

Comportement mécanique d'un nouveau matériau à base de zircone Y-TZP

M. Imariouane^a, M. Saâdaoui^a, J. Chevalier^b, H. Reveron^b

a. Université Mohammed V de Rabat, EMI, Avenue Ibn Sina, 10000 Rabat, Morocco

b. Université de Lyon, INSA de Lyon, MATEIS CNRS UMR5510, 20 Avenue Albert Einstein, F-69621 Villeurbanne Cedex, France

...

Résumé :

En raison de leurs propriétés mécaniques, de leur résistance à l'usure et de leur biocompatibilité, les céramiques à base de zircone sont de plus en plus utilisées dans plusieurs domaines de l'ingénierie et dans des applications biomédicales. La difficulté majeure dans le développement de ces matériaux est de combiner à la fois une bonne résistance et une grande ténacité. Un nouveau matériau à base zircone 1.5Y-TZP est caractérisé et les résultats montrent que ce matériau offre une combinaison intéressante de haute résistance et de haute ténacité proche de l'optimum entre comportement fragile et ductile. Ce travail présente une étude de la résistance à la flexion, de la ténacité, du comportement de la courbe R. de la croissance lente des fissures (SCG) et du vieillissement pour ce matériau. La résistance à la flexion est mesurée avec des tests de flexion quatre points (4PB) et des tests de flexion trois billes sur trois billes (3B3B), l'analyse statistique montre que la loi normale correspond le mieux aux résultats par rapport à la loi de Weibull. La ténacité calculée est de 8,5 MPa.m^{1/2} a été déterminée par la méthode SEVNB dans 4PB ce qui est une valeur élevée par rapport aux autres matériaux en zircone Y-TZP.

Mots clés : Y-TZP, croissance lente des fissures, vieillissement

1 Introduction

Les céramiques Y-TZP (Yttria-Tetragonal Zirconia Polycrystals) sont largement utilisés pour l'ingénierie structurelle, y compris les applications biomédicales, en raison de leur biocompatibilité et de leurs propriétés mécaniques intéressantes. Dans ces matériaux céramiques, la zircone est conservée à l'état métastable tétragonal par l'ajout de l'Yttrium (Y₂O₃) généralement dans la plage de 2,5 à 3,5 % en moles [Hannink 2000, chevalier 2020]. Sous des contraintes externes appliquées, ils peuvent présenter une transformation de la phase quadratique à monoclinique (t - m) induite par la contrainte, accompagnée d'une expansion volumique induisant des contraintes de compression, qui entravent la propagation des fissures et contribuent ainsi au renforcement [Evans 1980, Hannink 2000].

Il est communément admis que la résistance et la ténacité des matériaux Y-TZP dépendent de la teneur en stabilisant et de la taille des grains du matériau. Cependant, les conditions qui maximisent la résistance et la ténacité ne coïncident généralement pas. La zircone stabilisée à l'oxyde d'yttrium à 3% en moles submicronique (3Y-TZP) présente la résistance la plus élevée (qui peut être supérieure à 1GPa) pour les céramiques d'oxyde monophasées, mais seulement une ténacité à la rupture modérée (4 - 6 MPam^{1/2}) [Alamleh 2010, Touaiher 2018]. L'augmentation de la taille des grains augmente la transformabilité et donc la ténacité à la rupture [Swain 1986, Ruiz 1996, Eichler 2006, Basu 2005, Trunec 2008, Xue 2020]. Cependant, le grossissement microstructural qui en résulte peut réduire la résistance à la rupture. La réduction de la quantité de stabilisant peut également être utilisée pour

augmenter la capacité de transformation t-m du Y-TZP, ce qui entraîne une augmentation de la ténacité [Vasylykiv 2003, Basu 2005, Cui 2017].

La résistance et la ténacité sont liées, dans les matériaux céramiques. En général, on considère évidemment que plus la ténacité est élevée, plus la résistance est élevée, ce qui se traduit par l'équation bien connue :

$$\sigma_f = \frac{K_{IC}}{\sqrt{\pi a}} \quad (1)$$

où la résistance, σ_f , augmente avec la ténacité à la rupture, K_{IC} , et où a est la taille du défaut (liée à la qualité du processus).

Éq. (1) n'est pas entièrement valable dans la zircone à base de zircone. Swain et al [Swain 1985] ont en effet distingué deux régimes pour les céramiques en zircone : Les faibles valeurs de ténacité correspondent au régime de résistance aux défauts limité, bien décrit par la formule de Griffith (eq (1)).

Au-dessus d'une certaine ténacité (environ 8 MPam^{1/2}), on observe une relation inverse correspondant au régime de résistance à transformation limitée, généralement accompagnée d'un comportement de courbe R (augmentation de la résistance à la propagation de la fissure avec l'extension de la fissure), où la résistance est limitée par la contrainte critique de transformation de phase qui se produit avant la défaillance. Autrement dit, au-delà d'une certaine ténacité, la contrainte maximale soutenable est la contrainte critique de transformation σ_t , qui diminue avec la ténacité (transformabilité plus élevée).

Au cours des deux dernières décennies, les études se sont concentrées sur les stratégies visant à obtenir un meilleur équilibre entre résistance et ténacité dans les céramiques à base de zircone. Une combinaison intéressante de résistance et de ténacité a été obtenue pour les matériaux TZP co-stabilisés avec de l'yttria et de la néodymie [Kern 2012]. Casellas et al. [Casellas 2001] a produit des matériaux avec un assemblage en phase mixte de TZP et de PSZ (zircone partiellement stabilisée constituée de précipités tétraonaux noyés dans une matrice cubique), qui a permis d'augmenter la transformabilité avec une diminution limitée de la résistance par rapport au 2,5Y-TZP utilisé comme base. Une autre approche consiste à développer des composites triphasiques à base de Ce-TZP [Palmero 2015, Reveron 2017, Chevalier 2019] avec un comportement ductile dû à une grande quantité de transformation. Par conséquent, plus que d'augmenter "seulement" la résistance ou la ténacité, il est important d'obtenir un équilibre entre ces deux propriétés, le mieux étant au sommet de la courbe $\sigma_f - K_{IC}$, où la résistance fragile donnée par l'équation (1) est égale à la contrainte critique de transformation.

Dans ce travail, une étude systématique du comportement mécanique d'un 1.5Y-TZP nouvellement développé est effectuée, y compris la détermination de la ténacité, de la résistance, de la résistance à la croissance des fissures sous-critiques (SCG) et de la résistance au vieillissement.

2 Matériel et méthodes

2.1 Matériau et caractérisation préliminaire

Le matériau utilisé dans cette étude est une zircone stabilisée à 1,5% mol Yttria (1.5Y-TZP), récemment développée par TOSOH Japon et commercialisée sous le nom de « Zgaia 1.5Y-HT ». Trois types d'échantillons ont été fournis : des barres rectangulaires à bords polis (4 mm × 3 mm × 42 mm) pour les essais de flexion uniaxiale, des plaques (20 mm × 2 mm × 42 mm) pour les essais de double torsion (DT) et des disques (diamètre de 18 mm et épaisseur de 1 mm) pour les essais biaxiaux.

Une caractérisation préliminaire du matériau a été réalisée comprenant les mesures de la dureté Vickers, de la densité par la méthode d'Archimède et du module d'Young par la méthode de vibration par résonance (testeur Grindo-Sonic). La microstructure a été étudiée par des observations au microscope électronique à balayage (SEM) d'échantillons polis et attaqués thermiquement pour révéler

les joints de grains, et la taille des grains a été évaluée par la méthode d'interception linéaire en appliquant un facteur de 1,56 pour tenir compte de la correction 2D à 3D. [Mendelson 1969].

2.2 Composition de phase et transformabilité

Pour déterminer la composition de phase et étudier la transformabilité du matériau, une analyse par diffraction des rayons X (DRX) a été réalisée (X'Pert MPD, PANalytical Germany, CuK α 1, Gemonochromator) dans le domaine angulaire entre $2\theta = 27$ et 30° . La fraction massique de la phase monoclinique (X_m) a été calculée selon l'expression suivante [Garvie 1972] :

$$X_m = \frac{I_m(\bar{1}11) + I_m(111)}{I_m(\bar{1}11) + I_m(111) + I_t(101)} \quad (2)$$

où $I_m(hkl)$ désigne l'aire du pic généré par le plan hkl dans la phase monoclinique (m) ou la phase quadratique (t).

La fraction volumique a été calculée selon [Toraya 1984] :

$$V_m = \frac{1.311X_m}{1 + 0.311X_m} \quad (3)$$

Les zones de transformation de phase induites lors des différents essais mécaniques ont été caractérisées par microscopie optique (ZEISS Axiophot et Hirox RH-2000) et confocale 3D.

2.3 Mesures de résistance à la flexion

Des mesures de résistance ont été effectuées sur 30 barres rectangulaires lors d'essais de flexion en quatre points (4PB), avec des portées extérieures et intérieures respectivement de 35 et 10 mm et les résultats ont été analysés statistiquement à l'aide de distributions de Weibull et normales. Des essais de flexion biaxiale trois billes sur trois billes (3B3B) ont été réalisés également sur 10 échantillons, comme décrit dans [Fett 2007]. L'échantillon était supporté par 3 billes positionnées sur un cercle de rayon 8 mm et la charge était appliquée par trois billes positionnées sur un cercle de rayon 4 mm. Pour les deux tests, les expériences ont été réalisées sur des échantillons polis (jusqu'à $1 \mu m$), à l'aide d'une machine de test universelle (Instron 8500). La vitesse de la traverse a été fixée à 1 mm/min jusqu'à la rupture, pour éviter les effets de propagation lente des fissures (SCG).

2.4 Mesures de ténacité

La ténacité à la rupture, K_{IC} , a été déterminée par la méthode SEVNB (single edge V notched beam) [Kübler 1999] sur des barres rectangulaires avec un côté poli à $1 \mu m$ pour les observations de la croissance des fissures. Les essais ont été réalisés sur une machine d'essai universelle (Instron 8500). Pour les mesures de K_{IC} , une première encoche a été découpée à l'aide d'une scie à diamant mince, puis effilée par encoche au laser pour obtenir une profondeur d'encoche totale relative de 0,25 et un rayon de racine d'encoche d'environ $1,5 \mu m$. Les échantillons ont été chargés dans un dispositif de cintrage à 4 points (10-35 mm) à une vitesse de traverse de 1 mm/min. Tous les échantillons ont été recuits à $1200^\circ C$ pendant 20 min pour éliminer les contraintes résiduelles d'usinage avant les essais.

2.5 Double torsion tests

La méthode de double torsion (DT) a été utilisée pour étudier le comportement du propagation lente des fissures (SCG) et pour déterminer la ténacité à la rupture. Les tests ont été menés comme décrit dans.

La courbe SCG, V-KI (taux de croissance des fissures vs facteur d'intensité de contrainte), a été déterminée à l'aide d'essais de relaxation et de chargement constant comme détaillé dans [Evans 1972, Chevalier 1996]. Dans les essais de relaxation, les éprouvettes pré-fissurées ont été chargées à une vitesse constante de 0,4 mm/min jusqu'à une certaine charge, puis la traverse a été arrêtée à un déplacement constant. La courbe de relaxation (charge en fonction du temps) et la longueur de fissure,

a, ont été utilisées pour calculer le facteur d'intensité de contrainte appliqué, K_I , en utilisant l'expression empirique suivante [Chevalier 1996] :

$$K_I = P \frac{W_m}{T^2} \left(\frac{3(1+\nu)}{W\psi} \right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{a}{a_0} \right)^{\frac{6}{32}} \quad (4)$$

où P est la charge appliquée, W_m la longueur de la portée, T l'épaisseur de l'échantillon, W la largeur de l'échantillon, ν le coefficient de Poisson (pris égal à 0,25), ψ un facteur d'étalonnage [Shyam 2006] et a_0 la longueur de l'entaille.

Le taux de croissance des fissures, V , dans la plage 10^{-2} - 10^{-7} m/s, calculé comme suit [Williams 1973] :

$$V = - \frac{P_f}{p^2} \left(a_f + \frac{D}{B} \right) \frac{dP}{dt} \quad (5)$$

où P_f la charge finale, a_f la longueur finale de la fissure, D et B sont des constantes obtenues à partir de la courbe d'étalonnage de la compliance, et dP/dt la pente de relaxation à un instant donné. Afin d'obtenir des taux de croissance de fissure plus faibles et de déterminer le seuil, des essais complémentaires de chargement constant ont été effectués. Les spécimens DT ont été soumis à différentes charges constantes pendant une durée prescrite, Δt , et l'incrément de fissure, Δa , a été mesuré par microscopie optique à lumière réfléchie. Le rapport de Δa à Δt donne le taux de croissance des fissures, V , lié au facteur d'intensité de contrainte appliqué. Pour déterminer la ténacité à la rupture, certains échantillons ont été chargés pour se rompre à une vitesse de déplacement élevée de 5 mm/min et le K_{IC} a été calculé par l'éq. (4) en utilisant la charge maximale.

3. Résultats

3.1. Microstructure et caractérisation préliminaire

La figure 1 montre une micrographie SEM du facies de rupture, une taille de grain moyenne de 440 ± 70 nm a été obtenue. Les surfaces de rupture montrent un mode de rupture intergranulaire. La densité mesurée est de $6,08 \pm 0,01$ g/cm³, le module d'Young et la dureté Vickers sont respectivement de $218 \pm 0,4$ GPa et $11,8 \pm 0,2$ GPa, dans la gamme typique des céramiques Y-TZP. La fraction volumique de la phase monoclinique obtenue par analyse par diffraction des rayons X est d'environ 5 % sur la surface polie.

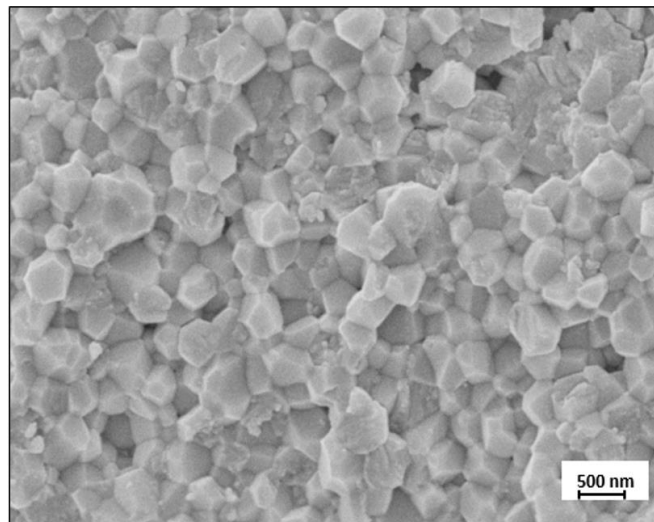


Figure 1 Micrographie SEM d'un facies de rupture

3.2. Résistance à la flexion

Les essais de flexion ont montré qu'aucun écart évident par rapport à la linéarité n'a été observé jusqu'à la rupture, et la résistance moyenne était respectivement de 995 ± 77 MPa et 1320 ± 160 MPa pour les échantillons 4PB et 3B3B.

3.3. Ténacité

La ténacité à la rupture obtenue à partir des essais SEVNB est de $8,5 \pm 0,2$ MPam^{1/2}. La méthode DT donne une valeur plus élevée de $10,6 \pm 0,2$ MPam^{1/2}, ce qui peut être attribué au comportement croissant de la courbe R observé pour ce matériau. Bien que limitée, cette augmentation est significative et implique que le matériau présente la qualité de tolérance aux défauts. Compte tenu de l'effet de la courbe R et de l'influence du SCG, la valeur de ténacité obtenue par les essais SEVNB est plus réaliste car dans cette configuration, la rupture correspond à de petites fissures, alors que la valeur DT obtenue pour des fissures longues correspond à la valeur plateau.

3.4. Courbes V-KI

La courbe V-KI déterminée montre les trois étapes typiques correspondant à la corrosion induite par les contraintes par les molécules d'eau, connues pour se produire dans les céramiques oxydes [Lawn 1993, Chevalier 1999, De Aza 2002, El Attaoui 2005, Zhang 2017] et un seuil, KI0, en dessous de laquelle aucune propagation de fissure détectable ne s'est produite.

L'étape I, qui correspond au régime des basses vitesses, peut être bien ajusté par une loi de puissance [Wiederhorn 1974] :

$$V = A.K_I^n \quad (6)$$

où A et n sont des paramètres dépendant du matériau, de la température et de l'environnement.

4. Discussion

4.1. Effet de la transformabilité sur le comportement mécanique

Bien qu'aucune plasticité macroscopique n'ait été observée sur les courbes charge-déplacement, une transformation de phase a été observée lors des essais de flexion. Dans la configuration biaxiale, des bandes transformées situées au centre de l'échantillon où la contrainte est maximale, apparaissent à une contrainte appliquée de 800 MPa, puis se multiplient et se propagent dans une zone en étoile. Dans la configuration 4PB, des bandes de transformation parallèles étroites ont été générées du côté de la traction, juste avant la rupture. Pour les deux configurations, la rupture a été initiée le long des bandes de transformation normales à la direction de la contrainte principale maximale. Pour les composites ductiles Ce-TZP [Touaiher 2016], la résistance biaxiale atteint jusqu'à 2,5 fois la résistance uniaxiale et il a été conclu que les contraintes calculées pour les tests biaxiaux basés sur le comportement élastique ne sont pas correctes car la contrainte appliquée est protégée par la transformation. Pour le 1.5Y-TZP actuel, la différence entre la résistance biaxiale et uniaxiale n'est que de 30%, ce qui est similaire à celle rapportée pour un matériau 3-YTZP [Touaiher 2018] avec un comportement fragile, bien décrit par la relation de Griffith entre la ténacité et la résistance, car aucune transformation ne s'est produite avant la rupture dans ce matériau.

4.2. Relation résistance-résistance

Pour le 1.5Y-TZP, la ténacité intrinsèque (8.5 MPm^{1/2}) est juste au-dessus de la valeur critique à la transition entre les deux régimes de résistance décrits par Rose et Swain [Swain 1986], c'est-à-dire le régime de résistance limité aux défauts décrit par la formule de Griffith (eq. 1) où la résistance augmente avec la ténacité, et la résistance à transformation limitée, généralement accompagnée d'un comportement de courbe R, où la résistance est limitée par la contrainte critique de transformation de phase qui se produit avant la rupture. Selon la formule de Griffith, la taille du défaut critique, a_c , a été estimée à environ $23 \mu\text{m}$, ce qui correspond à la taille des défauts préexistants détectés par SEM. Cela

signifie que le matériau est dans le régime de résistance aux défauts limités. De plus, en tenant compte du fait que la transformation de phase a été observée avant la rupture lors des essais de flexion et qu'elle n'a généré qu'un incrément de blindage limité lors de la propagation de la fissure comme déduit de la courbe R ($\Delta K_{sh} \sim 1 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$), nous nous attendons à être proche de la transition entre le régime de résistance limitée par les défauts et celui de résistance limitée par la transformation. Cela explique la combinaison de la résistance élevée et de la ténacité relativement élevée observée pour le présent matériau, par rapport aux autres céramiques de zircone.

Références

- [Alamleh 2010] Al-Amleh B, Lyons K, Swain MV (2010). Clinical trials in zirconia: a systematic review. *J Oral Rehabil* 37:641-652.
- [Basu 2005] Basu B. 2005 Toughening of yttria-stabilised tetragonal zirconia ceramics. *Int. Mater. Rev.* 50, 239–256. (doi:10.1179/174328005X41113)
- [Casellas 2001] Casellas D, Feder A, Llanes L, Anglada M. Fracture toughness and mechanical strength of Y-TZP/PSZ ceramics. *Scr Mater* 2001; 45:213–20.
- [Chevalier 1996] Chevalier, J., Saâdaoui, M., Olagnon, C. & Fantozzi, G. (1996). Double torsion testing a 3Y-TZP Ceramic. *Ceramics International*, 22, 171–77.
- [Chevalier 2019] Chevalier J, Liens A, Reveron H, Zhang F, Reynaud P, Douillard T et al. Forty years after the promise of «ceramic steel?»: Zirconia-based composites with a metal-like mechanical behavior. *J Am Ceram Soc* 2020; 103(3):1482–513.
- [Cui 2017] Jinping Cui, Zhenyuan Gong, Ming Lv and Pinggen Rao, Determination of fracture toughness of Y-TZP ceramics, *Ceramics International*, <http://dx.doi.org/10.1016/j.ceramint.2017.09.004>.
- [De Aza 2002] De Aza AH, Chevalier J, Fantozzi G, Schehl M, Torrecillas R, Crack growth resistance of alumina, zirconia, and zirconia toughened alumina ceramics for joint prostheses, *Biomaterials* (2002), 23 (3), 937-45.
- [Eichler 2006] J. Eichler, M. Hoffman, U. Eisele, J. Rödel, R-curve behaviour of 2Y-TZP with submicron grain size, *J. Eur. Ceram. Soc.* 26 (16) (2006) 3575–3582.
- [Evans 1972] Evans, A.G. (1972). A method for evaluating the time-dependent failure characteristics of brittle materials and its applications to polycrystalline alumina. *Journal of Materials Science*, 7, 1137-46.
- [Evans 1980] A.G. Evans, A.H. Heuer, Review-transformation toughening in ceramics: martensitic transformations in crack-tip stress fields, *J. Am. Ceram. Soc.* 63 (1980) 241–248.
- [Hannink 2000] Hannink RHJ, Kelly PM, Muddle BC, Transformation toughening in zirconia containing ceramics, *J Am Ceram Soc* (2000), 83:461-487.
- [Kern 2012] Kern F, Gadow R, Alumina toughened zirconia from yttria coated powders, *J Eur Ceram Soc* (2012), 32 (15):3911-3918.
- [Kübler 1999] Kübler, Fracture toughness of ceramics using the sevn method: first results of a joint VAMAS/ESIS round robin, *Ceramic Engineering & Science Proceedings* 20 (1999) 494-502.
- [Lawn 1993] B. Lawn, *Fracture of Brittle Solids*, second edition, Cambridge University Press, Cambridge, 1993.
- [Palmero 2015] Palmero P, Fornabaio M, Montanaro L, Reveron H, Esnouf C, Chevalier J. Towards long lasting zirconia-based composites for dental implants. Part I: innovative synthesis, microstructural characterization and in vitro stability. *Biomaterials*. 2015;50:38–46.
- [Swain 1986] M.V. Swain, L.R.F. Rose, Strength limitations of transformation-toughened zirconia alloys, *J. Am. Ceram. Soc.* 69 (1986) 511–518.

- [Touaiher 2016] I. Touaiher, M. Saadaoui, J. Chevalier, H. Reveron, Effect of loading configuration on strength values in a highly transformable zirconia-based composite, *Dent. Mater.* 32 (2016) e211–e219, <https://doi.org/10.1016/j.dental.2016.06.023>
- [Touaiher 2018] Touaiher I, Saadaoui M, Chevalier J, Preiss L, Reveron H. Fracture behavior of Ce-TZP/Alumina/Aluminate composites with different amounts of transformation toughening. Influence of the testing methods. *Journal of The European Ceramic Society* <https://doi.org/10.1016/j.jeurceramsoc.2017.09.052>
- [Reveron 2017] Reveron H, Fornabai M, Palmero P, Furdere T, Adolfsson E, Lugh V, et al. Towards long lasting zirconia-based composites for dental implants: Transformation induced plasticity and its consequence on ceramic reliability. *Acta Biomater.* 2017; 48:423–32.
- [Ruiz 1996] Ruiz L, Readey MJ (1996) Effect of heat-treatment on grain size phase assemblage, and mechanical properties of 3 mol% Y-TZP. *J Am Ceram Soc* 79:2331–2340
- [Shyam 2006] Shyam, A., Lara-Curzio, E. The double-torsion testing technique for determination of fracture toughness and slow crack growth behavior of materials: A review. *J Mater Sci* **41**, 4093–4104 (2006).
- [Trunec 2008] M. Trunec, K. Maca, Z. Shen, Warm pressing of zirconia nanoparticles by the spark plasma sintering technique, *Scr. Mater.*, 59 (2008) 23–26.
- [Vasylykiv 2003] Vasylykiv, O.; Sakka, Y.; Skorokhod, V.V. Low-Temperature Processing and Mechanical Properties of Zirconia and Zirconia-Alumina Nanoceramics. *J. Am. Ceram. Soc.* 2003, 86, 299–304
- [Xue 2020] M. Xue, S. Liu, X. Wang, and K. Jiang, “High fracture toughness of 3Y-TZP ceramic over a wide sintering range,” *Materials Chemistry and Physics*, vol. 244, p. 122693, 2020.
- [El Attaoui 2005] El Attaoui, H., Saadaoui, M., Chevalier, J., Fantozzi, G. (2005). Crack Propagation Behavior of Alumina with Different Grain Sizes under Static and Cyclic Fatigue. In: Bradt, R.C., Munz, D., Sakai, M., White, K.W. (eds) *Fracture Mechanics of Ceramics. Fracture Mechanics of Ceramics*, vol 14. Springer, Boston, MA. https://doi.org/10.1007/978-0-387-28920-5_32
- [Wiederhorn 1974] Wiederhorn, S.M. (1974). Subcritical Crack Growth in Ceramics. In: Bradt, R.C., Hasselman, D.P.H., Lange, F.F. (eds) *Fracture Mechanics of Ceramics*. Springer, Boston, MA. https://doi.org/10.1007/978-1-4615-7014-1_12
- [Zhang 2017] F. Zhang, J. Chevalier, C. Olagnon, B. Van Meerbeek, J. Vleugels, Slow crack growth and hydrothermal aging stability of an alumina-toughened zirconia composite made from La₂O₃-doped 2Y-TZP, *J. Eur. Ceram. Soc.* 37 (4) (2017) 1865–1871.