

# Approche expérimentale du comportement dynamique des verres métalliques totalement amorphes ou partiellement cristallisés

M. Bayard<sup>a,1</sup>, M. Blétry<sup>b,2</sup>, E. Héripré<sup>c,3</sup>, L. Perrière<sup>b,4</sup>, H. Maitournam<sup>a,5</sup>

a. IMSIA, ENSTA/CNRS/EDF/CEA, 828 boulevard des Maréchaux, 91120 Palaiseau, France

<sup>1</sup>marine.bayard@ensta-paristech.fr, <sup>5</sup>habibou.maitournam@ensta-paristech.fr

b. Université Paris Est, ICMPE (UMR 7182), CNRS, UPEC, F-94320 Thiais, France

<sup>2</sup>bletry@glvt-cnrs.fr, <sup>4</sup>perriere@icmpe.cnrs.fr

c. MSSMat, CNRS, CentraleSupélec, Université Paris-Saclay, 91190 Gif-sur-Yvette, France

<sup>3</sup>eva.heripre@centralesupelec.fr

## Résumé :

*Le travail présenté ici vise à décrire la réponse mécanique d'un verre métallique massif soumis à de grandes vitesses de sollicitations. La nuance choisie pour réaliser cette étude est un verre métallique base zirconium ayant la composition  $Zr_{55}Cu_{30}Ni_5Al_{10}$ . Des échantillons totalement amorphes et d'autres partiellement cristallisés ont été élaborés et caractérisés. Des essais dynamiques ont été réalisés sur un dispositif de barres d'Hopkinson. Deux configurations différentes ont été choisies : compression dynamique standard et compression diamétrale (ou essai brésilien) engendrant un état de traction. Les réponses macroscopiques des échantillons amorphes et partiellement cristallisés rompus en compression et en traction sont ensuite comparées. Des observations au microscope électronique à balayage ont permis d'identifier les mécanismes en jeu dans la rupture de ces matériaux.*

## Abstract :

*The present work aims to describe the mechanical response of a metallic glass subjected to high velocity loading cases. The composition chosen to realize this study is the zirconium based metallic glass  $Zr_{55}Cu_{30}Ni_5Al_{10}$ . Fully amorphous and partially cristallized specimens were casted and characterised. Dynamic compression tests were performed using a Split Hopkinson Pressure Bar apparatus. Specimens were tested in two different ways : standard compression and diametral compression (or Brazilian test) that generates a tensile state. The macroscopic behaviour of the fully amorphous and partially cristallized specimens that broke in compression and tension were then compared. Observation on a scanning electron microscope enabled to identify the mechanisms at stake in the fracture of these materials.*

**Mots clefs : verres métalliques, essais dynamiques, barres d'Hopkinson, compression diamétrale, comportement mécanique**

## 1 Introduction

Depuis leur découverte dans les années 1960, les verres métalliques ont fait l'objet d'études intensives. Principalement obtenus par solidification rapide à partir de l'état liquide, ils appartiennent à la famille des matériaux amorphes et sont caractérisés par l'absence d'ordre atomique à longue distance. Sous leur forme massive, ils ont suscité un intérêt grandissant pour leurs propriétés mécaniques exceptionnelles telles que leur résistance mécanique, leur dureté et une grande déformation élastique [1]. Ces nouvelles générations d'alliages sont déjà utilisées dans des applications de la vie quotidienne – sport, téléphonie, bijouterie – mais aussi dans des technologies de pointe – micro-mécanique. En vue de concevoir de nouvelles nuances ou d'utiliser ces matériaux dans de nouvelles applications, il est nécessaire de comprendre et de caractériser complètement les mécanismes de déformation et de rupture de ces matériaux pour une large gamme de sollicitations.

A température ambiante, les verres métalliques ont une faible ductilité en raison de la localisation de la déformation plastique dans des bandes de cisaillement qui se développent, se propagent et interagissent jusqu'à la rupture. Cette plasticité localisée est différente suivant qu'un chargement quasi-statique ou dynamique est appliqué [9]. Si le comportement des verres métalliques sous chargement quasi-statique est bien connu, les phénomènes de déformation sous sollicitations dynamiques ne sont eux pas complètement compris. Le but de cette étude est d'étudier le comportement dynamique de ces matériaux par une approche expérimentale. Les verres métalliques étudiés sont des verres base Zirconium. Après caractérisation, certains se sont avérés être partiellement cristallisés ce qui nous a permis d'étudier l'influence de la présence de cristaux sur le comportement dynamique de ces matériaux. Des essais dynamiques sur un dispositif de barres d'Hopkinson ont été réalisés selon deux configurations, axial et brésilien. Le comportement dynamique des échantillons pour ces deux configurations et pour les deux types de matériaux ont été comparés en termes de mécanismes de déformation et de rupture.

## 2 Élaboration - Caractérisation

Le choix de la nuance et son élaboration sont autant d'étapes cruciales dans l'obtention d'un alliage métallique amorphe. La famille des verres métalliques base zirconium présente de très bonnes propriétés d'amorphisation sous forme massive. Nous avons donc choisi d'étudier un verre métallique de cette famille, de composition  $Zr_{55}Cu_{30}Ni_5Al_{10}$ . Les échantillons ont été élaborés à partir de l'alliage liquide chauffé par induction. Ils ont été coulés par injection dans une lingotière en cuivre refroidi par circulation d'eau. D'autres barreaux, élaborés par la méthode de coulée par aspiration, nous ont été fournis par la société Vulkam basée à Saint Martin d'Hères en France.

A l'issue de cette phase d'élaboration, des barreaux cylindriques ont été obtenus. La caractérisation structurale de ces matériaux a été réalisée via des mesures de diffraction des rayons X (DRX) (FIG.1). Celles-ci ont permis de distinguer des échantillons totalement amorphes et d'autres partiellement cristallisés. La température de transition vitreuse - 421 °C - et la température de cristallisation - 487 °C - de l'alliage sont mesurées par calorimétrie différentielle à balayage (DSC). Ces mesures sont réalisées avec une montée en température de 20K/min.

Une fois les barreaux caractérisés, ceux-ci ont été réduits en diamètre afin de garantir un bon état de surface et découpés à l'aide d'une micro-tronçonneuse afin d'obtenir des échantillons ayant un rapport d'aspect longueur/diamètre (L/D) de 1.

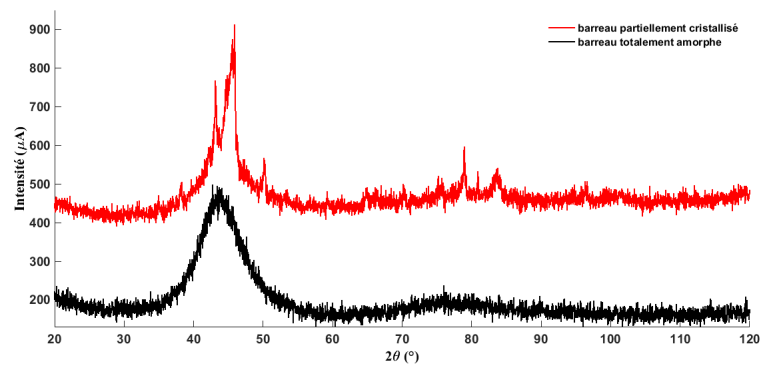


FIGURE 1. Courbes DRX de deux barreaux : totalement amorphe en bas et partiellement cristallisé en haut

### 3 Procédure expérimentale

Des essais dynamiques d'impact indirect ont été réalisés sur les différents types d'échantillons grâce à un dispositif de barres d'Hopkinson. Ce dernier est composé d'un impacteur et de deux longues barres à haute limite élastique, la barre incidente et la barre de transmission. L'échantillon est placé entre les deux barres (FIG.2).

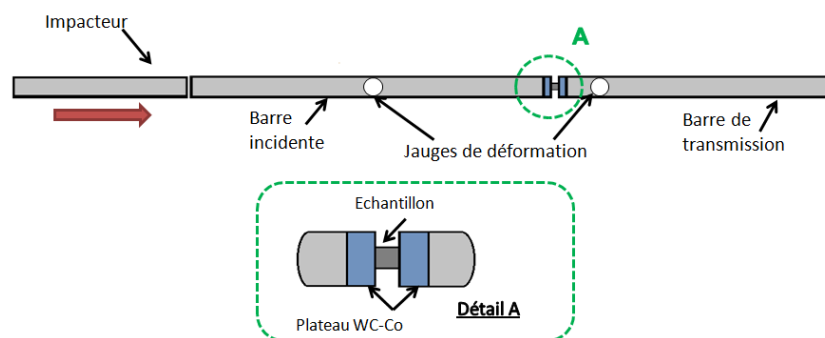


FIGURE 2. Dispositif des barres d'Hopkinson

Le principe de fonctionnement est le suivant. Lorsque l'impacteur vient heurter à grande vitesse la barre incidente, il crée un train d'onde qui se propage dans toute la chaîne mécanique et qui provoque la compression de l'échantillon. Les jauges de déformation fixées sur les barres (FIG.2) permettent de mesurer les déformations associées aux ondes et d'en déduire la réponse mécanique de l'échantillon. Le post-traitement des essais est mené avec le logiciel DAVID [2] qui permet de calculer les forces et vitesses aux bornes de l'échantillon après recalage et transport des ondes. Sous l'hypothèse que l'état de contrainte dans l'échantillon est homogène, ce logiciel permet aussi de calculer les contraintes et déformations dans l'échantillon à partir des forces et des vitesses à ses extrémités.

Chaque type d'échantillon, amorphe et partiellement cristallisé, a été testé dynamiquement selon deux configurations : compression standard et compression diamétrale (ou essai brésilien). La première configuration implique un état de contrainte axiale homogène dans l'échantillon qui se déforme donc uniformément. Les courbes contrainte/déformation peuvent donc être directement calculées et tracées à l'aide du logiciel de post-traitement DAVID.

L'essai brésilien implique quant à lui un état de contrainte hétérogène dans l'échantillon. En effet, l'application d'une charge sur le diamètre implique un effort de traction qui s'exerce sur l'axe de l'échantillon (FIG.3). Le post-traitement de cet essai permet de calculer les forces et vitesses aux bornes de l'échantillon. Les contraintes et déformations doivent quant à elles être déterminées à partir des relations spécifiques établies pour l'essai brésilien.

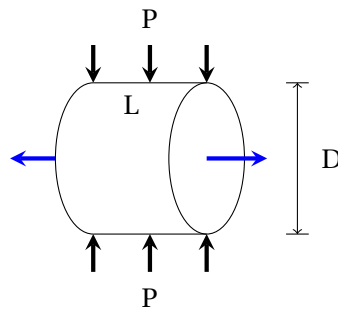


FIGURE 3. Schéma de principe de l'essai brésilien

Lorsque l'équilibre dynamique est atteint, la contrainte de traction à rupture (1) exercée près de l'axe central de l'échantillon peut être approximée à partir de la valeur maximum de la force dans la barre de transmission [3] :

$$\sigma_t = \frac{2P}{\pi DL} \quad (1)$$

où  $\sigma_t$  est la contrainte de traction qui s'exerce sur l'axe central au moment de la rupture, P est la force maximale transmise à travers l'échantillon et R le rayon de la barre de transmission. Cette relation est basée sur la théorie de l'élasticité pour les matériaux isotropes. A partir de la contrainte  $\sigma_t$  il est possible de calculer la vitesse de déformation correspondante  $\dot{\epsilon}_t$ , dans l'hypothèse d'une déformation purement élastique. Elle a pour expression :

$$\dot{\epsilon}_t = \frac{\sigma_t}{E \Delta t} \quad (2)$$

où E est le module d'Young du matériau et  $\Delta t$  est l'intervalle de temps entre le début et le maximum de l'onde transmise. Pour la nuance choisie, le module d'Young est de 85 GPa [4].

Les résultats obtenus pour les verres métalliques totalement amorphes et partiellement cristallisés testés dans les deux configurations ont ensuite été comparés en terme de déformation et de rupture des échantillons. Tous les essais ont été réalisés avec une vitesse d'impacteur d'environ 8m/s.

## 4 Résultats expérimentaux et discussion

Les essais dynamiques menés sur les différents types d'échantillons ont révélés à la fois des différences et des similarités concernant leur déformation macroscopique et leurs mécanismes de rupture.

### 4.1 Premières observations

Tous les échantillons ont rompu en plusieurs fragments de tailles et de formes différentes. Pour chaque essai, on distingue deux fragments principaux de grande taille et quelques fragments beaucoup plus petits. Les formes des plus grands fragments diffèrent selon les configurations d'essai

et sont en accord avec les mécanismes de rupture mis en jeu. En configuration standard, l'échantillon chargé en compression de manière homogène rompt majoritairement dans un plan faisant un angle d'environ 45° par rapport à l'axe de chargement. Dans cette configuration, la contrainte dominante dans le processus de rupture est la contrainte de cisaillement [5]. En configuration brésilien, l'échantillon, soumis à un état de contrainte hétérogène, rompt majoritairement dans un plan parallèle à l'axe de l'échantillon ce qui confirme que le processus de rupture est dominé par une association traction-cisaillement. Le plan de rupture est colinéaire à l'axe reliant les deux points de contact barres/échantillon. Ces résultats sont en accord avec ceux de J.S Brest [6].

Les courbes caractéristiques forces / temps obtenues pour les deux types d'échantillons testés dans les deux configurations sont données FIG.4. Elles représentent dans chaque cas l'évolution de la force transmise par l'échantillon qui est proportionnelle à l'onde dans la barre de transmission. Si ces courbes ne révèlent pas une ductilité significative du matériau, elles montrent néanmoins des comportements différents selon les essais et la présence ou non de phases cristallines. Dans la configuration standard, la force transmise par les échantillons amorphe et partiellement cristallisé augmente jusqu'à un maximum avant de chuter brutalement ce qui suppose une rupture fragile du matériau. En configuration brésilien, le matériau semble plastifier légèrement. En effet, la force ne diminue pas aussi vite que dans le cas précédent. On notera une différence entre l'essai brésilien amorphe où la force atteint un plateau avant de chuter brutalement et l'essai brésilien sur le verre partiellement cristallisé où la force oscille en diminuant plus lentement comme si l'échantillon avait rompu en plusieurs fois exerçant à plusieurs reprises une résistance d'où les oscillations mesurées.

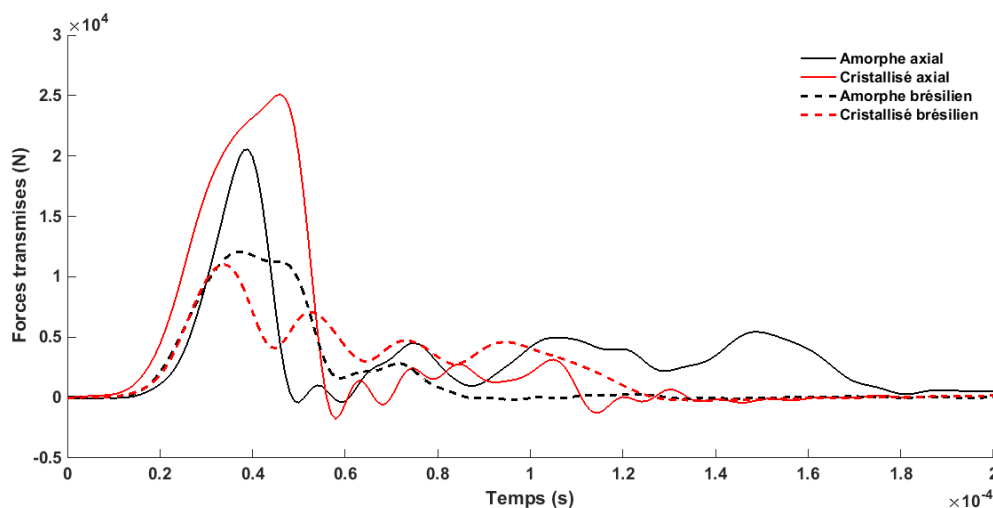


FIGURE 4. Courbes dynamiques force/temps obtenues pour des échantillons de nuance  $Zr_{55}Cu_{30}Ni_5Al_{10}$  totalement amorphes et partiellement cristallisés

La réponse mécanique du matériau qui dérive de ces courbes est donnée dans la suite du texte. Pour chacun des tests, une évaluation conservatrice est faite et la rupture est supposée atteinte lorsque la force transmise s'annule pour la première fois. Les variations mesurées après cette rupture correspondent au comportement des fragments qui peuvent être potentiellement chargés lors d'un nouveau passage de l'onde.

## 4.2 Réponse mécanique et rupture

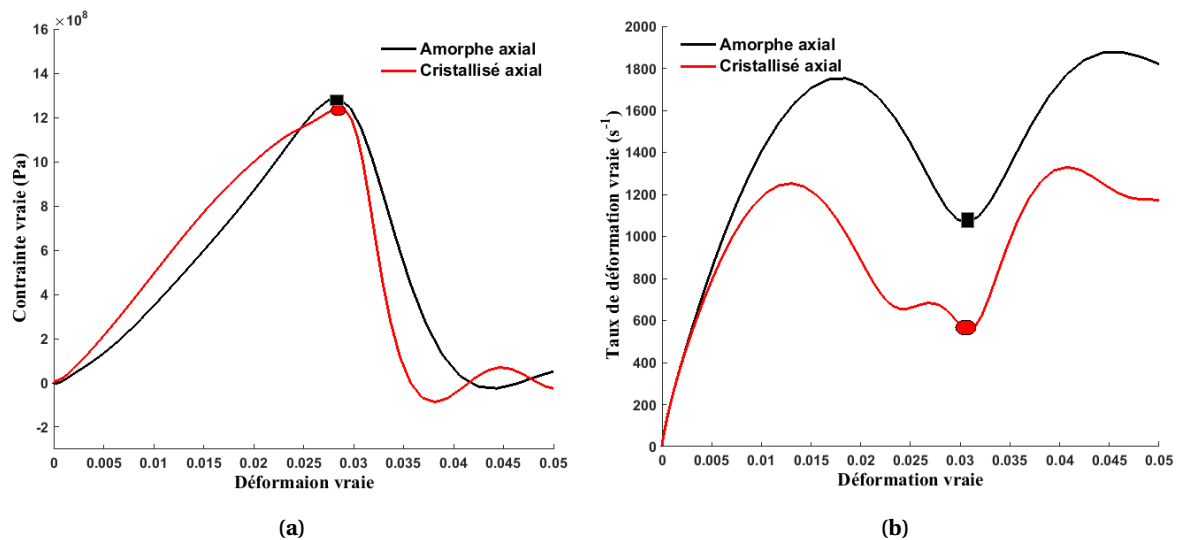


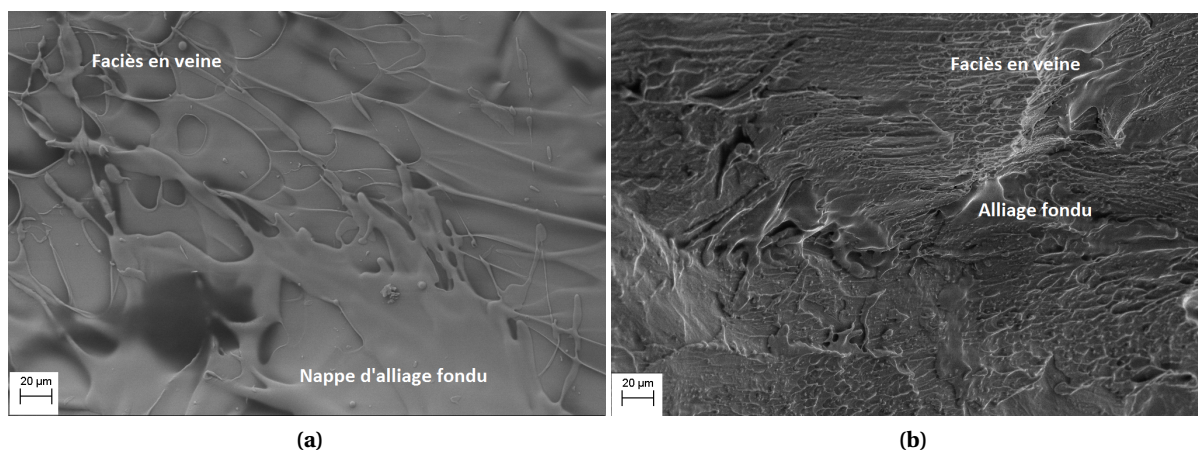
FIGURE 5. Courbe contrainte vraie (a) et taux de déformation vraie (b) fonction de la déformation vraie obtenues pour les essais axiaux (configuration standard)

Pour les échantillons testés en configuration axiale standard, les deux courbes d'évolution de la contrainte vraie et du taux de déformation vraie en fonction de la déformation vraie sont tracées en FIG.5. Ces courbes révèlent un comportement élastique fragile pour les deux types d'échantillons. Après une réponse initialement élastique la contrainte transmise atteint un maximum - indiqué par le rond rouge et le carré noir sur la FIG.5 - puis chute brutalement sans que l'échantillon ne se déforme plastiquement. Pour les deux types de matériaux, la contrainte maximale atteinte est de 1,3 GPa pour une déformation correspondante de 2,8 %. En quasi-statique, la contrainte à rupture est de l'ordre de 1,8GPa dans le cas d'un échantillon de verre métallique de nuance  $Zr_{55}Cu_{30}Ni_5Al_{10}$  pour une déformation correspondante de l'ordre de 2-3 % [7]. En terme de taux de déformation, les deux échantillons diffèrent. En effet, le taux de déformation est plus élevé tout au long de l'essai dans le cas du verre métallique totalement amorphe. Il semble que la présence de cristaux ralentit la propagation de la déformation. Dans les deux cas, le taux de déformation chute avant la rupture ce qui correspond à la phase d'endommagement de l'échantillon.

La plasticité dans les verres métalliques est liée à l'initiation, l'évolution et la propagation de bandes de cisaillement à travers l'échantillon qui se composent d'une couche de faible viscosité située entre deux régions solides [8]. Lors d'un essai quasi-statique, les bandes de cisaillement ont le temps de se propager et peuvent se croiser et se ramifier. Quand deux bandes se croisent, leur propagation est ralentie et la contrainte d'écoulement augmente [9]. Ces phénomènes peuvent empêcher une rupture prématurée de l'échantillon le long d'une unique bande de cisaillement. Lors d'un essai dynamique, les bandes ont moins de temps pour se propager et se ramifier. De ce fait, l'énergie due à la déformation se concentre dans une bande principale privilégiée qui se propage et finit par causer la rupture de l'échantillon [10].

Des observations au Microscope Électronique à Balayage (MEB) ont été réalisées sur les faciès de rupture des échantillons. Pour chacun des deux types d'échantillons, une image caractéristique du faciès est donnée FIG.6. Ces images montrent des faciès en veines caractéristiques des verres métalliques. On attribue l'origine de ces veines à des instabilités de type Saffman-Taylor [11]. Pour un

échantillon testé en dynamique, la rupture a lieu majoritairement le long d'une bande de cisaillement principale où le matériau est adouci. Comme dit plus haut, cette zone de déformation plastique consiste en une couche fluide d'alliage de faible viscosité comprise entre deux plans solides. La couche entre les deux phases solides demeure fluide pendant toute la phase de déformation jusqu'à la rupture car c'est dans cette zone de faible densité que se localise la déformation plastique. La rupture peut alors être assimilée à l'écartement rapide des deux surfaces planes. Il en résulte les faciès observés en FIG.6. La présence de nappes d'alliage fondu dans les deux cas laisse supposer que la température dans la zone de déformation a dépassé la température de fusion de l'alliage au cours de l'essai. On notera que les surfaces de rupture des verres cristallisés semblent rugueuses comparées à celles des verres totalement amorphes qui sont lisses.



**FIGURE 6.** Faciès de rupture en configuration axiale pour un échantillon totalement amorphe (a) et un échantillon partiellement cristallisé (b)

Pour les échantillons testés en compression diamétrale, les valeurs des contraintes de traction et des taux de déformation correspondants sont rassemblés dans le tableau 1.

**TABLE 1.** Contrainte de traction et taux de déformation correspondant obtenus pour les essais brésilien pour les deux types de matériaux

	Échantillon amorphe	Échantillon partiellement cristallisé
Contrainte de traction (MPa)	379,7	280,5
Taux de déformation correspondant ( $s^{-1}$ )	165	110

Comme nous l'avons vu plus haut, les verres métalliques ont un comportement fragile à grande vitesse. L'essai brésilien multi-axial a pour avantage de générer un état de contrainte hétérogène. Cet essai confiné permet de développer de la plasticité au sein de l'échantillon. Dans notre étude, quel que soit le type d'échantillon considéré, une déformation plastique est révélée par les courbes FIG.4. Les contraintes et les taux de déformation mesurés et reportés dans le tableau 1 sont très inférieurs à ceux obtenus pour la configuration standard. On note aussi des différences d'un échantillon à l'autre. En effet les grandeurs caractéristiques de la réponse mécanique du verre partiellement cristallisé sont inférieures à celles du verre totalement amorphe. Il semble que la présence de cristaux ait dégradé les propriétés physiques du matériau.

Des observations au MEB ont aussi été réalisées sur les faciès de rupture des échantillons rompus



par compression diamétrale. Des images caractéristiques pour chaque type d'échantillons testés sont données FIG.7. Ces images montrent des faciès similaires à ceux observés en configuration axiale standard avec des structures en veines étendues (type rivière). On voit apparaître des structures en veines plus "plates" (en bas à droite de l'image 7a) qui sont aussi des structures caractéristiques de la rupture des verres métalliques obtenues à des taux de déformation intermédiaires ou quasi-statiques [12]. Ce dernier type de structures obtenues pour les verres testés en brésilien à environ  $100 - 200 \text{ s}^{-1}$  sont très peu nombreuses sur les faciès de rupture des verres testés en configuration standard à plus de  $1000 \text{ s}^{-1}$ . On remarque une nouvelle fois que les faciès de rupture des verres métalliques totalement amorphes sont lisses comparés à ceux des verres partiellement cristallisés qui sont plus rugueux. De plus, le faciès des échantillons partiellement cristallisés présente une zone cupulaire qui est typique d'un comportement ductile ce qui va de paire avec les mesures de comportement macroscopique faite plus haut.

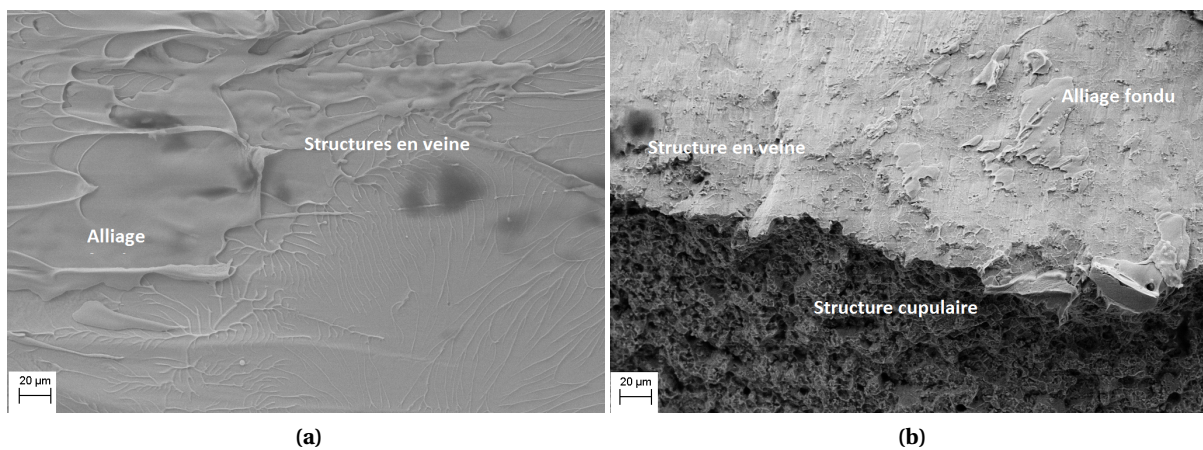


FIGURE 7. Faciès de rupture en configuration brésilien pour un échantillon totalement amorphe (a) et un échantillon partiellement cristallisé (b)

## 5 Conclusion

Cette étude nous a permis d'étudier le comportement dynamique de verres métalliques via une approche expérimentale. La caractérisation structurale et thermique des échantillons choisis a révélé que certains d'entre eux étaient partiellement cristallisés. Des essais d'impact indirect menés sur un dispositif de barres d'Hopkinson a permis de mettre en évidence les différences et les similarités du comportement dynamique des verres métalliques totalement amorphes et partiellement cristallisés. Les premiers essais réalisés en configuration standard ont démontré le comportement élastique fragile du matériau. Peu de différences ont été décelées entre les échantillons totalement amorphes et ceux partiellement cristallisés. Il a été néanmoins mis en avant les taux de déformation atteints qui sont plus faibles dans le cas des échantillons partiellement cristallisés de même que les faciès de rupture qui sont plus rugueux.

Des essais brésiliens ont aussi été réalisés. De part l'hétérogénéité de contrainte qu'ils impliquent, ils sont très intéressants dans l'étude des matériaux fragiles car ils permettent d'observer le comportement plastique de ces matériaux malgré leur fragilité apparente. Dans notre cas, ils ont été un atout car ils ont permis de générer une plasticité assez importante. Les résultats d'un point de vue macroscopique ont montré des différences entre les deux types d'échantillons mettant en avant le



fait que la présence de cristaux pouvait dégrader les propriétés mécaniques du matériau. De même des faciès de rupture différents selon le type d'échantillons ont été observés avec des marqueurs de comportement ductile dans le cas des échantillons partiellement cristallisés. Pour poursuivre cette étude, il serait intéressant d'aborder une approche phénoménologique qui permettrait d'élaborer un modèle de comportement dans un cadre thermodynamique sur la base des essais réalisés.

## Remerciements

Les auteurs remercient M. Philippe Chevalier et M. Depuydt Jérémie qui les ont aidés à mener les différentes campagnes d'essais. Ils adressent également des remerciements à M. Gérard Gary, un des auteurs des logiciels utilisés pour les post-traitements, qui les a aidés à analyser et interpréter les différents résultats expérimentaux.

Ce travail est réalisé dans le cadre d'une thèse de doctorat co-financée par la DGA et l'école ENSTA ParisTech.

## Références

- [1] M. Telford : *The case for bulk metallic glass.*, Materials today, 2004.
- [2] G. Gary : *David, Labview version*, User's manual, version > 10041.
- [3] F. Yang, M. Hongwei, J. Lin, Z. Longmao, W. Zhihua : *Dynamic compressive and splitting tensile tests on mortar using split Hopkinson pressure bar technique*, Latin American Journal of Solids and Structures, 2014.
- [4] V. Keryvin, T. Rouxel, M. Huger, L. Charleux : *Elastic moduli of a ZrCuAlNi bulk metallic glass from room temperature to complete cristallisation by in situ pulse-echo ultrasonic echography.*, J. Ceram. Soc. Jap, 116(1356) :851-854, 2008.
- [5] G. Subhash, R. J. Dowding, L. J. Kecskes : *Characterization of uniaxial compressive response of bulk amorphous Zr-Ti-u-Ni-Be alloy*. Material Science and Engineering, A334, 2002, 33-40
- [6] J.S. Brest : *Etude et modélisation du comportement mécanique de verres métalliques massifs.*, Thèse, Université de Bretagne-Sud, 2014.
- [7] V. Keryvin, M.L. Vaillant, T. Rouxel, M. Huger, T. Gloriant, Y. Kawamura : *Thermal stability and crystallisation of a Zr<sub>55</sub>Cu<sub>30</sub>Ni<sub>5</sub>Al<sub>10</sub> bulk metallic glass studied by in situ ultrasonic echography.*, Intermetallics, 10(11-12) :1289-1296, 2002.
- [8] F. Spaepen, D. Turnbull : *A mechanism for the flow and fracture of metallic glasses*, Scripts Metallurgica, Vol. 8, 563-568, 1974.
- [9] Y.F. Xue, H.N. Cai, L. Wang, F.C. Wang, H.F. Zhang : *Effect of loading rate on failure in Zr-based bulk metallic glass.*, Materials Sciences and Engineering A, 473, 105-110, 2008.
- [10] W.-D. Liu, K.-X. Liu, X.-X. Xia, W.-H. Wang : *The failure stress of bulk metallic glasses under very high strain rate.*, J. Mater. Res, Vol 25., No 7., 1230-1234, 2010.
- [11] F. Spaepen : *On the fracture morphology of metallic glasses.* , Acta Metallurgica, 23, 615-620.
- [12] J. Fan : *High-rate squeezing process of bulk metallic glasses.*, Scientific Reports, 2017