

La mécanique des cloques

Projet de note pour le bulletin de la SFP, octobre 2000

B. Audoly
courriel : audoly@lps.ens.fr
internet : <http://connect.to/basile>
Laboratoire de physique statistique
24 rue Lhomond
74013 PARIS

La théorie de l'élasticité se situe à la croisée de plusieurs branches des sciences. On peut l'aborder sous l'angle de la mécanique des solides (avec les théories de l'élasticité, de la rupture et du contact solide), de la physique non linéaire (théorie des catastrophes et des systèmes dynamiques) et des mathématiques (géométrie différentielle, analyse fonctionnelle). Ces trois approches sont bien entendu complémentaires plutôt qu'exclusives. Le problème de la formation des cloques dans les films minces illustre bien ce recoupement de disciplines. C'est pourquoi nous avons souhaité présenter ici la mécanique cloques, et donner un aperçu des techniques que leur étude conduit à mettre en œuvre.

Cette Note s'organise comme suit : nous présenterons d'abord les films minces et le phénomène de cloquage. Nous insisterons ensuite sur les difficultés posées par sa modélisation. Enfin, nous présenterons quelques arguments qui permettent de comprendre la forme des cloques.

Introduction

Les films minces sont largement utilisés dans l'industrie. Pour ne citer que quelques exemples, une couche mince en carbone ou en composés à base de titane permet d'améliorer notablement la résistance à l'usure d'outils de découpe. Dans les circuits intégrés, des films minces sont utilisés comme barrière chimique car ils empêchent la diffusion des impuretés. D'autres couches minces permettent d'améliorer la résistance aux rayures des verres polymériques, ou sont employées comme barrière thermique sur les pales de moteurs d'avion.

Il existe plusieurs techniques permettant d'obtenir ces couches minces. Selon les matériaux que l'on souhaite déposer, on peut par exemple condenser la phase

gazeuse du film sur ce substrat, ou bombarder directement des atomes sur ce substrat. Dans tous les cas, les films ainsi obtenus possèdent des contraintes mécaniques dites résiduelles. Pour un film obtenu par condensation, par exemple, la température de condensation est élevée (plusieurs centaines de degrés Celsius), de sorte que le différentiel de coefficient de dilatation thermique entre le film et son substrat induit des contraintes dans le film lors du refroidissement à la température d'utilisation.

Ces contraintes résiduelles peuvent entraîner la rupture du matériau composite film/substrat selon plusieurs mécanismes. Si les contraintes dans le film sont extensives¹, des craquelures rappelant celles que l'on observe dans la boue séchée peuvent apparaître. On obtient alors un réseau de fissures localisées dans l'épaisseur du film. Si les contraintes résiduelles dans le films sont assez importantes, ces fissures peuvent même progresser jusqu'à l'interface entre film et substrat (le film se décolle alors en écailles), ou bien « plonger » dans le substrat.

À l'opposé, le cas de figure qui nous intéressera est celui de contraintes résiduelles *compressives*. Pour libérer ce type de contraintes et retrouver sa longueur naturelle, le film tend à se détacher du substrat. On parle de délaminage (de *lamina*, feuille). Comme une barre qu'on aurait comprimée axialement, le film, sous l'effet des contraintes compressives, sort de son plan et se courbe — on parle de flambement. Il se débarrasse ainsi d'une partie de l'énergie de compression résiduelle, mais doit payer en échange de l'énergie de flexion. Cette dernière est bien plus économique cependant dans la limite d'un film mince : on sait qu'il est bien plus facile de déformer une feuille de papier en la roulant en cylindre, plutôt qu'en l'étirant dans son plan.

Ainsi, dans ce processus de cloquage, c'est le flambement du film qui est la source d'énergie. Or la croissance d'une cloque nécessite la rupture de l'interface film/substrat. La forme de la cloque va donc résulter d'un équilibre entre l'apport d'énergie élastique par le flambement du film, et la dissipation d'énergie liée à la rupture de l'interface film/substrat.

¹ C'est le cas pour un film obtenu par condensation à haute température, dont le coefficient de dilatation est plus grand que celui du substrat : le film se rétracte plus pendant le refroidissement

Insérer ici la figure 1

Les cloques de délaminage ont été observées dans le cadre d'expériences contrôlées et bien reproductibles. Nous incluons ici, avec la permission des auteurs, des images obtenues dans des films d'acier inoxydable déposés sur un substrat en polycarbonate (figure 1). Les ordres de grandeur sont les suivants : épaisseur du film de 58 nm, largeur de la cloque (et longueur d'onde des oscillations) de l'ordre de 3 μm . Les contraintes résiduelles sont de l'ordre du GPa. La cloque rectiligne est obtenue en présence d'une contraintes transverse additionnelle. Lorsque cette contrainte est supprimée, les cloques droites évoluent vers des profils en « fil de téléphone ».

Les arguments donnés plus haut suggèrent une mise en équation du problème. Partant de la donnée de la région délaminée², il s'agit de résoudre les équations des plaques élastiques (équations de Föppl–von Kármán) pour calculer le profil vertical de la cloque : on peut y considérer le film comme une plaque élastique attachée à ses bords. Une fois connu ce profil, on en déduit les efforts exercés par le bord de la cloque : parmi ces efforts³, il y a un moment M , dû au fait que le bord de la cloque est courbé vers le haut ; ce moment tend à ouvrir la fissure. Dans un second temps, il s'agit de résoudre un problème de fissure consistant à partir de la valeur de ce M pour calculer l'intensité des contraintes dans le voisinage immédiat de la pointe de la fissure. Autrement dit, il faut déterminer avec quelle efficacité le moment M va tirer sur les liaisons chimiques assurant la cohésion de l'interface. Enfin, il faut se donner un modèle de ténacité de la fissure, c'est-à-dire décider d'une intensité critique des contraintes à la pointe entraînant la propagation de la fissure, *i. e.* la croissance de la cloque.

Insérer ici la figure 2

La boucle est ainsi bouclée : partant de la forme 2D de la cloque, on calcule les efforts sur le bord de la cloque, puis on détermine les régions du bord de la cloque où

² En supposant la cloque pré-existante, on passe sous silence le processus d'initiation de la cloque, qui repose sur la présence de défauts à l'interface.

³ Outre ce moment, il faut en réalité prendre en compte une force tangentielle F normale à la frontière de la cloque, qui induit un cisaillement. Elle est due au relâchement de contraintes longitudinales dans le film consécutif au flambement. Par souci de simplicité, nous l'ignorons.

l'interface cède. On est ainsi amené à corriger la forme de la cloque. En itérant, on doit parvenir à la forme d'équilibre de la cloque. Cet algorithme est satisfaisant en théorie, mais la pratique est bien moins simple. En effet, la résolution des équations de Föppl–von Kármán donnant le profil vertical de la cloque est difficile, même numériquement (hormis pour des formes de cloque très particulières, 1D par exemple). Ces équations s'écrivent en effet comme des équations aux dérivées partielles non linéaires du quatrième ordre couplées pour deux fonctions inconnues. D'autre part, comme nous allons maintenant le montrer, les modèles les plus simples de rupture n'expliquent pas la stabilité des cloques de délaminage, pourtant bien observées expérimentalement.

La stabilité des cloques

Nous allons montrer par des arguments dimensionnels que, lorsqu'une cloque croît, elle tire de plus en plus fort sur son bord. Dans ces conditions, on pourrait s'attendre à ce que le délaminage soit toujours instable : une fois la cloque initiée, le film devrait se décoller totalement. Certaines formes de cloques sont pourtant bien stables expérimentalement. Cette difficulté sera résolue plus tard par le choix du critère de propagation de la fissure, un élément essentiel du modèle : la stabilité du délaminage ne peut se comprendre qu'en ayant recours à des modèles de fissure relativement élaborés.

Essayons donc de donner la forme du moment M en fonction des paramètres du problème : l'épaisseur h du film, son module d'Young E (qui est la contrainte typique, homogène à une pression, causant des déformations d'ordre unité dans le film), la taille caractéristique b de la cloque. Commençons par rechercher la valeur critique σ_c de la contrainte résiduelle σ_0 qui fait flamber le film. Dimensionnellement, σ_c est nécessairement de la forme $\sigma_c = E(h/b)^x$, où x est un exposant inconnu pour l'instant, que l'on détermine comme suit. Le flambement du film résulte, nous l'avons vu, d'un équilibre en énergie de compression et énergie de flexion. Soit $\zeta(x,y)$ la déflexion de la plaque, *i. e.* son déplacement transverse. La courbure d'une surface étant exprimée par l'opérateur laplacien, l'énergie de courbure du film E_c par unité de surface doit comporter les termes En ajustant la dimension au moyen de puissances de h , il vient $E_c \sim E h^3 (\Delta \zeta)^2$. En ce qui concerne l'énergie d'extension, il faut remarquer que c'est l'inclinaison locale de la plaque

(donc des *gradients* de la déflexion) qui lui permettent d'augmenter sa longueur (les bords sont attachés) et de se libérer partiellement de la contrainte résiduelle σ_0 . On incorpore donc dans l'énergie un terme d'extension $E_{\text{ext}} \propto -\sigma_0 (\nabla \zeta)^2$, qui, en présence de compression σ_0 , déstabilise l'état non flambé $\zeta \equiv 0$ (on convient que $\sigma_0 > 0$ pour des contraintes compressives). Il reste là encore à ajuster la dimension au moyen de l'épaisseur h , pour obtenir $E_{\text{ext}} \sim [-h\sigma_0 (\nabla \zeta)^2]$. Un équilibrage simple des termes de courbure et de flexion donne la forme dimensionnelle de la compression résiduelle critique σ_c permettant de faire flamber une cloque de taille b : $Eh^3 \left(\frac{\zeta}{b^2}\right)^2 \sim \sigma_c h \left(\frac{\zeta}{b}\right)^2$ soit $\sigma_c \sim E \left(\frac{h}{b}\right)^2$.

On peut maintenant en déduire la forme du moment ouvrant la fissure, M , au moins près du seuil de flambement. Oublions le fait que film et substrat ne peuvent pas s'interpénétrer : le signe de M change selon que le flambement du film s'effectue vers le haut ou vers le bas. La théorie des bifurcations suggère donc que $M \propto (\sigma_0 / \sigma_c - 1)^{1/2}$, l'indétermination du signe de M étant en fait liée à celle de la racine carrée. Utilisant la forme de σ_c déduite plus haut, on arrive à l'expression suivante de l'effort chargeant la fissure : $M \sim \text{cte} \sqrt{\left(\frac{\sigma_0 b^2}{E h^2} \text{cte}'\right) - 1}$.

On arrive ici à la difficulté annoncée : pour un échantillon donné (E, h, σ_0 fixés), M est une fonction strictement croissante de la taille de la cloque, b . Ainsi, la cloque, en grandissant, arrache l'interface de plus en plus fortement. La stabilité des cloques apparaît donc problématique.

Plusieurs mécanismes stabilisant la cloque ont été proposés. En particulier, nous avons montré que la fissure interfaciale finit par se refermer quand la cloque atteint une taille critique. La stabilité des cloques peut alors se comprendre comme la conséquence d'effets frictionnels entre film et substrat. L'argument dimensionnel présenté plus haut montre en tout cas qu'une description réaliste des cloques ne peut faire l'économie d'un modèle de fissure relativement élaboré.

La forme des cloques

Parmi les différentes formes de cloques que l'on peut observer expérimentalement, nous nous restreignons ici à un type particulier, les cloques en « fil de téléphone ». Ces motifs sont en effet particulièrement surprenants : la cloque prend une forme en serpent (un tunnel à bords ondulants), comme sur la figure 2. Les fils de téléphone ont été observés dans une large gamme de couples film/substrat (film de carbone sur quartz, film métallique sur polycarbonate, etc), ce qui suggère que les oscillations peuvent s'expliquer à partir de l'approximation des milieux continus, sans faire intervenir les détails des processus microscopiques à l'œuvre. Dans la suite, nous allons en effet montrer que ces motifs peuvent se comprendre à partir des équations de l'élasticité pour les plaques (équations de Föppl–von Kármán).

L'idée est la suivante : imaginons qu'il se forme une cloque rectiligne (un tunnel à bords *droits* parallèles, cf. γ sur la fig. 3), et considérons son évolution. Le flambement libère efficacement les contraintes transverses, car il permet au film de retrouver sa longueur naturelle dans la direction transverse. Cependant, la compression résiduelle est essentiellement isotrope dans le film initialement (penser à l'origine thermique des contraintes). Par suite, il subsiste d'importantes contraintes *longitudinales* dans la cloque droite. Si elles sont assez importantes, ces contraintes peuvent entraîner un flambement secondaire de la cloque rectiligne. On pourrait ainsi obtenir des configurations en serpent.

Pour mettre cette idée à l'épreuve, nous avons étudié la configuration d'énergie minimale d'une plaque élastique rectangulaire infiniment longue, attachée par ses côtés et comprimée dans son plan (longitudinalement et transversalement, avec deux valeurs de compression σ_0^{\perp} et σ_0^{\parallel} éventuellement différentes). En délaminage, cela correspondrait à une cloque droite dont on serait parvenu à figer la croissance : les bords de la cloque sont, dans notre calcul, fixés une fois pour toutes. Les contraintes σ_0^{\perp} et σ_0^{\parallel} jouent alors le rôle de contraintes résiduelles (éventuellement anisotropes) dans le film. L'imposition a priori d'une forme de cloque constitue une simplification considérable : on oublie la rétroaction du profil de la cloque sur sa forme, via la fracture de l'interface. De façon remarquable, ce problème simplifié, le flambage d'une bande élastique, permet néanmoins de comprendre les motifs de délaminage en fil de téléphone.

Sur la figure 3, nous avons donc représenté le diagramme de phase d'un film élastique soumis aux compressions longitudinale σ_0^l et transverse σ_0^t . Pour le construire, on a porté, en fonction de ces deux compressions, la forme du film minimisant l'énergie élastique. Les lignes séparant les domaines constituent des bifurcations. La diagonale correspond à une compression isotrope. Ce diagramme présente une richesse frappante — d'autant plus qu'il est obtenu par des moyens analytiques : présence de nombreux domaines et bifurcations, existence d'un point critique B en forme de bec (dont l'étude est d'ailleurs non triviale pour la théorie des catastrophes).

On y retrouve une configuration en serpent aux fortes compressions isotropes, c'est-à-dire sur la diagonale, loin de l'origine. On valide ainsi l'idée proposée plus haut : les ondulations en fil de téléphone sont bien un moyen d'optimiser le relâchement des contraintes résiduelles du film dans la direction longitudinale. Les motifs de délaminage dans les films minces peuvent donc se comprendre à la lumière de la seule théorie des plaques élastiques.

Dans certaines régions du diagramme (β, δ), la configuration d'équilibre du film comporte des bosses, la longueur d'onde longitudinale étant de l'ordre de la largeur de la bande. Il semble que cela soit à rapprocher d'une observation très récente dans les films minces. Sous certaines conditions de compression, apparaît en effet un chapelet de cloques circulaires en amont d'un doigt de délaminage [4]. Ces motifs en gouttelettes rappellent bien la région δ du diagramme. Nous n'avons pas encore pu valider formellement cette hypothèse, mais la position relative des régions dans le diagramme de phase est qualitativement en accord avec le type de compressions qu'il faut appliquer pour obtenir expérimentalement les motifs en serpent, en gouttelettes, ou rectilignes.

Aujourd'hui, mécanique et physique sont souvent pensées comme des disciplines distinctes. L'étude de problèmes précis, comme le cloquage dans les films minces, nous semble au contraire plaider pour un rapprochement de ces disciplines : quelle mécanique n'est pas de la physique (et vice-versa) ?

Bibliographie

[1] B. Audoly. Stability of Straight Delamination Blisters, Phys. Rev. Letters 83, 4124 (1999)

- [2] B. Audoly, A. Pocheau et B. Roman. Elastic buckling and post-buckling of a long rectangular plate, en préparation.
- [3] J. Colin, F. Cleymand, C. Coupeau et J. Grilhé. Worm-like delamination patterns of thin stainless steel films on polycarbonate substrates, à paraître dans *Phil. Mag. A*
- [4] J. Colin, F. Cleymand, C. Coupeau et J. Grilhé. En préparation.
- [5] J. W. Hutchinson et Z. Suo. Mixed mode cracking in layered materials. *Advances in Applied Mechanics* 29, 63 (1991)

FIGURES

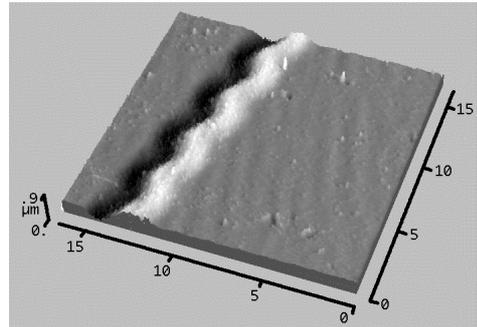
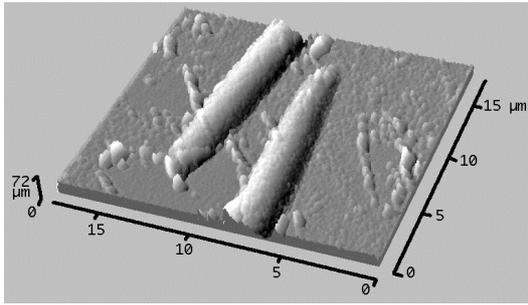


Figure 1 : Visualisation de cloques de délaminage par microscopie à force atomique dans un film métallique sur un substrat en polycarbonate [3] © F. Cleymand, C. Coupeau, J. Colin et J. Grilhé

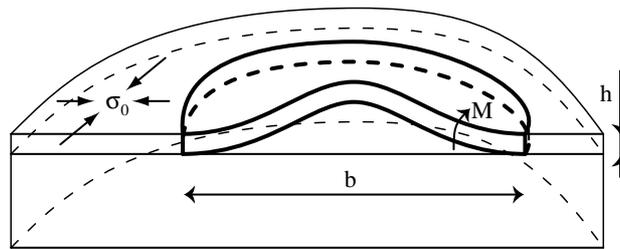


Figure 2 : coupe d'une cloque de délaminage de taille caractéristique b . Le film, d'épaisseur h , flambe et exerce un moment M . Ce moment charge à son tour la fissure à l'interface film/substrat qui en cédant fait progresser la cloque.

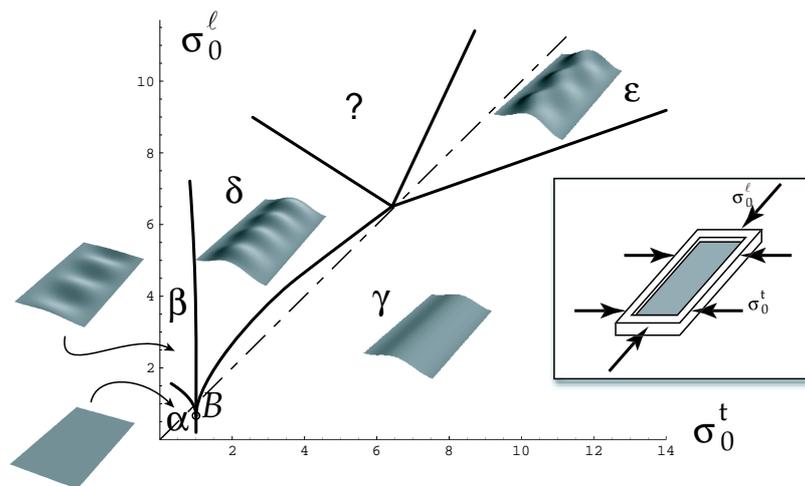


Figure 3 : diagramme de phase théorique d'une plaque élastique rectangulaire soumise à une compression dans son plan.