Science Arts & Métiers (SAM)
is an open access repository that collects the work of Arts et Métiers Institute of Technology researchers and makes it freely available over the web where possible.

This is an author-deposited version published in: https://sam.ensam.eu
Handle ID: .http://hdl.handle.net/10985/9842

**To cite this version :**

Aliasghar BEHNAMGHADER, Denis NAJJAR, Alain IOST - MESURE DE LA TENACITE DE L'HYDROXYAPATITE PAR INDENTATION - In: Matériaux 2006, France, 2006-11-13 - Matériaux 2006 - 2006

Any correspondence concerning this service should be sent to the repository Administrator : scienceouverte@ensam.eu

# MESURE DE LA TENACITE DE L'HYDROXYAPATITE PAR INDENTATION

A. BEHNAMGHADER[a], D. NAJJAR[b] , A. IOST[b],

[a] *Materials and Energy Research center, Tehran, P.O. Box 14155-4777,Iran*
[b] *Laboratoire de Métallurgie Physique et Génie des Matériaux (LMPGM),*
*Equipe Caractérisation et Propriétés des Périsurfaces,*
*ENSAM, 8 Boulevard Louis XIV, 59046 Lille Cedex, France,*
*a_behnamghader@merc.ac.ir; denis.najjar@lille.ensam.fr; alain.iost@lille.ensam.fr*

***RESUME:***

L'objectif de cette étude est de caractériser le comportement fragile de l'hydroxyapatite (HAP) par évaluation de sa ténacité. Cette ténacité a été estimée pour des d'échantillons sous forme massive et pour des revêtements par indentation Vickers. Pour les échantillons d'HAP sous forme massive, des fissures de type Médian sont visibles à chaque coin des empreintes pour des charges ≥ 200g. Un phénomène de fissuration latérale pouvant conduire à un écaillage est observé pour les charges testées les plus élevées. La mesure de la longueur des fissures, couplée à l'utilisation de la formule analytique d'Evans et Charles, permet de calculer une valeur de ténacité qui est inférieure au MPa.m$^{1/2}$. Pour les revêtements d'HAP, l'indentation latérale produit des empreintes qui sont accompagnées d'un phénomène de multi-fissuration. En intégrant ce phénomène de multi-fissuration, la valeur de la ténacité estimée pour les revêtements d'HAP est du même ordre de grandeur que celle des échantillons sous forme massive.

***MOTS-CLES :*** *Hydroxyapatite, Indentation, Ténacité.*

## *1. INTRODUCTION*

L'hydroxyapatite, principal composant minéral du tissu osseux, est également un produit couramment obtenu par synthèse et utilisé comme biomatériau. Présentant une excellente biocompatibilité et étant bioactif, l'hydroxyapatite est utilisée pour substituer l'os soit comme matériau de comblement sous forme massive, soit comme revêtement de prothèses [1-7]. S'agissant d'une céramique, la principale limite liée à l'utilisation de ce biomatériau est son comportement fragile qu'il est possible d'évaluer par une mesure de ténacité [8-10].

Si la mesure de la ténacité des matériaux se fait en général à l'aide d'essais de mécanique de la rupture, l'essai d'indentation Vickers est de plus en plus souvent utilisé dans le cas des matériaux fragiles [11-13]. En effet, ceux-ci sont sensibles à la fissuration aux coins d'une empreinte formée sous l'action du chargement mécanique de l'indenteur. Par rapport aux essais classiques de mécanique de la rupture, la détermination de la ténacité par indentation offre plusieurs avantages : la simplicité de mise en œuvre, le faible coût, la possibilité de répéter rapidement un grand nombre d'essais et de travailler sur des échantillons de taille réduite.

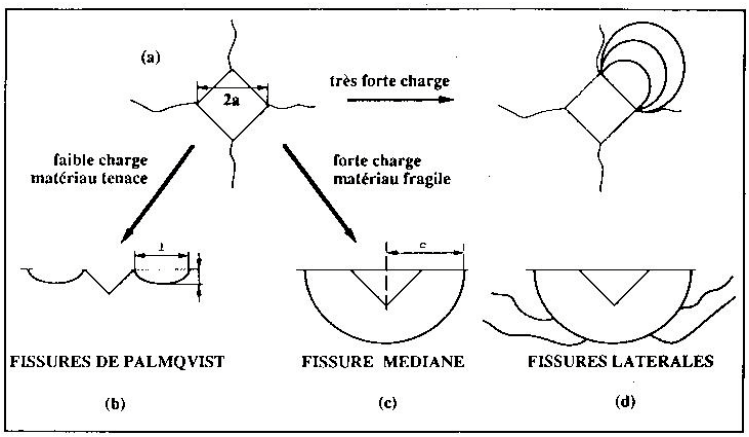


*Figure 1 : Morphologie des fissures générées par l'empreinte de dureté, (a).vue de dessus, (b) fissures de Palmqvist (type « P »), (c) fissures médianes ou Halph-Penny (type « M »), (d) fissures latérales produisant un écaillage à la surface de l'échantillon.*

Pour l'essai d'indentation Vickers, la ténacité est estimée à partir de l'observation et de la mesure de la longueur des fissures radiales qui se forment aux coins des empreintes de dureté (Figure 1). Ces fissures radiales se propagent sous la surface, soit uniquement aux extrémités de la diagonale de l'empreinte soit sous l'empreinte et sur les bords de celle-ci. Dans le premier cas, il s'agit de fissures dites de type Palmqvist (Figure 1a) et, dans le second cas, de fissures dites de type Médian (Figure 1b). L'application de charges importantes peut également donner lieu à l'amorçage et la propagation de fissures latérales susceptibles de provoquer un écaillage en débouchant à la surface de l'échantillon. La détermination de la ténacité est ensuite obtenue en appliquant une formule analytique qui intègre les caractéristiques géométriques de la fissure. Parmi les nombreuses formules existantes établies pour évaluer la ténacité de matériaux fragiles par la technique d'indentation, celle d'Evans et Charles [14] semble fournir les meilleurs résultats selon Ponton et Rawlings [11, 12].

L'objectif de la présente étude est de caractériser la ténacité de l'hydroxyapatite à partir d'échantillons élaborés sous forme massive et d'échantillons revêtus. Pour les deux types d'échantillons, la ténacité est déterminée par indentation Vickers suite à une analyse des caractéristiques géométriques des fissures produites autour des empreintes et de l'application de la formule analytique d'Evans et Charles.

## *2. MATERIAUX ET METHODES*

Les échantillons de cette étude ont été élaborés au Centre Régional d'Innovation et de Transfert Technologique (CRITT) Céramiques Fines basé à Maubeuge (59). Que ce soit pour les échantillons d'HAP sous forme massive ou ceux sous forme de revêtement sur substrat métallique en alliage de titane TA6V, la poudre utilisée présentait un rapport Ca/P égal à 1,65 ± 0,03.

Les échantillons sous forme massive ont été élaborés par une opération de pressage isostatique sous une pression de 3500 bars pendant 5 min suivie d'une opération de frittage à une température de 1543K pendant 3 heures. Après ces opérations, les échantillons se présentent sous forme de disque de 15 mm de diamètre et de 5 mm de hauteur. Pour les échantillons revêtus, le substrat métallique en alliage de titane TA6V était un cylindre de 25 mm de diamètre et de 40 mm de hauteur. Avant l'application du revêtement d'HAP par torche à plasma à l'air, la surface du substrat a été sablée avec des grains de corindon (120 mesh) et la valeur de la rugosité arithmétique moyenne $R_a$ de cette surface était de 1,23 ± 0,09 µm ; valeur évaluée sur des profils d'1mm de longueur. Les conditions retenues pour élaborer le revêtement étaient les suivantes : mélange de gaz argon/hydrogène avec des débits de 35 $l.min^{-1}$ et 12 $l.min^{-1}$ respectivement, un débit de poudre d'HAP de 20 $g.min^{-1}$, une distance de travail de 140 mm, un courant de 420 A et une tension de 82V. La projection plasma a été effectuée en deux passages pour obtenir un revêtement dont l'épaisseur finale est d'environ 150 µm. Pour les deux types d'échantillons, la microstructure a été étudiée à l'aide d'observations en microscopie électronique à balayage. Pour les échantillons revêtus d'HAP, ces observations ont été effectuées en coupe latérale.

Que ce soit pour les échantillons d'HAP sous forme massive ou ceux sous forme de revêtement, la ténacité a été évaluée à partir de l'étude de la forme et de la longueur de fissures susceptibles de se former autour d'une empreinte de dureté. Les longueurs des fissures formées ainsi que les diamètres d'empreinte ont été mesurés immédiatement après la phase de décharge de l'indenteur. L'appareil utilisé était un duromètre Leitz miniload et des essais de dureté Vickers ont été effectués, pour les échantillons d'HAP sous forme massive, en utilisant des charges comprises entre 25 et 2000 g et une durée d'application de la charge de 15s. La géométrie des fissures (type Palmpvist ou Médian) a été déterminée par une série de polissages successifs couplés à des observations en microscopie optique. Dans le cas des échantillons revêtus d'HAP, les essais de dureté ont été effectués en coupe latérale en utilisant des charges de 100, 150 et 200 g.

Même si de nombreuses formules plus ou moins complexes ont été établies pour évaluer la ténacité de matériaux fragiles par la technique d'indentation, la formule d'Evans et Charles est celle qui fournit en général les meilleurs résultats selon Ponton et Rawlings [11, 12]. L'expression de cette formule, qui seule sera considérée dans le cadre de cette étude, permet d'évaluer la ténacité $K_c$ comme suit :

$$K_c = 0{,}0824\, P / c^{3/2}$$

où $P$ est la force appliquée en MN et $c$ la longueur moyenne des fissures formées aux coins de l'empreinte et mesurées en m à partir de son centre. Il faut signaler que, pour utiliser cette formule de façon fiable, il est nécessaire qu'une fissure soit présente à chaque coin de l'empreinte et que ces fissures soient de type Médian avec un rapport c/a $\geq$ 2,5 où $a$ est la longueur moyenne des demi-diagonales de l'empreinte.

## *3. RESULTATS ET DISCUSSION*

### *3.1) Microstructure*

La microstructure des échantillons élaborés sous forme massive est montrée sur la Figure 2a. Typique d'une céramique obtenue par frittage, celle ci montre des grains dont la taille est d'environ 3 µm et de la porosité. La valeur du taux de porosité a été évaluée à environ 3% par porosimétrie au mercure. La Figure 2b présente la microstructure lamellaire typique des échantillons revêtus et observés en coupe latérale. Outre la présence d'un taux de porosité évalué approximativement à 25%, ce revêtement contient également des microfissures qui résultent de la relaxation de contraintes résiduelles engendrées pendant la phase de refroidissement des échantillons après l'arrêt de la torche à plasma.

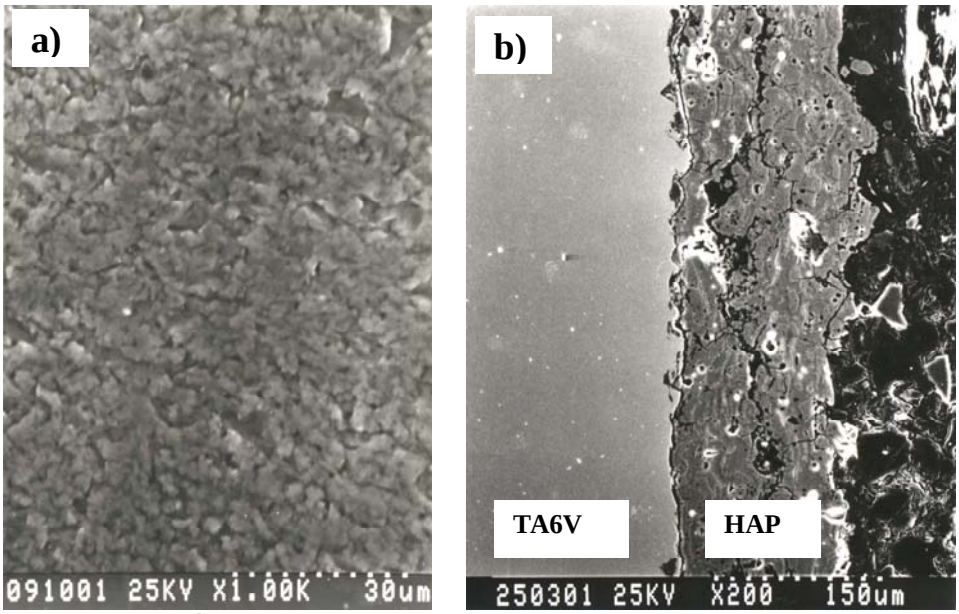


*Figure 2 : Microstructure des échantillons, (a) HAP sous forme massive, (b) HAP sous forme de revêtement.*

### *3.2) Caractéristiques des fissures formées*

La Figure 3a présente la probabilité de fissuration en fonction de la charge appliquée pour les échantillons d'HAP sous forme massive. Cette probabilité est définie comme le rapport du nombre de fissures produites aux différents coins des différentes empreintes divisé par 4 fois le nombre d'empreintes considérées. Cette figure montre que la charge critique de formation des fissures est d'environ 34 g et la charge correspondant à un probabilité de fissuration de 50% est de 70 g. Au delà d'une charge supérieure ou égale à 100 g, les empreintes de dureté sont toujours fissurées à chaque coin. La Figure 3b montre l'évolution du rapport c/a en fonction de la charge appliquée. On constate sur cette figure que ce rapport est supérieur à 2,5 pour des charges supérieures ou égales à 200 g.

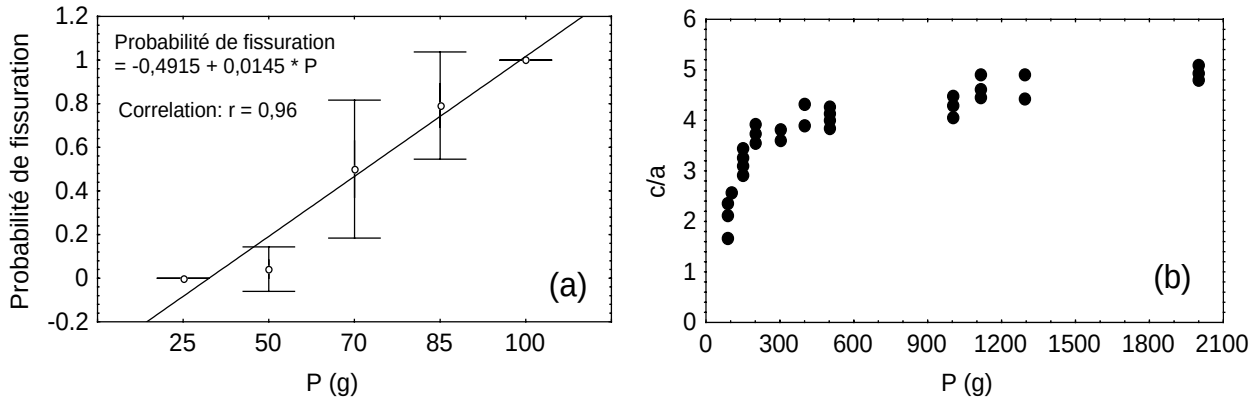


*Figure 3 : Echantillons d'HAP sous forme massive, (a) Probabilité de fissuration en fonction de la charge appliquée, (b) Evolution du rapport c/a en fonction de la charge appliquée.*

La technique de polissages successifs révèle que les fissures engendrées pour des charges ≤ 150 g sont de type Palmqvist tandis que celles engendrées pour des charges ≥ 200 g sont de type Median. Pour des charges ≥ 1000 g, une fissuration latérale accompagne les fissures de type Median pour une partie des empreintes. Cette fissuration latérale peut conduire à un soulèvement local de la matrice au dessus du plan moyen de l'échantillon voire à un phénomène d'écaillage quand les fissures latérales débouchent en surface (Figure 4).

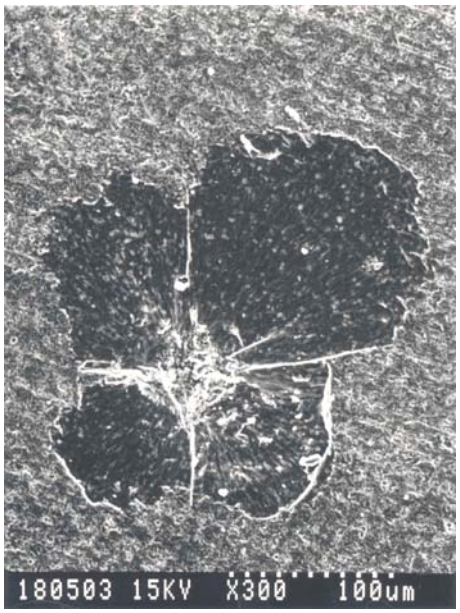


*Figure 4 : Image MEB typique montrant le phénomène d'écaillage résultant de la propagation de fissures latérales débouchant en surface des échantillons d'HAP sous forme massive.*

La Figure 5 montre l'aspect typique de la fissuration relative à l'indentation latérale des revêtements d'HAP. Quelle que soit la charge étudiée, le nombre de fissures engendrées est généralement supérieur à 4. Ces fissures ne sont pas rectilignes, ne partent pas nécessairement des coins de l'empreinte et sont de longueurs différentes. Dans ces conditions, l'évaluation quantitative de la longueur moyenne de ces fissures est délicate et nécessairement entachée d'erreur.

*Figure 5 : Image typique du phénomène de multi-fissuration observé autour d'une empreinte de dureté effectué en coupe latérale dans un revêtement d'HAP.*

### *3.3) Détermination de la ténacité*

Dans la mesure où pour déterminer la ténacité de façon fiable par la formule d'Evans et Charles, il est nécessaire qu'une fissure soit présente à chaque coin de l'empreinte et que ces fissures soit de type Médian avec un rapport c/a ≥ 2,5, seules les charges ≥ 200 g ont été considérées pour évaluer cette propriété mécanique. L'évolution de la ténacité en fonction de la charge appliquée est montrée sur la Figure 6. Cette figure montre, d'une part, que la valeur calculée de la ténacité n'est pas affectée par le phénomène de fissuration latérale et, d'autre part, que la valeur de la ténacité est quasiment constante. En considérant l'ensemble des charges, la valeur calculée de la ténacité est de 0,55 ± 0,10 MPa.m$^{1/2}$.

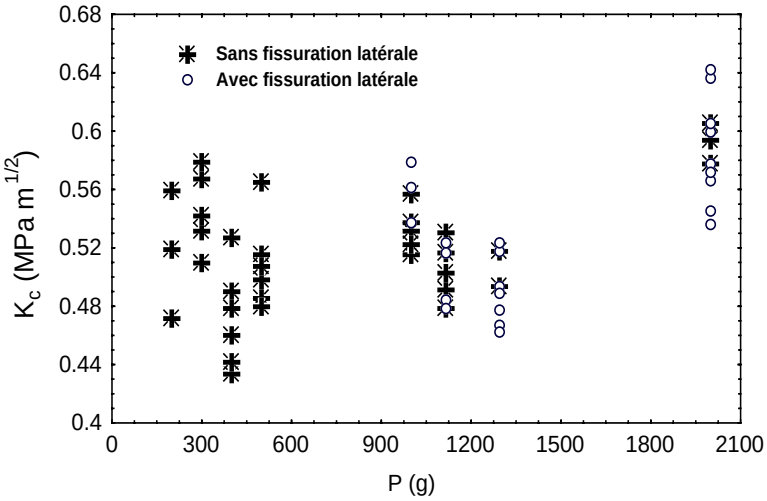


*Figure 6 : Evolution de la ténacité (calculée en utilisant la formule d'Evans et Charles) d'échantillons d'HAP sous forme massive en fonction de la charge appliquée. A noter l'absence d'influence d'une fissuration latérale sur les résultats.*

Compte tenu du caractère irrégulier constaté pour la fissuration suite à l'indentation latérale des revêtements, la ténacité a été évaluée en utilisant la méthode développée par Towsend et Field qui ont déjà observé un phénomène de fissuration similaire [15]. Cette méthode consiste à tracer un cercle contenant les fissures ; la valeur du rayon de ce cercle étant injectée ensuite dans la formule de ténacité d'Evans et Charles en lieu et place de la variable *c*. La Figure 7 présente les résultats de l'évolution de la ténacité en fonction de la charge appliquée dans un revêtement d'HAP. Cette figure montre que, pour les charges étudiées, la valeur de la ténacité évolue entre 0,48 MPa.m$^{1/2}$ et 1,1 MPa.m$^{1/2}$, valeurs du même ordre de grandeur que les précédentes.

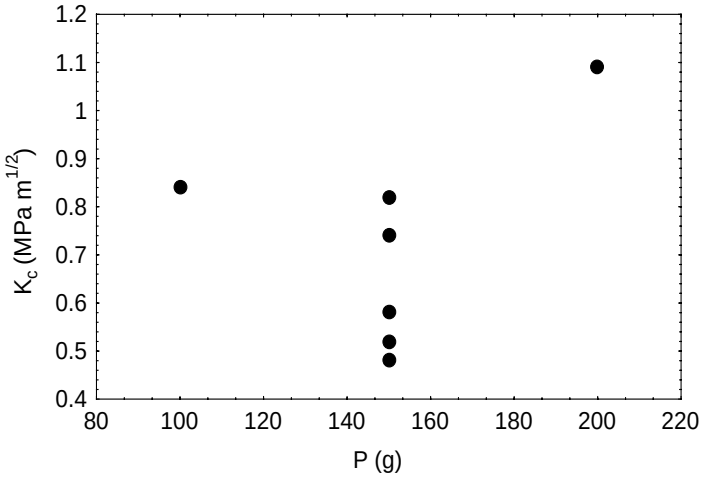


*Figure 6 : Evolution de la ténacité (calculée en utilisant la formule d'Evans et Charles) d'un revêtement d'HAP en fonction de la charge appliquée. La longueur des fissures a été estimée en appliquant la méthode de Towsend et Field.*

## *4. CONCLUSIONS*

Cette étude montre la possibilité d'évaluer la ténacité de l'hydroxyapatite par la technique d'indendation à partir d'échantillons sous forme massive ou de revêtement. Dans les deux cas, les résultats expérimentaux montrent que l'hydroxyapatite est un biomatériau extrêmement fragile. En effet, pour les échantillons sous forme massive, la valeur de la ténacité a été estimée à une valeur de 0,55 ± 0,10 MPa.m$^{1/2}$ toutes charges confondues. A noter que la présence d'une fissuration latérale aux plus fortes charges n'a pas d'influence sur les résultats. Pour les revêtements d'HAP, un phénomène de multi-fissuration est constaté autour des empreintes de dureté et la valeur de la ténacité évolue entre 0,48 MPa.m$^{1/2}$ et 1,1 MPa.m$^{1/2}$ pour les charges étudiées.

## *5. REMERCIEMENTS*

Ce travail a été effectué dans le cadre des activités de la Fédération Biomatériaux Nord-Pas de Calais. Les auteurs remercient le CRITT Céramiques Fines de Maubeuge pour la fourniture des échantillons ainsi que la Région Nord-Pas de Calais pour le soutien financier de cette étude.

## *6. REFERENCES*

1) K. De Groot, C.P.A.T. Klein, J.G.C. Wolke, J.M.A. De Blieck-Hoegervorst, 'Chemistry of calcium phosphate ceramics', *CRC Hanbook of Bioactive Calcium Phosphates*, T. Yamamuro, L. Hench, J. Wilson eds., CRC Press, Boca Raton (FL), 1990.
2) O. Prokopiev, I. Sevostianov, 'Dependence of the mechanical properties of sintered hydroxyapatite on the sintering temperature', *Mat. Sci. Eng. A31*, 218-2227, 2006.
3) D.K. Pattanayak, R. Dash, R.C. Prasad, B.T. Rao, T.R. Rama Mohan, 'Synthesis and sintered properties evaluation of calcium phosphate ceramics', *Mat. Sci. Eng. C*, sous presse, 2006.
4) R.G.T. Geesink, 'Hydroxyapatite coatings : where do we stand, where do we go ?', *Hydroxyapatite coated hip and knee arthroplasty*, J.A. Epinette, R.G.T. Geesink eds., Cahier d'Enseignement de la SOFCOT, 345-376, 1995.
5) C.H. Queck, K.A. Khor, P. Cheang, 'Influence of processing parameters in the plasma spraying of hydroxyapatite/Ti-6Al-4V composite coatings', *J. Mat. Proc. Tech. 89-90*, 550-55, 1999.
6) R.B. Heimann, 'Thermal spraying of biomaterials', Surf. Coat. Tech. 201, 2012-2019, 2006.
7) C.W. Yang, T.M. Lee, T.S. Lui, E. Chang, 'Effect of post vacuum heating on the microstructural feature and bond strength of plasma-sprayed hydroxyapatite coatings', *Mat. Sci. Eng. C26*, 1395-1400, 2006.
8) W. Suchanek, M. Yashima, M. Kakihana,M. Yoshimura, 'Processing and mechanical properties of hydroxyapatite reinforced with hydroxyapatite whiskers', *Biomaterials 17*, 1715-1723, 1996.
9) N. Thangamani, K. Chinnakali, F.D. Gnanam, 'The effect of powder processing on densification, microstructure and mechanical properties of hydroxyapatite', Ceram. Int. 28, 355-362, 2002.
10) C. Benaqqa, J. Chevalier, M. Saadaoui, G. Fantozzi, 'Slow crack growth behaviour of hydroxyapatite ceramics', *Biomaterials 26*, 6106-6112, 2006.
11) C.B. Ponton, R.D. Rawlings, 'Vickers indentation fracture toughness test: Part 1, Review of literature and formulation of standardised indentation toughness equations', *Mat. Sci. Tech. 5*, 865-872, 1989.
12) C.B. Ponton, R.D. Rawlings, 'Vickers indentation fracture toughness test: Part 2, Application and critical evaluation of standardised indentation toughness equations', *Mat. Sci. Tech. 5*, 961-976, 1989.
13) A. Iost, J. Foct, 'Mesure de la ténacité par indentation : application à la galvanisation', Mém. Sci. Rev. Mét., 757-767, Décembre 1992.
14) A.G. Evans, E.A. Charles, 'Fracture toughness determination', *J. Am. Soc. 59*, 371-372, 1976.
15) D. towsend, J.E. field, ' Fracture toughness and hardness of zinc sulphide as a function of grain size', *J. Mater. Sci. 25*, 1347-1352, 1990.