocations ( $F^D$ ) (figure 5-3.c). Le champ de contrainte  $\tilde{\sigma}$ , calculé par éléments finis, est la superposition du champ de contrainte externe  $\sigma_{ext}$  et celui dû aux forces image  $\sigma_{im}$ . Le champ résultant  $\tilde{\sigma}$ , est réinjecté dans le code DDD pour être appliqué aux segments des dislocations.

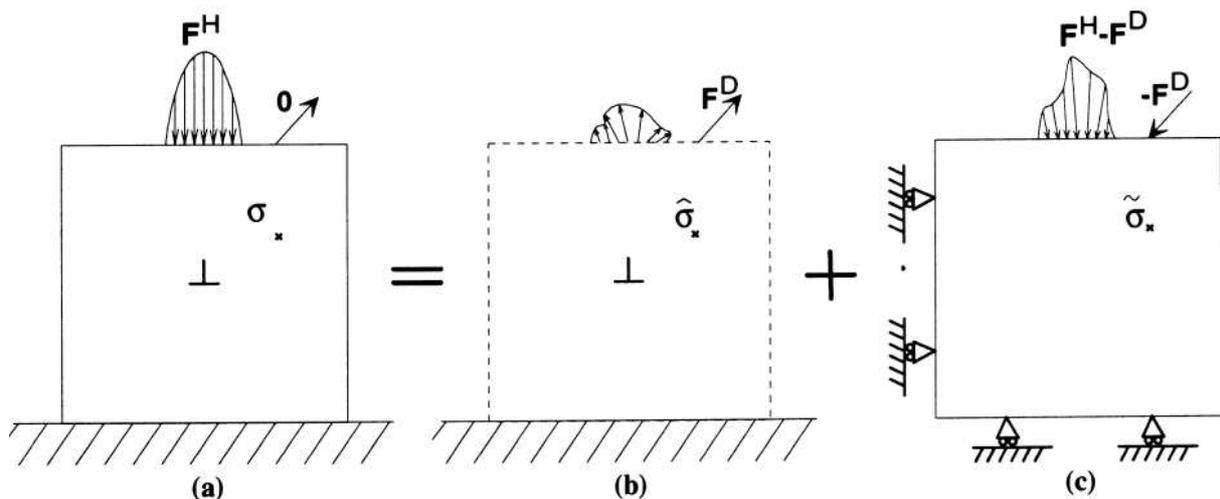


Figure 5-3. : Conditions limites et principe de superposition appliqués au problème de nanoindentation :  $\sigma = \hat{\sigma} + \tilde{\sigma}$ . (a) Problème à résoudre : déterminer le champ de contrainte résultant  $\sigma$  d'un chargement hertzien ( $F^H$ ) appliqué sur un volume contenant des dislocations. (b) Les dislocations dans un milieu infini génèrent la force  $F^D$  en surface et le champ de contrainte  $\hat{\sigma}$  dans le volume. (c) Les conditions limites sont vérifiées pour un chargement  $F^H-F^D$  et un champ de contrainte  $\tilde{\sigma}$ , Fivel *et al.* (1998) [12].

### 2.6. Indentation

La gestion du chargement est réalisée à partir de la distribution de pression donnée par Hertz dans le cas d'un contact élastique sphère plan (voir chapitre 2-1.1.) :

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

Où :  $p_0$  est la pression de contact maximum et  $r_c$  le rayon de contact

La force correspondante à appliquer sur l'indenteur pour atteindre une pénétration  $h$ , est :

$$F = \frac{4}{3} E^* R^{1/2} h^{3/2}$$

Le chargement est piloté à partir de la profondeur de pénétration. Deux configurations ont été envisagées pour ces simulations. Soit un chargement maximal est appliqué dès le début de la simulation, soit la profondeur de pénétration  $h$  augmente progressivement. Dans ce dernier cas, les incréments de  $h$  ont été choisis afin de reproduire un essai à chargement linéaire (tel qu'effectué expérimentalement). Dans tous les cas, le retrait progressif de l'indenteur est géré de la même manière.

### 2.7. Nucléation de dislocations

Il est entendu par nucléation, les critères d'introduction de dislocations et non les mécanismes conduisant à la formation d'une dislocation. Classiquement, lors de simulation en DDD, l'introduction de dislocation se fait sur un critère de contrainte : une dislocation est introduite au point de l'espace où la contrainte atteint une valeur critique. Nous avons choisi une autre approche, dans laquelle nous programmons l'instant et le site de nucléation. Cette solution permet de tenir compte des observations expérimentales où par exemple, la nucléation d'empilement est observée dans un plan qui ne contient pas le maximum de contraintes. Toutefois les dislocations sont introduites au maximum local du plan considéré. Les boucles de dislocations introduites sont des boucles mobiles de forme carrée (constituées de quatre segments) dont le côté est de l'ordre du dixième de rayon de contact au moment de la nucléation (soit quelques dizaines de nanomètres).

Entre chaque pas de chargement FEM (modification de la profondeur de pénétration  $h$ ), suffisamment de pas DDD sont réalisés afin d'atteindre l'équilibre de la structure de

dislocations (quasistatique). Cela se justifie au regard de la vitesse très élevée des dislocations comparée à celle de l'indenteur.

### 3. Cas de boucles de dislocations dans un plan émergeant sous le contact : validation du modèle numérique

Dans cette partie nous nous attacherons, dans un premier temps, à décrire la carte des contraintes dans différents plans de glissement. Puis nous déterminerons une valeur de friction de réseau en mettant en vis-à-vis les observations expérimentales avec leurs modèles numériques. Enfin, nous présenterons les résultats de modélisations réalisées dans les cas simples de nucléation d'une puis de vingt boucles de dislocations au point de contrainte résolue sur  $\langle 110 \rangle_{45}$  maximum, c'est-à-dire comme dans le cas d'une nucléation au moment du pop-in. Ces cas correspondent aux observations expérimentales très largement décrites dans la littérature [1, 16-18]. Le comportement de telles boucles de dislocations est parfaitement connu et nous permettra de valider le code de simulation.

#### 3.1. Exploration du champ de contrainte

La figure 5-4. montre le champ de contrainte dans différents plans de coupe obtenu pour une pénétration de 310 nm (soit un chargement de 200 mN). L'analyse du champ de contrainte est valable pour d'autres profondeurs de pénétration et n'est pas spécifique au cas particulier que nous présentons ici. Les coupes sont réalisées dans les plans de glissement de type  $\{110\}_{45}$ . Les distances reportées en légende sont exprimées en fonction du rayon de contact (ici 1,8  $\mu\text{m}$ ) et correspondent à la distance entre l'axe d'indentation et l'émergence en surface du plan.

L'échelle de couleur définie pour les contraintes, attribue les couleurs froides aux contraintes négatives qui empêchent la croissance des boucles, et les couleurs chaudes aux contraintes positives qui favorisent l'extension des boucles de dislocations. Les différents plans de glissement peuvent être classés en deux catégories : ceux où le champ de contrainte permet aux dislocations d'émerger en surface (figure 5-4.a à c) et ceux où la présence d'une barrière de contrainte négative empêche l'accès de la surface aux dislocations (figure 5-4.d à h). La limite entre les deux catégories est donnée par le cercle de contact (figure 5-4.c).

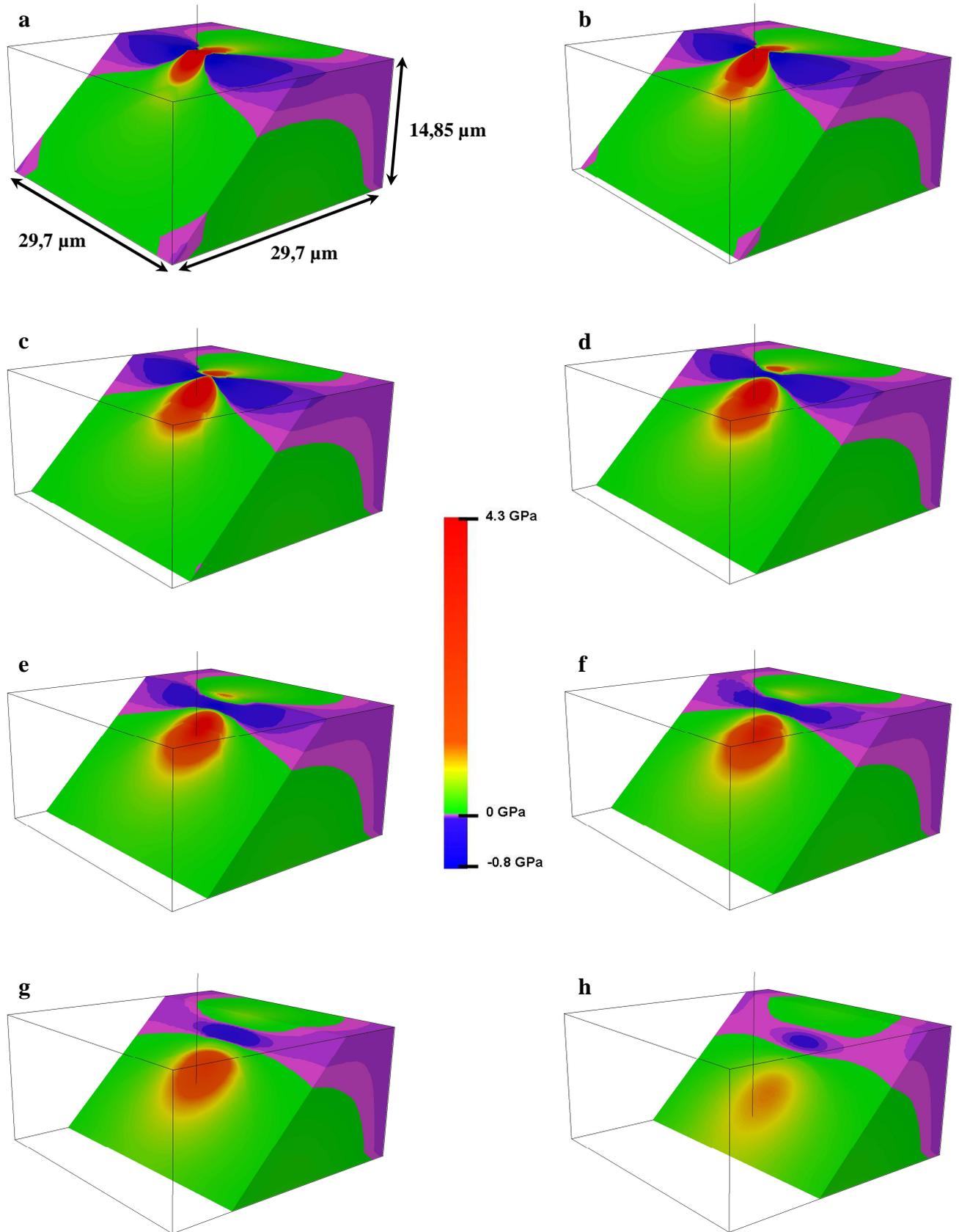


Figure 5-4. : Contraintes projetées sur  $\langle 110 \rangle \{110\}_{45}$  pour une pénétration de 310 nm avec SPH1, observé dans différents plans de coupe ; distance du plan de coupe à l'axe (a)  $0.r_c$ , (b)  $0,5.r_c$ , (c)  $1.r_c$ , (d)  $1,5.r_c$ , (e)  $2.r_c$ , (f)  $2,5.r_c$ , (g)  $3,5.r_c$ , (h)  $5,5.r_c$ .

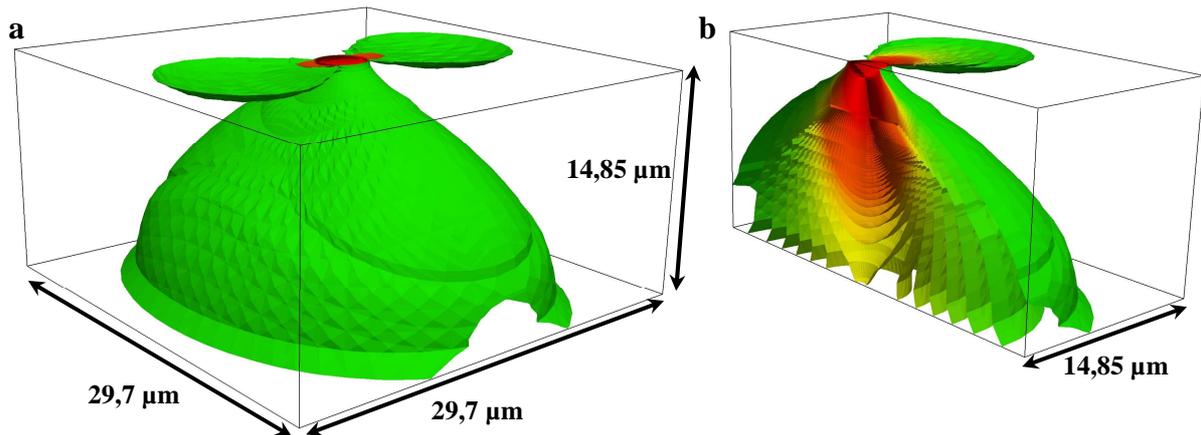


Figure 5-5. : Poche positive des contraintes projetées sur  $\langle 110 \rangle \{110\}_{45}$  dans le cas d'une pénétration de 310 nm, (a) vue d'ensemble, (b) vue en coupe des 200 profils d'isocontrainte.

La figure 5-5. représente la poche des contraintes positives, favorable à l'extension des boucles de dislocations.

### 3.2. Boucles de dislocations dans un plan émergeant sous le contact

Nous allons tout d'abord nous intéresser à l'équilibre d'une unique boucle de dislocation, introduite au point de contrainte projetée maximum. La force de friction utilisée est celle déterminée par Gaillard *et al.* [1] à partir de la modélisation à deux dimensions de la relaxation d'un empilement, soit 75 MPa. La figure 5-7.a montre que sous chargement maximal la forme d'équilibre de la boucle épouse le profil du champ de contrainte et émerge en surface, sous le contact. Les zones de contraintes positives (en couleurs chaudes) favorisent l'extension de la boucle. Tandis que les contraintes négatives (en couleurs froides), au contraire poussent la boucle à se refermer sur elle-même. La boucle est très nettement contenue par les contraintes négatives à proximité de la surface, ce qui limite son extension latérale sous chargement maximum (figure 5-7.b). Lors de la décharge la forme d'équilibre de la demi-boucle de dislocation n'évolue quasiment pas, on observe juste un léger relâchement au niveau de l'étranglement de surface. La demi-boucle prend alors la forme d'un « U ».

Lorsque que plusieurs dislocations sont introduites (figure 5-7.c et 5-7.d) l'ensemble de l'empilement s'équilibre autour du maximum de contrainte. Dans cette configuration la contrainte d'empilement vient se rajouter à celle de l'indenteur. Poussées par ce surplus de contrainte, les dislocations s'équilibrent dans une configuration plus étendue.

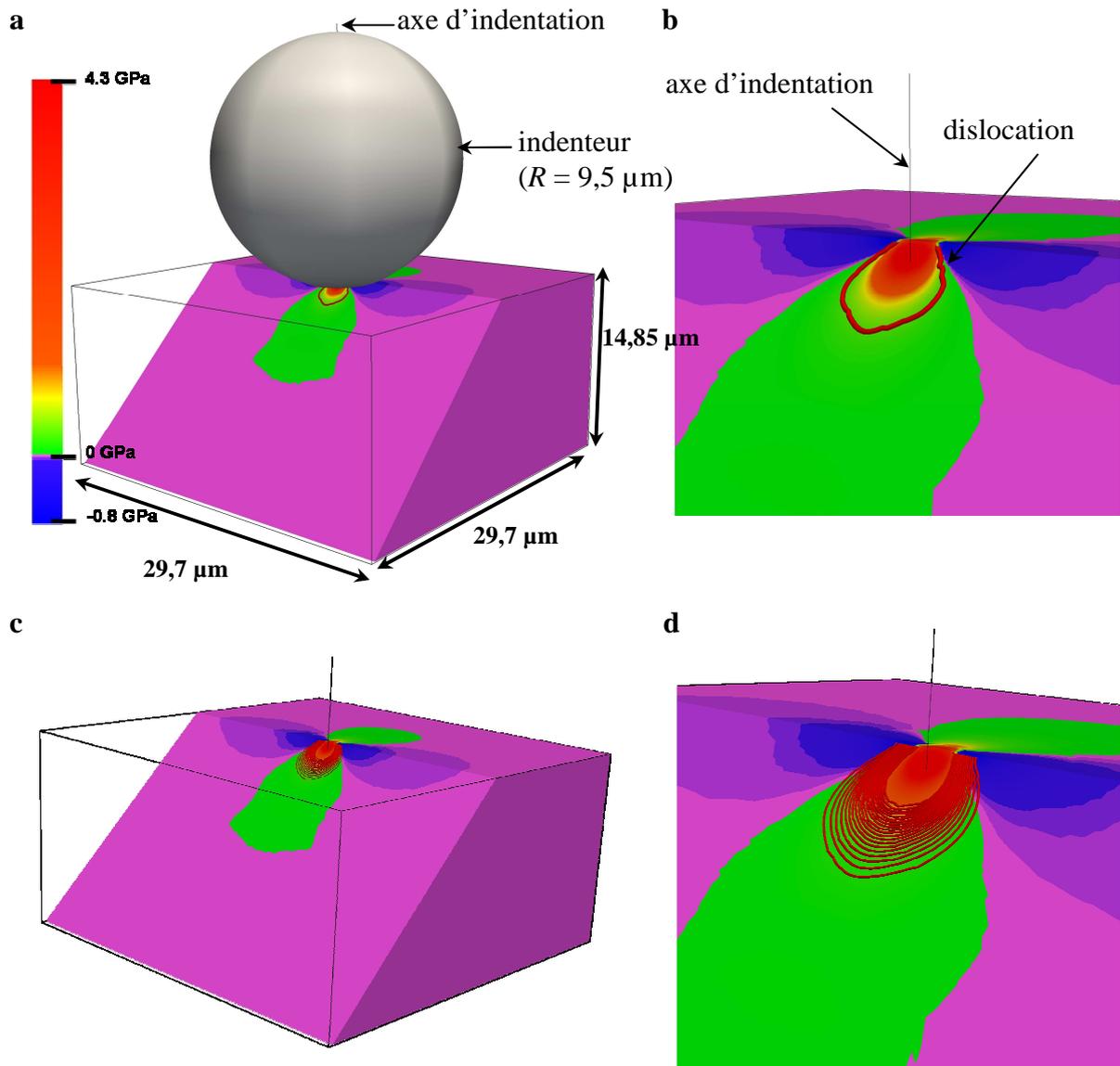


Figure 5-7. : Pénétration de 55 nm et nucléation d'une boucle au point du maximum des contraintes projetées sur  $\langle 110 \rangle \{110\}_{45}$ , (a) vue d'ensemble, (b) détail, nucléation de 40 boucles (c) vue d'ensemble, (d) détail.

### 3.3. Ajustement de la force de friction de réseau

Un des paramètres qui influe fortement sur la forme d'équilibre des boucles de dislocations est la force de friction de réseau (paragraphe 2.4. de ce chapitre). Ici nous souhaitons optimiser au mieux sa valeur afin d'obtenir les configurations finales les plus proches de celles observées expérimentalement. Compte tenu de la difficulté à déformer plastiquement MgO à température ambiante, relativement peu d'études ont été menées pour déterminer une force de friction de réseau à cette température. Afin de travailler avec une force de friction de réseau traduisant le plus fidèlement le comportement des dislocations, nous avons choisis de modéliser un empilement de dislocation et d'adapter la valeur de  $\tau_{Peierls}$

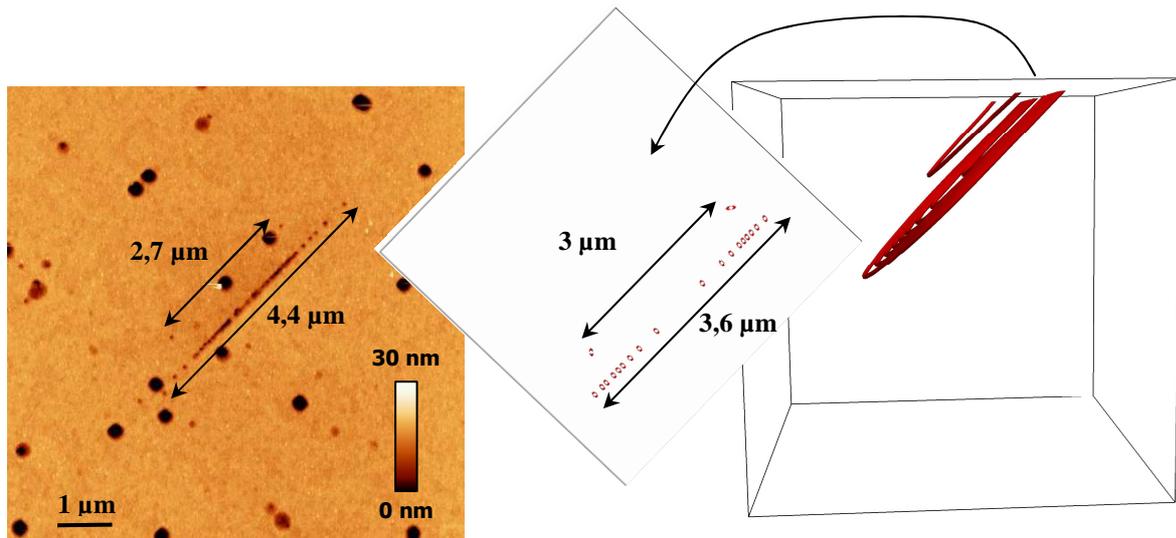


Figure 5-6. : (a) Observation par AFM de l’empreinte 108 après la seconde attaque chimique, (b) modélisation de l’empilement, (c) vue de dessus des points d’émergence des dislocations.

pour que le résultat de la modélisation soit en accord avec les observations expérimentales. L’empreinte de référence est la 108 qui présente un empilement de dislocations ainsi qu’une boucle préexistante qui s’est équilibrée dans le champ de contrainte de l’indenteur. Dans le cas expérimental de l’empreinte 108 la valeur de la force de friction de réseau influe finalement assez peu sur la forme finale de la boucle de dislocation car elle est soumise à de très forts gradients de contraintes. L’effet sera plus visible dans des plans éloignés du contact, là où les gradients de contraintes sont beaucoup plus faibles.

La modélisation de l’empreinte 108 présentée figure 5-6.b et 5-6.c a été réalisée avec une force de friction de réseau de 25 MPa. La simulation reproduit correctement à  $\pm 20\%$  la longueur des empilements observés expérimentalement (figure 5-6.a). Ce chiffre n’a pas de valeur générale et, est seulement la friction de réseau, qui dans le cas du modèle que nous utilisons, produit un résultat analogue aux observations expérimentales.

#### 4.Cas de boucles de dislocations dans un plan émergeant à l’extérieur du contact

Dans les précédents chapitres, nous avons fait l’hypothèse qu’il était possible d’avoir des boucles de dislocations en équilibre dans le champ de contrainte de l’indenteur, et qui ne débouchent pas en surface [19]. Cette hypothèse se justifie par la présence, dans certains plans, d’une barrière de contrainte négative qui interdit aux dislocations d’accéder à la surface (figure 5-4.). Nous avons également proposé qu’au cours de la décharge, l’évolution du

champ de contrainte assisté de la contrainte d'empilement, draine les dislocations et les pousse à se refermer sur elles-mêmes.

L'utilisation du code DDD nous permet de tenir compte de l'évolution réelle du champ de contrainte au cours de la décharge et des interactions entre les dislocations.

Dans cette partie nous nous attacherons à simuler des configurations qui ont été observées et détaillées dans les chapitres précédents.

### 4.1. Peu de dislocations émergées

Nous commencerons par l'empreinte détaillée au chapitre 3-3.1.2. et rappelée figure 5-8. Pour rappel, il s'agit d'une empreinte réalisée à très forte charge (200 mN) et dont le cycle d'indentation est parfaitement réversible. L'observation AFM de la surface a révélé l'émergence hors contact de trois dislocations dans trois plans distincts. La figure 5-8.b est une représentation schématique de la configuration de l'essai d'indentation, seul est représenté le plan de glissement de la dislocation indiqué par une flèche creuse sur la figure 5-8.a.

Les paramètres de la simulation sont calqués sur les observations expérimentales : à chargement maximal (200 mN) les boucles de dislocations sont introduites au point maximum de contrainte résolue de leur plan d'observation qui est le plan  $\{110\}_{45}$  convergent et qui

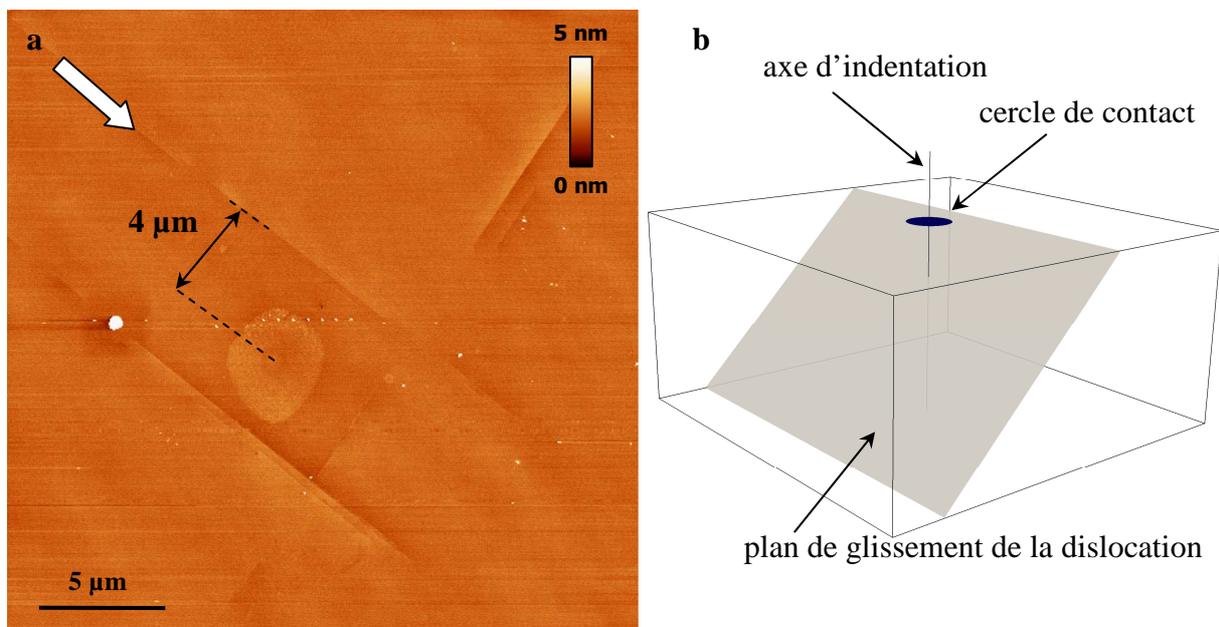


Figure 5-8. : (a) Image AFM d'une zone indentée après un essai d'indentation à forte charge (200 mN) présentant un comportement parfaitement réversible, (b) représentation schématique de l'essai d'indentation.

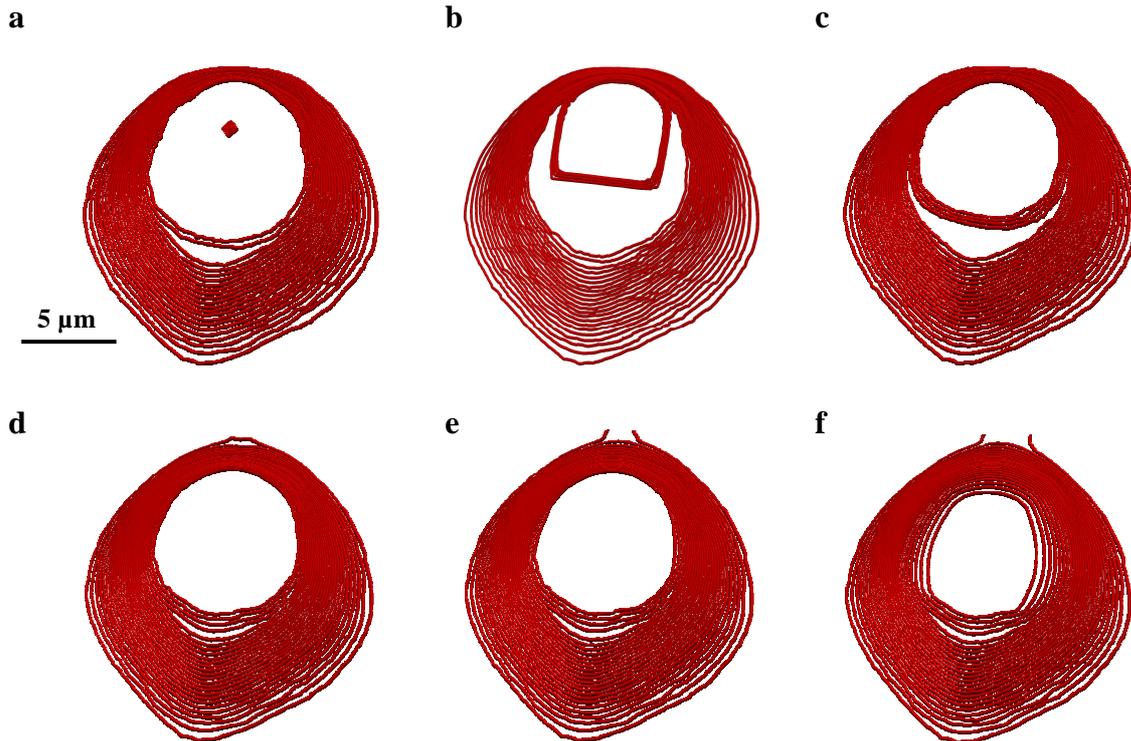


Figure 5-9. : Evolution d'un empilement de 26 dislocations situées dans le plan de glissement observé expérimentalement figure 5-8., (a) nucléation des boucles,  $h = 310$  nm, (b) et (c) équilibre dans le champ de contraintes  $h = 310$  nm, (d) décharge  $h = 128$  nm, (e)  $h = 92$  nm, (f) retrait total de l'indenteur  $h = 0$  nm.

émerge à  $4 \mu\text{m}$  de l'axe d'indentation. La carte des contraintes dans ce plan est représentée figure 5-4.e. Tout d'abord lorsqu'une seule boucle de dislocation est introduite dans ce plan, elle s'équilibre dans le champ de contrainte de l'indenteur et ne débouche pas en surface. Le rayon d'équilibre de la boucle est d'une dizaine de microns. Ce comportement avait déjà été proposé à partir de l'étude de la carte des contraintes dans ce type de plan au chapitre 3. Lors de la décharge, la forme de la boucle n'évolue pas : les très faibles gradients de contrainte et la faible tension de ligne due au grand rayon de courbure ne permettent pas de vaincre la force de friction de réseau. Lorsque l'indenteur est totalement retiré la boucle de dislocation conserve sa forme et ne débouche pas en surface.

Si plusieurs boucles de dislocations sont introduites (jusqu'à 25), à chargement maximal, l'ensemble de l'empilement s'équilibre dans le champ de contrainte de l'indenteur et aucune dislocation n'émerge en surface. L'extension spatiale de l'empilement est plus importante que dans le cas d'une unique boucle : la contrainte d'empilement permet aux dislocations de tête de croître plus. En revanche, cet accroissement de taille est surtout visible sur les côtés et sur le bas des dislocations là où les gradients de contrainte sont faibles, le haut des dislocations reste toujours contenu par les très forts gradients de contrainte à proximité de

la surface. Au cours du retrait de l'indenteur les premières boucles nucléées n'évoluent pas, en revanche les dernières sous l'effet de la contrainte d'empilement se recroquevillent sur elles mêmes. On observe également une légère avancée des dislocations de tête à proximité du contact : grâce à la diminution de la barrière de contraintes négatives et sous l'effet de la contrainte d'empilement elles arrivent à progresser un peu plus vers la surface, mais sans émerger. A pénétration nulle, la totalité des dislocations introduites restent sous forme de boucles fermées et ne débouchent pas en surface.

Le cas limite de 26 boucles de dislocations introduites marque un changement dans le comportement à la décharge, ce cas est représenté figure 5-9. Vingt-six dislocations sont introduites toujours dans le même plan à chargement maximal (figures 5-9.a à c). Comme précédemment, sous l'effet des contraintes de l'indenteur, l'empilement s'équilibre sans qu'aucune dislocation n'émerge en surface. Cependant au cours de la décharge, l'intensité de la barrière de contrainte négative diminue ce qui permet à la dislocation de tête de progresser vers la surface (figure 5-9.d). Lorsque la barrière devient suffisamment faible, la dislocation de tête la franchit et émerge en surface (figure 5-9.e et 5-9.f). La diminution, cette fois-ci, des contraintes positives, cause le rétrécissement des dernières dislocations nucléées, poussées par la contrainte d'empilement (figure 5-9.f). La forme des premières dislocations introduites n'évolue pas (sauf pour la toute première qui émerge en surface) pour les mêmes raisons qu'au paragraphe précédent. Lorsque l'indenteur est totalement retiré (figure 5-9.f), c'est-à-dire à pénétration nulle, la majorité des dislocations introduites ne débouchent pas et seule une unique dislocation émerge en surface. La longueur de la marche formée par l'émergence de la première dislocation est, dans le modèle, de  $2\ \mu\text{m}$  ce qui est plus faible que les  $7\ \mu\text{m}$  observés expérimentalement (figure 5-8.a).

### ***Discussion***

Si, expérimentalement, la marche monoatomique observée après indentation ne laisse aucun doute quant au nombre de dislocations émergées (une seule), la modélisation numérique semble indiquer qu'il existe un certain nombre de boucles de dislocations non émergées sous la surface. La présence de cet empilement « invisible » par AFM permettrait en plus d'expliquer l'écart au comportement élastique observé sur les courbes réversibles à fortes charges (chapitre 3). Rappelons que l'écart à la loi de Hertz avait été mis en évidence pour tous les essais, y compris ceux ne présentant aucune trace de déformation résiduelle après indentation. La nucléation et le glissement de boucles de dislocations qui n'émergent pas

pendant la phase de déformation précédant le pop-in expliqueraient donc la déviation au comportement élastique et le fait qu'aucune ligne de glissement ne soit visible en surface.

Dans la simulation nous avons choisi d'introduire les dislocations dans un plan particulier sur la base des observations expérimentales. Mais nous pouvons nous interroger sur le critère de nucléation dans un plan si défavorable, c'est-à-dire avec des valeurs de contraintes plus faibles que dans le plan émergeant à 0,44 fois le rayon de contact.

Cette modélisation appuie les hypothèses qui avaient été formulées au chapitre 3, à savoir la possibilité, dans certains plans, d'avoir un empilement de boucles de dislocations dans le volume, dont seules quelques dislocations émergent en surface. Ce type de configuration qui avait été mis en évidence expérimentalement au chapitre 4-4.3.6. avec l'empreinte 120, va être modélisé dans le paragraphe suivant.

### 4.2. Émergence d'un grand nombre de dislocations

Nous allons maintenant nous intéresser au cas de l'empreinte 120 détaillée au chapitre 4-4.3.6. Le principal résultat de cet essai est que certaines dislocations n'émergent pas en surface et ne sont révélées qu'après décapage d'une fine couche d'échantillon. Cet essai est rappelé figure 5-10. On observe une ligne de glissement de 4 nm de hauteur (soit approximativement 20 dislocations émergées) éloignée de 1,4  $\mu\text{m}$  de l'axe d'indentation. A chargement maximal, soit 20 mN (soit 85 nm de pénétration), dans l'approximation d'un contact élastique le rayon de contact était de 920 nm. Sur la figure 5-10.b après un léger polissage de 120 nm et attaque chimique on observe une quarantaine de piqûres (2x20 dislocations) ce qui correspond aux observations expérimentales de surface. Après un

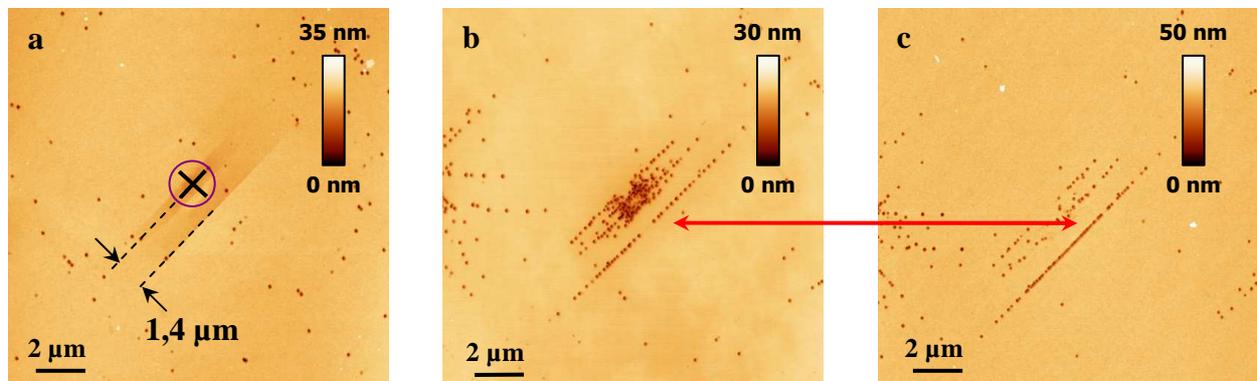


Figure 5-10. : Rappel du principal résultat de l'empreinte 120 : (a) en surface un empilement est situé loin de l'axe d'indentation ; en polissant, de nouveaux points d'émergence de dislocations sont révélés entre (b) 120 et (c) 1100 nm sous la surface d'indentation.

nouveau de polissage de 1 100 nm et attaque chimique, figure 5-10.c, on observe une augmentation de la densité de piqûres le long de cet empilement. Cela indique que les boucles centrales ne débouchaient pas en surface. L'analyse des différentes figures d'attaque réalisées après différents polissages nous montre que les dislocations se propagent dans un plan convergent qui repasse sous l'empreinte.

Les paramètres de la simulation sont calqués sur les observations expérimentales : le chargement maximal de 20 mN est appliqué au cristal. Les dislocations sont introduites au point de contrainte maximum du plan  $\{110\}_{45}$  qui repasse sous l'empreinte et qui émerge à 1,4  $\mu\text{m}$  du point de contact. Lorsque l'équilibre de la structure des dislocations est atteint, l'indenteur est progressivement retiré. Dans la modélisation nous ne traitons que le cas de l'empilement principal, isolé du reste de l'empreinte. De plus, tous les empilements de l'empreinte évoluent dans des plans parallèles (donc ne se croisent pas) ce qui ne permet pas d'interaction entre leurs dislocations respectives. En revanche cela nous oblige à négliger la déformation plastique associée aux dislocations sous le contact. Le chargement par un contact élastique sphère-plan n'est dans ce cas là qu'une approximation du contact réel.

Les résultats de la simulation sont présentés figure 5-11. et les cartes de contraintes associées aux différentes pénétrations sont représentées figure 5-12.

Trente cinq dislocations sont introduites progressivement et s'équilibrent dans le champ de contrainte de l'indenteur (figure 5-11.a). Au fur et à mesure des nouvelles nucléations, les dislocations s'empilent les unes contre les autres sans émerger en surface (figure 5-11.b). Ce phénomène est dû la présence d'une zone de contrainte négative qui agit comme une barrière à la propagation des dislocations (figure 5-12.a).

Cependant lorsque le nombre de dislocations devient suffisamment important (ici treize dislocations), la contrainte d'empilement permet aux dislocations de tête de franchir la barrière de contrainte négative (figure 5-11.c). Ces dislocations sont étranglées en surface par le champ de contrainte. Seul un petit nombre de dislocations franchissent cette zone, les autres restent dans le cristal. Ce régime trouve un équilibre lorsque, pour une nouvelle dislocation nucléée une dislocation émerge en surface.

Une fois que toutes les dislocations ont été introduites, l'empilement s'équilibre en épousant les profils de contrainte (figure 5-12.a). Une part des dislocations débouche en surface, tandis que les autres restent dans le cristal sous forme de boucles fermées (figure 5-11.d).

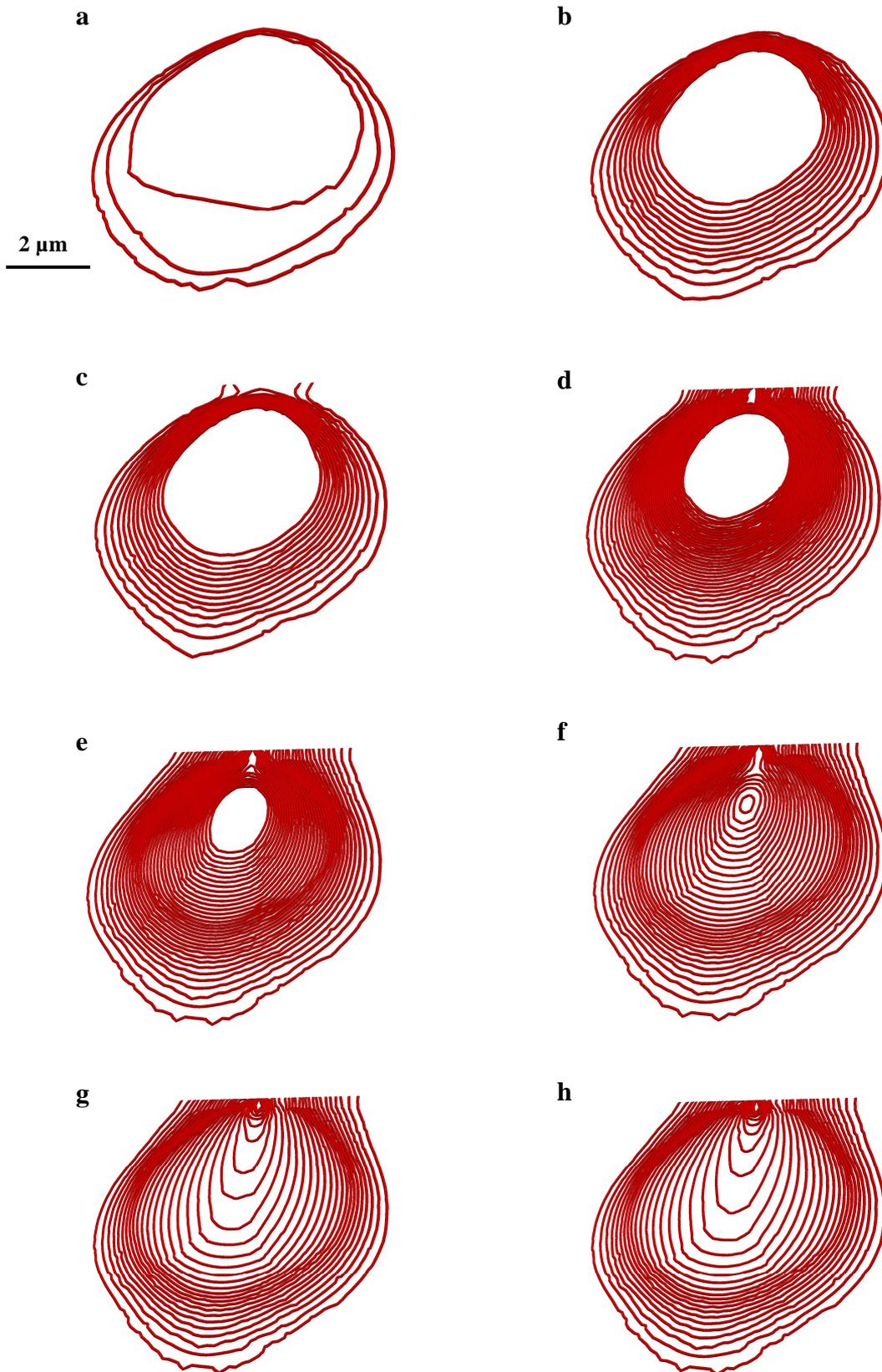


Figure 5-11. : Modélisation de l'empilement principal de l'empreinte 120 : (a), (b), (c) et (d) les dislocations sont introduites progressivement à chargement maximal (20 mN) puis s'équilibrent dans le champ de contrainte de l'indenteur, enfin l'indenteur est retiré et la pénétration diminue : (e) 35 nm, (f) 25 nm, (g) 9 nm, (h) 0 nm.

L'indenteur est retiré (la pénétration diminue), ce qui provoque une diminution des valeurs de la contrainte (figure 5-12.b). L'abaissement des contraintes négatives proches de la surface permet aux dislocations de s'étendre latéralement sous l'effet de la contrainte d'empilement (figure 5-11.e). Au centre sous l'effet de la diminution de la contrainte exercée par l'indenteur, la contrainte d'empilement cette fois provoque un recroquevillement des boucles de dislocation, également favorisé par les effets de tension de ligne.

Les pas suivants de retrait de l'indenteur (figure 5-12.c et 5-12.d) permettent à certaines dislocations centrales d'émerger à leur tour (figure 5-11.f et 5-11.g). Les toutes dernières dislocations nucléées ont tellement rétréci que leur tension de ligne est désormais suffisante pour qu'elles « s'auto-annihilent ». Il y a donc, au cours de la décharge, une diminution du nombre de dislocations par « auto-annihilation ».

Les segments les plus éloignés de la surface ne sont pas affectés par le retrait de l'indenteur. Cela s'explique de par leur éloignement de la zone de contact. Le champ de

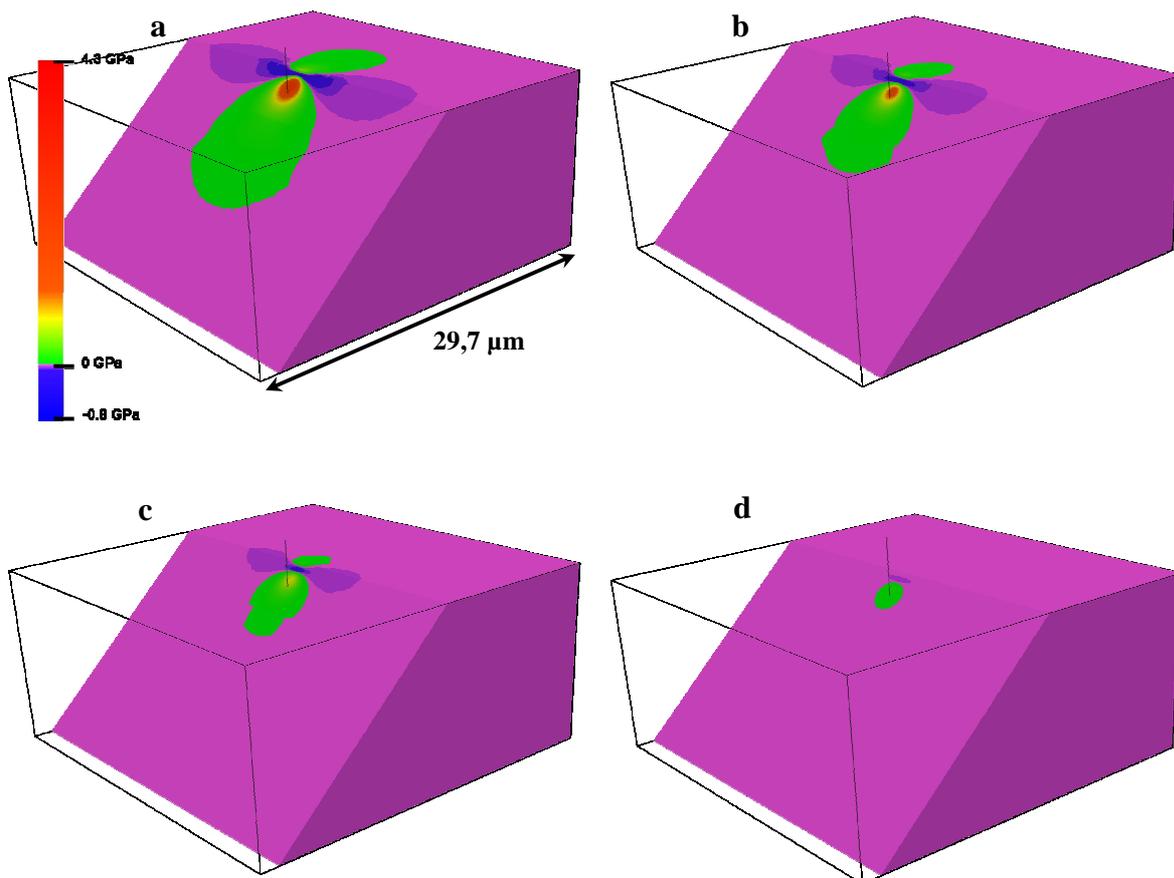


Figure 5-12. : Contraintes projetées sur  $\langle 110 \rangle \{110\}_{45}$  dans le plan d'observation de l'empilement de l'empreinte 120, pour différentes profondeurs de pénétration (a) 85 nm, (b) 35 nm, (c) 25 nm, (d) 9 nm.

contrainte de l'indenteur dans ces zones est quasi-inexistant, la seule force qui meut ces segments est due à la contrainte générée par l'empilement. Au cours de la décharge seule la tension de ligne agit sur la dislocation. Or le rayon de courbure est relativement grand, et donc l'effet de la tension de ligne est très faible.

En toute fin de décharge (pénétration nulle), la simulation montre que toutes les dislocations restantes ont débouché en surface (figure 5-11.h). Ce résultat est différent de ce qui est observé expérimentalement (figure 5-10.) et de ce à quoi on pouvait s'attendre à partir des résultats de la simulation précédente (paragraphe 4.1.).

### ***Discussion***

Une explication plausible provient de la discrétisation du modèle. Rappelons que les dislocations avancent par « sauts » avec un pas de temps défini. Or, au cours du retrait de l'indenteur, la barrière de contrainte négative diminue en intensité mais également en extension spatiale. Il est donc possible que vers la fin de la décharge, le saut des dislocations soit trop grand et qu'il leur permet de franchir la barrière sans la voir. Malheureusement il n'est pas possible de réduire encore le pas de temps ou la discrétisation du système sans que les temps de calcul et la taille des fichiers de sortie deviennent déraisonnables.

Il faut aussi rappeler qu'ici le modèle de chargement élastique utilisé ne correspond pas à la réalité expérimentale. La formation d'une empreinte sous le contact n'a pas été prise en compte dans le modèle de chargement. La déformation plastique est trop petite par rapport au maillage des éléments finis ; nous ne sommes pas en mesure de gérer aussi finement ce qui se passe sous le contact lorsque quelques dislocations émergent en surface.

La difficulté de gérer par éléments finis la déformation sous le contact ne permet pas de modéliser parfaitement le cas expérimental qui nous intéresse ici. Il a pourtant été vu dans des cas plus simples (un seul système activé loin du contact), comme au paragraphe précédent, que la modélisation permettait de rendre compte d'empilements de boucles de dislocations ne débouchant pas en surface. De plus la possibilité de telles configurations est indéniablement montrée par les observations expérimentales (figure 5-10.).

### **Synthèse :**

Ces deux simulations montrent la possibilité d'avoir des boucles de dislocations en équilibre dans le champ de contrainte de l'indenteur et qui ne débouchent pas en surface. Ces observations ne sont possibles que dans des plans éloignés du contact dans lesquels le champ de contrainte présente une forme particulière et notamment une barrière de contrainte s'opposant à la propagation des dislocations. Au cours de la décharge, l'évolution du champ de contrainte, assisté de la contrainte d'empilement et de la tension de ligne, draine les dislocations vers le centre de l'empilement jusqu'à leur auto-annihilation. Un phénomène de nucléation sporadique de dislocations pendant la phase de déformation précédant le pop-in et leur auto-annihilation à la décharge peut être envisagé. L'absence de déformation après indentation ne signifie pas obligatoirement l'absence de nucléation et de glissement de dislocations au cours de l'essai.

La modélisation apporte une explication sur la déviation à la loi élastique observée sur les courbes d'indentation à fortes charges : la présence d'un empilement de dislocations qui ne débouche pas en surface et qui se résorbe en fin de décharge. Le comportement, toujours réversible, s'écarte alors de la loi de Hertz. La nucléation de dislocations en avalanche n'est alors pas le seul mode possible pour initier la plasticité, et vraisemblablement pas le premier.

Le pop-in devrait être envisagé comme la nucléation brutale d'un nombre important de dislocations qui émergent sous le contact. Mais ce phénomène est différent de l'activité sporadique de dislocations observée en volume pendant la phase de déformation précédant le pop-in. En revanche il n'a toujours pas été montré en quoi ces deux phénomènes peuvent avoir une influence l'un sur l'autre.

## **5. Mise en mouvement d'une dislocation préexistante sous l'indenteur**

Ce paragraphe est consacré à la modélisation d'une demi-boucle préexistante qui, contrairement aux cas précédents, subit l'évolution du champ de contrainte de l'indenteur à la charge et à la décharge. Il a pour objectif de montrer que la nature complexe du champ de contrainte de l'indenteur peut conduire à des effets difficilement prévisibles sur les dislocations préexistantes. La configuration initiale est très similaire à la boucle 1-2 de l'empreinte 64 présentée au chapitre 4. La différence est qu'ici les points d'émergence de la demi-boucle sont centrés autour de l'axe d'indentation.

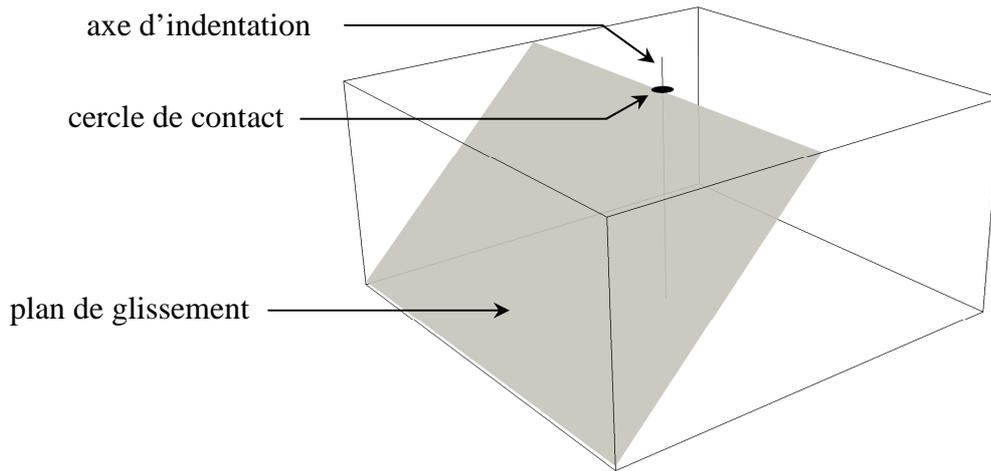


Figure 5-13. : Plan de glissement de la demi-boucle préexistante.

La figure 5-14. représente l'évolution de cette demi-boucle au cours de la pénétration et du retrait de l'indenteur. La demi-boucle évolue dans un plan  $\{110\}_{45}$  divergent qui émerge à  $0,23 \mu\text{m}$  de l'axe d'indentation (figure 5-13.). L'extension verticale initiale de la boucle est de  $1 \mu\text{m}$  ce qui correspond à l'extension d'une dislocation introduite par clivage (chapitre 4).

La demi-boucle reste immobile au début du chargement, car les contraintes générées par l'indenteur ne sont pas suffisantes pour vaincre la force de friction de réseau (figure 5-14.a).

Puis les contraintes à proximité de la surface deviennent suffisantes pour pousser les extrémités de la boucle (figure 5-14.b). Les segments les plus profonds ne sont, pour l'instant, pas affectés par le champ de contrainte de l'indenteur.

A chargement maximal (figure 5-14.c à e), le champ de contrainte pince les côtés de la boucle et crée un étranglement en son centre. Les deux segments en vis-à-vis s'annihilent (figure 5-14.f), ce qui a pour conséquence de former une boucle fermée dans le cœur du matériau et deux demi-boucles qui débouchent en surface. La boucle fermée continue à rétrécir jusqu'à s'annihiler sur elle-même (figure 5-14.g).

L'indenteur est retiré, et la structure n'évolue plus (figure 5-14.h). En fin de décharge (pénétration nulle) il reste les deux demi-boucles.

Cette simulation montre que dans le cas particulier d'une demi-boucle préexistante dans un plan distant de l'axe d'indentation, celle-ci peut se scinder en trois parties. Une de ces parties s'annihile totalement et ne reste que deux demi-boucles. Ces résultats ne sont valables que dans le cas précis de la configuration que nous avons étudiée ici. D'autres modélisations, réalisées notamment en modifiant légèrement la position de l'axe d'indentation, ont montré des comportements tout à fait différents, dont certains conduisent à l'auto-annihilation totale

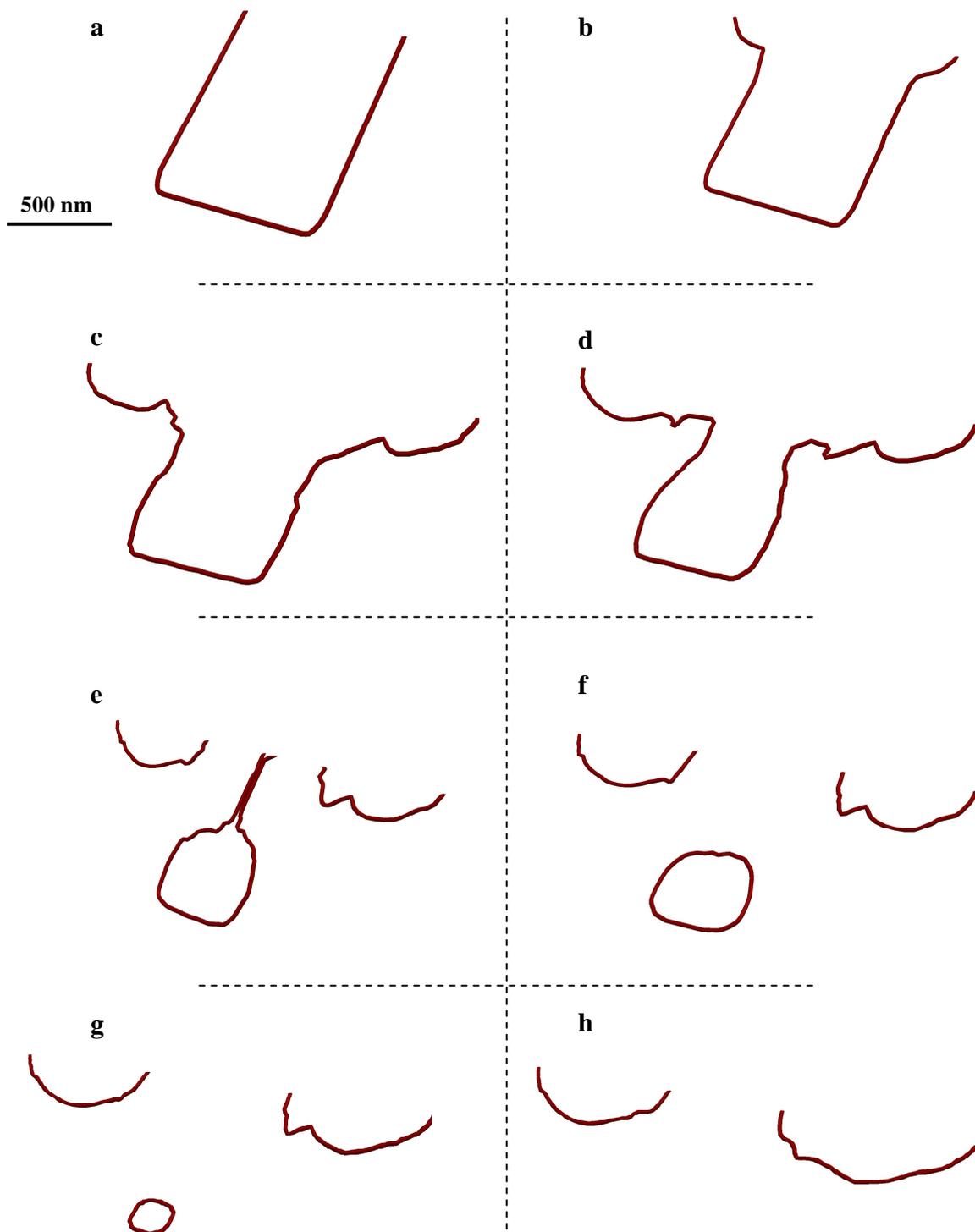


Figure 5-14. : Evolution d'une dislocation préexistante au cours d'un chargement à 51 nm de pénétration maximale, (a) 10 nm, (b) 28 nm, (c) 51 nm, (d) 51 nm, (e) 51 nm, (f) 51 nm, (g) 51 nm, (h) 0 nm.

de la demi-boucle préexistante. L'exemple particulier donné ici montre la possibilité de comportements difficilement prévisibles des demi-boucles préexistantes lorsqu'elles sont soumises au chargement complexe de l'indenteur. Ce genre de difficultés doit être gardé à l'esprit lorsque l'on étudie des empreintes de nanoindentation réalisées sur des surfaces présentant une densité de dislocations préexistantes.

Les modélisations réalisées en dynamiques de dislocations discrètes couplées aux éléments finis permettent d'envisager une multitude de cas notamment des cas expérimentaux et de valider différentes hypothèses. Nous avons vu, avec le dernier exemple, qu'elles s'avèrent être un outil très utile pour modéliser le comportement complexe de demi-boucles préexistantes, chose impossible à faire avec l'unique étude de la carte de contrainte. Ici nous avons présenté des cas simples où seules quelques dislocations sont introduites dans un seul plan. Mais nous pouvons envisager des cas beaucoup plus complexes dans lesquelles différents systèmes de glissement pourront être activés, ou encore introduire des demi-boucles de dislocations préexistantes avant d'appliquer le chargement et regarder les interactions possibles entre les différents systèmes. Une des voies d'amélioration serait de prendre en compte l'effet des marches formées sous le contact sur la distribution des contraintes dans le volume.



## Références bibliographiques

- [1] Y. Gaillard, C. Tromas, et J. Woïgard, "Quantitative analysis of dislocation pile-ups nucleated during nanoindentation in MgO," *Acta Materialia*, vol. **54**, n°. 5, p. 1409, 2006.
- [2] J. Lépinoux et L. P. Kubin, "Dynamic organization of dislocation structures: A simulation," *Scripta Materialia*, vol. **21**, n°. 6, p. 833-838, Jun. 1987.
- [3] N. M. Ghoniem et R. Amodeo, "Computer simulation of dislocation pattern formation," *Solid State Phenomena*, vol. **3**, p. 377-388, 1988.
- [4] I. A. Polonsky et L. M. Keer, "Simulation of Microscopic Elastic-Plastic Contacts by using Discrete Dislocations," *Proceedings of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. **452**, n°. 1953, p. 2173-2194, 1996.
- [5] L. P. Kubin, G. Canova, M. Condat, B. Devincre, V. Pontikis, et Y. Bréchet, "Dislocation microstructures and plastic flow: a 3D simulation," *Solid State Phenomena*, vol. **23**, p. 455, 1992.
- [6] M. Verdier, M. Fivel, et I. Groma, "Mesoscopic scale simulation of dislocation dynamics in fcc metals: Principles and applications," *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, vol. **6**, n°. 6, p. 755-770, 1998.
- [7] J. Chaussidon, C. Robertson, D. Rodney, et M. Fivel, "Dislocation dynamics simulations of plasticity in Fe laths at low temperature," *Acta Materialia*, vol. **56**, n°. 19, p. 5466-5476, 2008.
- [8] J. Chaussidon, C. Robertson, M. Fivel, et B. Marini, "Internal stress evolution in Fe laths deformed at low temperature analysed by dislocation dynamics simulations," *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, vol. **18**, n°. 2, p. 025003, 2010.
- [9] C. S. Shin, C. F. Robertson, et M. C. Fivel, "Fatigue in precipitation hardened materials: a three-dimensional discrete dislocation dynamics modelling of the early cycles," *Philosophical Magazine*, vol. **87**, n°. 24, p. 3657-3669, 2007.
- [10] C. Déprés, M. Fivel, et L. Tabourot, "A dislocation-based model for low-amplitude fatigue behaviour of face-centred cubic single crystals," *Scripta Materialia*, vol. **58**, n°. 12, p. 1086-1089, 2008.
- [11] M. Fivel, M. Verdier, et G. Canova, "3D simulation of a nanoindentation test at a mesoscopic scale," *Materials Science and Engineering A*, vol. **234**, p. 923-926, 1997.
- [12] M. C. Fivel, C. F. Robertson, G. R. Canova, et L. Boulanger, "Three-dimensional modeling of indent-induced plastic zone at a mesoscale," *Acta Materialia*, vol. **46**, n°. 17, p. 6183, 1998.
- [13] M. C. Fivel et G. Canova, "Simulations 3D de dislocations en conditions aux limites complexes," *Le Journal de Physique IV*, vol. **08**, n°. 4, p. Pr4-249-Pr4-258, 1998.
- [14] R. De Wit, "The Self-Energy of Dislocation Configurations Made up of Straight Segments," *physica status solidi (b)*, vol. **20**, n°. 2, p. 575-580, 1967.
- [15] B. Devincre et M. Condat, "Model validation of a 3D simulation of dislocation dynamics: Discretization and line tension effects," *Acta Metallurgica Et Materialia*, vol. **40**, n°. 10, p. 2629-2637, 1992.

- [16] Y. Gaillard, "Initiation de la plasticité sous nanoindentation dans MgO et LiF : étude de l'organisation des dislocations et des contraintes associées," *Thèse de Doctorat*, Université de Poitiers, 2004.
- [17] Y. Gaillard, C. Tromas, et J. Woïrgard, "Study of the dislocation structure involved in a nanoindentation test by atomic force microscopy and controlled chemical etching," *Acta Materialia*, vol. **51**, n°. 4, p. 1059, 2003.
- [18] C. Tromas, Y. Gaillard, et J. Woïrgard, "Nucleation of dislocations during nanoindentation in MgO," *Philosophical Magazine*, vol. **86**, n°. 33, p. 5595, 2006.
- [19] A. Montagne, C. Tromas, V. Audurier, et J. Woïrgard, "A new insight on reversible deformation and incipient plasticity during nanoindentation test in MgO," *Journal of Materials Research*, vol. **24**, n°. 3, p. 883, 2009.

---

# **Conclusion générale**



# Conclusion générale

Au cours de cette étude nous nous sommes intéressés aux mécanismes de déformation précédant et accompagnant le phénomène de pop-in lors d'un essai de nanoindentation sur des monocristaux d'oxyde de magnésium. Le pop-in, brusque pénétration de l'indenteur dans le matériau, est couramment associé à l'initiation de la plasticité et à la nucléation de dislocations dans des volumes qui en sont exempts. L'objectif était de mieux comprendre les toutes premières manifestations de la plasticité sous indentation. Les différentes courbes d'indentation ont été reliées aux déformations de surface observées par microscopie à force atomique.

Le développement d'une technique de préparation de surface par polissage mécano-chimique et la mise au point du protocole de nettoyage associé ont permis d'obtenir des surfaces vierges de tout défaut, condition nécessaire à l'observation de comportement réversible à très forte charge. D'autre part, grâce à ce nouvel état de surface, l'attaque chimique, adaptée de travaux précédents, nous a permis de déterminer avec précision la position d'émergence des demi-boucles de dislocations. De plus, l'observation attentive de la forme de la nano-piqûre nous a également permis de déterminer la nature et l'orientation du plan de glissement de la boucle de dislocation.

La nanoindentation offre une très grande résolution en déplacement ainsi qu'en force, ce qui justifie son utilisation pour l'étude des premiers stades de déformation. La très grande majorité des essais d'indentation réalisés sur une surface polie très longtemps par CMP, présentaient un comportement réversible sur la courbe d'indentation, jusqu'à de très fortes charges correspondant à des maximums de contraintes de plus de 10 GPa. Dans de très rares cas, l'observation par AFM de la zone indentée a révélée des lignes de glissement clairement liées à l'essai d'indentation. Une analyse détaillée des courbes d'indentation a révélé systématiquement une déviation à la loi élastique du contact sphère-plan (loi de Hertz), observée pour tous les essais réversibles à fortes charges. Ces résultats remettent en cause la description communément admise du pop-in selon laquelle il marquerait la première nucléation de dislocations. Dans les résultats rapportés ici, il est observé de façon très claire la nucléation et le glissement de dislocations pendant la phase de déformation précédant le pop-in. Par ailleurs, l'utilisation d'un indenteur sphérique nous a permis de résoudre les très fortes

## Conclusion générale

---

contraintes et les très forts gradients générés localement sous l'indenteur. L'étude de la carte de contrainte dans un plan émergeant loin du contact a d'ailleurs montré qu'il était possible d'observer, sous charge, une boucle de dislocation en équilibre dans le champ de contrainte et qui ne débouche pas en surface.

La relation entre la charge d'apparition du pop-in et la cristallographie du cristal nous a poussé à nous interroger sur l'influence de ces défauts sur l'initiation du pop-in. Le contrôle des structures de dislocations introduites par clivage nous a permis de vérifier, statistiquement puis de façon individuelle, la corrélation existant entre la présence d'une dislocation préexistante sous le contact et une charge d'apparition du pop-in faible. Cependant même si la présence d'une dislocation favorise la nucléation de nouvelles par le phénomène du pop-in, il n'est pas question d'activation de sources de type Frank-Read. Il a été observé de façon assez systématique, que les dislocations préexistantes sous le contact et celles nucléées par indentation évoluent dans des plans distincts qui parfois n'ont aucune ligne commune. Il a même été observé expérimentalement, sur une empreinte, l'augmentation de la densité de dislocations avec la profondeur, c'est-à-dire la présence de boucles de dislocations introduites par nanoindentation dans le volume, et non émergées en surface.

Enfin, les comportements particuliers observés expérimentalement ont été modélisés par dynamique de dislocations discrètes. Le modèle multi-échelle que propose cette approche se prête extrêmement bien à la modélisation d'un essai de nanoindentation. L'étude numérique a permis de confirmer plusieurs hypothèses formulées lors d'observations expérimentales, à savoir la possibilité d'observer un empilement de dislocations important (plusieurs dizaines de dislocations) qui ne débouche pas en surface, même après retrait total de l'indenteur. La présence d'empilement sous la surface expliquerait la déviation à la loi du contact élastique sphère-plan observée sur les courbes à fortes charges. De plus, ce type d'empilement ne serait pas visible en surface sauf pour les quelques dislocations de tête qui, poussées par la contrainte d'empilement, émergent en surface et créent une ligne de glissement.

L'AFM et la nanoindentation, associées à une technique de préparation de surface contrôlée, sont des outils de choix pour l'étude des premiers stades de déformations. Ils ont permis de décorrélérer l'initiation de la plasticité du phénomène de pop-in et ont mis en évidence la possibilité d'empilements en équilibre sous la surface d'indentation et qui ne débouchent pas en surface y compris lors du retrait de l'indenteur. Les premiers résultats des modélisations DDD sont très encourageants, ils permettent d'explorer en détail le

comportement de dislocations dans le champ de contrainte complexe de l'indenteur. Ils ont également validé certaines des hypothèses formulées à partir d'observations expérimentales.

A l'issue des résultats et des développements expérimentaux présentés dans cette thèse, plusieurs perspectives se dégagent.

De futures études devraient être consacrées à des modélisations impliquant l'activation de plusieurs systèmes de glissement afin de rendre compte des différentes interactions sous le contact lors d'un essai d'indentation. Une autre voie serait d'introduire quelques dislocations, comme c'est le cas avec un échantillon clivé, et de simuler un véritable chargement, c'est-à-dire à pénétration progressive, pour observer le comportement complexe que peuvent suivre les dislocations préexistantes lorsqu'elles sont soumises à des modifications du champ de contrainte. Il serait également possible d'estimer par DDD les champs de contraintes engendrées par les dislocations, notamment afin de tester les différentes hypothèses formulées aux chapitres 3 et 4, là où nous avons relié l'écart à la loi de Hertz à la possibilité d'avoir un empilement de dislocations qui ne débouche pas en surface, et où nous avons envisagé des effets dynamiques permettant de nucléer plus facilement de nouvelles dislocations au point du maximum de contrainte. En ce qui concerne les manipulations expérimentales, il pourrait également être intéressant de mener des expériences complémentaires, notamment de microscopie électronique en transmission, pour observer sur une même image les structures complexes de dislocations nucléées sous indentation. De plus, de nouvelles études sur la relation entre dislocations préexistantes et charge d'apparition du pop-in mériteraient d'être menées.



---

# **Annexe 1**



# Annexe 1

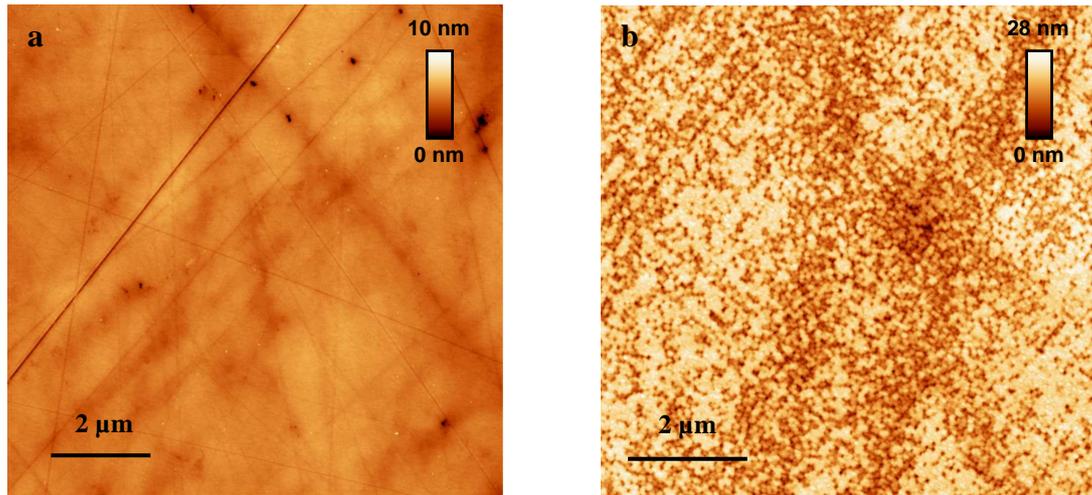
## Comportement sous indentation d'échantillons écrouis et rugueux

### Introduction

L'objectif de ces expériences complémentaires est d'étudier le comportement sous indentation de surfaces préparées dans des conditions extrêmes. C'est-à-dire, qu'à partir de surfaces obtenues par CMP (niveau 2), nous introduirons des dislocations par un polissage par abrasion afin d'étudier l'influence d'une forte densité de dislocations sur le comportement mécanique de l'échantillon. La réponse mécanique d'un échantillon présentant une forte rugosité sera également étudiée. Nous avons pris un grand soin, dans chacun des cas, à isoler chaque paramètre. Nous testerons donc indépendamment, la rugosité de surface de la présence de dislocations et *vice versa*.

### 1. Echantillon fortement écroui

L'objectif de cette expérience complémentaire est d'étudier les effets des dislocations introduites par polissage mécanique. Comme le montre la figure A-1.a le polissage par abrasion est beaucoup plus agressif que le polissage mécano-chimique, et se fait par rayures successives. A chaque formation d'une nouvelle rayure, de nouvelles dislocations sont nucléées afin d'accommoder la déformation. Les échantillons ont été polis avec un spray diamanté, dont les particules de diamant ont une taille de 1  $\mu\text{m}$ . La figure A-1.a montre la présence de nombreuses rayures à la surface de l'échantillon. Afin de décorrélérer la rugosité de surface due à la présence des rayures et l'effet dû aux dislocations, les surfaces ont été repolies 2 minutes à la silice colloïdale pour se ramener à une rugosité de surface de quelques angströms, tout en conservant les dislocations introduites par le premier polissage. L'image AFM A-1.b rend clairement compte de la très forte densité de dislocations révélées par attaque chimique. La densité de dislocations est supérieure à  $20 \cdot 10^8 \cdot \text{cm}^{-2}$ , ce qui est



**Figure A-1. :** (a) Image AFM d'une surface polie par grains diamant (1  $\mu\text{m}$ ), la surface présente beaucoup de rayure du à l'effet abrasif des grains, (b) le même type de surface après attaque chimique, la densité de dislocation dans le quart supérieur gauche est déjà supérieure à 20 dislocations par  $\mu\text{m}^2$ .

considérable pour les matériaux céramiques. Les zones plus sombres, de densité de dislocation plus élevée, correspondent à la localisation des rayures initiales.

Les courbes d'indentation A-2.c et A-2.e montrent que, sur une surface écaillée, le comportement mécanique est immédiatement élasto-plastique. Les observations AFM des surfaces après indentation A-2.a et A-2.c révèlent la présence de plusieurs lignes de glissement dans différentes directions qui commencent à former une réelle empreinte. L'image AFM A-2.d d'une surface indentée à plus forte charge (10 mN), révèle la présence de marches périphériques formant un réseau carré autour de l'empreinte. L'orientation de ces marches est descendante en s'éloignant du centre de l'empreinte. Ce type de marches est habituellement observé pour des empreintes réalisées à plus forte charge, où le nombre de dislocations est très important [1]. Les interactions entre dislocations conduisent à la formation de segments sessiles qui deviennent source de dislocations, et forment ces marches carrées descendantes.

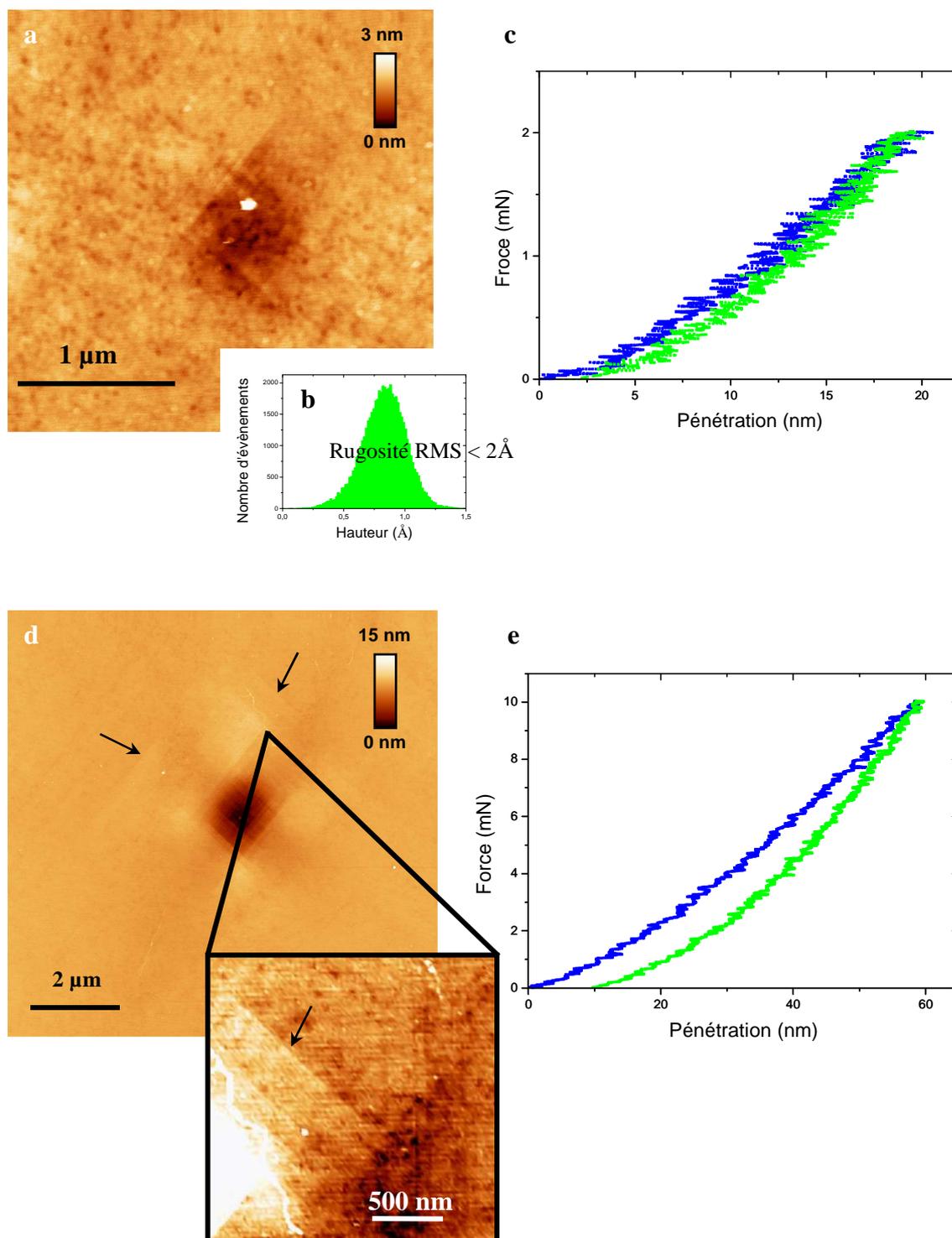


Figure A-2. : (a) image AFM de la zone indentée, le début de formation de l'empreinte est clairement visible, (b) distribution statistique des hauteurs hors empreinte, rugosité RMS inférieure à  $2\ \text{\AA}$ , (c) Courbe d'indentation à très faible charge sur une surface fortement écaillée, pas de pop-in mais quand même un cycle d'hystérésis, (d) Image AFM d'une empreinte réalisée à  $10\ \text{mN}$  sur une surface écaillée, les marches périphériques sont marquées par des flèches, en insert un zoom d'une de ces marches est donné, (e) courbe d'indentation correspondante, sans pop-in avec quand même un cycle d'hystérésis.

## 2. Echantillon avec une forte rugosité

Il a été vu que certains travaux suggèrent une modification du comportement sous indentation dans le cas de surfaces rugueuses [2]. Nous nous proposons ici de vérifier l'influence de la rugosité sur la déformation de MgO indépendamment des dislocations préexistantes. L'idée est de créer une rugosité de surface homogène sans introduire de dislocations. A cette fin, nous avons retenu l'attaque chimique non contrôlée. L'acide orthophosphorique utilisé à chaud est une méthode de préparation de surface pour MgO, à froid l'acide attaque la surface de façon désordonnée. Le temps d'attaque est de 10 min.

La rugosité résultante de l'attaque à l'acide orthophosphorique est de 3,5 nm (figure A-3.a, b et c). Les essais d'indentation sur ce type de surface, figure A-3.d, montre un abaissement très clair du niveau de pop-in, à 3 mN environ. De plus on observe une

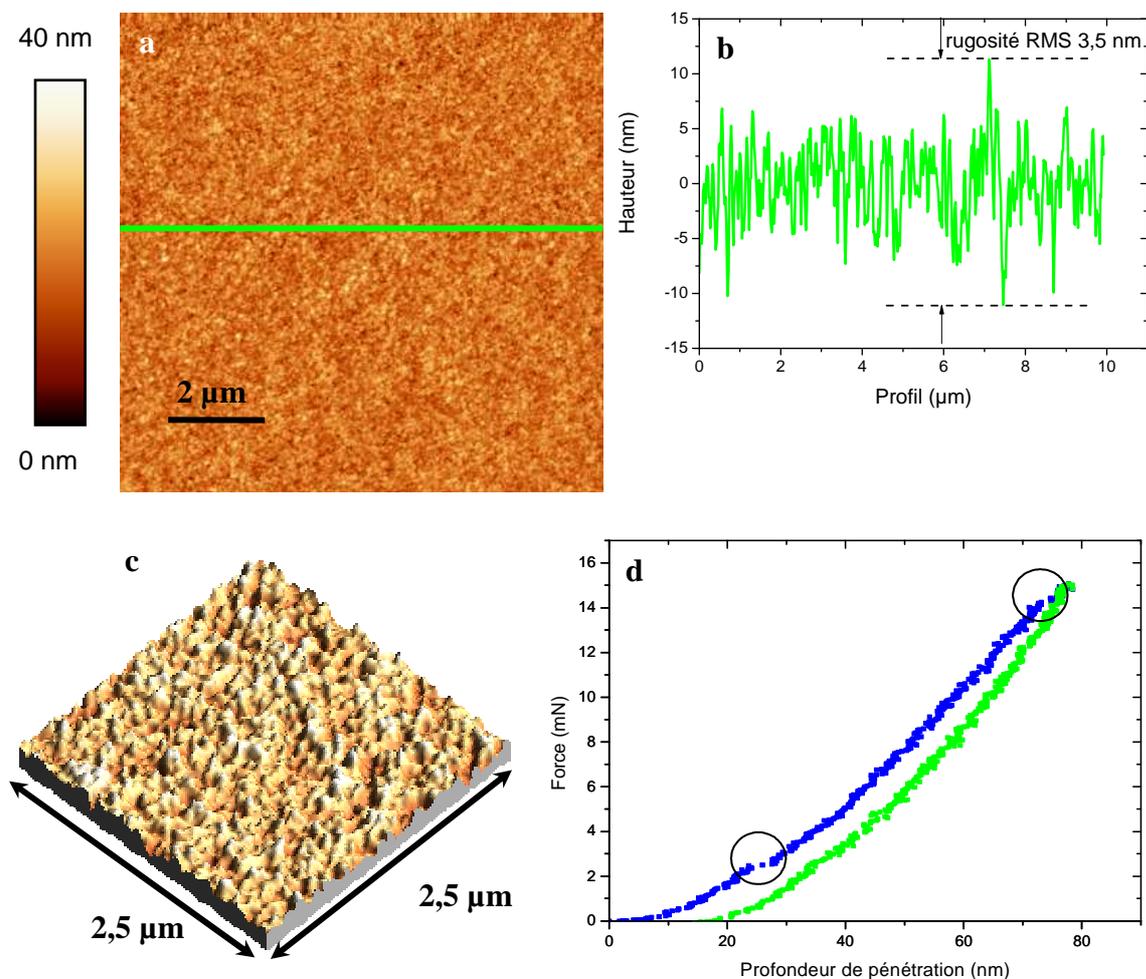


Figure A-3. : (a) Image AFM de la surface obtenue après attaque à l'acide orthophosphorique ; (b) profil de la surface ; (c) vue 3D de la surface, échelle en Z exagérée 10 fois ; (d) courbe typique d'indentation obtenue sur ce type de surface avec un abaissement du niveau du premier pop-in.

succession de plusieurs évènements discrets et non un unique pop-in. Au cours de l'indentation, et donc au fur et à mesure de l'augmentation de l'aire de contact, l'indenteur rencontre des aspérités qui initient de nouvelles discontinuités.



---

## **Annexe 2**

**Sommaire :**

<b>Introduction .....</b>	<b>195</b>
<b>1. L'implantation ionique .....</b>	<b>196</b>
<b>2. Simulation des profils d'implantation.....</b>	<b>197</b>
<b>3. Implantation dans MgO : rappels bibliographiques .....</b>	<b>198</b>
3.1. Défauts ponctuels.....	198
3.2. Propriétés mécaniques sous indentation.....	198
<b>4. Profils d'implantation .....</b>	<b>200</b>
<b>5. Indentation dans MgO implanté.....</b>	<b>204</b>
5.1. Irradiation à moyenne fluence : $10^{15}$ ions.cm <sup>-2</sup> .....	204
5.1.1. Analyse des courbes d'indentation.....	204
5.1.2. Essai d'indentation réversible.....	205
5.1.3. Structures de dislocations dans un échantillon implanté.....	207
5.2. Irradiation à forte fluence : $10^{16}$ ions.cm <sup>-2</sup> .....	210
5.2.1. Analyse des courbes d'indentation.....	210
5.2.2. Structure de dislocations .....	212
5.2.3. Propriétés particulières de l'interface cristal/zone de défauts .....	214
5.2.4. Défauts affleurant sous le contact .....	216
<b>Références bibliographiques .....</b>	<b>223</b>

## Annexe 2

# Comportement sous indentation de MgO implanté

## Introduction

Le comportement sous indentation d'échantillons de MgO implantés a été testé afin d'étudier les effets des défauts ponctuels sur le pop-in et la nucléation des dislocations. Deux problématiques soulevées au chapitre 3 ont motivé ces expériences : le problème de la nucléation hétérogène sur des défauts ainsi que les comportements réversibles observés sur MgO. En effet, dans l'hypothèse de mouvements réversibles de dislocations sous indentation, la présence de défauts ponctuels pourrait permettre d'épingler les dislocations et de figer leur structure sous charge afin qu'elle reste observable après la décharge.

Nous avons choisi d'utiliser des ions légers hélium pour générer des défauts ponctuels dans le matériau. L'hélium présente l'avantage d'être un gaz inerte. Les cascades initiées par des ions légers tels que l'hélium génèreront moins de défauts que celles initiées par des ions plus lourds. Cela permet d'éviter le recouvrement entre plusieurs cascades et d'introduire une quantité de défauts réduite afin d'éviter l'amorphisation de l'échantillon. De plus compte tenu de la petite taille des ions hélium, ceux-ci ne perturberont que très peu la maille cristallographique de MgO. Ainsi cela donne une prédominance des effets des défauts ponctuels en limitant ceux des ions implantés.

L'effet des défauts d'implantation dans MgO est un sujet largement étudié en vue des potentielles applications de MgO dans la production d'énergie ou le stockage des déchets nucléaires, l'optique, ou encore dans l'électronique en environnements radiatifs [3-9].

Cette étude est portée en annexe car nous présenterons ici les premiers résultats obtenus sur des échantillons de MgO implantés. Certaines des observations rapportées ici nécessiteraient des investigations plus poussées ainsi que des expériences supplémentaires.

## 1. L'implantation ionique

L'implantation ionique consiste à envoyer des ions avec une énergie de quelques keV à plusieurs centaines de keV sur un échantillon appelé cible. L'implantation présente notamment l'avantage de contrôler précisément la nature et la distribution des défauts introduits. De plus la quantité d'ions implantés peut dépasser la limite de solubilité des ions dans la cible ce qui en a fait une technique largement utilisée en microélectronique.

Lorsqu'un ion pénètre dans l'échantillon une part de son énergie peut être transférée aux atomes de la cible. Si cette énergie est supérieure à l'énergie seuil de déplacement de l'atome, celui-ci est éjecté de son site cristallin. Les énergies de déplacement dépendent de l'atome considéré et sont typiquement de l'ordre de quelques dizaines d'électronvolts. Si l'énergie transférée au premier éjecté le permet, alors celui-ci devient projectile à son tour et entre en collision avec d'autres atomes de la cible. Le processus peut se répéter ce qui conduit à une série de collisions qui forme une cascade de déplacements. La trajectoire que suit un atome dans l'échantillon est aléatoire.

Il existe différents types de collision entre les ions et les atomes de la cible. Les collisions inélastiques électroniques conduisent à la ionisation-excitation des atomes de la cible, ces interactions peuvent être vue comme une force de frottement. Les collisions élastiques nucléaires produisent un transfert de quantité de mouvement des ions aux atomes de la cible. La prépondérance de l'un des deux mécanismes sur l'autre dépend de la nature des ions ainsi que de leur énergie d'incidence.

Différents type de défauts peuvent être induits par la collision avec les ions. Si un ion incident arrache un atome cible de sa position cristallographique, l'atome déplacé crée un interstitiel (appelé « auto-interstitiel ») et laisse un site vacant dans le réseau cristallin (appelé « lacune »).

La température apporte de l'énergie aux ions déplacés. Si cette énergie est au moins égale à l'énergie d'activation d'un défaut, alors l'atome retourne sur son site cristallin. Ce phénomène est appelé recuit dynamique. Les défauts présents en fin d'implantation sont le résultat de l'équilibre entre la production de défauts par les ions et de leur annihilation par effet de la température.

Dans les métaux ou les semi-conducteurs lorsque la concentration d'ions hélium implantés dépasse la limite de solubilité, les ions forment des complexes hélium-lacune. Lors

d'un recuit les ions peuvent se placer en position substitutionnelle et modifient les propriétés du matériau. La formation de bulle est un second phénomène qui a également lieu lors du recuit.

Lorsque la quantité d'énergie déposée par les ions incidents est supérieure à une valeur limite, le matériau s'amorphise. La limite d'amorphisation dépend de la fluence (quantité d'ions implantés), de l'énergie des ions et de la température.

## **2.Simulation des profils d'implantation**

Les profils d'implantation ont été simulés avec un programme utilisant une méthode de Monte-Carlo. Le principe est de suivre le parcours individuel d'un grand nombre d'ions incidents dans la cible. L'énergie, la direction et la position initiales de chaque ion sont connues. Le long de son parcours dans l'échantillon l'ion subit des collisions élastiques avec les atomes de la cible, chaque collision nucléaire modifie la trajectoire de l'ion. Entre chaque collision élastique la particule suit un trajet supposé rectiligne de longueur  $L$  (libre parcours). Une part de l'énergie initiale de l'ion est perdue par des collisions électroniques inélastiques. Le trajet de l'ion s'arrête lorsque son énergie est inférieure à une énergie limite (correspondant à une énergie seuil de déplacement d'un atome de la cible).

La méthode de Monte-Carlo présente deux principaux avantages par rapport à une étude analytique. Elle permet un traitement plus rigoureux de la diffusion élastique et une détermination de la distribution des ions implantés et des défauts.

Les profils d'implantations ont été simulés avec le logiciel SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter) utilisant une méthode de Monte-Carlo [10]. SRIM ne tient pas compte de la cristallographie de l'échantillon mais répartit aléatoirement les atomes de la cible.

Les profils qui seront présentés dans la suite ne tiennent pas compte des recombinaisons, ce qui a pour effet de surestimer les concentrations de défauts.

## 3. Implantation dans MgO : rappels bibliographiques

### 3.1. Défauts ponctuels

Différents types de défauts ponctuels peuvent être introduits par implantation :

- les lacunes ( $V_{Mg}$  et  $V_O$ ), un site initialement occupé par un atome Mg ou O se retrouve vacant
- les interstitiels ( $Mg_I$  et  $O_I$ ), un atome de la cible a été déplacé de son site initial et occupe une position en dehors des sites cristallins
- les antisites ( $Mg_O$  et  $O_{Mg}$ ), un atome de la cible se retrouve en lieu et place d'un atome de la seconde espèce

La formation d'une lacune s'accompagne de la formation d'un interstitiel. Classiquement dans MgO les défauts ponctuels étudiés sont les lacunes et les interstitiels [4]. Uberuaga *et al.* [11] ont étudié par simulation la diffusion à température ambiante des défauts générés dans MgO par l'irradiation aux neutrons. Ils montrent que les interstitiels cationiques et anioniques sont mobiles et se combinent avec des lacunes ou d'autres interstitiels pour former des amas (ou *cluster* en anglais). En revanche les lacunes sont très stables et ne bougent pas. Ils montrent également que paradoxalement les groupes de six interstitiels sont plus mobiles que n'importe quelle autre configuration.

En comparant les analyses RBS (Rutherford Backscattering Spectrometry) avec le calcul SRIM d'expériences d'implantation d'argon et de xénon sur MgO, Wendler *et al.* [7] déterminent un taux de survie des défauts de 50%. Leur résultat est en accord avec de précédents résultats récapitulés en [4], dans lesquels la fraction survivante des défauts est comprise entre 0,1 et 0,4. Ces valeurs ont été déterminées à basse température, entre 4 et 80 K. L'écart observé entre ces taux de recombinaison peut être relié aux différentes techniques et conditions expérimentales mises en œuvre pour les déterminer. L'augmentation de la température favorise les phénomènes de recombinaison, le taux de survie à température ambiante est plus faible que ceux annoncés précédemment. De plus, certains travaux suggèrent que la quantité de défauts produits par implantation soit dépendante de l'orientation du cristal, notamment sur MgO [12].

L'énergie de déplacement est un paramètre important qui contrôle la quantité de défauts introduits par implantation. Pour MgO les valeurs des énergies de déplacements sont encore sujettes à beaucoup d'études [4, 13]. Les énergies de déplacement retenues pour cette étude sont de 40 eV à 25°C pour les deux espèces chimiques [5]. La densité de MgO utilisée ici est de  $3,58 \text{ g.cm}^{-3}$  [5].

Dans MgO la formation de bulles d'hélium est observée pour des températures de recuit de 750 K. Cependant pour des températures de 1300 K les atomes d'hélium quittent les cavités [14].

### 3.2. Propriétés mécaniques sous indentation

Différentes études d'indentation ont montré une augmentation de la dureté sur des échantillons de MgO implantés [5, 6, 8, 15]. Cáceres *et al.* [15] ont réalisé des irradiations aux neutrons sur des échantillons de MgO à différentes doses. Ils ont constaté que la différence de dureté observée entre un échantillon vierge et implanté ( $\Delta H$ ) augmentait avec la dose. Ces auteurs ont également étudié des spectres d'absorption optique en fonction de la température de recuit, qu'ils ont comparés à l'évolution de la dureté. A partir d'une température de recuit de 1000 K, ils observent que  $\Delta H$  chute brutalement. Sur le spectre d'absorption optique le pic correspondant à la présence de lacunes d'oxygène disparaît également. Ils concluent à l'effet des lacunes d'oxygène sur la dureté mesurée par nanoindentation.

Richter *et al.* [5, 6] ont montré que des essais d'indentation cyclés sur MgO ne présentaient plus de cycle d'hystérésis entre les courbes de charge et décharge après

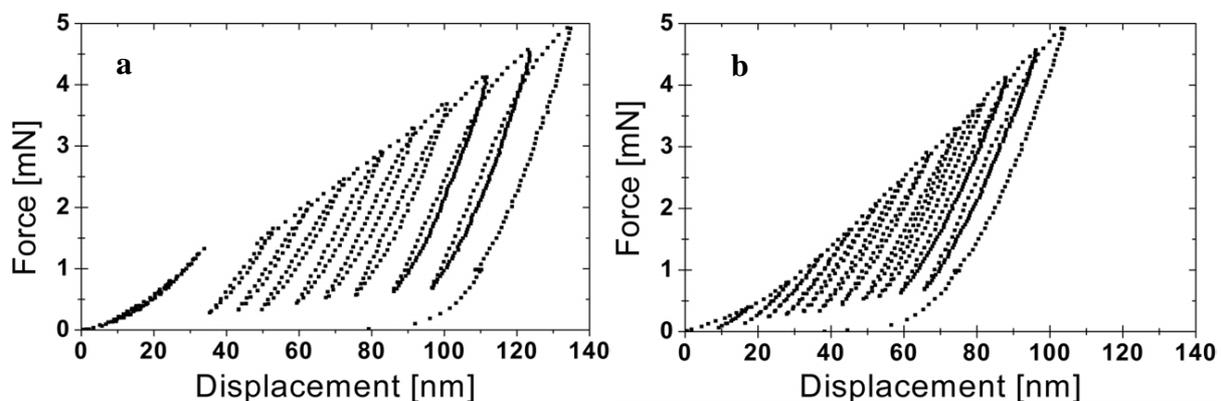


Figure A-4. : Courbes de force-déplacement obtenues après 12 cycles progressifs de charge-décharge, avec une charge maximale de 5 mN pour MgO (100) (a) non irradié, (b) irradié avec des ions  $\text{Ar}^+$  avec une dose de  $10^{20} \text{ m}^{-2}$ , Richter *et al.* (2006) [5].

implantation par des ions argon (figure A-4.). Selon eux, les défauts implantés réduisent la contrainte critique de déformation inélastique, réduisant également la formation de nano-fissures responsables des cycles d'hystérésis. Ils observent également une augmentation de la dureté ainsi qu'une disparition du pop-in, toutes deux reliées aux phénomènes d'épinglages des dislocations sur les défauts.

Ces auteurs montrent également que l'implantation a tendance à réduire les écarts de dureté observés selon l'orientation du cristal. Au fur et à mesure que la fluence augmente les cristaux de MgO (100), (110) et (111) présentent une dureté similaire.

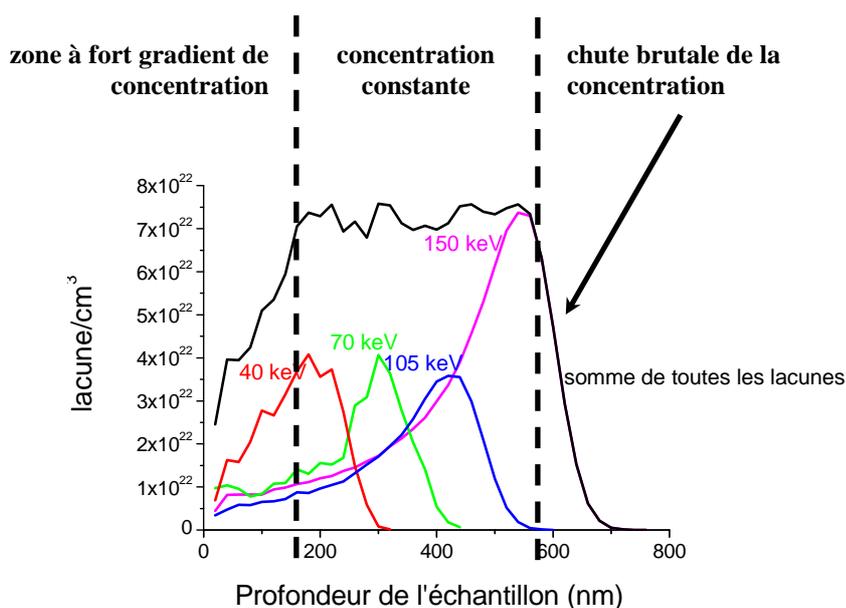
Njeim et Bahr [16] ont étudié l'influence des lacunes sur le comportement sous indentation du fer par simulations atomistiques. Premièrement, dans leurs conditions expérimentales à basse température (de 0 à 13K) et à faible concentration (de 0 à 0,1%), ils observent que le comportement élastique est indépendant de la concentration de lacunes. Deuxièmement, leurs simulations montrent que la charge d'apparition du pop-in décroît au fur et à mesure que la concentration en lacunes croît. Paradoxalement, ils n'observent pas de nucléation préférentielle à proximité des lacunes, mais des interactions après le glissement des dislocations et la diffusion des lacunes.

Dans la suite de cette étude nous nous intéresserons plus particulièrement aux structures de dislocations générées sous indentation dans un matériau irradié. Nous avons choisi un gaz neutre, l'hélium, afin de favoriser l'influence des dégâts produits par implantation par rapport à la présence de l'hélium dans la structure cristallographique.

## 4. Profils d'implantation

Les implantations ont été réalisées au PhyMat sur un implanteur ionique EATON<sup>TM</sup> NV 3206 (USA). Afin d'éviter la formation de bulles et de laisser une concentration en défaut élevée nous n'avons pas effectué de recuit.

Il a été vu dans au chapitre 3 que la préparation industrielle laissait des défauts profondément sous la surface. C'est pourquoi l'échantillon de MgO a été pré-poli par polissage mécano-chimique pendant 9h, ce qui a permis de décaper une couche de 20  $\mu\text{m}$ . Le retrait des défauts dus au polissage va permettre d'étudier plus finement l'influence de ceux introduits par l'irradiation. L'objectif de l'implantation a donc été d'introduire délibérément et de façon contrôlée des défauts sous la surface d'indentation. Le profil d'implantation choisi



**Figure A-5. : Implantation à différentes énergies pour des fluences de  $10^{16}$  ions.cm<sup>-2</sup>, les profils de lacunes pour les 4 énergies utilisées ainsi que la somme de toutes les lacunes sont représentés, NB : les concentrations ne tiennent pas compte des éventuelles recombinaisons.**

est une bande de défauts sous la surface d'indentation (001). Deux profils d'implantation ont été réalisés :

- quatre énergies à quatre fluences différentes : 40 keV ( $1,2 \cdot 10^{15}$  ions/cm<sup>2</sup>), 70 keV ( $1,1 \cdot 10^{15}$  ions/cm<sup>2</sup>), 105 keV ( $1,2 \cdot 10^{15}$  ions/cm<sup>2</sup>) et 150 keV ( $2,5 \cdot 10^{15}$  ions/cm<sup>2</sup>)
- la même expérience que précédemment mais avec des fluences d'un ordre de grandeur supérieur : 40 keV ( $1,2 \cdot 10^{16}$  ions/cm<sup>2</sup>), 70 keV ( $1,1 \cdot 10^{16}$  ions/cm<sup>2</sup>), 105 keV ( $1,2 \cdot 10^{16}$  ions/cm<sup>2</sup>) et 150 keV ( $2,5 \cdot 10^{16}$  ions/cm<sup>2</sup>)

La même densité de courant de  $1 \mu\text{A} \cdot \text{cm}^{-2}$  a été utilisée pour chaque implantation afin de limiter les effets de température. Les durées ont juste été adaptées afin d'obtenir la dose désirée. Les implantations ont été réalisées à énergie décroissante afin d'éviter les phénomènes de recuit au passage des ions.

La figure A-5. montre les profils de lacunes obtenus par calculs SRIM. Nous pouvons distinguer trois zones en fonction de la profondeur : une zone à fort gradient de concentration (entre 0 et 180 nm), une zone où la concentration est constante (de 180 à 580 nm) et la partie non implantée de l'échantillon (chute brutale de la concentration à 580 nm). La profondeur d'implantation ainsi que les distributions des lacunes sont identiques pour les deux

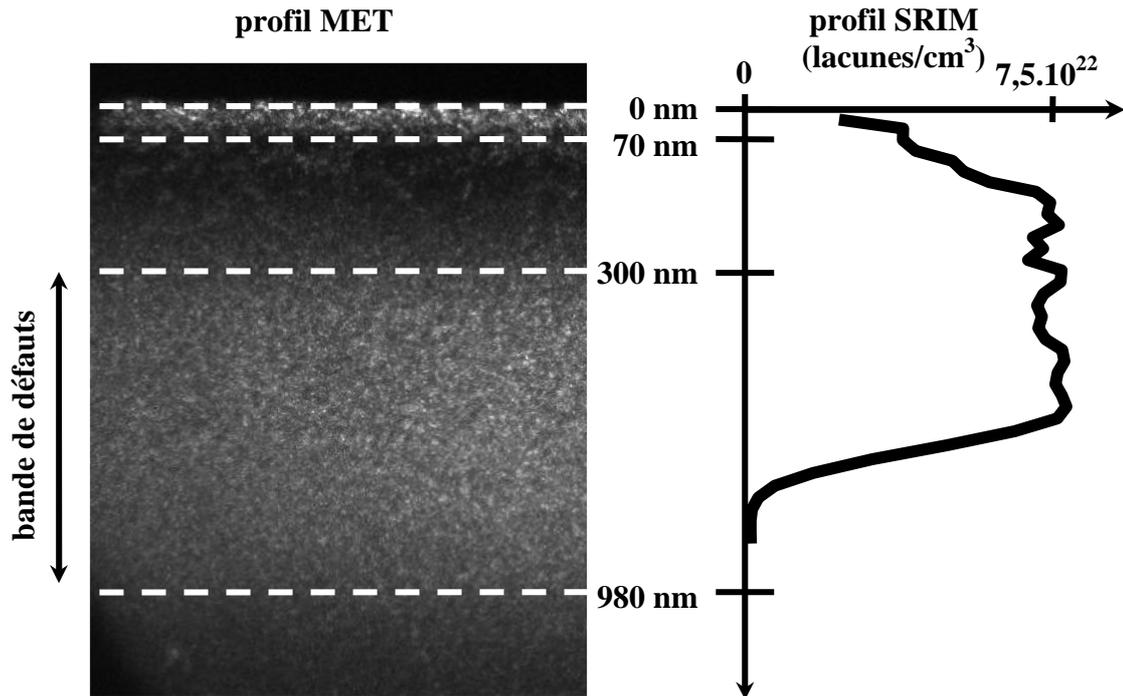


Figure A-6. : Profils de lacune obtenues par simulation SRIM et image MET, les zones blanches de l'image MET correspondent aux défauts contenus dans le cristal.

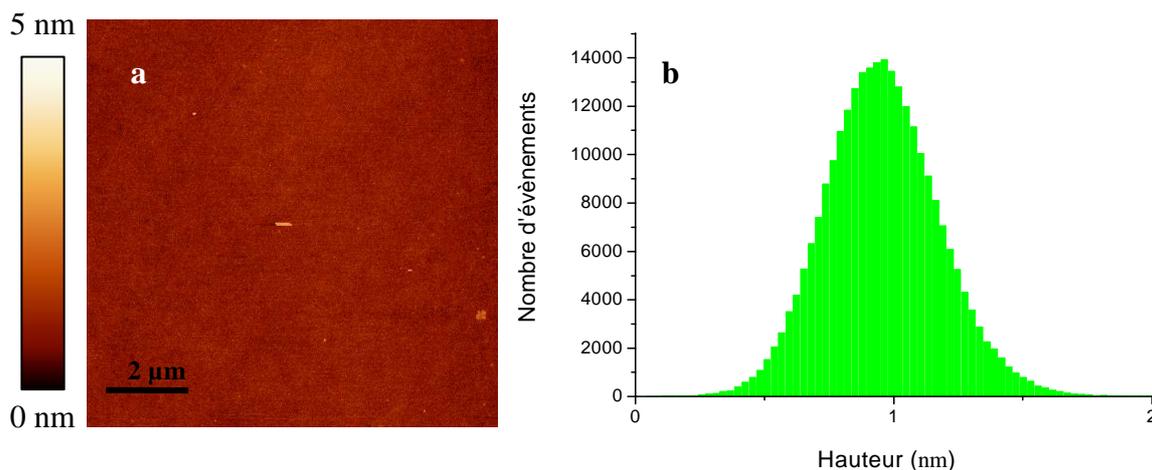
implantations, seules les concentrations en lacunes sont modifiées. L'implantation avec des fluences de  $10^{15}$  ions.cm<sup>-2</sup> présente une concentration en lacunes maximale de  $7.10^{21}$  cm<sup>-3</sup> et celle avec des fluences de  $10^{16}$  ions.cm<sup>-2</sup> une concentration maximale de  $7.10^{22}$  cm<sup>-3</sup> (figure A-5.).

Un échantillon implanté à des fluences de  $10^{16}$  ions.cm<sup>-2</sup> a été observé par microscopie électronique (MET) en coupe transverse. Les défauts sont visibles en clair sur un fond sombre correspondant au cristal parfait de MgO (figure A-6.).

Contrairement au profil SRIM qui présentait trois zones, l'image MET révèle en fait quatre zones (figure A-6.) :

- la très proche surface, entre 0 et 70 nm, présente une concentration importante de défauts dans le réseau
- une zone sans défaut entre 70 et 300 nm
- la bande de défauts d'implantation entre 300 et 980 nm
- le cristal non implanté au-delà de 980 nm

La présence des défauts en proche surface est très surprenante. Une explication pourrait être que les défauts de la zone à forte concentration aient migré vers la surface à cause de la contrainte générée par le gradient de concentration. Ce qui expliquerait en même temps



**Figure A-7. :** (a) Image AFM d'une surface après implantation, la surface n'est pas endommagée et la rugosité n'a pas évoluée, (b) distribution statistique des hauteurs de la surface, rugosité RMS 2,2 Å.

l'absence totale de défaut dans la seconde zone (70-300 nm). Cependant le propos n'est pas, ici, de s'intéresser aux défauts d'implantation, nous n'approfondirons pas l'analyse de l'origine de ces défauts, bien que la présence inattendue de cette couche mériterait plus d'investigation. Cependant nous pouvons exclure un effet du polissage car cette zone de défaut suit le bord de la lame.

Il est important de remarquer que malgré la très forte fluence et la grande quantité de défauts que cela génère, l'échantillon est toujours cristallin comme en témoignent les clichés de diffractions obtenus sous MET.

Sur la figure A-6., l'image MET et le profil SRIM sont représentés à la même échelle de profondeur. La profondeur réelle d'implantation est plus importante que celle prévue par la simulation. Une explication pourrait être l'effet de canalisation (ou *channelling* en anglais). Dans les échantillons cristallins certaines directions cristallographiques particulières présentent des distances d'arrêt beaucoup plus faibles que les autres. Les ions empruntant ces directions peuvent pénétrer plus profondément dans l'échantillon.

La topographie de surface a été rigoureusement contrôlée après chaque essai d'implantation afin de s'assurer que le passage des ions n'a pas modifié la rugosité de surface (figure A-7.).

## 5. Indentation dans MgO implanté

Le comportement mécanique des échantillons implantés a été testé par indentation sphérique avec l'indenteur SPH1 ( $R = 9,5 \mu\text{m}$ ). Les zones indentées ont ensuite été observées par AFM.

### 5.1. Irradiation à moyenne fluence : $10^{15} \text{ ions.cm}^{-2}$

#### 5.1.1. Analyse des courbes d'indentation

La figure A-8. présente un échantillonnage des courbes d'indentation obtenues sur des surfaces vierges et implantées, et montre une dispersion dans la charge d'apparition du pop-in identique avant et après implantation. Toutefois la charge moyenne d'apparition du pop-in est deux fois plus importante sur la surface implantée que sur l'échantillon vierge. La gamme de charges d'apparition du pop-in sur surface implantée correspond à une contrainte projetée dans les plans  $\{110\}_{45}$  maximum ( $\sigma_{45max}$ ) entre 620 et 820 nm, soit dans la bande de défauts. Il est probable que les dislocations soient nucléées sur ce site de contrainte maximum.

Avant et après implantation la déformation précédant le pop-in est complètement réversible : charge et décharge sont superposées (figure A-9.). La superposition des courbes d'indentation révèle le comportement classique de MgO sous indentation : une déformation réversible suivie d'une déformation élasto-plastique, la transition entre les deux régimes est marquée par l'apparition d'un pop-in.

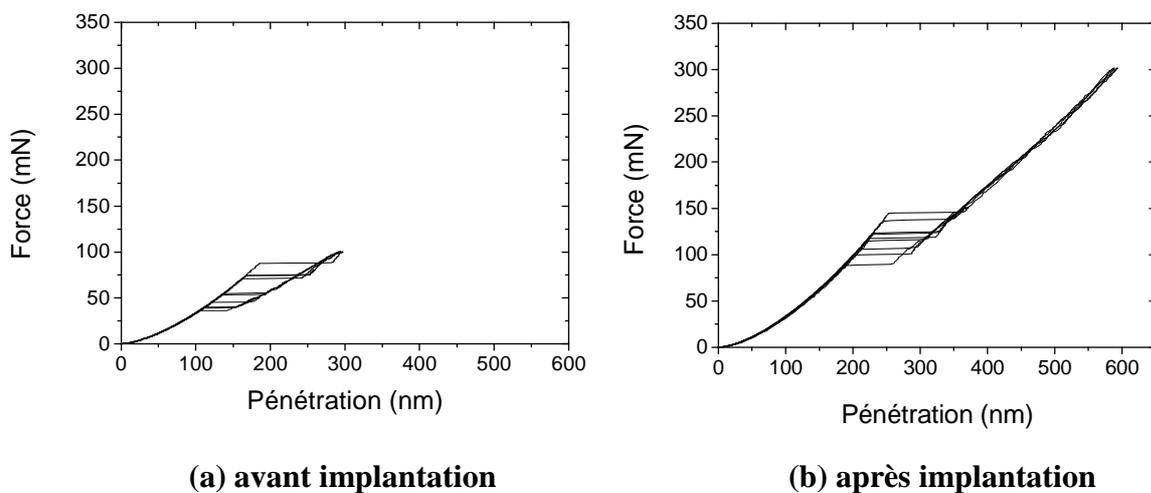
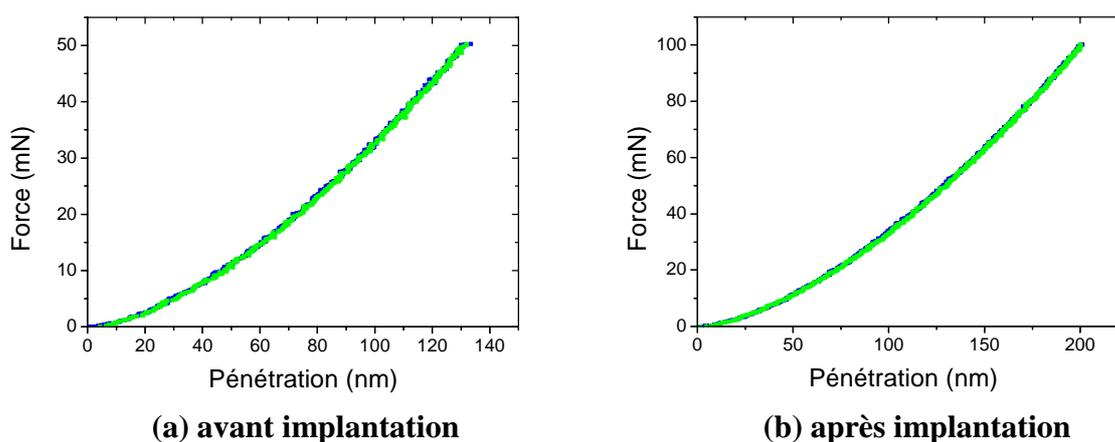


Figure A-8. : Echantillon de courbe d'indentation (a) avant implantation, (b) après implantation, pour plus de clarté les courbes de décharge ne sont pas représentées.

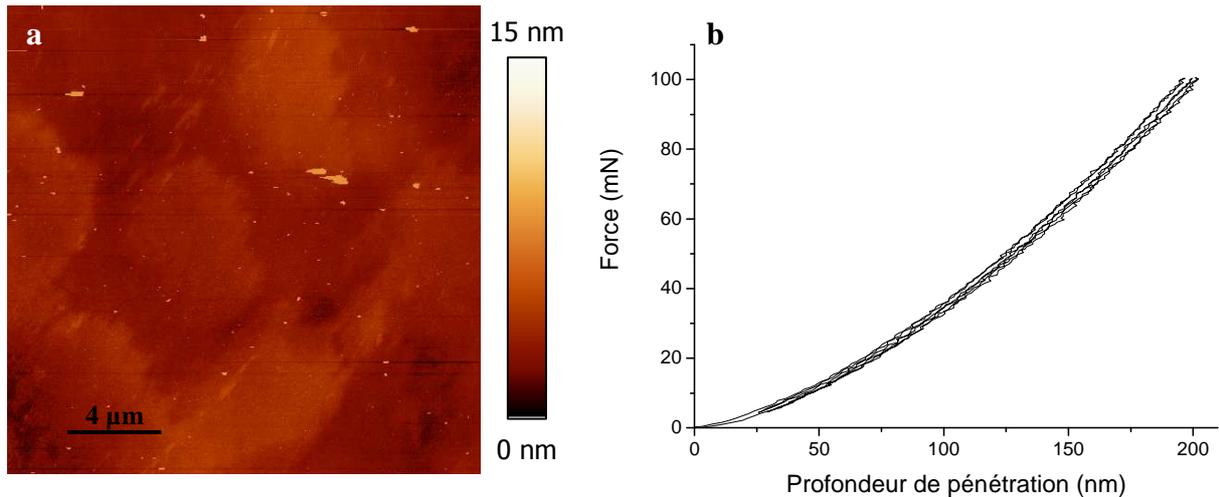


**Figure A-9. : Courbes d'indentations réversibles, charge et décharge sont superposées (a) avant implantation, (b) après implantation.**

La bande de défauts a également eu pour effet d'augmenter la dureté mesurée sur les courbes de décharge. De  $6,9 \pm 0,5$  GPa avant implantation, la dureté augmente à  $10,7 \pm 0,6$  GPa après implantation. Bien que la dureté sur échantillon vierge soit plus faible que celle rapportée dans la littérature (de l'ordre de 9 GPa), l'augmentation de la dureté a également été observée notamment sur des échantillons implantés par des ions lithium [8] et argon [5] ou encore sur des échantillons dopés [17]. Les mesures de dureté ont été effectuées sur des courbes d'indentation réalisées en sphérique, alors que classiquement la dureté est déterminée à partir d'indentation en Vickers. Richter *et al.* [5] ont également rapporté des valeurs de dureté mesurées par indentation avec un *cube corner* supérieures aux valeurs classiques. Ils proposent de relier cela au fait que plus un indenteur est pointu et plus la dureté mesurée est élevée.

### 5.1.2. Essai d'indentation réversible

L'observation par AFM de la surface après un essai d'indentation réversible ne révèle aucune trace de déformation et aucune ligne de glissement. Sur la figure A-10. un exemple est donné d'une indentation multi-cyclée réversible. Bien que l'image AFM (figure A-10.a) montre une surface qui se soit contaminée au cours de l'indentation, aucune ligne de glissement n'est observée en surface. Après décapage d'une couche d'échantillon de 950 nm et attaque chimique, la même région est à nouveau observée (figure A-11.). La zone correspondant à l'indentation élastique est repérée grâce aux empreintes de repérage réalisées



**Figure A-10. : Indentation multi cycles réversible sur une surface implantée avec des fluences de  $10^{15}$  ions.cm<sup>-2</sup>, (a) image AFM de la surface aucune ligne de glissement visible, (b) cycles réversibles d'indentation.**

à forte charge (figure A-11.a). Étonnamment une excroissance circulaire est observée à l'aplomb du contact élastique (figure A-11.b). Cette trace est observée après décapage, ce n'est pas une contamination de surface due au contact de l'indenteur, mais bien due à la nature physico-chimique particulière de cette zone. Bien que le comportement sous indentation soit parfaitement réversible et qu'aucune trace ne soit observée en surface, l'essai d'indentation a tout de même apporté des modifications dans le cœur du matériau. Ces excroissances ont été observées à plusieurs reprises, soit avec des essais en chargement multi-cycles, soit avec des temps de maintien sous charge. Nous n'avons malheureusement pas eu l'opportunité de pouvoir étudier des essais de chargements simples. Ces excroissances ne sont observées que dans la bande de défauts, une fois que la couche implantée est totalement décapée ce genre de contraste n'est plus du tout observé.

Le fait que cette trace soit observée après polissage montre qu'il s'agit d'un phénomène intrinsèque, il ne s'agit pas ici de contamination de surface due au contact de l'indenteur comme cela a pu être observé sur d'autres essais. Une hypothèse serait d'envisager la diffusion de lacunes sous contrainte sous l'indenteur. Ce phénomène pourrait ainsi modifier les propriétés physico-chimiques d'une zone précisément sous le contact et pas en dehors.

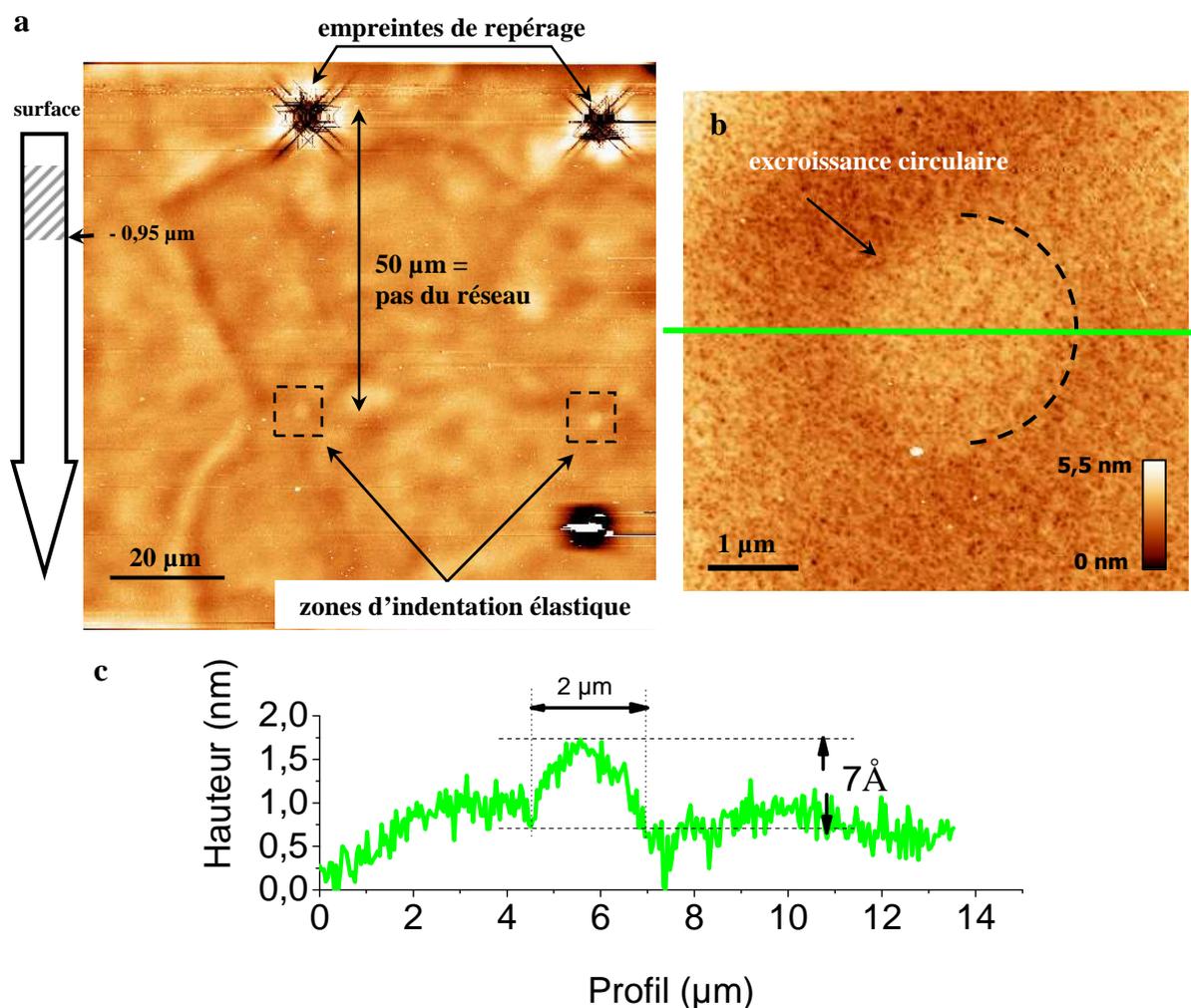
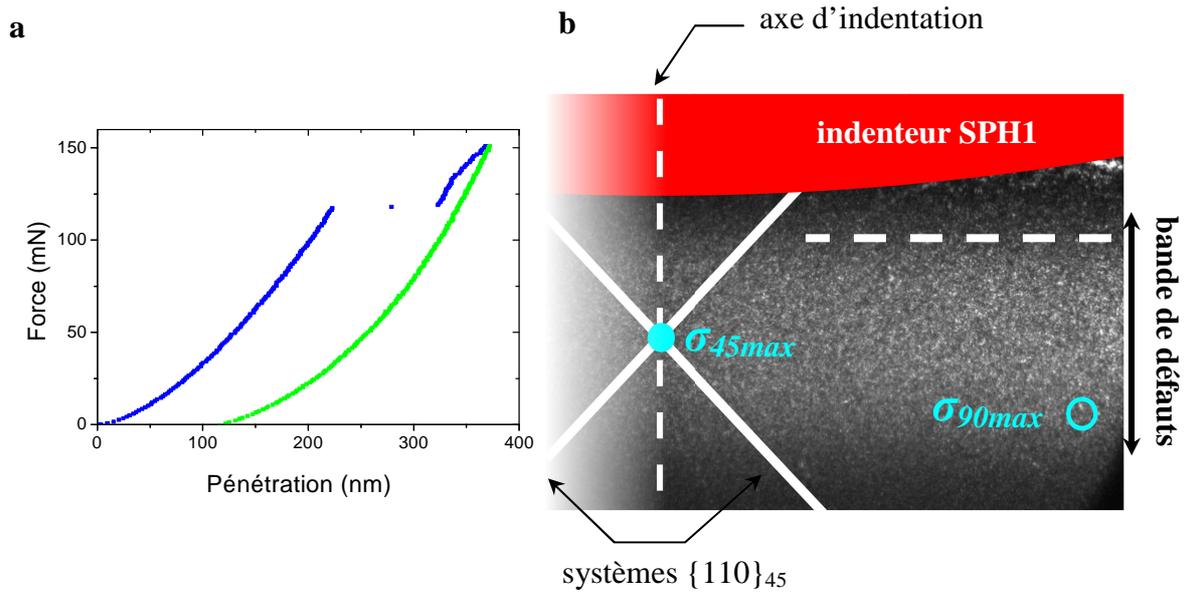


Figure A-11. : Images AFM après décapage d'une couche de 950 nm et attaque chimique, (a) image filtrée à large scan, (b) zone à 950 nm sous la surface d'indentation après un essai cyclé réversible, (c) profil de l'excroissance.

### 5.1.3. Structures de dislocations dans un échantillon implanté

L'observation par AFM des empreintes révèle qu'en surface l'extension des bras de Rosette est très limitée comparativement aux mêmes types d'empreintes réalisées sur une surface vierge (voir partie bibliographique). La figure A-13.a est une image de surface de l'empreinte correspondant à la courbe d'indentation figure A-12.a. Le pop-in se déclenche à une profondeur de pénétration de 220 nm ce qui correspond à un  $\sigma_{45max}$  situé à 650 nm sous la surface d'indentation, dans la zone de défauts (figure A-12.b).

La figure A-13. présente la même empreinte à différents niveaux de polissages. L'échantillon a été poli par polissage mécano-chimique puis attaqué chimiquement pour révéler les points d'émergence des dislocations. Toutes les images AFM sont représentées à la



**Figure A-12. : (a) Courbe d'indentation sur surface implantée correspondant à la figure A-12., (b) Image MET de la zone de défaut, les positions de  $\sigma_{45max}$  et  $\sigma_{90max}$  au moment du pop-in sont représentées par des cercles pleins et vides respectivement.**

même échelle. L'image AFM de surface (figure A-13.a) montre que les lignes de glissement sont mal définies ce qui donne une impression de « flou » à l'image. Le niveau de polissage en figure A-13.b est situé en bord inférieur de la zone de défauts (950 nm sous la surface d'indentation). Les points d'émergence des dislocations restent confinés près du centre de l'empreinte, en particulier les dislocations contenues dans les plans  $\{110\}_{90}$  qui classiquement s'étendent même plus loin que celles des systèmes  $\{110\}_{45}$  (figure A-13.b). Au fur et à mesure des décapages successifs (figure A-13.b à d) les empilements de dislocations retrouvent une extension similaire à celle observée sur un échantillon non implanté. La présence de défaut à proximité de la surface empêche les demi-boucles de dislocations de s'étendre, et concentre ainsi l'émergence des lignes de glissement à proximité de l'empreinte. Une fois en dehors de la zone de défauts les boucles de dislocations peuvent se propager librement. La figure A-14. schématise la distribution en volume des dislocations, la boucle rouge symbolise la position d'une dislocation nucléée lors d'un essai d'indentation sur une surface implantée, alors que la boucle noire est le profil d'une dislocation nucléée lors d'indentation sur une surface vierge. Une dislocation nucléée dans un échantillon vierge prend une forme d'équilibre en « U ». Celle nucléée dans un échantillon implanté prend une forme en « col de bouteille » avec un étranglement au niveau de la zone de défaut.

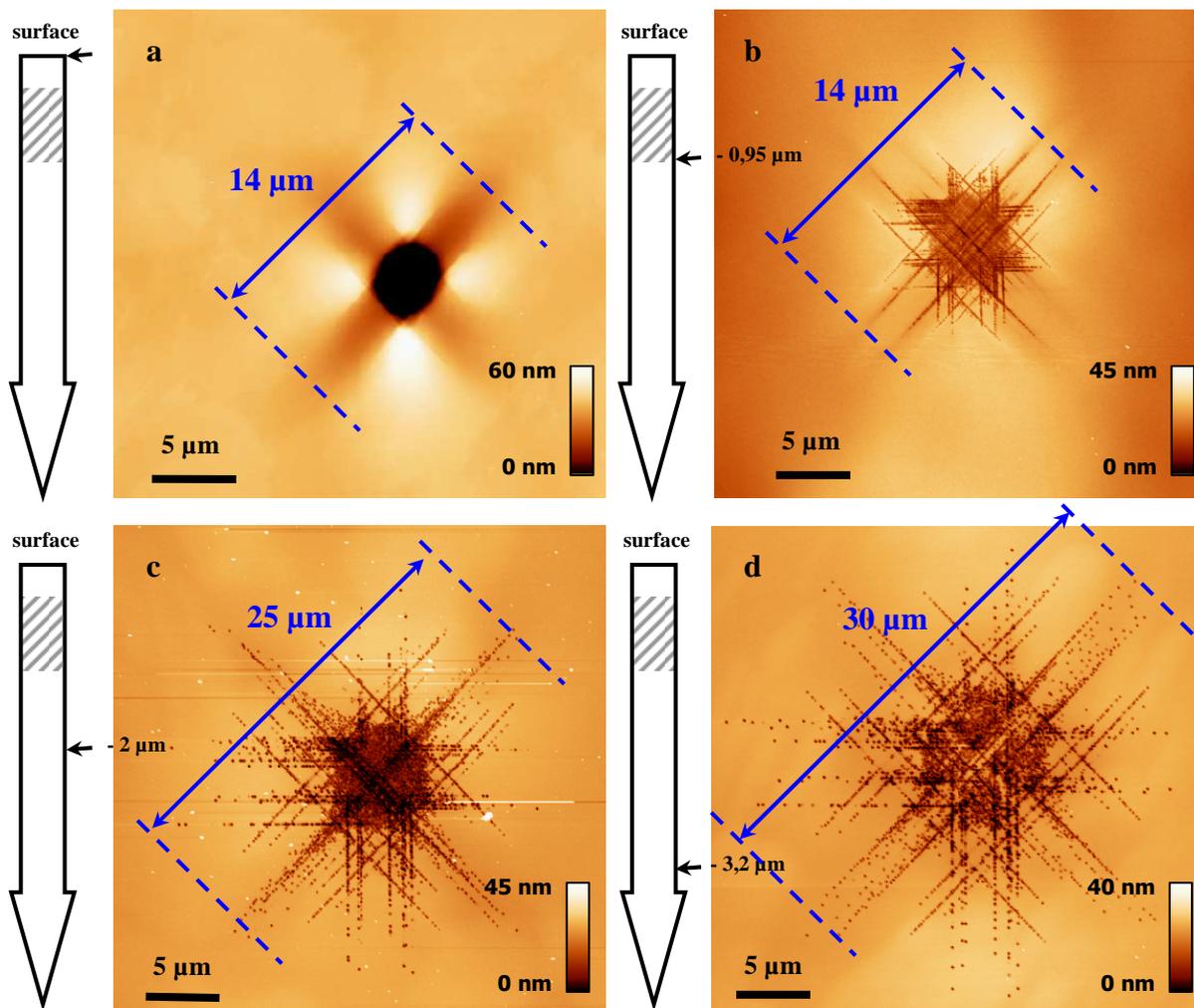


Figure A-13. : Images AFM (a) de la surface indentée après implantation, (b) après attaque chimique et décapage de 950 nm, (c) après attaque chimique et décapage de 2  $\mu\text{m}$ , (d) après attaque chimique et décapage de 3,2  $\mu\text{m}$ .

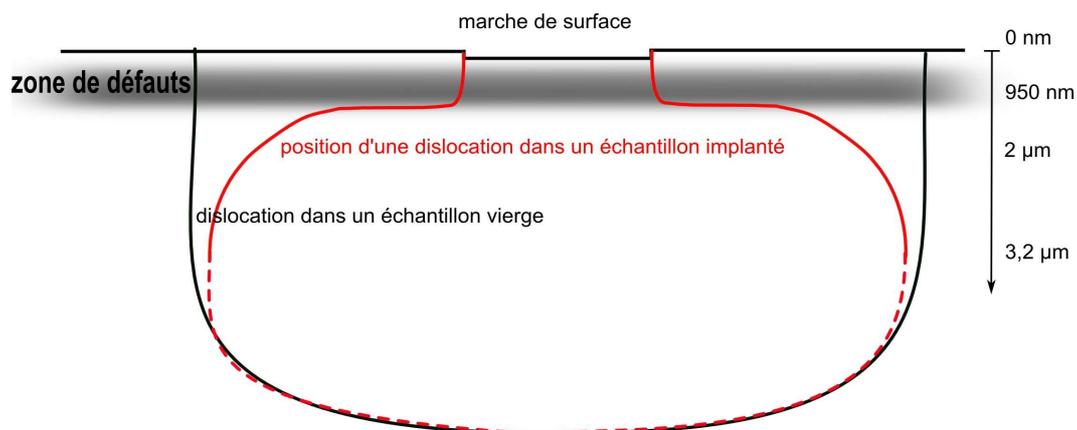


Figure A-14. : Position d'une dislocation dans un échantillon implanté ou non, la partie en pointillé de la dislocation dans un échantillon implanté est le profil supposé de la dislocation et non issu d'observation.

## 5.2. Irradiation à forte fluence : $10^{16}$ ions.cm<sup>-2</sup>

L'échantillon précédent a été repoli 3h ce qui porte à un total de 12h de polissage, soit 27  $\mu\text{m}$  sous la surface industrielle. Le même profil d'implantation a été répété avec une fluence d'un ordre de grandeur plus importante. Seule la concentration de lacune est modifiée dans les mêmes proportions que la fluence, la distribution quant à elle ne change pas.

Deux séries d'indentations ont été réalisées sur cet échantillon. La première série a été faite sur l'échantillon poli-implanté et la seconde série sur le même échantillon poli-implanté-repoli. Les deux séries sont représentées schématiquement sur la figure A-15.

### 5.2.1. Analyse des courbes d'indentation

La première série d'indentation réalisée sur la surface d'implantation (figure A-15.a) montre une évolution très nette du comportement, de plus l'étude en volume de la distribution des dislocations révèle également de nombreuses interactions.

La figure A-16. montre deux courbes caractéristiques, à même échelle, du comportement sous indentation observé avant et après implantation. La courbe avant implantation (figure A-16.a) est totalement réversible : charge et décharge sont superposées. Ce type de comportement est cohérent avec la profondeur décapée (27  $\mu\text{m}$  par rapport à la surface industrielle). Les essais d'indentation après implantation, figure A-16.b, font

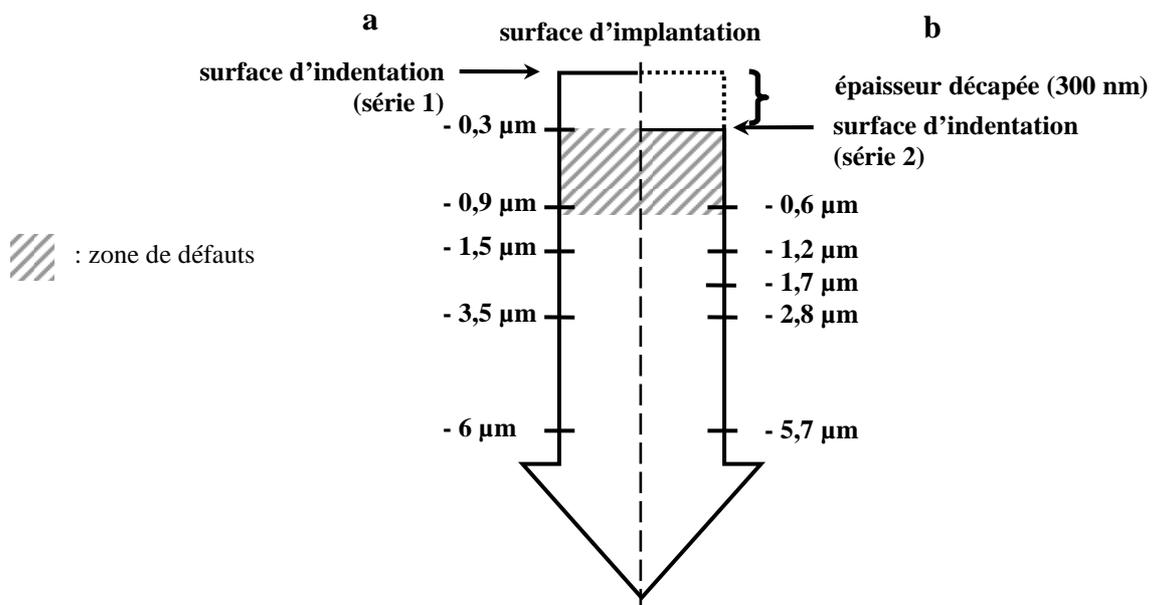


Figure A-15. : Niveau de polissage au moment de l'indentation et niveaux d'observation des structures de dislocations (a) première série, (b) seconde série.

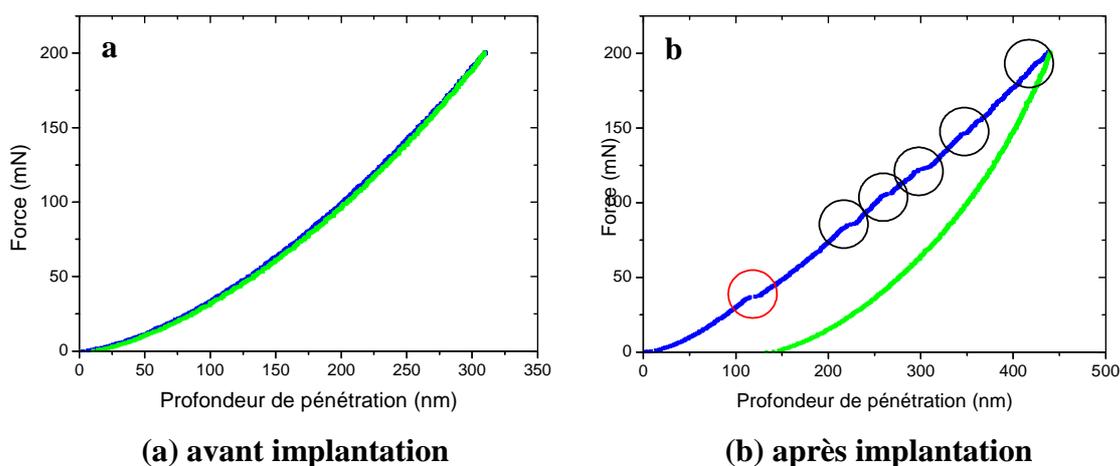


Figure A-16. : Courbes de nanoindentation (a) avant implantation, comportement réversible à forte charge, (b) après implantation avec 4 énergies différentes à des fluences de l'ordre de  $10^{16}$  ions/cm<sup>2</sup>, les pop-ins successifs sont indiqués par des cercles noirs, et rouge pour le premier pop-in.

apparaître un nouveau comportement : une succession de pop-in dont le premier apparaît de façon très reproductible à  $37 \pm 3$  mN. La position de  $\sigma_{45max}$  au moment du premier pop-in se situe entre 450 et 500 nm sous la surface d'indentation, c'est-à-dire clairement dans la zone de défauts (figure A-17.).

L'analyse des courbes montre également une augmentation de la dureté de  $9,9 \pm 0,7$  GPa sur la surface vierge à  $11,5 \pm 0,2$  GPa sur la surface implantée.

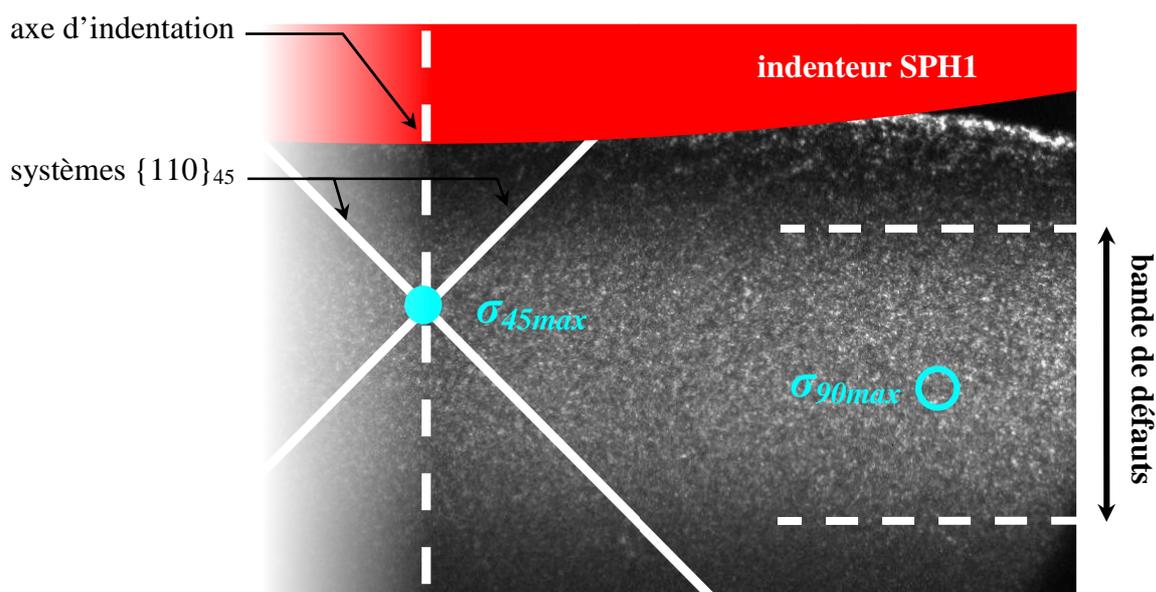
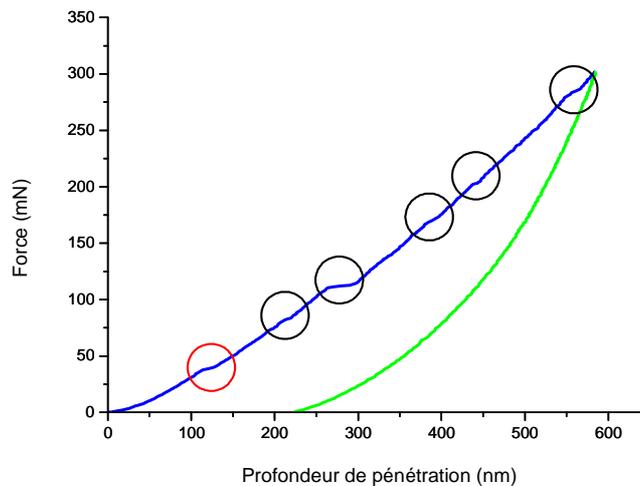


Figure A-17. : Image MET de la zone de défaut, les positions de  $\sigma_{45max}$  et  $\sigma_{90max}$  au moment du premier pop-in ( $h = 120$  nm) sont représentées par des cercles pleins et vides respectivement.

### 5.2.2. Structure de dislocations

La figure A-18. est la courbe d'indentation correspondant à l'empreinte détaillée figure A-19. La courbe de charge présente plusieurs petits pop-ins successifs, dont le premier apparaît pour un chargement de 40 mN. L'image AFM de surface, figure A-19.a, révèle, comme précédemment, que les dislocations restent confinées près de l'empreinte. Les étapes de polissage et attaque chimique successifs, figures A-19.c à f, montrent que les dislocations retrouvent une extension normale une fois qu'elles ont traversé la couche chargée de défauts.



**Figure A-18. : Courbe d'indentation correspondant à l'empreinte étudiée figure A-19.**

A la différence de l'expérience précédente la figure d'attaque des empreintes dans la zone de défauts a pu être observée. Comme le montre les figures A-19.b et A-20. les points d'émergence des dislocations n'ont pas été révélés par attaque chimique. Il a donc été impossible de déterminer avec exactitude l'épaisseur décapée. Toutefois, la durée de polissage nous permet d'estimer la profondeur décapée à 300 nm. Ceci est une estimation, nous avons vu que l'attaque chimique ne réagit pas correctement dans la zone de défauts, il est raisonnable de penser que la vitesse d'abrasion est influencée par la présence de ces mêmes défauts.

Les figures d'attaque réalisées dans la zone de défauts révèlent des structures très particulières. Si aucune piqûre n'est visible, des creux sont en lieu et place de la figure d'attaque. Bien que l'orientation de ces sillons soit grossièrement dans les mêmes directions que les alignements de piqûres, ils doivent être décorréler des dislocations, leur forme courbe serait difficile à interpréter en termes de position de dislocations. Cependant les sillons identifiés par des flèches sur la figure A-19.b se retrouvent sur la figure A-19.c. Leur

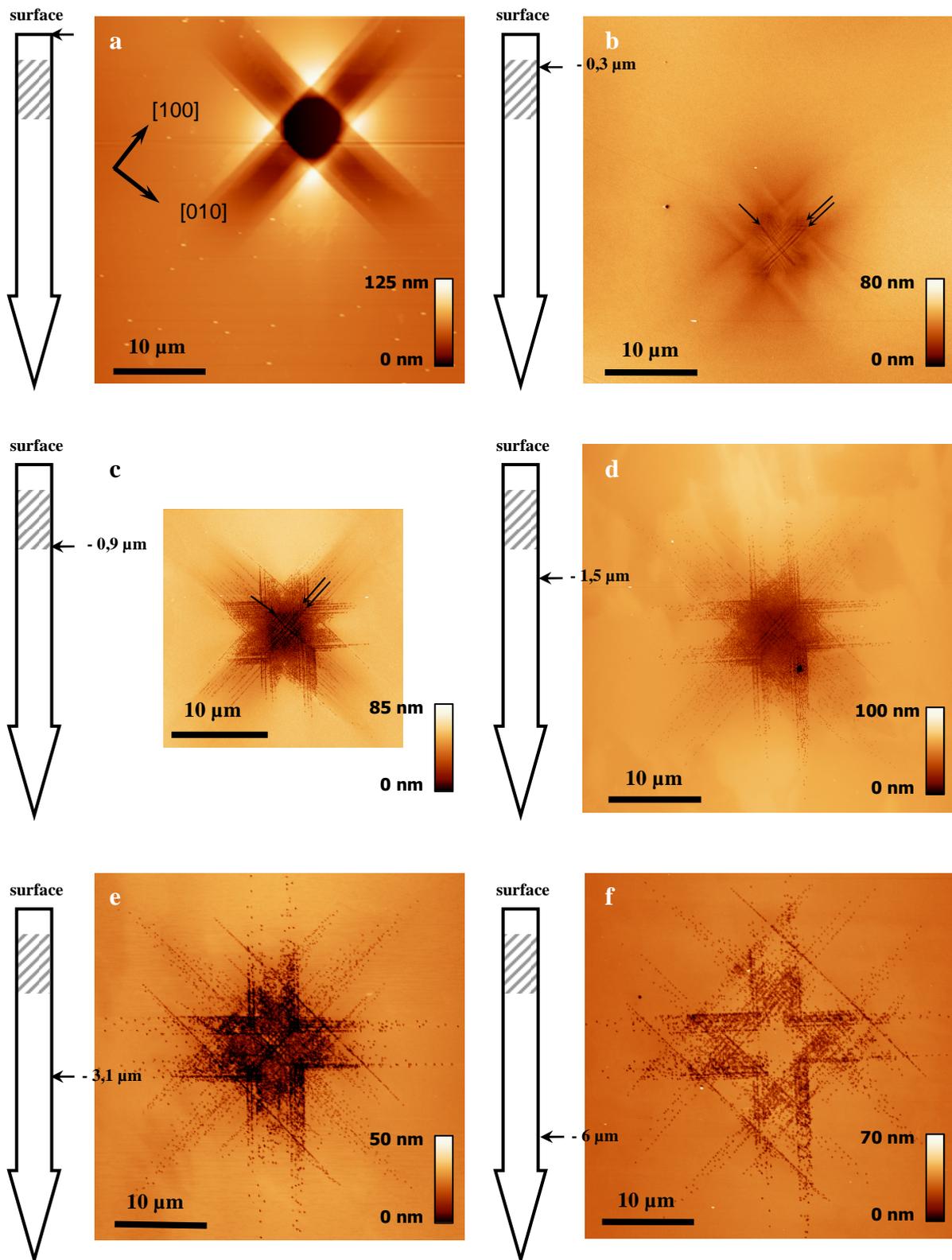


Figure A-19. : Evolution de la structure de dislocations en fonction de la profondeur après un essai d'indentation sur un échantillon implantée (a) topographie de surface, (b) après décapage et attaque chimique, l'attaque n'a pas révélé les piqûres d'émergence mais seulement des alignements courbes, (c) décapage de 900 nm et attaque chimique, (d) 1,5 μm sous la surface, (e) 3,1 μm, (f) 6 μm, toutes les images sont représentées à la même échelle.

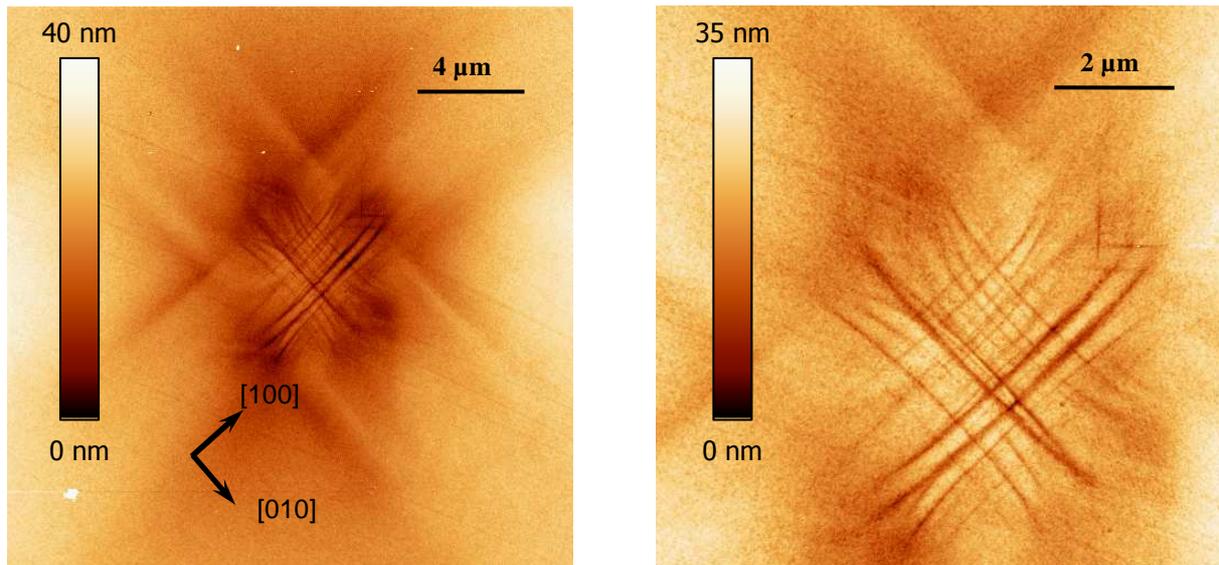


Figure A-20. : Images AFM de topographie dans la zone implantée de l'empreinte correspondant à la courbe figure, réalisées après attaque chimique. L'image de droite est un agrandissement d'une partie de celle de gauche.

déplacement relatif d'une image à l'autre par rapport au centre de l'empreinte correspond à des plans convergents. Il est alors envisageable que des défauts aient migré lors de l'essai d'indentation. Ces défauts ayant une affinité particulière avec les dislocations, ils se retrouvent dans des zones de forte densité de dislocations. Ce qui explique l'étrange ressemblance avec les alignements de piqûres. Toutefois ces défauts, n'étant pas cantonnés à des plans de glissement comme les dislocations, suivent les courbes d'iso contrainte de l'indenteur, ce qui explique la forme courbée de ces sillons. Une autre explication probable serait de la microfissuration au moment du contact avec l'indenteur.

### 5.2.3. Propriétés particulières de l'interface cristal/zone de défauts

Une autre originalité est ressortie de cet échantillon. Après avoir décapé 900 nm, la surface a été observée sans attaque chimique (figure A-21.a). Alors qu'on ne devrait observer qu'une surface plane, un enfoncement de la surface ressemblant à une empreinte est visible. Le centre ainsi que des enfoncements dans les directions  $\langle 100 \rangle$  correspondant à certains bras de Rosette sont identifiables. Il ne s'agit pas ici d'un contraste dû à de la contamination de surface mais à un vrai relief (figure A-21.c et A-21.e). Lorsque l'échantillon est attaqué les points d'émergence des dislocations sont révélés par la formation d'une nano piqûre (figure A-21.b). Et on retrouve la figure d'attaque classique observée sur ce type d'empreinte.

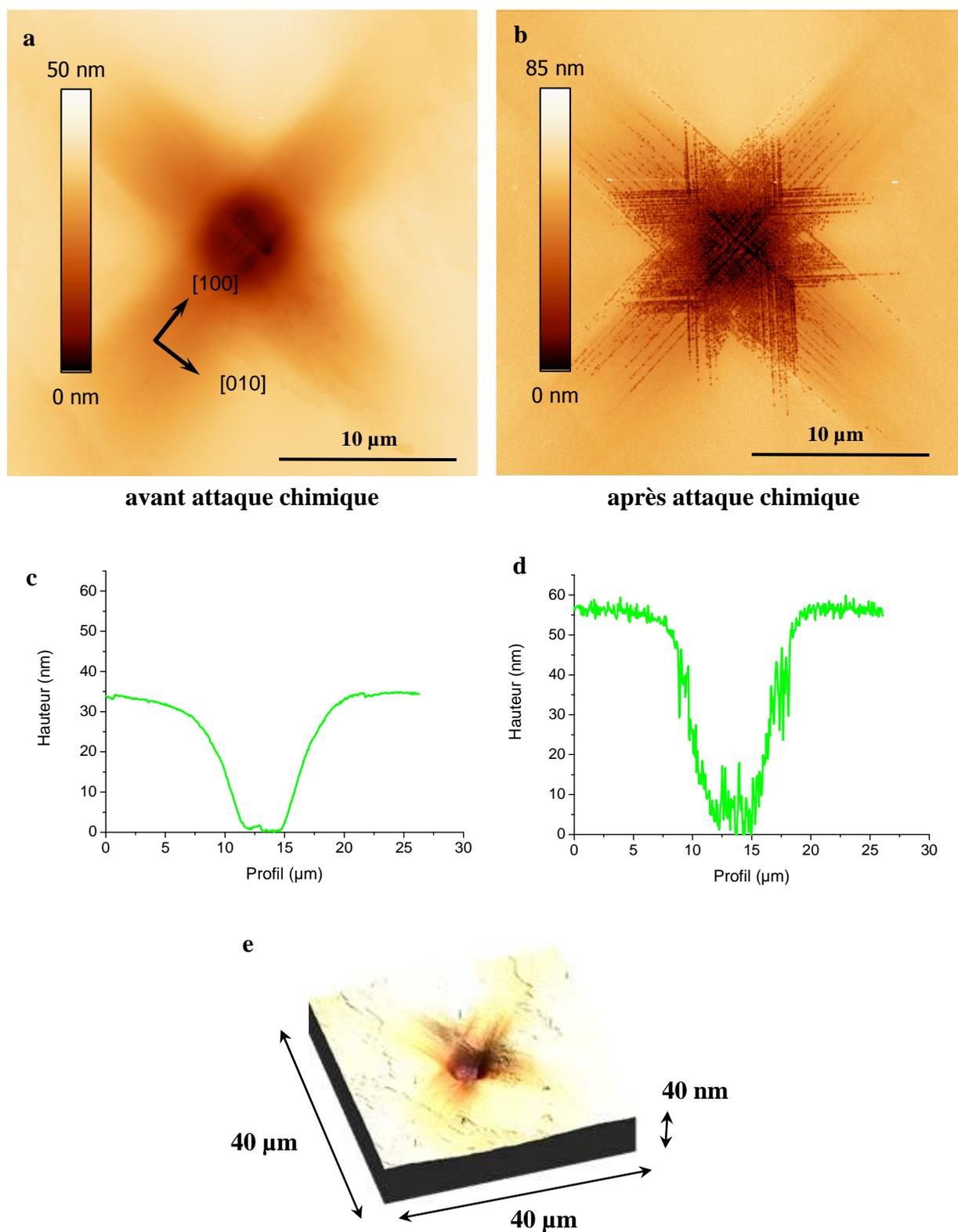


Figure A-21. : Etude au même niveau de polissage situé juste après la bande de défauts, (a) image AFM de la surface après polissage sans attaque chimique du relief de surface ressemblant à une empreinte est visible, (b) la même zone après attaque chimique, les points d'émergence des dislocations sont révélés, (c) profil de (a), (d) profil de (b) l'empreinte s'est creusée à cause de l'attaque chimique, (e) vue 3D de (a), NB : (a) et (b), (c) et (d) sont représentés aux mêmes échelles.

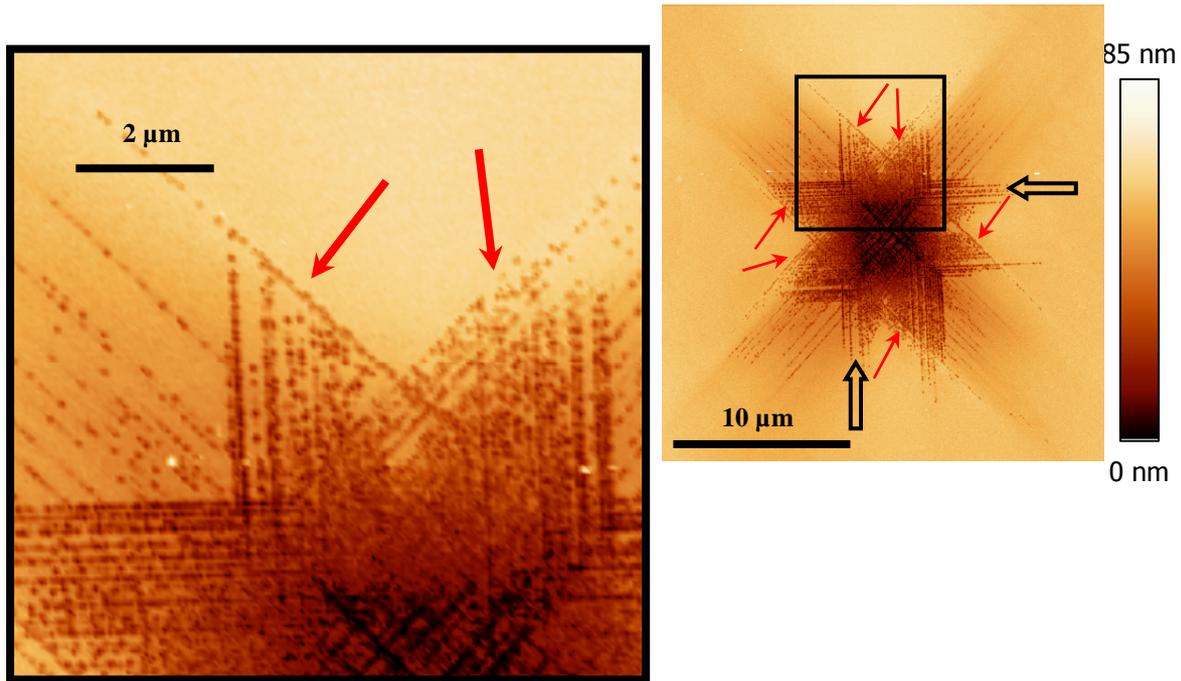
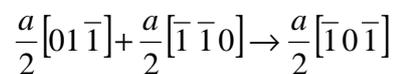


Figure A-22. : Agrandissement de la figure c, les blocages des systèmes  $\{110\}_{90}$  sur les systèmes  $\{110\}_{45}$  sont indiqués par des flèches pleines, les systèmes non bloqués par des flèches creuses.

La présence des défauts à également une autre influence, ils favorisent les blocages entre les systèmes de glissement. Un agrandissement de la figure A-19.c est donnée en figure A-22. Les dislocations dans les plans  $\{110\}_{90}$  sont bloquées par celles glissant dans les plans  $\{110\}_{45}$  juste en dessous de la zone de défauts (900 nm sous la surface d'indentation). Ces interactions ne sont plus visibles aux niveaux de polissage suivants (figures A-19.d à f), c'est donc bien la présence de la bande de défauts qui en est responsable.

Les interactions entre dislocations des systèmes  $\{110\}_{45}$  et  $\{110\}_{90}$  sont énergétiquement favorables. En considérant deux dislocations, une dans le système  $[01\bar{1}](011)$  et l'autre dans  $[\bar{1}\bar{1}0](1\bar{1}0)$ , leur réaction s'écrit :



#### 5.2.4. Défauts affleurant sous le contact

Cette nouvelle série d'indentation (série 2) a été réalisée sur le même échantillon que précédemment après polissage d'une première couche de 300 nm (figure A-23.).

Les essais de cette série 2 montrent également un resserrement de la charge d'apparition du pop-in autour d'une charge moyenne de 20 mN. Une courbe type est présentée figure A-24. Ces charges correspondent à une profondeur de pénétration de 70 nm, ce qui place le point

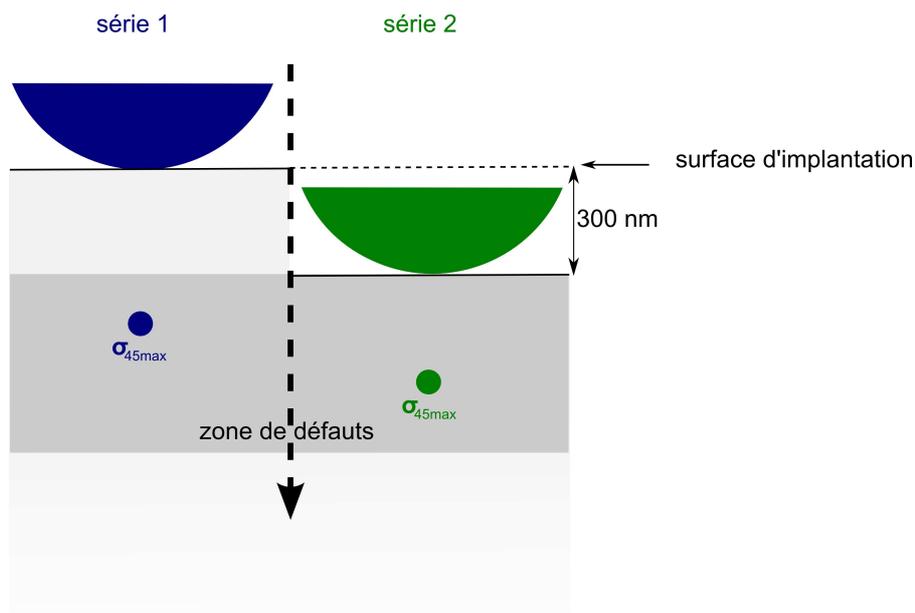


Figure A-23. : Représentation schématique des positions de  $\sigma_{45max}$  lors des séries d'indentation 1 et 2.

du maximum de contrainte  $\sigma_{45max}$ , à une profondeur de 370 nm sous la surface d'indentation. Par rapport à la surface d'implantation il se situe à 670 nm (370 nm + 300 nm décapés). La figure A-23. représente schématiquement la position des  $\sigma_{45max}$  de chaque série d'indentation. Les deux sites de nucléation ne sont pas situés au même niveau dans la bande de défaut, ni à la même position relative par rapport à la surface d'indentation. Ce qui indique qu'il n'y a de préférence à la nucléation ni en localisation dans la bande de défauts ni en termes de contrainte.

La figure A-25. présente l'étude tomographique de l'empreinte correspondant à l'essai d'indentation présenté figure A-24. L'image AFM de surface, figure A-25.a révèle la présence

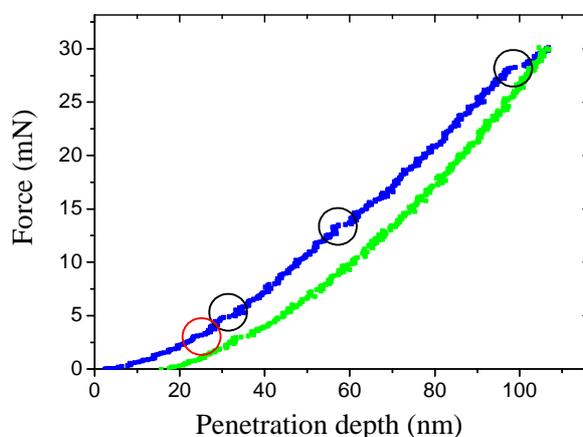


Figure A-24. : Courbe d'indentation de la série 2 correspondant aux images AFM figure A-25.

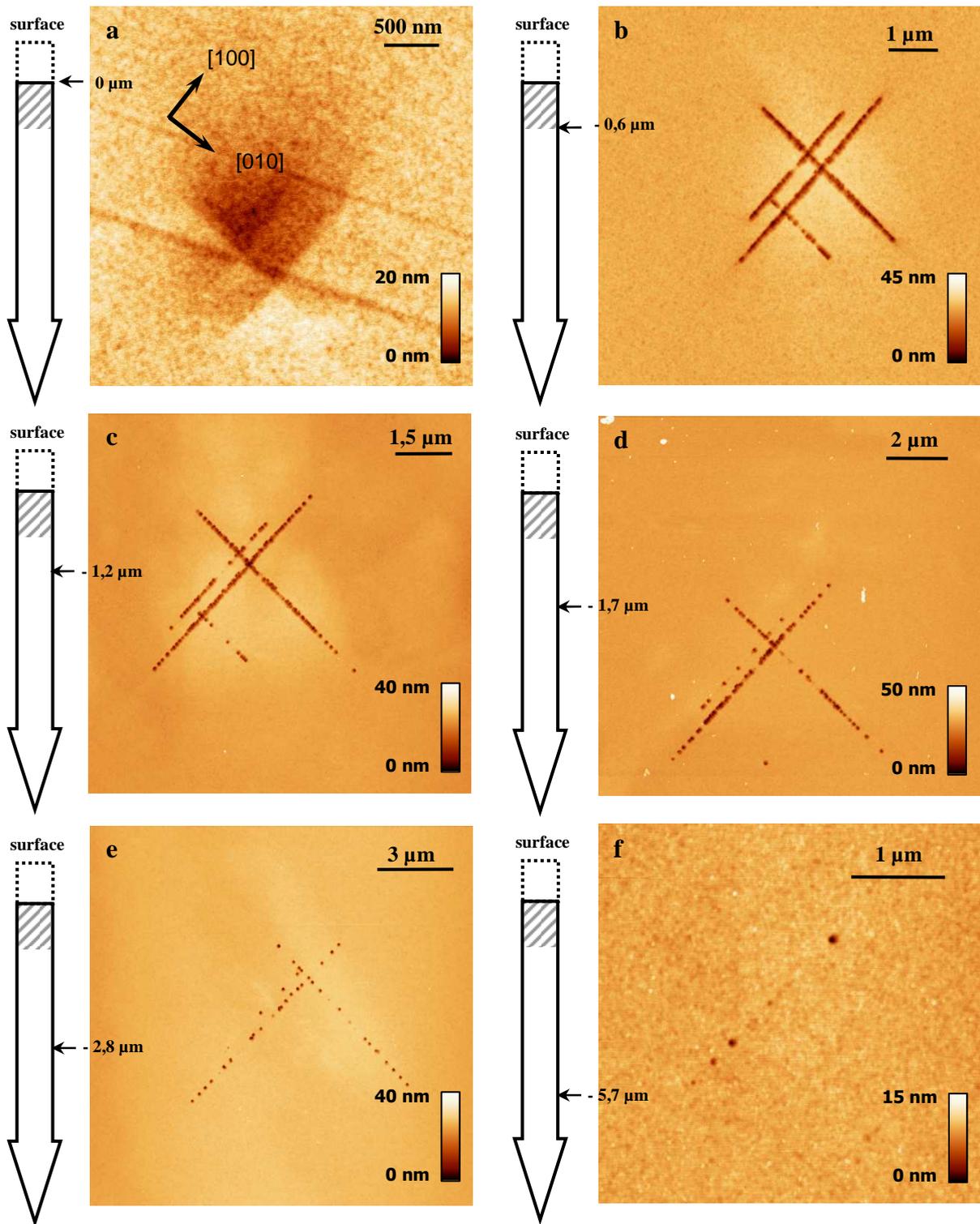


Figure A-25. : Evolution en fonction de la profondeur de la structure de dislocations après un essai d'indentation à faible charge (30 mN) sur une surface où affleurent les défauts d'implantation, (a) image AFM de surface, (b) après polissage de 600 nm et attaque chimique, (c) après polissage de 1,2  $\mu\text{m}$  et attaque chimique, (d) après polissage de 1,7  $\mu\text{m}$  et attaque chimique, (e) après polissage de 2,8  $\mu\text{m}$  et attaque chimique, (f) après polissage de 5,7  $\mu\text{m}$  et attaque chimique.

de plusieurs lignes de glissement dans les directions [100] et [010] qui provoquent un enfoncement de la surface. La figure A-25.b, après polissage et attaque chimique, montre un contraste plus clair au centre de l'image. Le plan d'observation est le même que celui où a été observé un cercle d'excroissance pour les essais réversibles (voir paragraphe 5.1.2. de cette annexe). Les étapes de polissage successifs (figure A-25.b à f) montrent que seuls les plans  $\{110\}_{45}$  ont été activés. Certaines des dislocations s'étendent profondément sous la surface, puisqu'après polissage de  $5,7 \mu\text{m}$  (figure A-25.f) l'attaque chimique révèle des piqûres.

La figure A-26. est la courbe d'indentation d'un essai réalisé à forte charge (300 mN), les observations AFM de l'empreinte correspondante sont présentées sur la figure A-27. L'image de surface, figure A-27.a, montre un effet flouté ce qui ne permet pas de distinguer avec précision les bords des marches. La figure A-27.b, réalisée après polissage mais sans attaque chimique, révèle tout de même un relief de surface similaire à celui observé sur le cas précédent figure A-21. Il confirme le caractère très particulier de l'interface bande de défauts/cristal parfait. Les figures d'attaque successives (figures A-27.c à f) montrent les figures de Rosette classiquement observées pour des empreintes à ces charges.

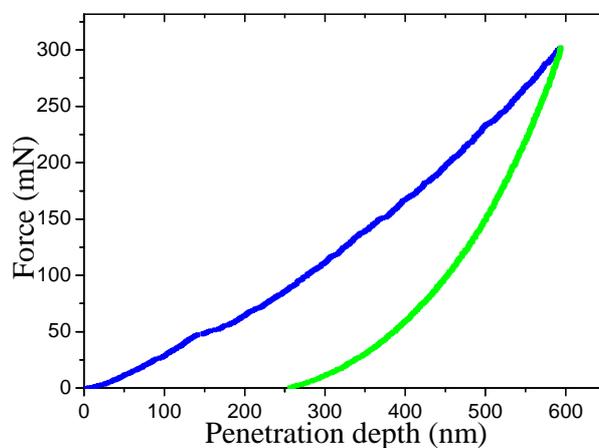


Figure A-26. : Courbe d'indentation correspondante à l'empreinte étudiée figure A-27.

Les propriétés élastiques de MgO sous indentation semblent ne pas être affectées par la présence de défauts ponctuels, les courbes d'indentation avant pop-in suivent le même comportement que ce soit avant ou après implantation.

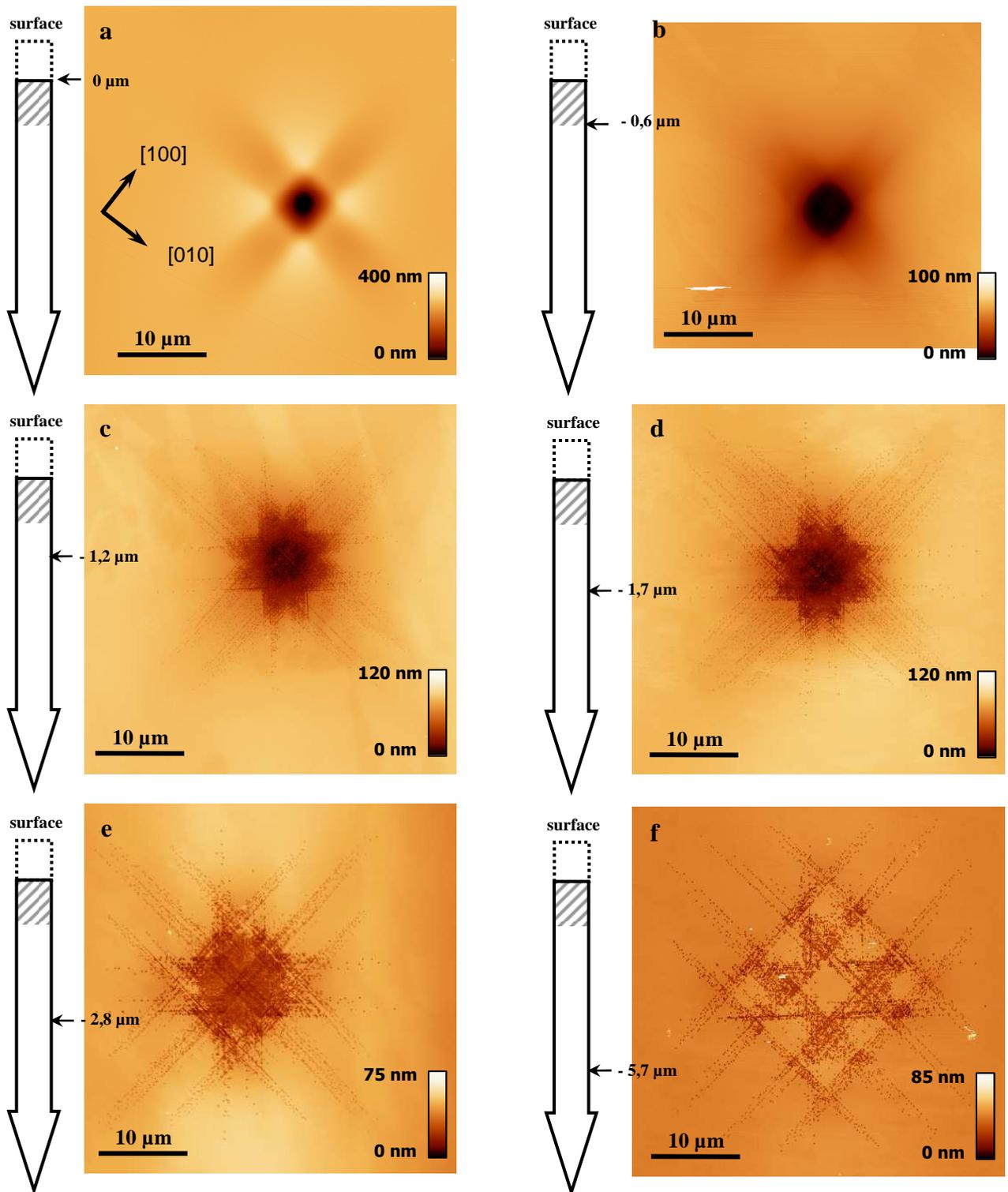


Figure A-27. : Evolution en fonction de la profondeur de la structure de dislocations d'une empreinte à forte charge (300 mN) de la série 2, (a) image de surface, (b) image après polissage de 600 nm sans attaque chimique : un relief de surface est observé, (c) après polissage de 1,2 μm et attaque chimique, (d) après polissage de 1,7 μm et attaque chimique, (e) après polissage de 2,8 μm et attaque chimique, (f) après polissage de 5,7 μm et attaque chimique. Les images sont représentées à la même échelle.

Les expériences de nanoindentation menées sur des échantillons implantés aux ions hélium avec différentes fluences ont permis de mettre en évidence un certain nombre d'interactions entre les dislocations nucléées sous indentation et ces défauts. Ces interactions sont de plusieurs natures :

- abaissement de la charge moyenne d'apparition du pop-in et diminution de la dispersion dans les charges de déclenchement.
- limitation de l'extension latérale des dislocations dans la bande de défauts.
- favorisation des blocages entre dislocations par interactions entre différents systèmes de glissement.



## Références bibliographiques

- [1] C. Tromas, J. C. Girard, et J. Woïrgard, “Study by atomic force microscopy of elementary deformation mechanisms involved in low load indentations in MgO crystals,” *Philosophical Magazine A*, vol. **80**, n°. 10, p. 2325-2335, 2000.
- [2] C. A. Schuh, J. K. Mason, et A. C. Lund, “Quantitative insight into dislocation nucleation from high-temperature nanoindentation experiments,” *Nature Materials*, vol. **4**, n°. 8, p. 617-621, 2005.
- [3] M. P. Puls, “Vacancy-dislocation interaction energies in MgO. A re-analysis,” *Philosophical Magazine A: Physics of Condensed Matter, Structure, Defects and Mechanical Properties*, vol. **47**, n°. 4, p. 497, 1983.
- [4] S. Zinkle et C. Kinoshita, “Defect production in ceramics,” *Journal of Nuclear Materials*, vol. **251**, p. 200-217, 1997.
- [5] A. Richter, B. Wolf, M. Nowicki, R. Smith, I. O. Usov, J. A. Valdez, et K. Sickafus, “Multi-cycling nanoindentation in MgO single crystals before and after ion irradiation,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. **39**, n°. 15, p. 3342, 2006.
- [6] A. Richter, I. Gheewala, R. Smith, S. D. Kenny, J. Valdez, et K. Sickafus, “Changes in the mechanical properties of irradiated MgO(1 0 0) crystals investigated by nanoindentation and computer simulation,” *Journal of Nuclear Materials*, vol. **382**, n°. 2, p. 176, 2008.
- [7] E. Wendler, K. Gärtner, et W. Wesch, “Comparison of ion-induced damage formation in  $\langle 1\ 1\ 0 \rangle$  and  $\langle 1\ 0\ 0 \rangle$  MgO,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. **266**, n°. 12, p. 2872, 2008.
- [8] D. Caceres, I. Vergara, R. Gonzalez, Y. Chen, et E. Alves, “Nanoindentation on MgO crystals implanted with lithium ions,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. **191**, n°. 1, p. 154, 2002.
- [9] A. Van Veen, H. Schut, A. V. Fedorov, E. A. C. Neeft, R. J. M. Konings, B. J. Kooi, et J. T. M. De Hosson, “Hydrogen implantation defects in MgO,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. **147**, n°. 1, p. 216, 1999.
- [10] J. Ziegler, “SRIM-2003,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. **219**, p. 1027-1036, 2004.
- [11] B. Uberuaga, R. Smith, A. Cleave, F. Montalenti, G. Henkelman, R. Grimes, A. Voter, et K. Sickafus, “Structure and Mobility of Defects Formed from Collision Cascades in MgO,” *Physical Review Letters*, vol. **92**, n°. 11, 2004.
- [12] I. Usov, P. Arendt, J. Groves, L. Stan, et R. Depaula, “Crystallographic orientation dependence of radiation damage in Ar+ implanted YSZ and MgO single crystals,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. **240**, n°. 3, p. 661-665, 2005.
- [13] R. E. Williford, R. Devanathan, et W. J. Weber, “Computer simulation of displacement energies for several ceramic materials,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. **141**, n°. 1, p. 94,

1998.

- [14] H. Schut, A. Vanveen, F. Labohm, A. Fedorov, E. Neeft, et R. Konings, “Annealing behaviour of defects in helium implanted MgO,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. **147**, n°. 1, p. 212-215, 1999.
- [15] D. Caceres, I. Vergara, R. Gonzalez, et Y. Chen, “Nanoindentation on neutron irradiated MgO crystals,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, vol. **191**, n°. 1, p. 178, 2002.
- [16] E. Njeim et D. Bahr, “Atomistic simulations of nanoindentation in the presence of vacancies,” *Scripta Materialia*, vol. **62**, n°. 8, p. 598-601, 2010.
- [17] D. Caceres, I. Vergara, R. Gonzalez, et Y. Chen, “Hardness and elastic modulus from nanoindentations in nominally pure and doped MgO single crystals,” *Philosophical Magazine A: Physics of Condensed Matter, Structure, Defects and Mechanical Properties*, vol. **82**, n°. 6, p. 1159, 2002.



**Résumé :**

Les travaux exposés dans cet ouvrage portent sur le comportement mécanique de l'oxyde de magnésium (MgO) sous nanoindentation. L'étude est plus particulièrement focalisée sur les mécanismes élémentaires de déformation précédant et accompagnant le phénomène de pop-in. L'observation de la surface autour des zones indentées, et en particulier des lignes de glissement, a été réalisée par microscopie à force atomique (AFM). La structure en volume des dislocations nucléées lors de l'essai de nanoindentation a été explorée par une technique de tomographie couplant polissage mécano-chimique (CMP) et nano-attaque chimique. Ces études expérimentales ont été confrontées à des simulations numériques menées à l'aide d'un code de dynamique de dislocations discrètes (DDD) couplé à un code éléments finis.

Une étude bibliographique présentant en particulier les mécanismes de plasticité associés au phénomène de pop-in est tout d'abord proposée.

Des expériences menées sur des échantillons présentant une très faible concentration de défauts sont ensuite présentées. Les résultats expérimentaux montrent que contrairement à l'idée communément admise, la déformation précédant le pop-in n'est pas nécessairement purement élastique. Par la suite, l'introduction contrôlée de défauts (défauts ponctuels, dislocations) dans le matériau a permis d'étudier leur influence sur les mécanismes initiaux de plasticité.

Enfin, les simulations numériques ont permis d'accéder au comportement des dislocations individuelles dans le champ de contraintes complexe généré par l'indenteur tout au long d'un cycle d'indentation. Ces résultats apportent un éclairage sur les comportements observés expérimentalement.

**Mots clés :** nanoindentation, nucléation de dislocations, microscopie à force atomique, oxyde de magnésium, dynamique de dislocations discrètes

**Abstract :**

Works stated in this report deal with the mechanical behaviour of magnesium oxide (MgO) under nanoindentation. The study is focused on primary deformation mechanisms preceding and coming with the pop-in phenomenon. Observations of surface around indents, and in particular slip lines, have been realised by atomic force microscopy (AFM). The whole three dimensional structure of dislocations nucleated during a nanoindentation test has been investigated by tomography combining chemo-mechanical polishing and chemical nano-etching. These experimental studies have been compared with numerical simulations performed with a discrete dislocation dynamics code coupled with a finite elements code.

First, a bibliographic study showing in particular plasticity's mechanisms associated to the pop-in phenomenon is proposed.

Experiences performed on samples with a low concentration of defects are then presented. Experimental results show that the deformation preceding the pop-in is not necessarily fully elastic which is in contradiction with classical description. Thereafter, the controlled introduction of defects (point defects, dislocations) in the bulk was used to study their influence on initial mechanisms of plasticity.

Finally, numerical simulations permitted to access to individual behaviour of dislocations in the complex stress field generated by the indenter during the whole cycle of indentation. These results give lighting on experimental behaviours.

**Key words:** nanoindentation, dislocations nucleation, atomic force microscopy, magnesium oxide, discrete dynamic dislocations