



HAL
open science

Etude expérimentale et investigation numérique de la multi-fissuration des films minces déposés sur un substrat souple

Ilhem Ben Cheikh

► **To cite this version:**

Ilhem Ben Cheikh. Etude expérimentale et investigation numérique de la multi-fissuration des films minces déposés sur un substrat souple. Matériaux. Université Grenoble Alpes, 2018. Français. NNT : 2018GREAI006 . tel-01852168

HAL Id: tel-01852168

<https://theses.hal.science/tel-01852168>

Submitted on 1 Aug 2018

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.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE LA COMMUNAUTE UNIVERSITE DE GRENOBLE ALPES

Spécialité : **Matériaux, Mécanique, Génie Civil, Electrochimie**

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

Ilhem BEN CHEIKH

Thèse dirigée par **Guillaume PARRY, Maître de Conférence, Grenoble INP**

et codirigée par **Davy DALMAS, Chargé de Recherche, CNRS et Rafael ESTEVEZ, Professeur, Université Grenoble Alpes**

préparée au sein du **Laboratoire de Science et Ingénierie des Matériaux et des Procédés (SIMaP) de Grenoble, du Laboratoire de Tribologie et Dynamique des Systèmes (LTDS) de Lyon**
et de **École doctorale d'Ingénierie - Matériaux Mécanique Energétique Environnement Procédé Production (I-MEP2)**

Étude expérimentale et investigation numérique de la multifissuration des films minces déposés sur un substrat souple

Thèse soutenue publiquement le **26 Janvier 2018**,
devant le jury composé de :

M. Dominique LEGUILLON

Directeur de recherche émérite, CNRS, Université Pierre et Marie Curie,
Rapporteur

M. Eric LE BOURHIS

Professeur, Université de Poitiers, Rapporteur

M. Daniel Hanoch WAGNER

Professeur, Weizmann Institute of Science, Président du jury

Mme. Muriel BRACCINI

Chargée de recherche, CNRS, Grenoble INP, Examineur

M. Guillaume PARRY

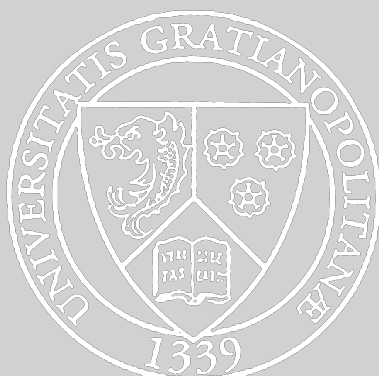
Maître de Conférence, Grenoble INP, Directeur de thèse

M. Davy DALMAS

Chargé de recherche, CNRS, Ecole Centrale de Lyon, Co-directeur de thèse

M. Rafael ESTEVEZ

Professeur, Université Grenoble Alpes, Co-encadrant de thèse



*A mes parents,
A mon mari,
A mes sœurs et mon frère.*

Remerciement

Mes trois années de thèse se sont principalement au sein de laboratoire de Science et Ingénierie des Matériaux et des Procédés (SIMaP) à Grenoble et au sein de Laboratoire du Tribologie et Dynamique des Systèmes (LTDS) à Lyon.

Je tiens donc, en premier lieu, de remercier mon directeur de thèse M. Guillaume Parry de m'avoir offert l'opportunité de réaliser ce projet professionnel et de m'avoir soutenu au cours de ses trois années d'aventure scientifique. Ses grandes compétences techniques en modélisation et ses connaissances théoriques très riches m'ont permis de bien mener ce travail. Je remercie également mon co-directeur M. Davy Dalmas pour son aide et son implication dans les discussions scientifiques au cours de ma thèse.

Ils ont su me donner l'autonomie dont j'avais besoin et m'éclairer de ses conseils dans les moments les plus difficiles pour bien avancer.

Je remercie également M. Rafael Estevez pour sa contribution et son aide surtout dans le partie expérimentale.

Je tiens à remercier M. Dominique Leguillon et M. Eric Le Bourhis d'avoir accepté de rapporter mon travail et pour la qualité de leur rapport. J'adresse aussi mes remerciement à M. Daniel Hanoch Wagner d'avoir accepter de présider ma jury et pour tous ces corrections pertinentes de ce manuscrit. Je remercie également Mme. Muriel Braccini d'avoir participer en tant qu'examinatrice et pour ces conseils durant ma thèse. Tous leurs questions et leurs remarques au cours de ma soutenance ont permis de rendre mon travail encore plus riche.

Je tiens à présenter ma gratitude aux thésards de LTDS pour leur soutien : Marieme Fall, Amal Hriouech, Paul Baral et Jonas Bousmat et tous les permanents et les non permanents du laboratoire.

Je suis très contente de partager mon bureau à SIMaP avec des personnes supers sympas. Je tiens à remercier Nadia Ben Dahmane, Alexis Faure, Marie Le Druillenec et Marc Azab pour me donner de la confiance dans les moments les plus difficiles.

Je remercie également tous les permanents du laboratoire SIMaP et toutes les gestionnaires du laboratoire pour leur soutien et leur effort.

Ma thèse m'a offert la chance de rencontrer des amis exceptionnels notamment Anne Hallonet, Christelle Bernhard, Valeria Pagano, Maarten et Taylor De Kegel et Elise Ubeda, avec eux j'ai partagé des superbes moments.

Mes meilleurs remerciements s'adressent aussi à toute ma famille. Mon père, ma mère, mes deux sœurs et mon frère qui m'ont toujours soutenu.

Enfin, je ne peux pas oublier mon mari Mohamed Ali Lahmar qui a partagé avec moi tous les moments surtout difficiles de cette thèse. Sans son soutien quotidien et son encouragement permanent la réalisation de ce travail n'était pas possible. Mes remerciements pour lui ne seront jamais suffisants.

Ilhem Ben Cheikh

Table des matières

0	Présentation Générale	1
0.1	Contexte industriel	3
0.2	Contexte académique	6
0.3	But de l'étude	8
0.4	Structure du document	9
1	Etat de l'art	10
1.1	Problématique	12
1.2	Mécanique de la rupture : généralités	21
1.3	Endommagement des films minces	26
1.3.1	Fissuration	27
1.3.2	Délaminage	31
1.3.3	Influence d'une inter-couche	34
1.4	Approches numériques	36
1.4.1	Approche globale	36
1.4.2	Approche locale	37
	Conclusion	44
2	Campagne expérimentale	45
2.1	Matériaux et techniques expérimentales	46
2.1.1	Les différents systèmes film/substrat étudiés	46
2.1.2	Dispositifs expérimentaux	50
2.2	Résultats expérimentaux	52
2.2.1	Echantillons	52
2.2.2	Loi de comportement en traction uniaxiale	53
2.2.3	Etude de la multifissuration des monocouches de TiO _x	56
2.2.4	Endommagement des empilements fragiles/ductile	64
	Conclusion	66
3	Modélisation mécanique et simulation numérique	68
3.1	Présentation du modèle	70
3.1.1	Choix du modèle de zones cohésives MZC	70

3.1.2	Insertion dans le modèle	72
3.1.3	Maillage et conditions aux limites	73
3.2	Modélisation de la multi-fissuration	73
3.3	Étude paramétrique des facteurs influençant L_{sat}	78
3.3.1	Influence de T_{max}	78
3.3.2	Influence de ΔT_{max}	80
3.3.3	Influence de l'interface	81
3.3.4	Influence de la loi de comportement en régime plastique du substrat	82
3.4	Cellule représentative : CR	84
3.4.1	Présentation	85
3.4.2	Étude d'un cas	85
3.4.3	Influence de la taille de la cellule	89
3.4.4	Influence de l'épaisseur du film	94
3.4.5	Influence de l'écroissage	95
3.5	Comparaison des résultats du grand modèle avec ceux de la cellule représentative	99
3.6	Influence du substrat	100
	Conclusion	108

Conclusions et perspectives

Chapitre 0

Présentation Générale

Le but de l'étude menée dans cette thèse s'intéresse à la compréhension de l'endommagement des couches minces (mono-couches et multi-couches) déposées sur des substrats souples en matériau polymère, lors de sollicitations en traction de ces systèmes.

Ce travail s'inscrit dans le projet ANR CAPRICE (Coatings Adhesion PROperties measurement and Control) porté par G. Parry. Ce projet, mené sur la période 2015-2018, comprend deux axes :

- Une étude de la multi-fissuration des revêtements sur substrat souple en collaboration entre le SIMaP (porteur G. Parry) et Saint-Gobain Recherche à Aubervilliers (porteur D. Dalmas). La présente thèse fait partie de ce volet du projet.
- Une étude du cloquage de revêtements métalliques sur substrat souple en collaboration entre le SIMaP (porteur G. Parry) et l'institut PPRIME de Poitiers (porteur C. Coupeau). La thèse de Romain Boijoux, soutenue récemment, s'inscrit dans ce projet.

Enfin, les travaux de ce projet ANR ont été menés en parallèle avec une thèse MESR (thèse de Nadia Ben Dahmane) au SIMaP dirigée par G. Parry et portant sur le cloquage de films minces élasto-plastiques sur substrat rigide.

Dans ce chapitre introductif, l'intérêt industriel des matériaux qui font l'objet de cette étude sera présenté. Un résumé succinct des principaux travaux antérieurs qui ont motivé la mise en place de ce projet sera formulé. Pour finir, nous parlerons du but de cette thèse et de la structure de ce document.

Sommaire

0.1	Contexte industriel	3
------------	----------------------------	----------

0.2	Contexte académique	6
0.3	But de l'étude	8
0.4	Structure du document	9

0.1 Contexte industriel

La nécessité grandissante de diminuer la quantité des matériaux utilisés a contribué à promouvoir l'utilisation des revêtements. L'ajout d'une couche mince déposée sur un matériau permet de le protéger, ou de modifier drastiquement ses propriétés en surface (propriétés fonctionnelles ou de structure). Le dépôt de couches minces peut être pratiqué sur une large gamme des matériaux, des plus rigides (i.e. les substrats en silicium utilisés traditionnellement en micro-électronique) aux plus souples (polymères). L'utilisation des revêtements est donc devenue indispensable dans plusieurs domaines tels que la micro-électronique, le photovoltaïque et les couches de matériaux diélectriques ou bien semi-conducteurs.

Les matériaux qui sont au cœur de ce travail sont typiquement utilisés dans les vitrages basse émissivité. Une fenêtre constituée de double ou triple vitrage est caractérisée par 3 principaux coefficients. Une conductivité thermique K de chaleur entre l'extérieur et intérieur, un facteur solaire FS traduisant sa capacité à contrôler le passage du rayonnement solaire à travers les vitrages et un coefficient de transmission lumineuse Tl qui correspond à la fraction de lumière qui traverse le vitrage. Ces coefficients peuvent être optimisés en ajoutant une fine couche sur l'une des faces des vitrages qui constituent la fenêtre.

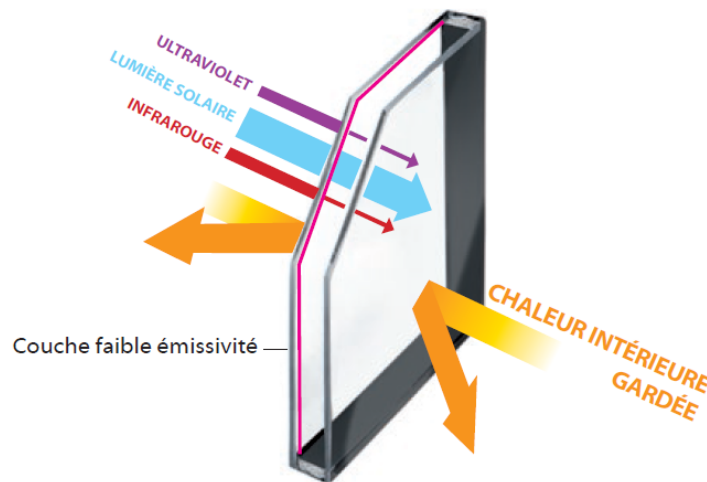


FIGURE 0.1 – Représentation schématique des vitrages à basse émissivité

Cette couche de basse émissivité permet de diminuer le flux de la chaleur transmis à travers les vitrages, en raison de sa capacité à inhiber les transferts des rayonnement de grande longueurs d'onde (i.e. infrarouge). Ainsi le coefficient K sera amélioré sans avoir besoin de rajouter des épaisseurs de vitres et le facteur solaire FS pourra être manipulé de manière de laisser passer ou à rejeter certaines parties du spectre lumineux solaire en

fonction de la longueur d'onde. La position de la couche mince sur les différentes faces de la fenêtre n'affecte pas le facteur K de ce dernier. Par contre le facteur solaire FS est influencé par la position de la couche. En effet, une couche basse émissivité absorbe une certaine quantité d'énergie solaire incidente. Cette énergie absorbée est transformée en chaleur, provoquant ainsi un échauffement du vitrage. Si la couche est placée sur la face interne du vitrage (la plus proche du milieu extérieur), la chaleur absorbée est réémise sous forme d'infrarouge vers l'extérieur. Mais dans le cas où la couche est plutôt placée sur la face externe du vitrage (la plus proche de l'intérieur de la pièce), la majorité de la chaleur absorbée par le vitrage est réémise vers l'intérieur. Cet exemple illustre les degrés de liberté qu'apportent les couches minces dans la conception de systèmes industriels fonctionnalisés.

Les couches utilisées pour ce type d'applications, incolores et invisibles, sont déposées par pulvérisation cathodique ou par pyrolyse sur du verre ou du plastique dans une chambre sous vide. Une couche basse émissivité réalisée par pulvérisation cathodique est en réalité souvent une multi-couche avec au moins une couche métallique.

Diverses techniques de dépôts de couches minces sont utilisées. Les conditions de dépôt influencent énormément les propriétés mécaniques, optiques ou même thermiques de ces revêtements. Historiquement, les premières couches minces ont été réalisées par voie humide grâce à une réaction chimique menant à la précipitation des précurseurs en solution sur un substrat. Deux procédés utilisant cette voie sont encore très pratiqués aujourd'hui : le procédé sol-gel et le procédé de spin-coating. D'autres techniques aujourd'hui plus répandues existent, il s'agit plutôt des procédés de dépôt par voie sèche qui évitent les déchets polluants : les Dépôts Chimiques en phase Vapeur (CVD) des Dépôts Physiques en phase Vapeur (PVD).

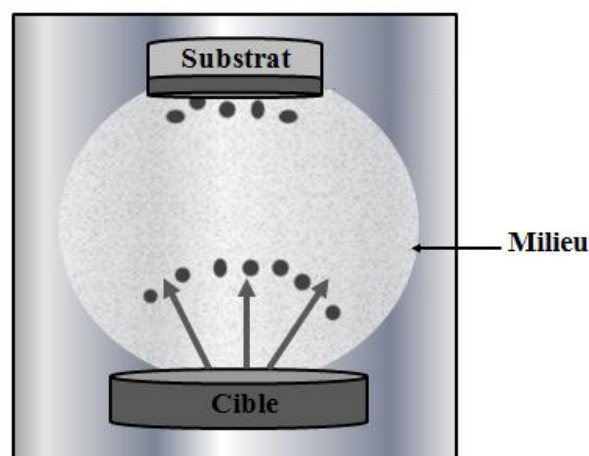


FIGURE 0.2 – Principaux éléments d'un procédé de revêtement en phase vapeur

Les couches étudiées dans cette thèse ont été déposées par PVD, plus précisément par pulvérisation cathodique magnétron. Le dépôt physique en phase vapeur « PVD » est un procédé de recouvrement de surface par des atomes ou des molécules d'un matériau à déposer, qui viennent adhérer sur le substrat en passant par un milieu passif (vide ou atmosphère inerte) ou actif (plasma, gaz réactif). La nature chimique, la morphologie et la structure cristallographique du film sont en effet fortement liées à l'interaction se produisant entre le matériau à déposer et le substrat, lors de l'élaboration du revêtement. Différents mécanismes physiques permettent de générer les espèces constituant le dépôt. Cette technique fait appel à trois composants essentiels (voir figure 0.2) :

- Une source du matériau à déposer appelée cible et qui peut être une pièce massive ou l'un des composants du futur revêtement, tel qu'un précurseur. C'est l'endroit où le matériau à déposer est concentré (par exemple un creuset, une plaque métallique, ou même une bouteille de gaz). La dispersion de ces éléments se produira sous forme d'atomes, d'ions, et plus généralement de vapeur.
- Une pièce à revêtir représentant le substrat, c'est ici qu'intervient le phénomène de condensation : la matière issue de la source, pure ou recombinaison, vient s'y concentrer jusqu'à la formation de la couche.
- Le dernier composant fondamental du dispositif est le milieu au sein duquel s'opère le transfert de matière, formant le siège des phénomènes physiques ou chimiques mis en jeu pour assurer le transfert de la matière entre la cible et le substrat. Cela peut être aussi le siège de réactions chimiques intervenants entre les atomes du matériau à déposer et un gaz dans le cas des dépôts réactifs.

Grove en 1852 [32] et Plücker en 1858 [64] ont découvert que sous très basse pression une décharge électrique entre deux électrodes séparées par un gaz conduit à la formation d'une couche mince sur l'anode constituée du même matériau que la cathode. Il s'agit de la pulvérisation cathodique mais ce n'est finalement qu'à partir des années 1950 que la pulvérisation cathodique commence son expansion, en particulier en 1972 avec l'invention de la cathode magnétron. La pulvérisation cathodique magnétron consiste à appliquer une tension électrique entre les deux électrodes. Lorsque cette tension est suffisante, il y a ionisation de l'atmosphère (composée en général d'argon) et création d'un plasma de décharge lumineuse. Les ions présents sont alors accélérés jusqu'à la cathode (la cible ou source du matériau à déposer). La mise en phase vapeur se fait alors suivant un processus purement mécanique, par transfert de l'énergie cinétique des ions aux atomes de la cible qui seront éjectés.

Cette technique a été considérablement améliorée par l'utilisation du procédé magnétron. Dans ce cas, on superpose au voisinage de la cible un champ magnétique au champ électrique. Le trajet des électrons au voisinage de la cathode est augmenté grâce au confinement opéré par le champ magnétique, ce qui permet un fort taux d'ionisation et donc

un rendement plus élevé de pulvérisation et de dépôt. Le plasma étant confiné près de la cible, la température du substrat sera de plus beaucoup moins élevée que dans le cas d'une pulvérisation cathodique classique. Originellement, cette technique était surtout utilisée pour la micro-électronique, mais grâce à l'apport du procédé magnétron, cette technique est maintenant aussi utilisée pour des applications mécaniques ou électriques.

Sous sollicitations environnementales, thermiques ou mécaniques ces revêtements peuvent s'endommager. Donc leurs principaux rôles conducteurs ou magnétiques ne peuvent plus être assurés. Il est donc primordial d'optimiser ces revêtements afin de minimiser leur endommagement. Cela a fait l'objet de plusieurs études expérimentales et théoriques qui ont généralement eu pour but de mieux comprendre les mécanismes et les causes des endommagements des films minces.

0.2 Contexte académique

Depuis les années 1980, l'endommagement des couches minces a fait l'objet de multiples études. Au cours de leur service, les couches minces peuvent subir des fortes contraintes qui peuvent provoquer trois principaux processus de relaxation de contraintes. Des fissurations apparaissent sur la surface des films minces déposés sur divers substrats (métallique ou polymère) (exemple sur la figure 0.3(a)) ([24, 68, 40]). Des mécanismes de rupture peuvent également se produire à l'interface film/substrat : le délaminage du revêtement de son support (exemple sur la figure 0.3(b)) ([3, 16, 48]). Sous l'effet des contraintes résiduelles issues du processus d'élaboration, le cloquage du film (phénomène combiné de flambage/délaminage) apparaît parfois dans les films minces, donnant des cloques de formes diverses (exemple de cloquage sous forme des bulles sur la figure 0.3(c)) ([56, 18, 15, 26]). Ce travail s'intéresse principalement aux deux premier types d'endommagement à savoir la *multi-fissuration* et le *délaminage*.

Au cours de leur service et sous l'effet d'un chargement monotone, le phénomène de multi-fissuration avec ou sans délaminage des films minces déposés sur des substrats en polymère se manifeste à la surface du revêtement ([50, 51, 54]).

En fonction de la nature du revêtement, deux différents types de fissures ont été identifiés. Des fissures longues, droites et qui se propagent sur la totalité de la longueur du film et des fissures courtes qui se propagent en zigzag sur une petite longueur de la couche.

Le premier type de fissuration est le plus observé. Il est généralement identifié dans les systèmes comportant une mono-couche fragile ou des multi-couches fragiles/ductiles

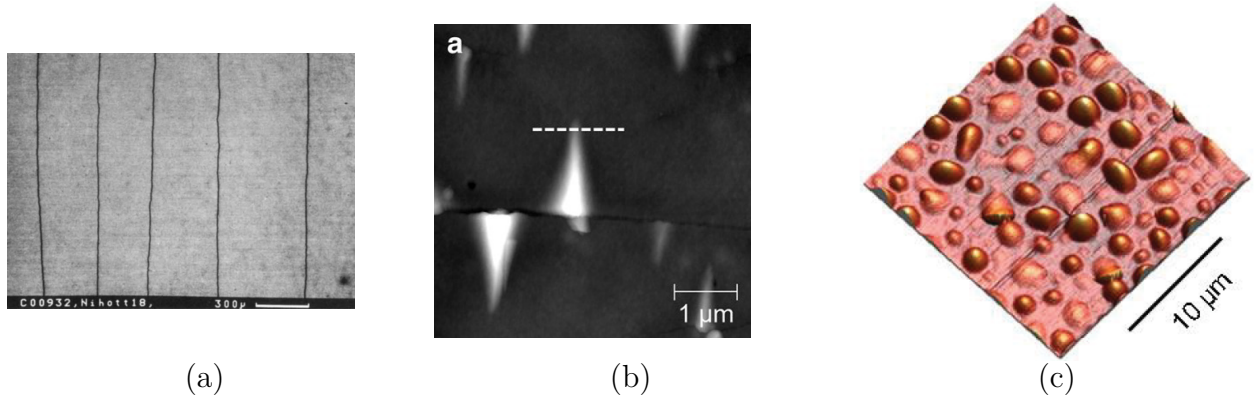


FIGURE 0.3 – différentes morphologie dues à l'endommagement sur des films minces (a) multi-fissuration du film [59] (b) délaminage de l'interface film/substrat [16] (c) cloquage du film, il s'agit dans ce cas des bulles observées sur la surface d'un film [20].

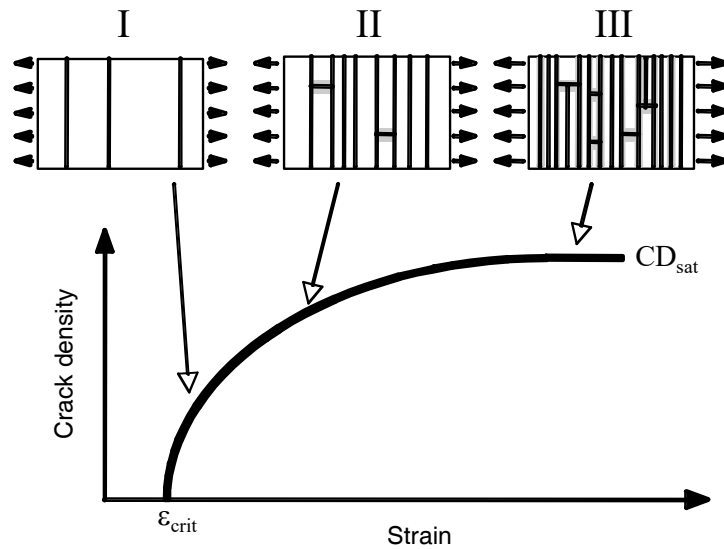


FIGURE 0.4 – Les trois régime de multi-fissuration en traction uniaxiale : à partir d'une déformation critique (ϵ_{crit}), l'échantillon commence à se fissurer (régime I), à partir d'un certain niveau de déformation la fissuration devient plus régulière avec un flambage/délaminage dû à la compression dans la direction transverse par effet Poisson (régime II) et à la fin la densité de fissures devient constante (CD_{sat}) il n'y a pas apparition des nouvelles fissures et la saturation est atteinte (régime III) [50].

avec une épaisseur de couche ductile relativement faible devant celle de la couche fragile. Dans le cas d'un substrat en polymère, l'existence de trois régimes de multi-fissuration a été démontré ([50, 54]) (voir figure 0.4). Au cours du premier régime, une apparition des fissures aléatoire dans le revêtement est observée. Il est communément admis que cette apparition est causée par les défauts présents au sein du film. Le deuxième régime de fissuration est périodique, dans le sens où les nouvelles fissures apparaissent à peu près au milieu de deux fissures voisines pré-existantes. Un dernier régime est également identifié, caractérisé par la saturation du processus de fissuration du film mince.

Un élément central de ce processus de fragmentation est la distance caractéristique

entre les fissures, identifiée à la fin. Plusieurs études se sont intéressées à l'identification expérimentale de cette distance et des paramètres pouvant l'influencer ([59, 50, 16, 54]). Des modèles théoriques ont été développés dans le but d'encadrer la distance inter fissure à saturation ([77, 35, 1]). Il s'avère que ces modèles présentent un décalage entre leurs prédictions et les résultats expérimentaux, en particulier dans le cas de substrats au comportement élasto-plastique comportant un écouissage notable.

Il sera donc intéressant d'expliquer leur limitation et de proposer une nouvelle approche permettant de mieux prédire la distance inter fissures à saturation. Ces trois régimes, les analyses de la distance inter fissure et les modèles seront détaillés et analysés au cours de ce travail.

0.3 But de l'étude

On propose une modélisation mécanique et des calculs numériques par la méthode des éléments finis pour comprendre le phénomène de fissuration d'un film mince déposé sur un substrat en polymère. Pour cela deux modèles 2D utilisant des zones cohésives (MZC) pour représenter l'initiation et la propagation de fissures dans le film, mais aussi à l'interface film/substrat, sont développés.

Le premier modèle qu'on l'appelle modèle de multi-fissuration permet d'étudier le processus de la multi-fissuration d'un film mince fragile déposé sur un substrat en polymère. Son but principal est de comprendre l'initiation, la propagation et la saturation des fissures au sein du film.

Le deuxième modèle consiste en une cellule représentative (CR) i.e une fissure isolée dans un film mince fragile déposé sur un substrat en polymère, avec des conditions aux limites périodiques permettant de représenter en réalité un film fissuré avec une périodicité spatiale donnée. Cette CR permet de comprendre finement la répartition des contraintes dans le film et l'influence du développement de la plasticité dans le substrat. Son principal objectif est de comprendre le mécanisme de la saturation de la multi-fissuration.

L'influence de plusieurs paramètres, à savoir l'épaisseur du film, la longueur de la CR, les propriétés de l'interface film/substrat et le comportement plastique du substrat sera étudiée.

Toute cette étude est faite en parallèle de caractérisations expérimentale des substrats en polymères utilisés dans ce travail et d'observations in-situ de la multi-fissuration de mono couches d'oxyde et des multi-couches d'oxyde et d'argent sur deux types de substrats : l'ETFE et le PET.

0.4 Structure du document

Ce document présente principalement 3 chapitres. Dans le chapitre 1, nous précisons le cadre de notre étude. Puis nous y rappelons les notions clés de la mécanique de rupture, l'état de l'art des travaux menés dans le périmètre de notre travail et nous y décrivons les phénomènes liés à l'endommagement des couches minces. Ensuite, les approches de modélisation mécanique et de calcul numérique permettant de décrire les phénomènes de rupture et d'endommagement sont présentées. A la fin de ce chapitre, nous décrivons l'approche de modélisation retenue.

Dans le chapitre 2, nous décrivons les essais expérimentaux qui ont été réalisés au cours de ce travail. Nous y présentons les résultats de traction uni-axiale des substrats nus. Puis les résultats d'identification par analyse d'images du processus de multi-fissuration des mono couches d'oxyde et des multi couches oxyde/argent.

Le chapitre 3 est consacré à la description des modèles mécaniques et des calculs numériques utilisant la méthode des zones cohésives (MZC), développés pour décrire les phénomènes de fissuration traversante de la couche et le délaminage à l'interface film/substrat. Une étude est présentée, pour évaluer l'influence des différents paramètres (liés à la MZC, aux propriétés du film et à la plasticité du substrat) sur le mécanisme de multi-fissuration. Nous montrons finalement comment on peut identifier des valeurs de la traction à rupture T_{max} pour le film à partir de résultats expérimentaux en utilisant notre modèle.

Chapitre 1

Etat de l'art

L'étude bibliographique menée dans ce chapitre propose dans une première partie une présentation du cadre générale de notre travail. Un rappel des généralités de la mécanique linéaire élastique de la rupture et des principaux critères permettant de prédire la propagation d'une fissure et sa trajectoire va faire l'objet d'une deuxième partie. Ensuite, la troisième partie comporte les travaux déjà effectués sur des empilements en couches minces similaires à ceux qui seront utilisés dans cette thèse, à savoir des couches en oxyde de titane TiO_x déposées sur un substrat en poly-téréphtalate d'éthylène : PET. Dans cette partie, on évoquera les différents motifs, les causes de rupture observées dans la littérature et l'effet de la présence d'une couche ductile dans le revêtement . La quatrième partie de cette étude bibliographique présente les approches numériques les plus utilisées pour étudier le comportement des films minces, surtout celle que nous retenons par la suite.

Sommaire

1.1	Problématique	12
1.2	Mécanique de la rupture : généralités	21
1.3	Endommagement des films minces	26
1.3.1	Fissuration	27
1.3.2	Délaminage	31
1.3.3	Influence d'une inter-couche	34

1.4	Approches numériques	36
1.4.1	Approche globale	36
1.4.2	Approche locale	37
	Conclusion	44

1.1 Problématique

Certains travaux théoriques ont abordé la modélisation de la rupture des films minces sur substrat souple en considérant un comportement purement élastique linéaire du système, alors que d'autres ont pris en compte le développement de la plasticité dans le substrat ou dans le film. Cependant leurs prédictions présentent souvent un décalage avec les résultats expérimentaux.

Modèle élastique

Dans le cadre d'hypothèses de déformations purement élastiques du film et du substrat, le modèle analytique développée par Xia et Hutchinson [77], présenté sur la Figure. 1.1, est souvent cité.

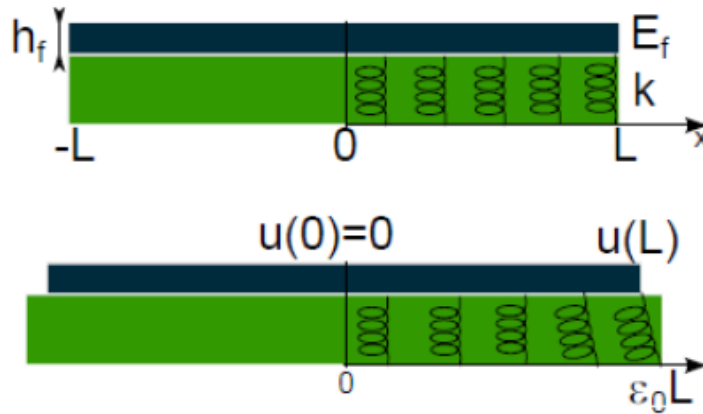


FIGURE 1.1 – Représentation schématique du modèle proposé par Xia et Hutchinson (2000) [77] pour prédire la distance inter-fissures dans un film mince.

Ce modèle 2D très simplifié, présentant un fragment de film de taille $2L$, évalue la redistribution des contraintes dans un film d'épaisseur e_f en supposant que le substrat exerce une force de rappel linéaire de coefficient k sur le film. Les conditions aux limites de ce modèle représenté sur la Figure 1.1 sont exprimées comme suit :

$$CL = \begin{cases} u(0) = 0 \\ \frac{du}{dx}(x = \pm L) = 0 \end{cases} \quad (1.1)$$

Où u est le champ de déplacement du film et L est la demi-longueur de la cellule. La contrainte de cisaillement induite par le désaccord entre la déformation du film et

celle imposée au substrat peut être exprimée comme suit :

$$\tau(x) = ku - \sigma_s(x) = k(u - \epsilon x) \quad (1.2)$$

Ce qui implique l'équation d'équilibre mécanique suivante pour le film :

$$\bar{E}_f h_f \frac{d^2 u}{dx^2} = k(u - \epsilon x) \quad (1.3)$$

En prenant en compte les conditions aux limites données par l'équation (1.1), la solution de l'équation (1.3) est donnée par :

$$\begin{cases} u(x) = \epsilon(x - l \frac{\sinh(x/l)}{\cosh(L/l)}) \\ \sigma(x) = \bar{E}_f \epsilon (1 - \frac{\cosh(x/l)}{\cosh(L/l)}) \end{cases} \quad (1.4)$$

Où $l = \sqrt{\bar{E}_f h_f / k}$ est une distance caractéristique de relaxation de contrainte autour de la fissure. l ne dépend pas du chargement imposé mais uniquement des propriétés élastiques et géométriques du film et du substrat.

Les auteurs ont calculé l pour différents couples des matériaux pris pour le film et le substrat. Les deux matériaux sont supposés élastiques linéaires. L'expression de l prend alors la forme :

$$l \simeq \frac{\pi}{2} g(\alpha, \beta) h_f \quad (1.5)$$

Où α et β sont les paramètres Dundurs [22] :

$$\alpha = \frac{\bar{E}_f - \bar{E}_s}{\bar{E}_f + \bar{E}_s} \quad \beta = \frac{\mu_f(1 - 2\nu_s) - \mu_s(1 - 2\nu_f)}{2\mu_f(1 - \nu_s) + 2\mu_s(1 - \nu_f)} \quad (1.6)$$

Avec :

- * $\bar{E} = E/(1 - \nu^2)$ le module d'Young en déformation plane
- * ν le coefficient de Poisson
- * μ le module de cisaillement du matériau correspondant (film ou substrat)

g est représentée sur la figure 1.2. Cette figure contient également l'évolution l/h pour différentes valeurs de α (β étant fixé à 0). On voit que pour un substrat très rigide par rapport au film (i.e : $\alpha \approx -1$), l est de l'ordre de h . Par contre, pour un substrat très souple par rapport au film ($\alpha > 1$) l peut être supérieur à $10xh$.

L'évolution de la redistribution de la contrainte dans le film, donnée par l'équation (1.4) pour différents rapports L/l , est montrée sur la figure 1.3. On remarque que pour des

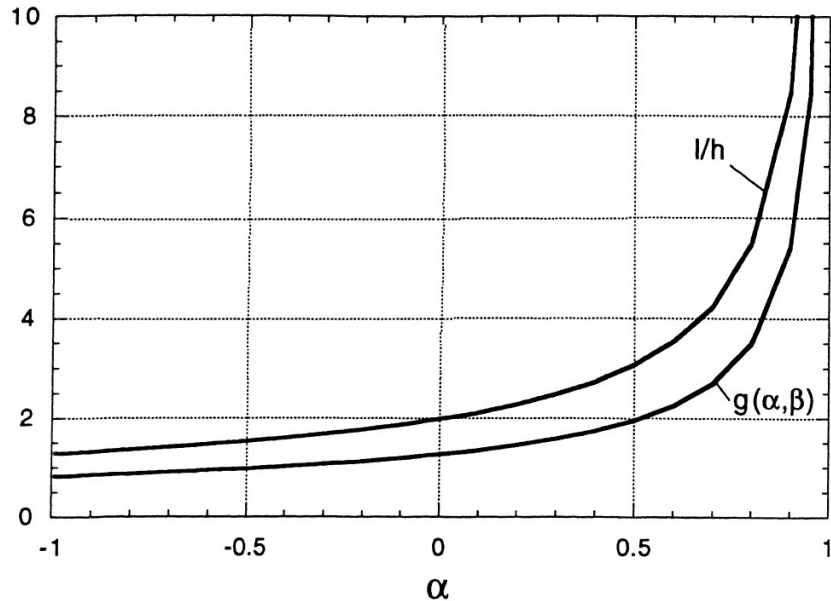


FIGURE 1.2 – Fissuration à l'état stable d'un film mince. La fonction $g(\alpha, \beta)$ et la longueur de décharge élastique dans le substrat l normalisée par rapport à l'épaisseur du film h_f donnés pour $\beta = 0$ [77].

grands rapports de L/l , les fissures sont séparées par un plateau de contrainte constant, donc il n'y a pas d'interaction entre les fissures. La contrainte dans le film est constante sur toute la longueur du film et on imagine que l'apparition de nouvelles fissures peut se faire n'importe où sur ce plateau (apparition des nouvelles fissures plutôt causée par la présence de défauts). Pour des longueurs du modèle plus faibles et donc un rapport moins élevé, les fissures interagissent et le maximum de contrainte est localisé au centre de la cellule, qui sera alors un lieu privilégié pour l'apparition de nouvelles fissures.

Beuth et al [7] ont considéré le même problème, mais avec un substrat élasto-plastique. Ils ont montré que l/h augmente en raison du comportement plastique du substrat.

La figure 1.4 montre l'augmentation de l/h pour un α donné à mesure que la contrainte seuil d'écoulement plastique est abaissée. Les résultats de cette figure sont obtenus avec un comportement plastique quasi parfait du substrat.

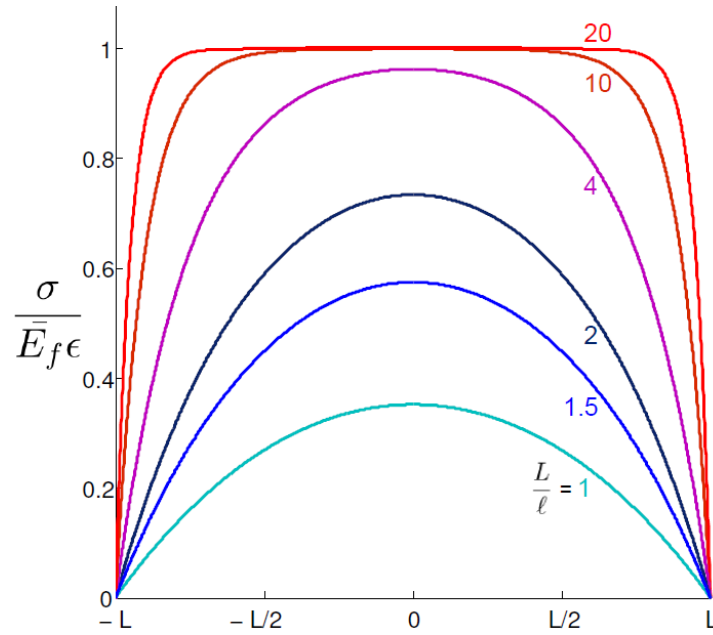


FIGURE 1.3 – Evolution de la contrainte normalisée entre deux fissures distantes de $2L$ pour différents rapports L/l (l est la distance de décharge élastique dans le substrat introduite par Xia et Hutchinson (2000) [77]) [54].

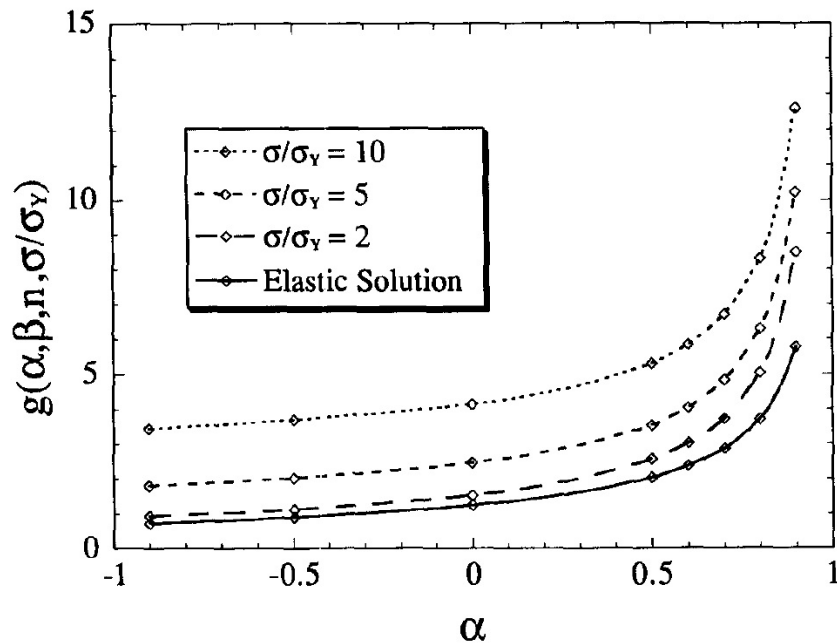


FIGURE 1.4 – Influence de la limite d'élasticité du substrat σ_y sur la longueur de relaxation normalisée $\frac{2}{\pi} \frac{l}{h} = g(\alpha, \beta, \frac{\sigma}{\sigma_y})$ en fonction de α pour $\beta = \alpha/4$ [7]. On est ici en plasticité parfaite.

Modèle de relaxation de contrainte

Certaines études [35, 28, 54] ont évoqué le phénomène du développement de la plasticité et son influence sur le comportement mécanique du système film/substrat. Ces modèles ont permis de décrire la saturation de fissuration d'un film mince et les interac-

tions entre les fissures.

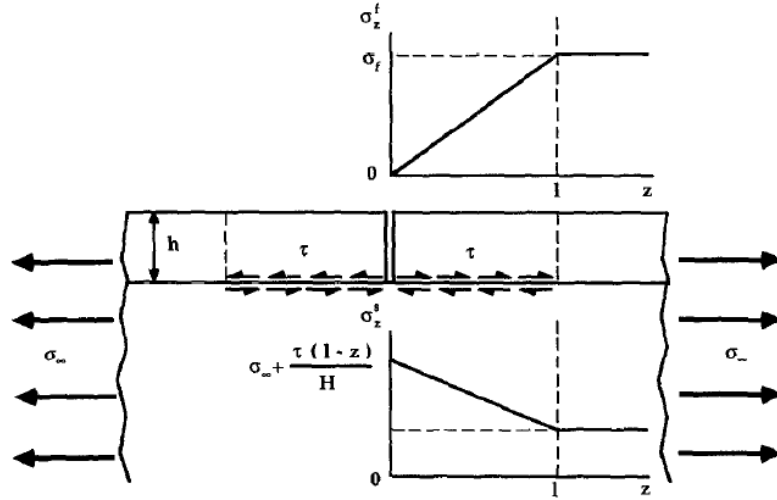


FIGURE 1.5 – Représentation schématique du formalisme de Shear Lag utilisé par Hu et Evans [35] et par Argrawal et Raj [1] pour modéliser la propagation d'une fissure dans le film avec une plasticité à l'interface[35].

Une modélisation théorique de la fissuration pour un film mince fragile d'épaisseur h déposé sur un substrat ductile semi-infini été élaborée au cours des travaux de Hu et Evans (1989) [35]. En utilisant le formalisme du Shear Lag, les auteurs ont démontré que la fissuration de ce type de revêtement est fortement liée aux propriétés du substrat et de l'interface, en plus de l'influence connue des propriétés mécaniques du film et son épaisseur.

En effet, si une fissure apparaît dans le film, elle provoque la formation de deux bords libres. Le film reste sous tension par un cisaillement τ transmis à l'interface et la contrainte dans le film peut s'écrire :

$$\sigma(x) = \begin{cases} \frac{\tau(x)}{h} ; & x < \lambda \\ \sigma_f ; & x > \lambda \end{cases} \quad (1.7)$$

Avec λ la distance à partir de laquelle le film retrouve un état de compression pure sans cisaillement, σ_f la contrainte de rupture est cisaillement interfacial (Figure 1.5).

Pour Hu et Evans [35], le cisaillement à l'interface reste constant au cours de chargement. L'équilibre des forces entre τ et σ_f à $x = \lambda$ donne :

$$\tau = \frac{h\sigma_f}{\lambda} \quad (1.8)$$

Hu et Evans ont estimé que $\tau = \sigma_y/\sqrt{3}$ où σ_y est la limite élastique du substrat. Ils ont proposé un espacement des fissures à saturation λ_{sat} compris entre λ_{min} et λ_{max} avec

$\lambda_{max} = 2\lambda_{min}$. Par suite, pour un substrat ductile :

$$\sqrt{3}h \frac{\sigma_f}{\sigma_y} < \lambda_{sat} < 2\sqrt{3}h \frac{\sigma_f}{\sigma_y} \quad (1.9)$$

D'après ce modèle, les auteurs ont remarqué que les niveaux des contraintes les plus élevées dans le film sont obtenues pour des substrats moins ductiles et des interfaces plus résistantes. Par suite, les substrats ayant une faible limite élastique provoquent une densité de fissures plus importante dans le film et limitent également la décohésion en bloquant les fissures du film à l'interface film/substrat.

En se basant aussi sur le formalisme de Shear Lag et les mêmes conditions que celles utilisées par Hu et Evans, Agrawal et Raj [1] ont aussi proposé un modèle théorique de prédiction de la distance inter-fissures. Seule différence, ils ont proposé un cisaillement interfacial non constant mais plutôt de forme sinusoïdale :

$$\tau = \tau \sin \frac{2\pi x}{\lambda} ; 0 \leq x \leq \lambda \quad (1.10)$$

Les équations (1.8) et (1.10) donnent :

$$\pi\sqrt{3}h \frac{\sigma_f}{\sigma_y} < \lambda_{sat} < 2\pi\sqrt{3}h \frac{\sigma_f}{\sigma_y} \quad (1.11)$$

Limitation des modèles de rupture

Le modèle purement élastique de Xia et Hutchinson (2000) et les modèles de Hu et Evans (1989) et Agrawal et Raj (1989) se basant sur le formalisme de Shear-Lag sont les modèles théoriques les plus utilisés dans la littérature pour prédire l'apparition et la saturation des fissures dans les films minces. Par contre ces modèles ont des limitations et sont souvent insuffisants pour décrire les résultats expérimentaux.

A partir du modèle de Xia et Hutchinson combiné au calcul du taux de restitution d'énergie élastique proposé par Beuth (1992) [7], J. Marthelot (2014) a fait une comparaison entre ses résultats expérimentaux représentés par la figure 1.16 et l'évolution de la distance inter-fissures prédites par le modèle pour deux configurations différentes.

La première consiste à supposer une propagation simultanée de toutes les fissures dans le film et la distance inter-fissures peut alors être exprimée comme suit :

$$\frac{H}{2l} = \tanh^{-1}\left(\frac{2G_c}{\bar{E}_f \epsilon^2 l}\right) \quad (1.12)$$

Cette première hypothèse est irréaliste. Les observations expérimentales ont toujours

montré une apparition successive des fissures.

Donc une deuxième configuration plus réaliste a été proposé : une propagation séquentielle des fissures. Le taux de restitution d'énergie dans ce cas est exprimé comme suit :

$$G = \frac{\bar{E}_f \epsilon^2 l}{2} (2 \tanh(\frac{H}{2l}) - \tanh(\frac{H}{l})) \quad (1.13)$$

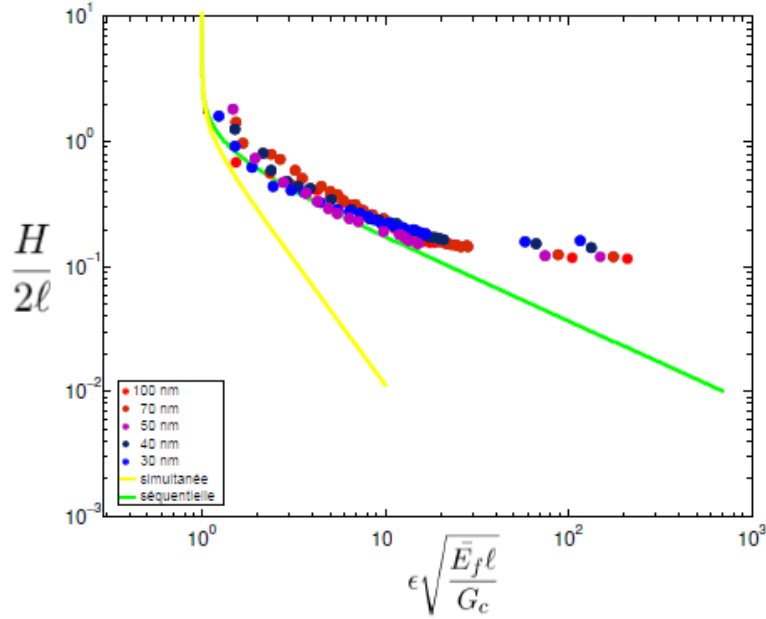


FIGURE 1.6 – Comparaison entre les résultats expérimentaux de [54] et la prédiction donnée par [77]. En trait plein vert, la distance minimale des fragments dans le cas d'une formation séquentielle. Nous observons que la description est défailante à grande déformation car elle ne considère pas la localisation dans le substrat.

Cette comparaison présentée sur la figure 1.6 montre que la prédiction fournie par le modèle théorique suit bien les résultats expérimentaux dans les deux premiers régimes de multi-fissuration (détaillés dans la section 1.3) surtout dans l'hypothèse de propagation séquentielle des fissures.

Par contre, pour des niveaux de déformation plus élevés un décalage apparaît et montre bien que le modèle élastique n'est pas réaliste pour ce type de système, plus précisément dans le cas d'un substrat souple élasto-plastique.

De plus, dans une description élastique du phénomène de fissuration comme dans les travaux de ([59, 58, 72, 77]) toutes les fissures sont équivalentes. Ainsi leurs ouvertures sont toutes identiques et uniquement dépendantes du chargement quelque soit leur histoires de chargement (i.e. l'instant où elles ont été initié). Or, au cours de ces observations expérimentales, J. Marthelot [54] a montré que l'ouverture des fissures augmente assez linéairement avec la déformation globale appliquée (Figure 1.7).

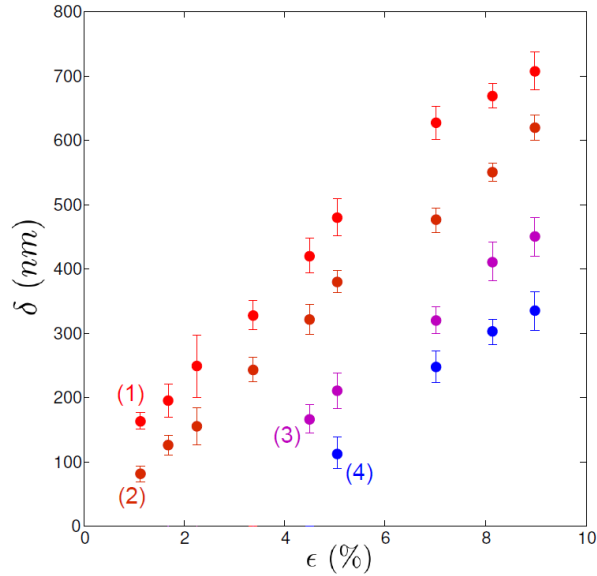


FIGURE 1.7 – Ouvertures δ de quatre fissures apparues dans une monocouche d'oxyde de zinc ZnO de 100 nm pour des déformations différentes en fonction de la déformation macroscopique imposée au substrat [54].

Il a effectué des mesures sous AFM in-situ sur des échantillons de mono-couches d'oxyde de zinc ZnO d'épaisseur 100nm déposée sur un substrat en polymère et il a constaté que les fissures apparues à faible déformation sont plus ouvertes que les fissures apparues plus tard, si bien que le système semble garder un effet de mémoire au cours de la fragmentation. Ces résultats mettent en question les prédictions données par les modèles théoriques proposés dans la littérature et leurs hypothèses de base.

Pour comprendre l'origine de ce décalage, une attaque chimique a été effectuée sur la surface des échantillons déjà testés en traction. Cette attaque permet d'éliminer la couche d'oxyde et ensuite observer sous AFM la surface du substrat (Figure 1.8). Dans cette figure, des traces de déformation irréversibles dans le substrat en dessous des fissures, et donc la signature d'une déformation plastique intense, sont observées.

Bien que le formalisme de Shear-Lag utilisé dans le modèle de Hu et Evans [35] et celui Agrawal et Raj [1] prend en compte une certaine forme de plasticité dans le système, ces modèles présentent également quelques défaillances.

Comme décrit ci-dessus le modèle de Hu et Evans suppose que la propagation de la contrainte de cisaillement se limite seulement au niveau de l'interface. Par contre, plusieurs études ont montré que cette contrainte se propage aussi dans l'épaisseur du substrat ([30, 69, 54]). Dans [30], une propagation sous forme de bandes de cisaillement a été observée sur des composites composés de couches minces alternées de polycarbonate (PC)

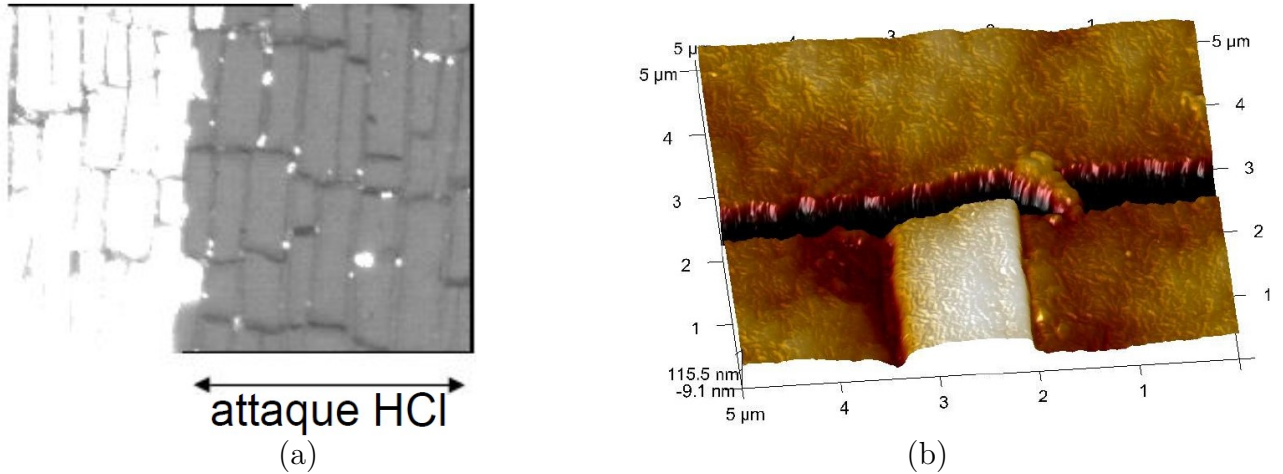


FIGURE 1.8 – (a) Une attaque chimique de la couche d'oxyde déjà fissurée (b) Observation sous AFM de la surface du substrat : une forte déformation plastique localisée dans le substrat en dessus de la fissure du film, cette figure est issue du travaux de thèse de J. Marthelot [54].

et d'un copolymère styrène-acrylonitrile (SAN) (Figure 1.9(a)). Suite à une modélisation par la méthode des éléments finis du même composite, ces bandes de plasticité ont été également observées par [69] sur la figure 1.9(b).

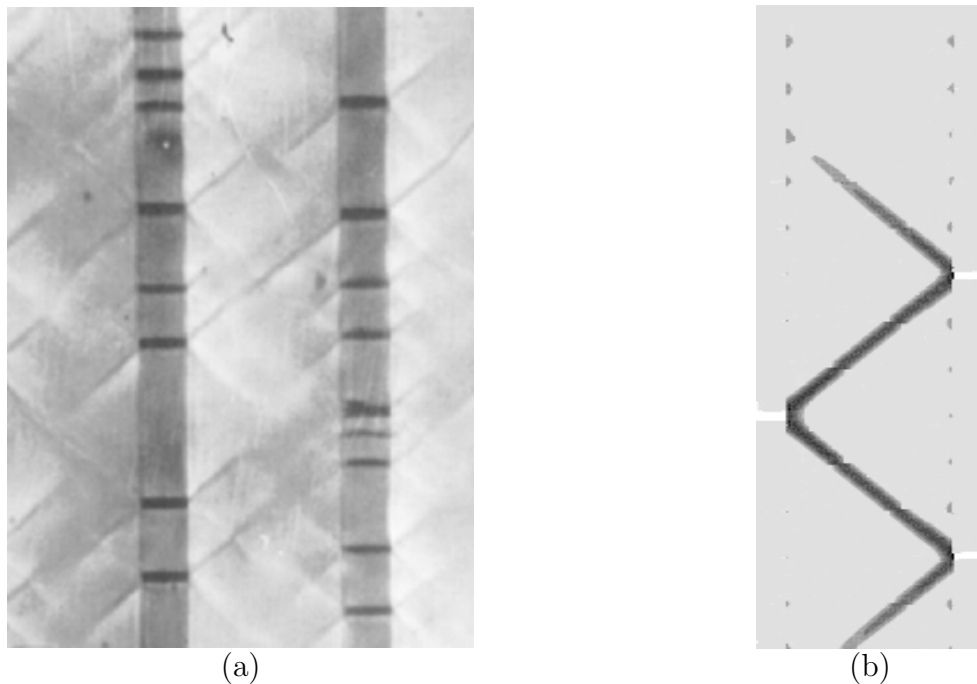


FIGURE 1.9 – Observation des bandes de plasticité sur des composites composés de couches minces alternées de polycarbonate (PC) et d'un copolymère styrène-acrylonitrile (SAN) (a) après des essais de micro-traction [30] (b) une modélisation par la méthode des éléments finis proposés par [69].

Plusieurs auteurs ont observé expérimentalement un écart entre la distance inter-

fissures à saturation et les prédictions des modèles analytiques, et l'ont expliqué par la présence d'un délaminage à l'interface entre le revêtement et le substrat à la pointe de la fissure transversale ([79, 45, 47]). Le délaminage du film provient d'un effet de cisaillement dans l'épaisseur non pas d'un effet interfacial contrairement au formalisme de Shear lag qui suppose que le cisaillement se trouve uniquement à l'interface entre le film et le substrat. Dans [48], un petit délaminage est ajouté à la pointe des fissures dans leur modèle numérique. Cette longueur de délaminage est estimée de l'ordre de l'épaisseur de revêtement comme dans [49]. Les résultats de prédiction des calculs se rapprochent des résultats expérimentaux de Kim et al [42].

1.2 Mécanique de la rupture : généralités

D'une manière générale, l'objectif de la mécanique de la rupture est de prédire si une fissure préexistante va croître ou non, lorsqu'elle est soumise à un chargement mécanique (voir thermique, magnéto-élastique, etc). D'une part, elle permet de décrire les champs mécaniques au voisinage de la pointe d'une fissure et les énergies dissipées au cours du processus d'initiation et de propagation de cette fissure. D'autre part, elle traite l'endommagement provoqué par cette fissure.

La rupture peut être définie comme la création d'une discontinuité surfacique dans un matériau. La rupture peut être fragile (intra ou inter-cristalline) et brutale, ou ductile et donc accompagné de déformations plastique globales (striction) ou locales. Dans ce chapitre seuls les principaux critères de rupture fragile seront détaillés.

Les examens des faciès de rupture, montrent que toutes les fissurations peuvent être ramenées à l'un des trois modes élémentaires de fissuration ou à leur superposition.

Le mode I est le mode d'ouverture de fissure où les lèvres de la fissure se déplacent perpendiculairement à la direction de propagation. *Le mode II* est un mode de cisaillement dans le plan, où le déplacement des lèvres de la fissure se produit parallèlement à la direction de propagation. Le dernier *mode III* est le mode de cisaillement hors plan, où les lèvres de la fissure se déplacent parallèlement au front de la fissure.

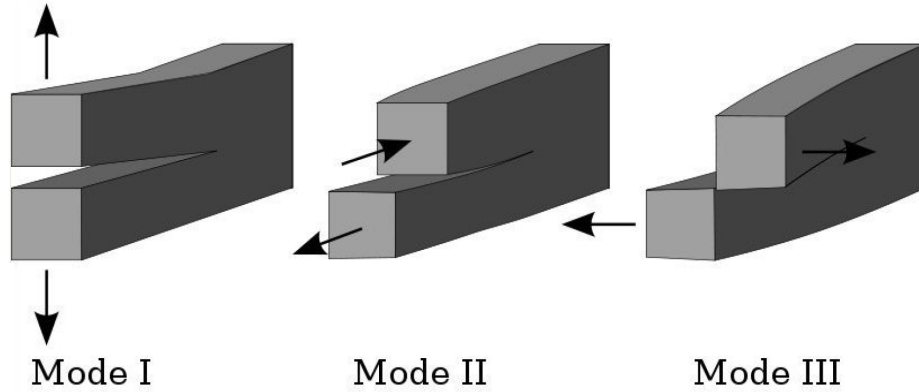


FIGURE 1.10 – Trois différents modes de rupture

Avant le développement de la mécanique de rupture, les théories classiques de la ruine (Rankine (1860), St-Venant (1860), Coulomb (1885), Von-Mises (1910)) étaient basées sur l'entrée d'un élément de volume quelconque dans son domaine plastique. Mais ces théories ne tiennent pas compte de l'effet des entailles qui génèrent des contraintes locales élevées permettant souvent d'atteindre la limite élastique d'un matériau localement, ce qui provoque un écoulement plastique localisé et une diminution de la concentration de contrainte.

Le travail fondamental de la mécanique de la rupture est dû à Griffith (1920) [31]. A partir des travaux de G. E. Inglis [37], Griffith a étudié une structure entaillée soumise à un chargement l'accommodait (i) soit en emmagasinant une énergie de déformation supplémentaire, (ii) soit en accroissant la longueur de la fissure et en créant des surfaces libres. Ceci permet de trouver l'énergie potentielle restituée par le système lors de l'accroissement de la fissure (l'énergie potentielle E_p est la différence entre l'énergie de déformation élastique emmagasinée U et le travail des forces extérieures W). On a ainsi :

$$E_p = U - W \quad (1.14)$$

Ce qui revient à considérer un incrément de surface libre da et écrire que la variation de E_p accompagnant cette progression de fissure correspond à l'énergie nécessaire à la création de la surface libre correspondante (énergie de surface) Γ :

$$-\frac{dE_p}{da} = \frac{d\Gamma}{da} \quad (1.15)$$

Griffith a introduit le taux de restitution d'énergie G correspondant au taux de variation d'énergie potentielle stockée par rapport à l'avancée de la fissure. Ce taux est

donc relié à la variation de l'énergie potentiel (E_p) tel que :

$$G = -\frac{dE_p}{da} \quad (1.16)$$

Cette définition met en évidence que le taux de restitution d'énergie a la dimension d'une énergie de surface. La propagation de fissure est possible si l'énergie restituée ainsi définie atteint un taux critique G_c tel que : $G \geq G_c$.

Pour le matériau fragile et pour les fissures se propageant en mode I, cette limite critique est liée à l'énergie de surface Γ tel que :

$$G_c = 2\Gamma \quad (1.17)$$

Dans le cas général, la dissipation s'accompagne de plasticité du matériau ou d'une zone micro-fissurée en pointe de fissure. Ces dissipations sont volumiques mais comme la région concernée (point de fissure) est très petite, elles sont supposées constantes donc elles représentent une caractéristique du matériau. Ce critère suppose donc que la fissure se propage dès qu'elle relâche suffisamment d'énergie pour séparer les lèvres de la fissure. D'autres hypothèses ont été faites en se basant sur cette l'énergie relâchée.

Irwin [38, 39] a recherché des solutions en élasticité plane du champ de déplacement d'une structure comportant une entaille. Les solutions des champs de déformation au voisinage d'une fissure ont été proposées.

Williams(1957) [76] a proposé des solutions asymptotiques des champs de contraintes σ_{ij} au voisinage d'une fissure en proposant un nouveau critère portant sur une quantité appelée facteur d'intensité de contraintes, défini quelques lignes plus bas. En se plaçant dans les hypothèses de la mécanique linéaire élastique de la rupture, et quel que soit le chargement et la géométrie du corps, les contraintes sont exprimées selon les modes de chargement de la fissure comme suit :

$$\sigma_{ij}(r, \theta) = \frac{K_\alpha}{\sqrt{2\pi r}} f_{ij}(\theta) \quad (1.18)$$

Où $\alpha = I, II, III$ correspondant au modes d'ouverture I, II et III . Cette équation décrit un état de contrainte à un point proche de la fissure, de coordonnées polaires $M(r, \theta)$.

Le terme K_α représente les facteurs d'intensité de contraintes (K_I, K_{II}, K_{III} selon le mode d'ouverture). Il dépend uniquement de l'état de contrainte dans un solide et de la géométrie de la fissure. En appliquant les conditions de surface libre aux lèvres de la fissure, on obtient quels que soient la géométrie du corps ou de chargement

imposé, les expressions asymptotiques des composantes du tenseur des contraintes :

$$\begin{cases} \sigma_{11} = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}} \cos \frac{\theta}{2} (1 - \sin \frac{\theta}{2} \sin \frac{3\theta}{2}) - \frac{K_{II}}{\sqrt{2\pi r}} \sin \frac{\theta}{2} (2 + \cos \frac{\theta}{2} \cos \frac{\theta}{2}) \\ \sigma_{22} = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}} \cos \frac{\theta}{2} (1 + \sin \frac{\theta}{2} \sin \frac{3\theta}{2}) - \frac{K_{II}}{\sqrt{2\pi r}} (\sin \frac{\theta}{2} \cos \frac{\theta}{2} \cos \frac{\theta}{2}) \\ \sigma_{33} = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}} (\sin \frac{\theta}{2} \cos \frac{\theta}{2} \cos \frac{3\theta}{2}) - \frac{K_{II}}{\sqrt{2\pi r}} \cos \frac{\theta}{2} (1 - \sin \frac{\theta}{2} \sin \frac{3\theta}{2}) \end{cases} \quad (1.19)$$

Il faut insister sur le fait que ces équations ne sont valables que dans le cadre des hypothèses suivantes : élasticité linéaire, milieu plan, chargement quasi-statique et pour le cas de contraintes planes ou des déformations planes.

Les champs de déformation et de déplacement sont obtenus par suite en utilisant la loi de comportement élastique linéaire et au moyen des équations de la cinématique et par intégration.

Ces expressions issues de la théorie élastique linéaire montrent que les champs de contraintes et de déformations divergent à la pointe de fissure, c'est-à-dire pour $r \rightarrow 0$. Mais cette divergence est doublement problématique. Les contraintes ne divergent pas physiquement dans les matériaux réels et il existe une zone d'endommagement en tête de fissure de petite taille. La théorie élastique linéaire n'est donc plus valide à la pointe de fissure.

Le critère de Griffith et celui de Irwin sont équivalents dans un solide élastique, linéaire, homogène et isotrope. En effet, le taux de restitution d'énergie est relié aux facteurs d'intensité de contraintes :

$$G = \frac{K_I^2 + K_{II}^2}{E'} \quad (1.20)$$

Où $E' = E$ dans le cas des contraintes planes et $E' = E/(1 - \nu^2)$ pour le cas de la déformation plane.

Dans le cas d'un milieu bidimensionnel infini sollicité en mode I par une contrainte σ , Irwin [39] a introduit le facteur critique d'intensité de contraintes K_{IC} .

Ce facteur représente une caractéristique intrinsèque du matériau : c'est sa *ténacité*. Une valeur critique de ce coefficient conduit à la rupture brutale du matériau. Il aura une propagation de fissure dans un matériau si la valeur du facteur d'intensité de contraintes en mode I atteint la valeur de la ténacité du matériau c'est à dire : $K_I \geq K_{IC}$.

Par exemple, dans le cas d'une plaque infinie comportant une fissure de longueur $2a$ dans une direction normale au plan de fissure pour une contrainte de traction uniforme σ , le

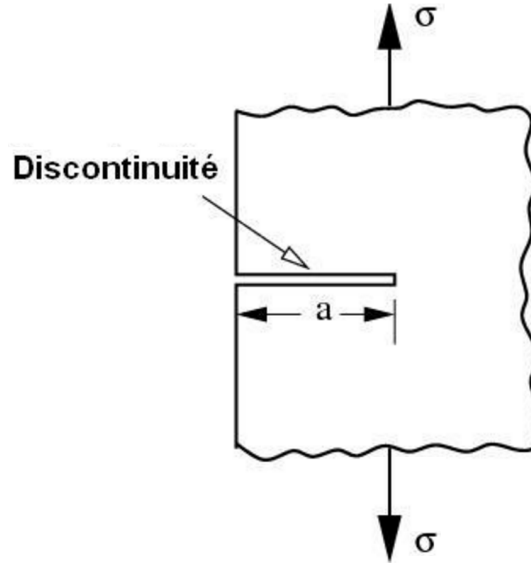


FIGURE 1.11 – Fissure débouchante de longueur a dans une éprouvette chargée en mode I.

facteur d'intensité de contraintes peut être exprimé en fonction de σ et a (Figure 1.11) :

$$K_I = \sigma\sqrt{\pi a} \quad (1.21)$$

Par ailleurs le taux de restitution de l'énergie peut être trouvé par une approche énergétique :

$$G = \frac{\sigma^2 \pi a}{E'} \quad (1.22)$$

A partir de ces deux équations ((1.21) et (1.22)), on constate facilement le lien entre taux de restitution d'énergie et le facteur d'intensité de contraintes évoqué ci-dessus :

$$G = \frac{(K_I^2)}{E'} \quad (1.23)$$

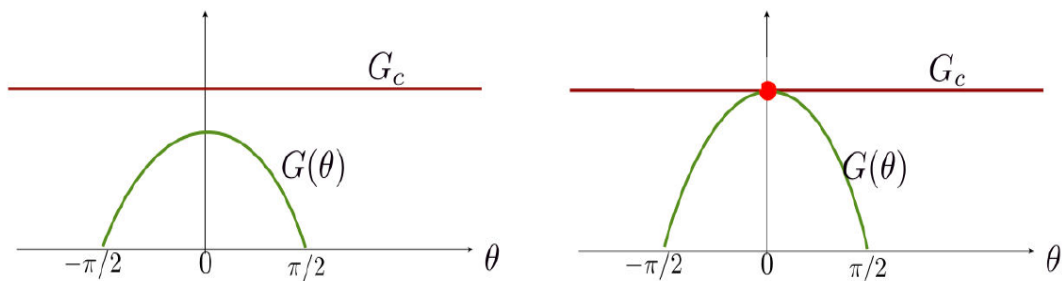


FIGURE 1.12 – La fissure se propage dans la première direction θ telle que le taux de restitution d'énergie G atteigne l'énergie de rupture du matériau lorsque le chargement augmente. Cette description permet facilement de tenir compte de l'anisotropie de l'énergie de fissure dans les matériaux en considérant $G(\theta)$ [25].

En se basant sur le critère de Griffith [31] et celui de Williams [76], Erdogan et Sih (1963) [25] ont proposé le critère de contrainte circonférentielle maximale. Ce critère permet de déterminer la trajectoire de la fissure en utilisant la direction correspondant au maximum du taux de restitution d'énergie. Ils ont montré que si le chargement augmente progressivement, la fissure se propage dans la direction θ où G atteint G_c e premier, c'est à dire :

$$G(\theta) = G_c(\theta) \quad (1.24)$$

La direction de l'accroissement de la fissure est l'intersection de la courbe $G(\theta)$ et G_c (Figure 1.12) à un chargement donné, cette direction correspondant à la direction où la contrainte locale normale σ à une facette définie par l'angle θ est maximale.

Il existe aussi un critère se basant sur le taux de restitution d'énergie c'est le critère de taux de restitution d'énergie maximale G_{max} . Ce critère suppose l'existence d'une direction de propagation de fissure à chaque instant qui rend maximale le taux d'énergie élastique libéré G et donc minimise l'énergie potentielle. En faisant varier (r, θ) on peut trouver par lissage des résultats numériques la configuration où $G = G_{max}$.

1.3 Endommagement des films minces

Plusieurs études ont montré qu'il y a une influence des propriétés mécaniques du film, du substrat et surtout de l'interface film/substrat sur le phénomène de fissuration dans les films minces. Cette théorie conduit à trois différentes possibilités que montre la figure 1.13.

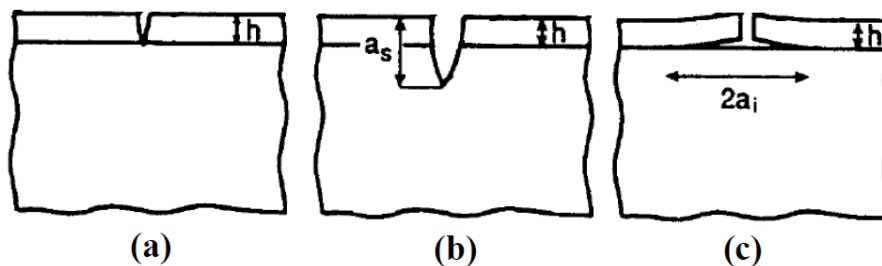


FIGURE 1.13 – (a) Fissure uniquement dans le film (b) Fissure pénétrante dans le substrat (c) Fissure provoquant un délaminage de l'interface film/substrat [79].

Dans notre travail, nous nous intéressons principalement à deux types d'endommagement : une fissure dans toute l'épaisseur du film (cas (a)) et un délaminage à l'interface

film/substrat suite à la fissuration du film (cas (c)). Le cas (b) d'une fissure pénétrante dans le substrat sera uniquement évoqué à la fin de l'étude.

1.3.1 Fissuration

Les revêtements en couches minces sont très étudiés dans la littérature pour différents domaines d'application (électronique, photovoltaïque, tribologie, etc). Généralement, leurs épaisseurs varient de quelques couches atomiques à quelques millimètres. L'intérêt des couches minces est de protéger des objets pour améliorer leurs propriétés mécaniques, leur résistance à l'usure, à la corrosion. Elles peuvent aussi servir de barrière thermique ou à modifier les propriétés optiques en modifiant par exemple le pouvoir réflecteur de surfaces en verre.

Avec une grande diversité de matériaux, d'épaisseurs et de méthodes de dépôt, les motifs de rupture observés dans la littérature présentent des géométries différentes. Deux principaux cas peuvent être distingués : 1- des fissures dans le film, droites et traversantes ou plus complexes sous forme des spirales ou des croissants et 2- les problèmes de décohésion ou de délaminage sous forme des rides droites, circulaires cordons de téléphones

Dans notre travail, nous étudions dans un premier le cas des fissures droites dans le film qui peuvent traverser ou non le substrat (Figure 1.14). Ce cas est le plus observé dans la littérature ([50, 51, 54, 17, 48]) lorsque le système est sollicité en traction.

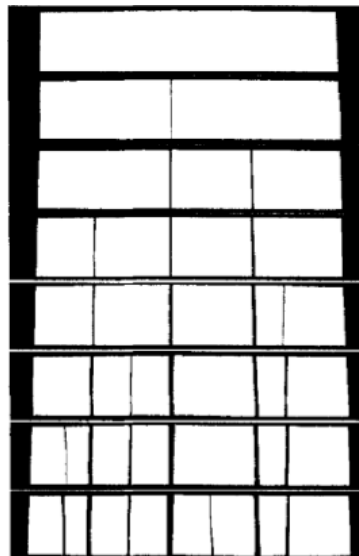


FIGURE 1.14 – Exemple des fissures droites présentes sur une couche de peinture extrêmement fine et rigide déposée sur un substrat souple et épais [44].

L'apparition de fissures périodiques dans une couche fragile déposée sur un substrat est un phénomène qui a fait l'objet de multiples études expérimentales, théoriques et numériques.

Une caractéristique particulière a fait l'objet de nombreuses études expérimentales et analytiques : *la distance d'interaction entre les fissures* ou leur densité. L'origine de cette distance d'interaction est liée à la relaxation de l'énergie élastique autour de la fissure. Par exemple dans le cas d'un substrat élastique rigide par rapport au film, les nouvelles fissures interagissent avec les fissures précédentes sur des distances estimées de l'ordre de l'épaisseur du film ([36, 7, 48]).

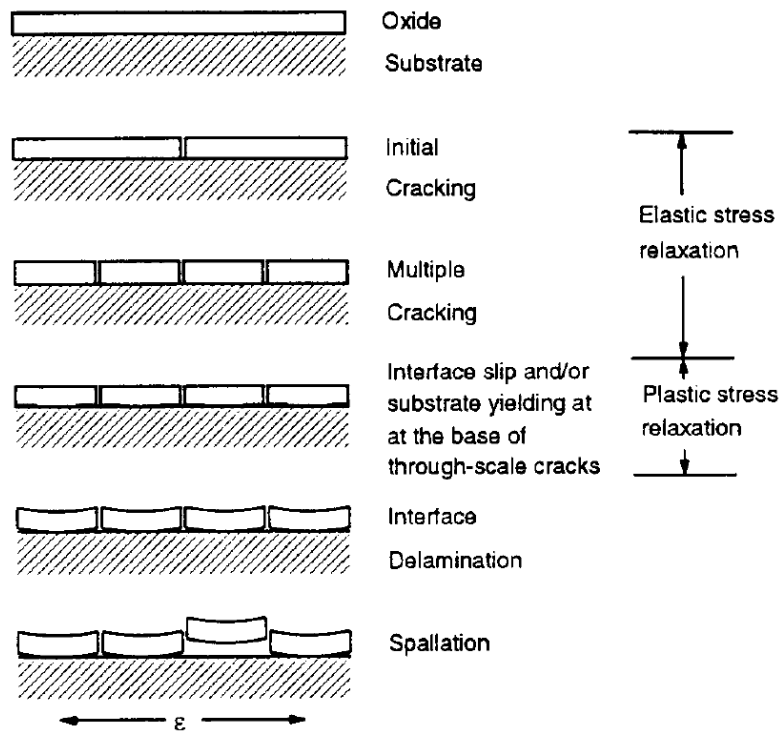


FIGURE 1.15 – Représentation schématique de phénomène de fissuration et délaminage des couches d'oxyde causé par traction [59].

En 1993, Nagl et al [59], ont mené une étude expérimentale sur des couches minces d'oxydes de nickel de différentes épaisseurs. Ils ont montré que l'espacement entre les fissures qui apparaissent au cours de la sollicitation augmente avec l'épaisseur d'oxyde. Ils ont également étudié les mécanismes de relaxation de la contrainte dans ces couches au cours de la traction.

Comme l'indique la figure 1.15, ils ont montré l'existence d'une relaxation des contraintes au fur et à mesure que des fissures se forment. Cette première relaxation élastique est suivie d'une relaxation des contraintes par déformations plastiques dans le substrat ou à l'interface film/substrat.

En 1997, Leterrier et al. [51] ont réalisé des observations optiques in-situ de monocouches d'oxyde de silicium déposées sur un substrat en poly-ethylene terephthalate

(PET) sollicitées en traction uni-axiale (Figure 1.16(a)). Ils ont constaté une apparition progressive de fissures traversantes dans le film sans propagation dans le substrat. De plus, J.Marthelot [54] a fait les mêmes observations pour des monocouches de ZnO déposées sur un substrat en ETFE. Il a confirmé les résultats de [51] qui a montré l'existence de trois régimes de fragmentation (voir Figure 1.16(b)).

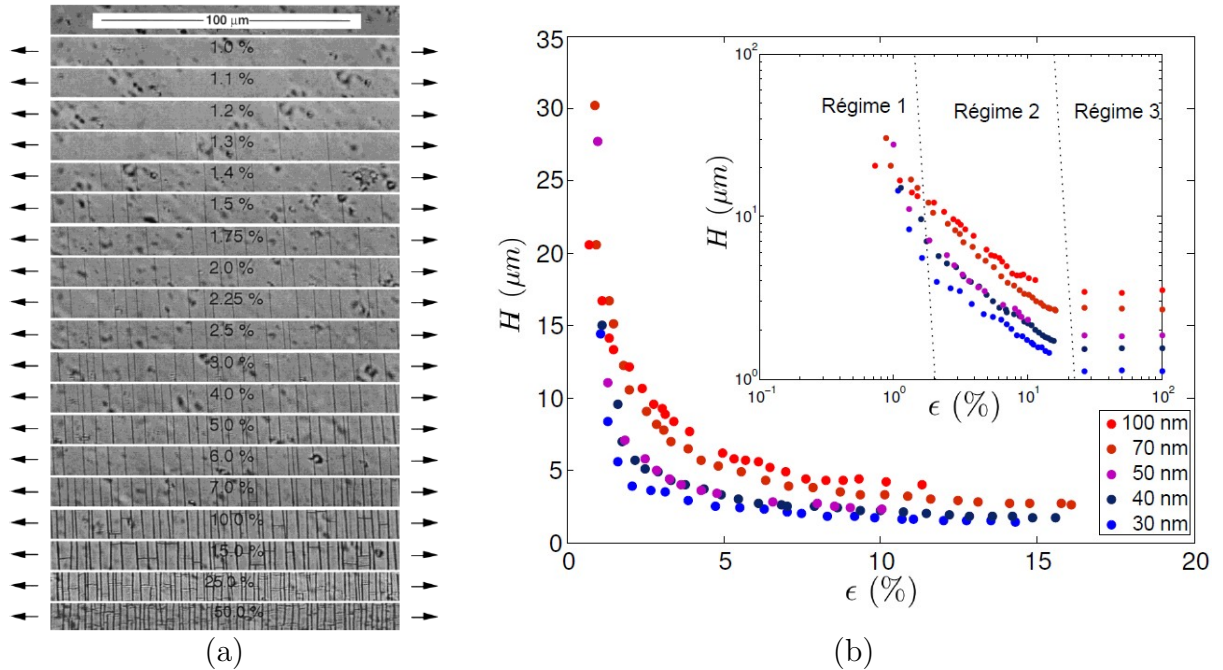


FIGURE 1.16 – a) Observation sous microscope optique de l'apparition des fissures à différents niveaux de déformation sur monocouches d'oxyde de silicium déposée sur un substrat en poly-ethylene terephthalate(PET) [51] b) Evolution de la distance moyenne entre les fissures en fonction de la déformation nominale appliquée pendant le test de traction des monocouches de ZnO de différentes épaisseurs déposées sur un substrat flexible d'ETEF [54].

Le premier régime est caractérisé d'une fragmentation séquentielle avec une apparition aléatoire des fissures en temps et en espace. Pour des chargements plus importants de l'ordre de 2,2% de déformation, un deuxième régime s'active. Des nouvelles fissures apparaissent au milieu des fissures issues du premier régime jusqu'à atteindre un niveau élevé de déformation $> 20\%$. Contrairement au premier régime, ce deuxième régime a un caractère déterministe quant à la position des fissures. Enfin, un arrêt du processus de fragmentation a été observé, et donc une saturation de la distance entre les fissures, il s'agit du troisième régime. Ce dernier a été observé dans plusieurs travaux ([59, 50, 40, 52, 48]). Par contre, les approches analytiques semblent avoir du mal à capturer ce mécanisme de saturation ([46, 77]).

A la fin du phénomène de fissuration, la distance de saturation entre les fissures peut être mesurée. Cette distance dépend fortement de l'épaisseur de la couche.

Cette dépendance été également montrée dans plusieurs travaux ([59, 58, 72, 50, 16, 54, 48]). Dans [54] des essais de micro-traction ont été effectués, sur des monocouches de ZnO de différentes épaisseurs déposées sur un substrat en ETFE. Comme l'indique la figure 1.17, ces essais ont démontré que pour des mêmes niveaux de déformations les fissures sont plus proches si le film est de faible épaisseur.

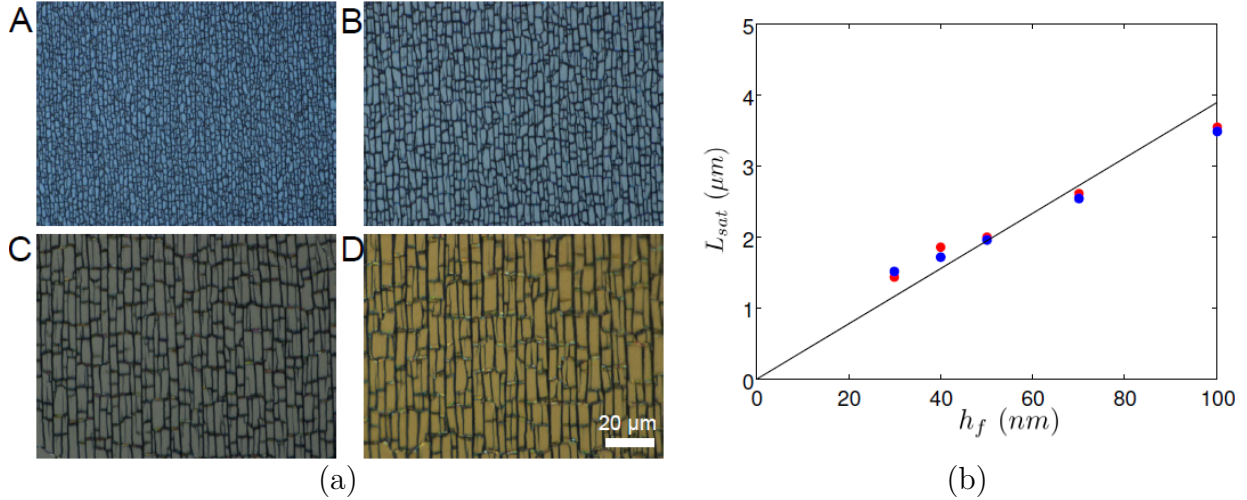


FIGURE 1.17 – a) Visualisation en microscope optique de l'état final après traction uniaxiale des couches minces d'oxyde de Zinc d'épaisseur h_f : 30 nm (A), 50 nm (B), 70 nm (C) et 100 nm (D). b) Distance inter-fissures à 50% de déformation (en bleu) et 100% de déformation (en rouge) en fonction de l'épaisseur de la couche d'oxyde h_f [54].

D. Leguillon et al. [48] ont récemment conduit une étude focalisée sur le deuxième régime de fissuration. Des calculs numériques par la méthode des éléments finis ont été menés sur des cellules périodiques de tailles variables, contenant au départ une fissure. L'apparition de la fissure suivante (et donc le doublement de la densité de fissure) a été évaluée à l'aide du critère couplé (critère en énergie et en contrainte devant être satisfaits simultanément). L'application de cette méthode pour des niveaux croissants de déformation imposée $\bar{\epsilon}$ permet de retrouver des tendances observées expérimentalement. Dans le cadre de cette étude, le film et le substrat ont des comportements élastiques linéaires. Cette hypothèse est déjà proposée dans l'étude analytique de Law and Dvorak (1988) [46] où les auteurs ont utilisé deux approches de prédiction de la densité des fissures. La première se base sur l'hypothèse que la fissure est au milieu des deux fissures existantes. Tandis que la deuxième suppose que l'apparition se produit aléatoirement. Les résultats de ces deux approches ont été comparés aux résultats expérimentaux de Highsmith et Reifsnider (1982) [34] confirmant l'hypothèse que le caractère aléatoire est dû à la présence de défauts. Cette hypothèse reste valable pour les grands espacements entre les fissures et donc une petite densité de fissure. Mais comme discuté précédemment, quand cette dernière augmente (i.e. les fissures se rapprochent), le profil du champ de

contrainte avec un pic au milieu de deux fissures existantes s'impose et influence donc l'apparition des nouvelles fissures.

En plus de l'épaisseur du revêtement ([50, 54, 16]), la distance finale inter-fissures peut être influencée par d'autres paramètres.

Plusieurs travaux montrent que le comportement du substrat ([79, 51]) peut influencer la distance inter-fissures. En effet, cette distance peut atteindre 30 fois l'épaisseur du film et donc elle est particulièrement élevée par rapport à la distance habituelle d'interaction purement élastique (i.e. l) proposée par [77]. Ce résultat semble fortement lié à la présence de la plasticité dans le substrat ([8, 28, 73, 54]). Sur la figure 1.2 extraite de [77], l'évolution de l définie dans l'équation (1.5) montre que plus le substrat est souple par rapport au film (i.e. $\alpha \rightarrow 1$), plus le rapport l/h est élevé et donc la distance inter-fissures devient très grande devant h_f .

1.3.2 Délaminage

Le deuxième point étudié dans cette thèse est le délaminage à l'interface film/substrat suite à l'apparition des fissures dans le film. L'influence du délaminage interfacial sur le processus de fragmentation d'un film mince, surtout sur le régime de saturation, a fait l'objet de plusieurs recherches ([16, 48]).

Les travaux pionniers de Liechti [53] ont montré que l'énergie de rupture d'une interface entre deux matériaux aux propriétés distinctes dépend de la mixité modale, liée rapport T_t/T_n à l'interface. Ainsi G_c est minimum lorsque l'on est en mode I pur et augmente lorsqu'on s'approche du mode II (voir Figure 1.18).

Dans le cas d'une fissure interfaciale, on mesure cette mixité avec le paramètre :

$$\psi = \tan^{-1} \left(\frac{T_t}{T_n} \right)_{(r=l, \theta=0^\circ)} \quad (1.25)$$

Ici, l'angle polaire $\theta = 0^\circ$ signifie qu'on est à l'interface et l est une distance arbitraire prise par rapport au front de fissure. Ceci se réduit à $\psi = \tan^{-1}(\frac{K_{II}}{K_I})$ lorsque le coefficient β de Dundurs est proche de 0.

Certaines études ont cherché à identifier la forme du front de délaminage à l'interface entre deux matériaux, tel qu'il apparaît autour d'une fissure de taille finie traversant le film. Ainsi, pour une fissure rectiligne de longueur L traversant le film sur toute son épaisseur, et pour un film en traction equibiaxiale, Jensen et al. [41] ont montré

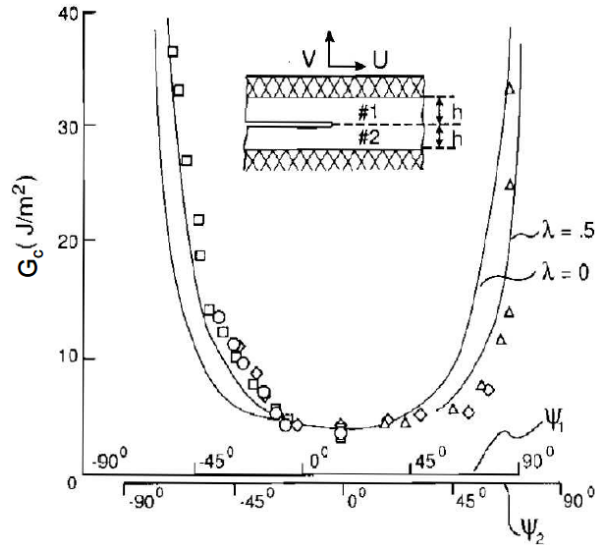


FIGURE 1.18 – Evolution de G_c en fonction de la mixité modale ψ donnée par Liechti et Chai [53].

qu'au delà d'une certaine contrainte critique σ_c , un décollement a se produit à l'interface film/substrat mais il est limité à une taille caractéristique de l'ordre de la taille de la fissure (Figure 1.19). En revanche, pour une contrainte appliquée σ supérieure à un certain seuil σ_i mais inférieure à σ_c , la décohésion peut se produire mais reste très limitée (configuration du centre sur la figure 1.19). Le type de délaminage observé dépend de la longueur de la fissure et de la différence de rigidité entre le film et le substrat.

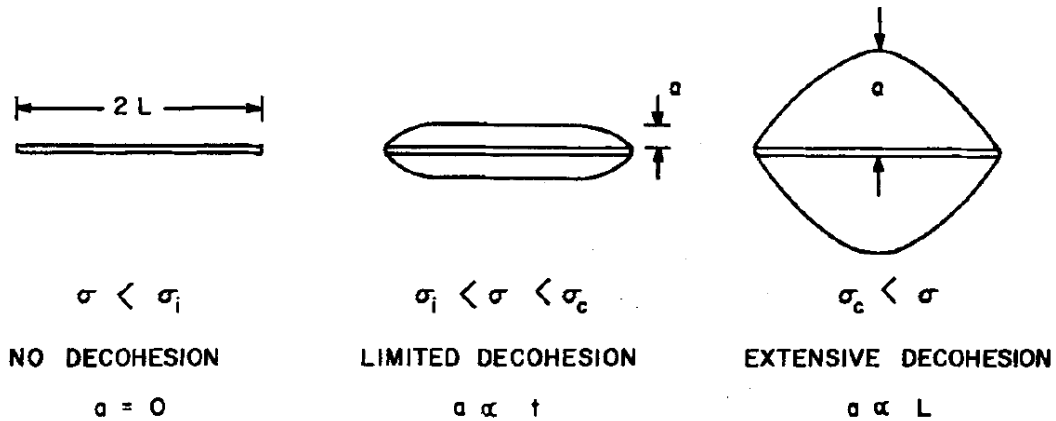


FIGURE 1.19 – Forme du front de décollement autour d'une fissure de longueur L en fonction du chargement σ [41].

Si la longueur de décollement a est plus grande que l'épaisseur de la couche h_f , Hutchinson et Suo (1991) [36] ont constaté que les facteurs d'intensité de contraintes sont peu dépendants de la longueur de décollement et dépendent plutôt de la différence de rigidité entre la couche et le substrat.

Jensen et al. [41] ont aussi déterminé la forme du front de décollement a en fonction du chargement, de l'énergie d'interface Γ et de la mixité modale du front ψ . Les contraintes normales et tangentielles sur le front de délaminage ont été déterminés en imposant une mixité modale ψ constante le long du front.

Atkinson et Guppy [3] ont constaté sur des échantillons en sol-gel que le décollement du substrat permet de relâcher complètement les contraintes résiduelles du film.

J. Marthelot [54] a montré sur des échantillons de vernis déposé sur un substrat de verre qu'un réseau des fissures se forme initialement dans le film et relâche une énergie élastique sur une petite zone confinée autour des fissures. Lorsque cette énergie excède l'énergie d'adhésion, les fragments se décollent et le phénomène de fissuration s'arrête.

Wu et al. [19] ont regardé la formation des fissures spirales des couches sol-gel de 700 à 800 nm déposés sur des substrats en verre transparent et ont constaté que le décollement de l'interface a également une grande influence sur l'espacement des fissures dans la couche.

Sur l'aire délaminée, les contraintes résiduelles sont totalement relâchées dans toute la bande à l'exception du voisinage du front de fissure.

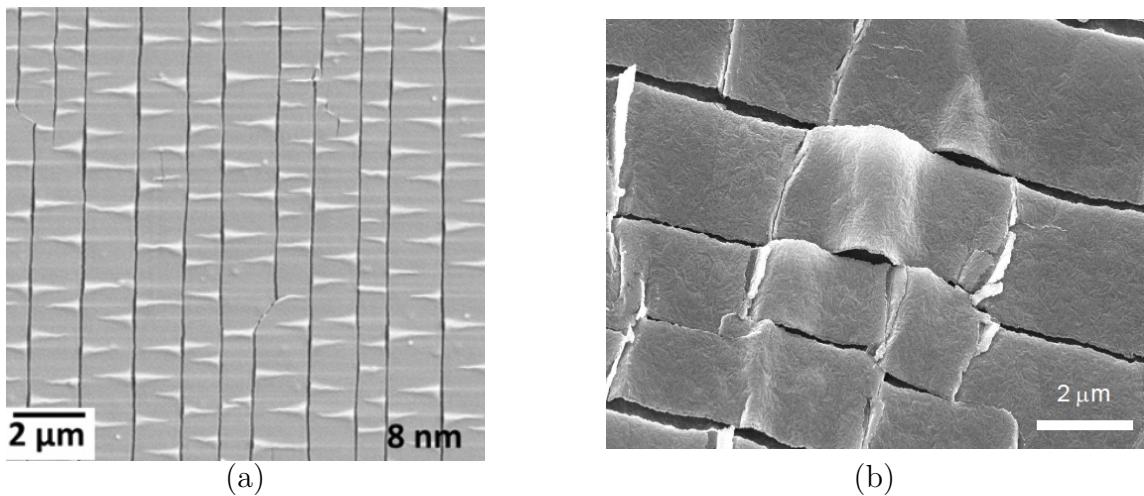


FIGURE 1.20 – Apparition des cloques de délaminage sur (a) des mono couches de Ti déposées sur un substrat en polymère (PI) [16] (b) Film mince en oxyde de zinc déposé sur un substrat en ETFE [54].

Ce phénomène a été observé par Cordill et al. [16] en testant en traction uniaxiale de monocouches de titane Ti déposées sur un substrat en polymère (Figure 1.20(a)) et par J. Marthelot [54] sur des mono-couches de ZnO déposées sur un substrat en ETFE sollicitées en traction uni-axiale (Figure 1.20(b)). Ces cloques sont causées par la compression induite par effet Poisson dans la direction transverse au chargement. Un phénomène de

flambage de la couche et de délaminage simultané prend place dans cette direction de compression.

En se basant sur un système d'équations différentielles caractérisant l'équilibre mécanique de plaques minces sous contrainte, les principales caractéristiques du processus de cloquage ont été comprises grâce à la théorie des plaques minces de Föppl-von Karman (FvK), en ce qui concerne la géométrie simple de ride droite (ou colonne d'Euler) ([27, 4, 62]).

1.3.3 Influence d'une inter-couche

Plusieurs études ([54, 48, 55]) ont montré que l'ajout d'une couche dite intermédiaire ou inter-couche modifie la propagation des fissures au sein des revêtements.

En effet, dans [54] des monocouches de ZnO déposées sur un substrat en ETFE ont été initialement testées (Figure 1.16a)). Ces tests ont révélé qu'en variant l'épaisseur de la couche, des fissures fragiles rectilignes très longues (i.e. \sim longueur de l'échantillon) apparaissent dans la couche sans jamais traverser le substrat. Ces fissures peuvent également induire un léger décollement interfacial à chargement plus fort.

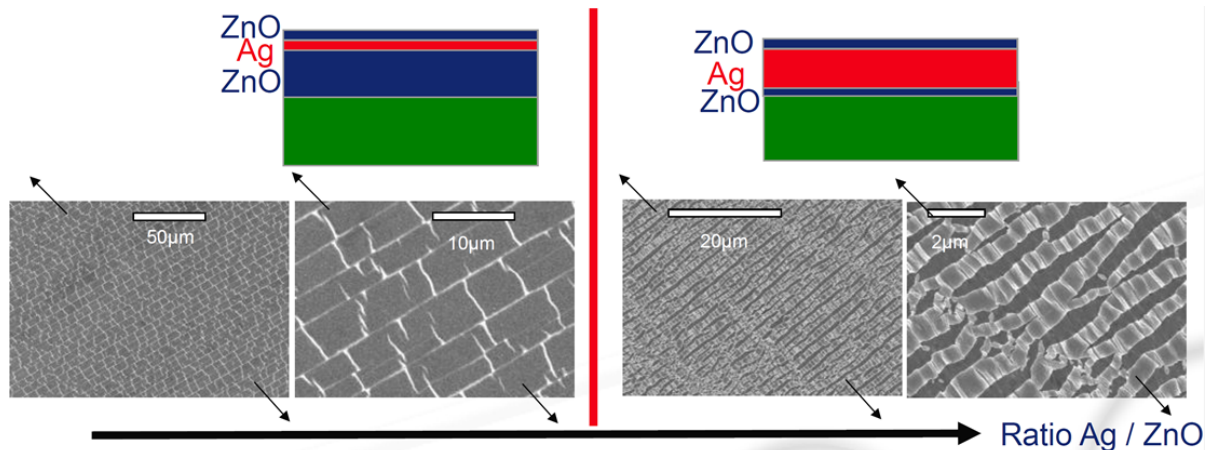


FIGURE 1.21 – L'influence de l'épaisseur de la couche ductile sur l'apparition de fissures montrée par J. Marthelot [54]

Dans un deuxième temps, des inter-couches en argent ont été ajoutées. Ces empilements hétérogènes testés sous traction induisent des fragmentations avec des morphologies plus complexes qui dépendent énormément de l'épaisseur de la couche ductile en argent comme l'indique la figure 1.21. En effet, si cette couche est suffisamment fine, le comportement des empilements hétérogènes est similaire à celui des monocouches fragiles et les fissures traversent la totalité de l'empilement. Par contre si l'épaisseur de la

couche en Argent est importante, il y a une apparition de fissures « ductiles » plus courtes et moins droites.

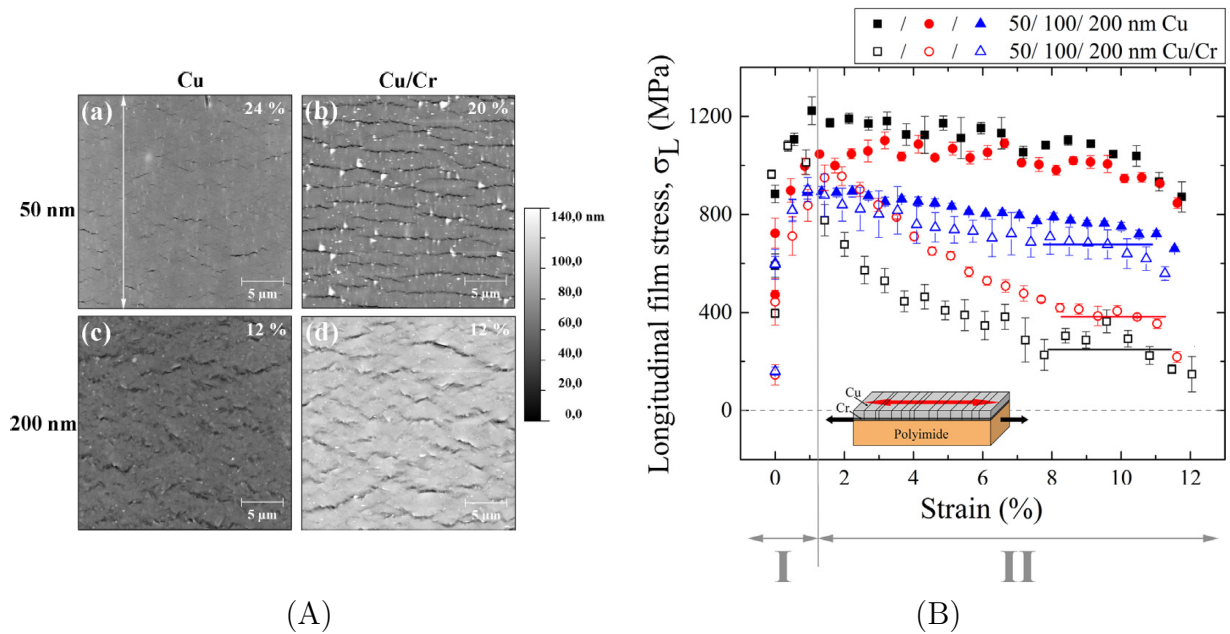


FIGURE 1.22 – Résultats des essais de traction in situ sur des films en cuivre de différentes épaisseurs, avec et sans couche intermédiaire fragile en chrome (A) des images AFM à différents niveaux de déformations pour des épaisseurs de (a) 50 nm et (c) 200 nm pour des monocouches de Cu, et de (b) 50 nm et (d) 200 pour multicouches de Cu/Cr. Le sens de chargement est indiqué par la flèche blanche. (B) Contraintes de film longitudinales, σ_L , dans les monocouche de Cu et dans les multicouches de Cu/Cr avec des épaisseurs de couche de 50, 100 et 200 nm [55].

Marx et al. (2015) [55] ont réalisé des essais de traction in situ sur des films en cuivre de différentes épaisseurs, avec et sans couche intermédiaire fragile en chrome (Figure 1.22(A)), pour mettre en évidence l'influence cette dernière sur la répartition de la contrainte dans le système et sur la densité finale des fissures. Les expériences ont montré que sa présence a une grande influence sur le comportement global en rupture du revêtement.

Sur la figure 1.22(B), les contraintes dans le film mesurées avec la méthode des $\sin\psi^2$ sont tracées en fonction de la déformation imposée $\bar{\epsilon}$ par le dispositif de traction. Les résultats pour les films Cu sont marqués avec des symboles pleins et pour les films Cu/Cr avec des symboles vides. Les premiers points des courbes correspondent aux contraintes résiduelles mesurées avant l'essai de traction. Les lignes horizontales indiquent des plateaux de saturation des fissures dans les empilement Cu/Cr. Ils ont divisé l'évolution des contraintes en deux régimes quel que soit le film testé. Au cours du régime I, tous les films (mono-couches ou multi-couches) ont un comportement très proches. Plus les films sont minces plus les pics de contrainte sont élevés. Dans le régime II, correspondant à la saturation des fissures à des niveaux de déformations élevés, les deux systèmes

de films commencent à se comporter différemment. En effet, les mono-couches de Cu gardent toujours la même tendance que le régime I où la couche la plus mince présente des contraintes plus élevées. En revanche, les revêtements Cu/Cr sont influencés non seulement par l'épaisseur du film, mais aussi par la couche intermédiaire. Ils montrent plutôt une tendance inverse où les films les plus fins ont un niveau des contraintes plus faible.

En fait, si la couche intermédiaire fragile en Cr est épaisse, elle commence par se fissurer. Cela conduit à une concentration de contrainte dans le film de Cu et donc à la propagation des fissures dans tous l'empilement.

Ils ont développé par la suite un modèle mécanique en 2D basé sur la méthode de zone cohésive. Leurs simulations numériques sur les deux systèmes de revêtements ont montré que la formation de fissures est responsable de la chute de la contrainte et que la plasticité de la couche de cuivre joue un rôle important dans ce processus.

L'ajout des couches intermédiaires généralement fragiles tel que Cr, Ti, Ta ou quelques oxydes peut fragiliser l'adhésion entre un film généralement ductile Cu, Ag ou Au et leurs substrats au cours du chargement.

1.4 Approches numériques

Plusieurs méthodes numériques basées sur une analyse par éléments finis ont été développées pour décrire la rupture. Ces méthodes peuvent suivre une approche globale, ou bien locale.

1.4.1 Approche globale

Dans l'approche globale, on mesure le niveau de chargement auquel est soumis la fissure en calculant le taux de restitution de l'énergie G ou bien les facteurs d'intensité de contrainte K_i ($i = I, II, III$) selon le mode chargement. On a propagation de la fissure lorsque G ou bien les K_i atteignent une valeur critique.

Le problème est que le suivi de la propagation des fissures traité avec les éléments finis classiques nécessite en général un remaillage à chaque incrément d'avancée de la fissure (chaque incrément de calcul). Les techniques de génération de maillage peuvent être très coûteuses en temps de calcul.

Les éléments finis étendus (X-FEM) fournissent une alternative intéressante. Il s'agit d'éléments finis auxquels on a ajouté des fonctions de forme permettant de représenter le saut de déplacement dû à la présence d'une fissure et éventuellement le champ de déplacement au voisinage de la pointe de fissure. Il n'est pas nécessaire de remailler avec cette technique. Il faut activer les enrichissements au niveau des éléments traversés par la fissure. Pour savoir quels éléments sont traversés par la fissure, on peut utiliser la

méthode des lignes de niveaux (level sets method). Un critère de propagation doit être adjoint à la méthode pour gérer la propagation du front de fissure.

1.4.2 Approche locale

Une des limitations de la mécanique linéaire élastique de la rupture, adaptée pour les approches globales, est son insuffisance à décrire la genèse d'une la fissure et surtout à introduire des conditions particulières le long des lèvres (par exemple contact, frottement, interaction à distance de type Van der Waals) permettant d'introduire une dimension physique au mécanisme de rupture. Pour cela, des modèles issus de la mécanique de l'endommagement ([78, 11]) ont été développés. Ces modèles permettent de décrire les conditions d'amorçage et de propagation de la fissure. Ils considèrent des fissures cohésives ou des zones de localisation de déformation dans un matériau homogène ou hétérogène ou bien à l'interface de deux matériaux distincts.

La première méthode qu'on peut citer dans littérature est la méthode de discontinuités fortes E-FEM (Embedded Finite Element Method ou SDA Strong Discontinuity Approach). Elle a été développée par plusieurs auteurs ([23, 43, 70, 9, 57]) et a été appliquée dans différentes études ([71, 10, 2, 52, 14, 63]). Cette méthode permet dans le cadre de la mécanique de l'endommagement de prendre en compte les évolutions du comportement du matériau de son état sain jusqu'à son endommagement total. Elle prend en compte également la localisation des déformations et la discontinuité de déplacement en s'appuyant sur les enrichissements au sein de l'élément.

Cette approche s'appuie sur des critères de rupture locaux et utilise la notion de la contrainte à rupture critique du matériau pour introduire les critères de discontinuités. Elle considère une discontinuité de la fissure cohésive traversant tout l'élément et une ouverture de la fissure cohésive linéaire et constante dans l'élément et la représente par un saut de déplacement dans l'élément. La clé de cette approche consiste à concentrer l'énergie dissipée dans les bandes de localisation (qui peuvent se développer en fissures) sur une surface de discontinuité du champ de déplacement. La normalisation de la solution est assurée par l'introduction d'une surface de discontinuité du champ de déplacement obtenue grâce à l'enrichissement élémentaire de la base des fonctions de forme.

Parmi les modèles numériques associés à l'approche locale de la mécanique de l'endommagement, la méthode des zones cohésives (MZC) est la plus populaire. Cette dernière permet le couplage entre la propagation de la fissure et les différents mécanismes actifs au niveau de la pointe de la fissure.

La notion de la zone cohésive a vu le jour dans les années 60 avec les travaux de Dugdale [21], Barenblatt [6] et Rice [65]. Au début, la modélisation se basant sur les

MZC a seulement concerné le comportement des efforts normaux agissant sur les lèvres de la fissure. En rajoutant une zone de transition entre la zone rompue et la zone saine de la fissure, comme le montre la figure 1.23, les auteurs ont proposé une description de la relation entre l'effort nécessaire à la séparation de la fissure et son ouverture.

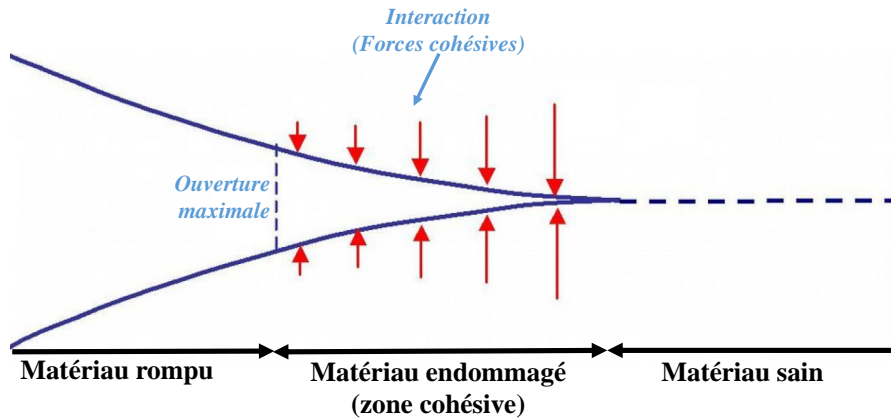


FIGURE 1.23 – Représentation schématique du principe de zone cohésive.

Dugdale [21] a développé un modèle analytique simple pour corriger les singularités en pointe de fissure prévu par le LEFM. Il a supposé l'existence d'une « process zone » qui peut être définie comme la région dans laquelle l'interface commence à s'endommager sans pour autant atteindre la rupture. Il a aussi supposé qu'une contrainte normale critique σ_c est nécessaire à l'ouverture d'une fissure.

L'étude de la fissuration de différents matériaux (polymère, métaux et composites) a progressé à travers les années suite au développement de différentes formes de lois cohésives.

Par exemple, en mécanique des matériaux, deux formes de lois cohésives ont été proposées dans les travaux de Needleman. Il s'agit des formes polynomiale [60] et exponentielle [61] qui permettent de décrire la décohésion respectivement quasi-statique et dynamique dans les matériaux composites, les joints collés ou encore les revêtements. Ces modèles sont inspirés des travaux atomistiques de Rose [66].

La loi polynomiale a été améliorée par Tvergaard [74] (Figure 1.24-(a)) en introduisant un déplacement effectif relié aux contraintes normales et tangentielles proposées dans le modèle de Needleman [60] et en considérant une raideur d'endommagement permettant de traiter la refermeture de manière réaliste.

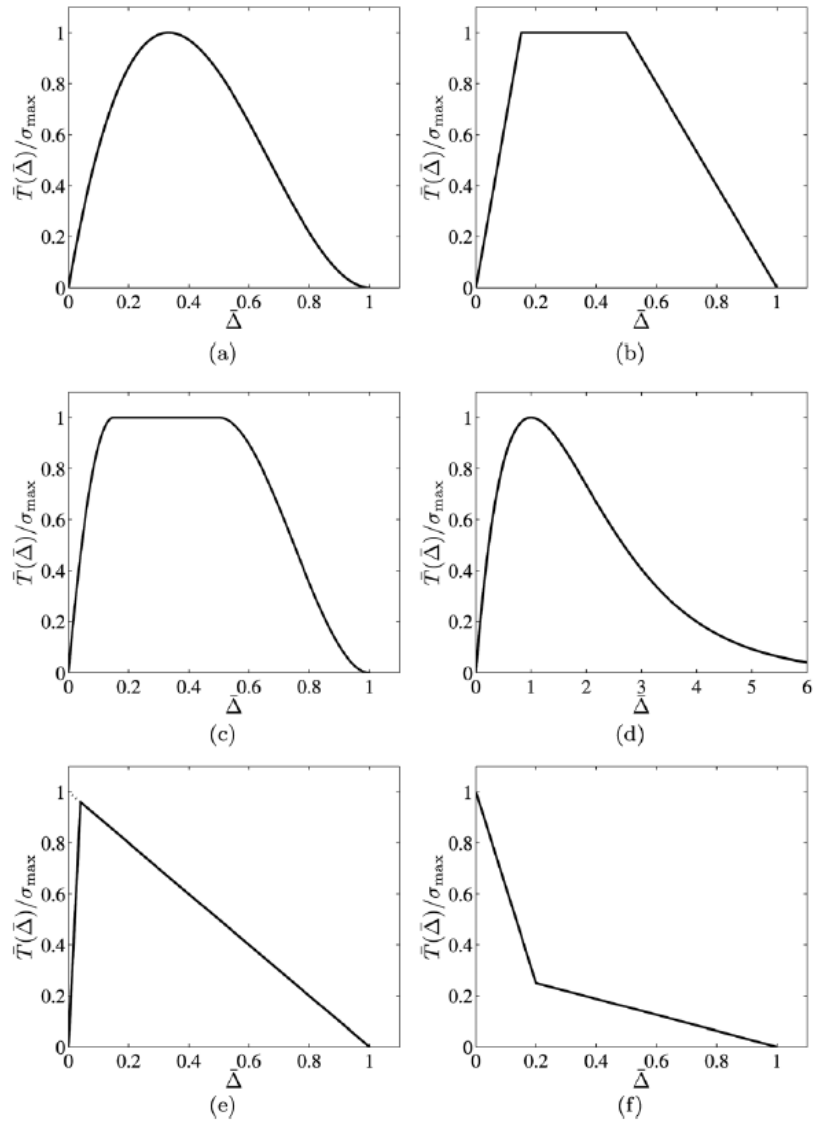


FIGURE 1.24 – Différents formes de lois cohésives (a) Polynomiale [60, 74] (b) Trapézoïdale [75] (c) Trapézoïdale modifié [67] (d) Exponentielle [61, 78] (e) bi-linéaire [29, 12] (f) Trilinéaire [33].

Une autre forme de loi a été proposé par Tvergaard et Hutchinson en 1992 [75], il s'agit d'une loi trapézoïdale (Figure 1.24-(b)). Ce modèle a servi à modéliser la fissuration quasi-statique dans les matériaux élasto-plastique. En 2003, Scheider et al. [67] ont modifié la forme de cette loi en proposant la courbe présentée sur la figure 1.24-(c) pour assurer la continuité de la dérivée en traction et en ouverture de l'élément cohésif.

Pour Guinea et al [33], la contrainte critique σ_c est la valeur maximale de la traction en pointe de fissure à partir de laquelle la fissure avance. Cette loi a été approximée par la loi trilinéaire (Figure 1.24-(f)) pour l'étude des polymères et des métaux.

Plusieurs auteurs ont essayé ensuite de simplifier ces lois pour les adapter au cas de

matériaux fragiles (loi linéaire [11]) ou pour le cas de délaminage de matériaux composites (loi bi-linéaire [29]).

Bien que les formes proposés soient différentes, trois parties dans une loi cohésive peuvent être distinguées : (1) augmentation de la traction cohésive jusqu'à une valeur critique, (2) début de l'ouverture de l'interface cohésive signifiant le déclenchement et l'augmentation de l'endommagement, décrit par une diminution de la traction cohésive jusqu'à ce qu'elle s'annule pour une valeur donnée de l'ouverture et (3) un état de traction nulle entre les deux surfaces séparées, avec une interface considérée comme complètement endommagé (présence de la fissure au sens classique).

Dans la suite du travail, seule la loi bi-linéaire développée par Geubelle et Baylor [29] sera utilisée. Cette loi nous permet de modéliser et analyser le phénomène de multi-fissuration dans le logiciel de calcul par éléments finis ABAQUS.

Description de la loi cohésive utilisée

a- Traction/ouverture

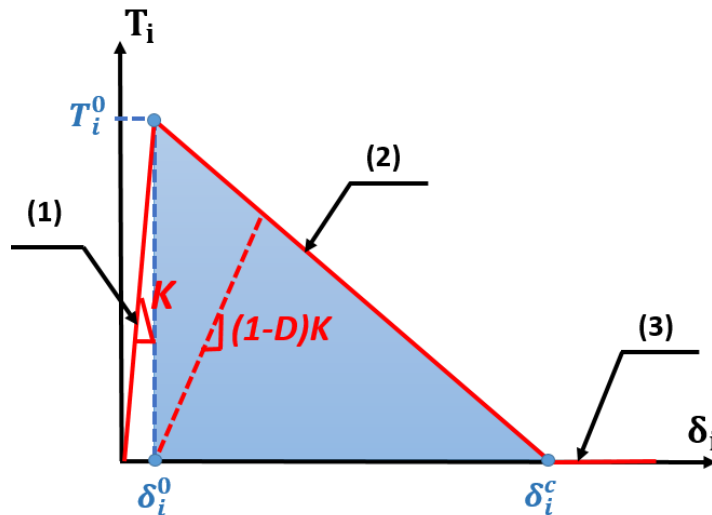


FIGURE 1.25 – Évolution de la loi traction/ouverture bilinéaire.

La loi traction/ouverture de type bilinéaire est illustrée sur la figure 1.25. L'évolution de la contrainte en fonction de l'ouverture de l'élément se fait en trois parties : (1), (2)

et (3) (décrites ci-dessus) et peut s'exprimer ainsi :

$$T_i = \begin{cases} K\delta_i ; \delta_i \leq \delta_{i,0} & (1) \\ (1-D)K\delta_i ; \delta_{i,0} < \delta_i < \delta_{i,c} & (2) \\ 0 ; \delta_i \geq \delta_{i,c} & (3) \end{cases} \quad (1.26)$$

Avec :

- T_i est la traction appliquée sur l'élément cohésif. Si $i = n$, il s'agit de la composante normale et si $i = t$ c'est la composante tangentielle (i.e. le cisaillement).
- δ_i représente l'ouverture de l'élément cohésif (même nomenclature pour l'indice i).
 - * δ_i^0 est l'ouverture critique initiale (normale ou tangentielle). Ce paramètre est directement lié à la traction maximale (pic de traction normale ou tangentielle) T_i^0 . Ce pic indique le début du processus d'endommagement de l'élément (Figure 1.25).
 - * δ_i^c représente l'ouverture critique maximale (normale ou tangentielle) à partir de laquelle l'interface est considérée complètement rompue (fissure macroscopique).
- K est la rigidité initiale de l'élément cohésif. Ce paramètre n'a pas pour nous de signification physique, mais un intérêt pour le calcul numérique. Il permet d'atteindre la traction maximale par incréments successifs de l'ouverture, alors qu'idéalement l'ouverture resterait nulle jusqu'à ce que la traction atteigne la valeur du pic T_i^0 . On veille à ce que l'ouverture artificielle δ_i^0 reste très petite par rapport à l'ouverture critique δ_i^c , qui a elle une signification physique réelle.
- D est le paramètre d'endommagement variant de 0 (élément sain) à 1 (élément cassé).

En général le chargement de l'interface est mixte par exemple flexion, torsion ou traction bi-axiale, générant simultanément les deux composantes de traction (normale ou tangentielle). On définit une contrainte équivalente et une ouverture équivalente, comme suit :

$$T_{eq} = \sqrt{T_n^2 + T_t^2} \quad (1.27)$$

$$\delta_{eq} = \sqrt{\langle \delta_n^2 \rangle + \delta_t^2} \quad (1.28)$$

Le crochet $\langle \rangle$ dans l'équation (1.28) est celui de Macaulay qui retourne la valeur de la variable si elle est positive ou bien zéro si c'est une variable négative.

b- Énergie

L'aire sous la courbe de la loi traction-séparation (la zone bleu de la figure 1.25) représente l'énergie G_i^c nécessaire pour l'endommagement complet de l'élément cohésif. Il peut être calculé par une intégration de la contrainte sur l'ouverture de l'élément. Dans le cas de la loi bi-linéaire, cette énergie est donnée par :

$$G_i^c = \frac{1}{2} T_i^0 \delta_i^0 \quad (1.29)$$

Avec $i = I$ dans le cas d'une ouverture en mode normal et $i = II$ dans le cas d'une ouverture tangentielle. Dans le cas d'un chargement mixte, on a $G_c = G_{Ic} + G_{IIc}$.

On voit à partir de l'équation (1.29) que, pour un chargement pur (seulement normal ou bien seulement tangentiel) deux paramètres parmi G_i^c , T_i^0 et δ_i^c sont suffisant pour identifier une loi bi-linéaire.

La particularité numérique garantit par le modèle de zones cohésives avec endommagement de type bi-linéaire est que si l'on arrête le chargement au cours du processus d'endommagement de l'élément cohésif, la décharge de la contrainte suit la ligne rouge en pointillé sur la courbe de la figure 1.25 de la pente $(1 - D)K$ comme proposé par Tvergaard [75].

Les détails concernant le critère d'amorçage et l'évolution du paramètre d'endommagement D seront donnés au chapitre 3.

Limitation de modèle des zones cohésives

Il faut noter que l'insertion des zones cohésives pour la simulation des problèmes de fissuration ont plusieurs inconvénients. En effet, la direction et la taille des éléments cohésifs simulant une interface entre différents matériaux sont imposés par le maillage d'origine. Ce qui se traduit par une direction des fissures qui se superposent avec les directions des éléments d'interface qui sont déjà prédéfinies. Ceci n'est pas gênant dans une interface où on sait par avance que la fissure va se propager.

Un autre type de problème que l'on peut rencontrer avec cette méthode est celui du saut des solutions, autrement dit la perte de l'unicité de solution.

Ce problème a été illustré en 2001 par Chaboche et al. [13] et présenté sur la figure 1.26. Une plaque linéaire élastique est placée en série avec un élément cohésif unique (suivant un comportement type Xu et Needleman).

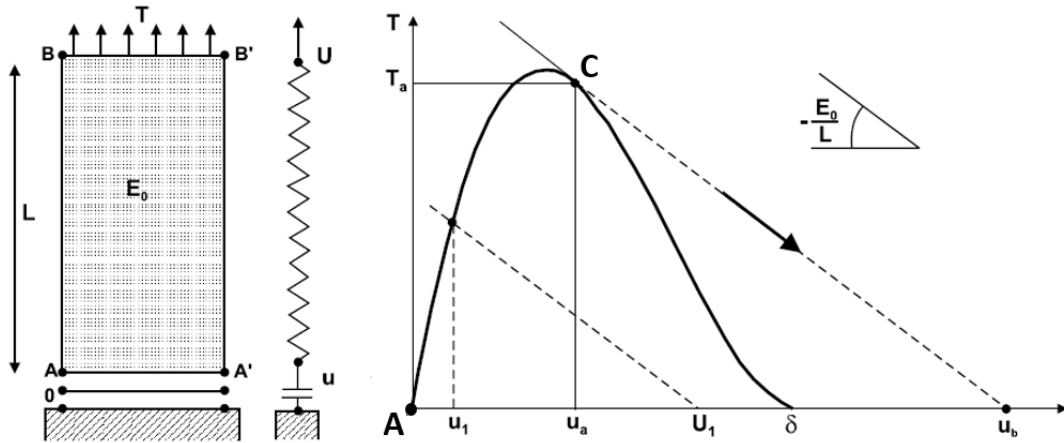


FIGURE 1.26 – Illustration unidimensionnelle du problème d'instabilité d'un modèle cohésif [13].

Un déplacement U est imposé au bord supérieur et une traction T résulte de l'équilibre de la structure. Le comportement de la bande élastique est représenté par les lignes droites sur la figure alors que le comportement de la zone cohésive est représenté par la courbe en cloche.

La déformation de la bande élastique et de la zone cohésive sont compatibles tant qu'un point de fonctionnement peut être trouvé (intersection entre la courbe en cloche et la droite). Ceci est vérifié au point A , mais n'est plus vérifié au delà du point C .

Un saut de déplacement doit alors se produire au niveau de la zone cohésive de manière à pouvoir satisfaire la condition de déplacement imposé. On comprend qu'un tel phénomène est susceptible de se produire lorsque la rigidité de la zone de structure directement connexe à l'interface est trop faible (i.e. pente trop faible des droites $-E_0/L$).

Dans ce cas, l'énergie élastique stockée par l'élément d'interface est instantanément restituée à la structure, et les autres nœuds de l'interface peuvent subir à leur tour un saut de solution. Cela conduit à une divergence de l'algorithme de résolution surtout dans le cas de l'utilisation d'un algorithme implicite qui est incapable de transformer cette énergie excédentaire en énergie cinétique.

Une autre difficulté inhérente à l'utilisation de MZC est la calibration de la loi cohésive. Toutes les lois cohésives existantes dans la littérature sont définies à partir d'un ensemble des paramètres. Vient donc la question du choix de la loi, du nombre de paramètres, et surtout les valeurs des paramètres associés à chaque loi.

Suite aux travaux qui ont servi à développer et à confirmer des lois cohésives, une règle empirique a été prescrite. Cette règle consiste à utiliser une loi triangulaire pour le cas de la rupture fragile et une trapézoïdale pour le cas ductile. La contrainte cohésive maximale est souvent prise de l'ordre de 3 fois la limite élastique du matériau et l'énergie cohésive est prise égale au taux de restitution d'énergie critique du matériau.

Reste alors la difficulté du choix des paramètres à adapter dans le cas d'une zone cohésive introduite à l'interface de deux matériaux dont les propriétés mécaniques sont très différentes et dont les dimensions caractéristiques des mécanismes physiques de rupture sont de quelques micromètres voir même de quelques nanomètres.

Récemment, le progrès des outils expérimentaux tel que la corrélations d'images numérique a pu aider à identifier le comportement locale des interfaces dans le cas des polymères.

Conclusion

La rupture des films minces a fait l'objet des nombreux travaux depuis les années 80. La plupart de ces travaux se basent sur le mécanique élastique linéaire de la rupture et la mécanique de l'endommagement. Des notion clés de ces approches théoriques ont été introduites.

Le développement des outils expérimentaux a permis de comprendre plusieurs phénomènes liés à la fissuration, le délaminage ainsi que le flambage des films minces. Quelques résultats expérimentaux ont été décrits dans ce chapitre, plus précisément le mécanisme de la saturation de la multi-fissuration des films minces.

Plusieurs modèles mécaniques et méthodes numérique ayant pour but de représenter la fissuration ont été brièvement décrites dans ce chapitre. Parmi ces méthodes, nous retiendrons tout particulièrement la méthode des éléments finis qui offre un formalisme dans lequel les zones cohésives peuvent facilement s'intégrer. Cette méthode permet de représenter plusieurs formes de lois cohésives et s'adapte parfaitement à l'étude de la fissuration interfaciale.

Plusieurs études théoriques ont été menées pour essayer de comprendre les origines du phénomène de saturation de la multi-fissuration. Ces modèles présentent des limites en ce sens qu'ils peinent souvent à prédire les résultats expérimentaux.

A travers ce projet, nous souhaitons progresser dans la compréhension de la saturation à travers une modélisation mécanique et des calculs numériques utilisant des zones cohésives pour représenter l'amorçage et la propagation de fissures au sein du film et à l'interface film/substrat, avec une prise en compte de la plasticité du substrat qui semble être un phénomène central dans l'établissement de la structure du réseau de fissures à saturations.

Chapitre 2

Campagne expérimentale

Dans cette étude, des revêtements en couches minces d'oxyde de titane ou de zinc et d'argent ont été déposés par pulvérisation magnétron sur deux substrats polymère souple : le poly-téréphtalate d'éthylène (PET) et le poly-éthylène-co-tétrafluoroéthylène (ETFE) qui sont étudiés expérimentalement lors de tests de traction. Après une description des matériaux et des dispositifs expérimentaux utilisés, les propriétés mécaniques des substrats sont données. Des observations microscopiques des mono-couches d'oxyde de différentes épaisseurs sont réalisées pour décrire le mécanisme de multi fissuration. Dans ce chapitre seuls les résultats obtenus pour des mono-couches d'oxyde de Titane déposées sur un substrat PET sont présentés. L'influence de l'épaisseur de ces couches sur le mécanisme d'endommagement est étudiée.

Une attention est également portée à l'endommagement sous traction des revêtements comportant une couche d'argent et l'influence de l'épaisseur de cette couche ductile sur la morphologie des fissures qui apparaissent au cours du chargement.

Sommaire

2.1	Matériaux et techniques expérimentales	46
2.1.1	Les différents systèmes film/substrat étudiés	46
2.1.2	Dispositifs expérimentaux	50
2.2	Résultats expérimentaux	52
2.2.1	Echantillons	52
2.2.2	Loi de comportement en traction uniaxiale	53
2.2.3	Etude de la multifissuration des monocouches de TiOx	56
2.2.4	Endommagement des empilements fragiles/ductile	64
	Conclusion	66

2.1 Matériaux et techniques expérimentales

2.1.1 Les différents systèmes film/substrat étudiés

Les dépôts des revêtements ont été effectués au sein de l'unité de recherche Surface du Verre et Interface (SVI) de Saint-Gobain par pulvérisation cathodique magnétron. Cette technique de dépôt a été présentée dans le chapitre 0.

Dans notre travail, différents systèmes basés sur des couches d'oxyde (de titane TiOx ou de zinc ZnO) et d'argent déposés sur deux polymères présentés schématiquement sur la figure 2.1 ont été testés.

- Des mono-couches et des multi-couches déposés sur du **PET** d'épaisseur h_s égale à 50 μm
 - * TiOx//PET : h_f est égale à 25, 30, 50, 60, 100 ou 125 nm
 - * TiOx/Ag/TiOx//PET : h_f est égale à 30, 50, 60, 70, 75, 100, 105 ou 120 nm
- Des mono-couches et des multi-couches déposés sur de l'**ETFE** d'épaisseur h_s égale à 100 μm
 - * ZnO//PET : h_f est égal à 50 ou 100 nm
 - * ZnO/Ag/ZnO//ETFE : h_f est égale à 100 ou 120 nm

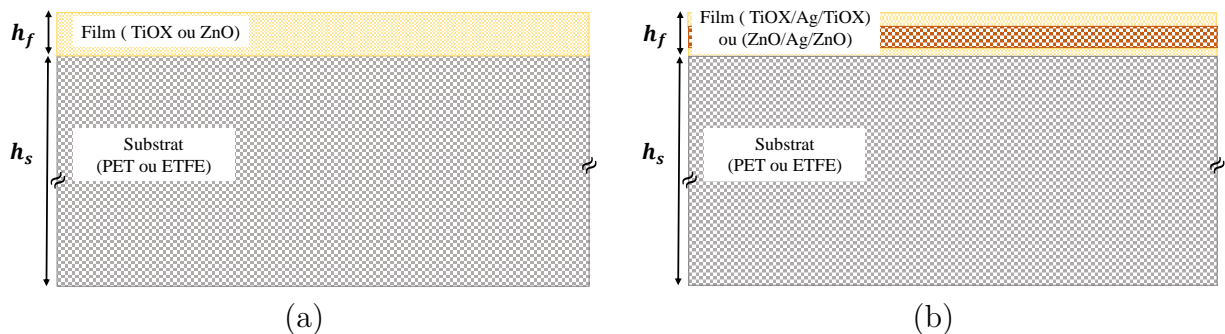


FIGURE 2.1 – Représentation schématique des systèmes revêtement/substrat pour (a) une monocouche d'oxyde (b) et un empilement multi couches d'oxyde (de titane ou de zinc) et d'argent.

Le poly-téréphtalate d'éthylène : **PET** est un thermoplastique semi-cristallin utilisé sous plusieurs formes dans différents domaines (emballages résistant au four, fibres textiles dites polaires, revêtements sur aluminium pour emballage alimentaire, films transparent pour des écrans LCD ...).

Ce polymère présente une caractéristique particulière : il peut rester amorphe lorsqu'il est refroidi rapidement. Il est transparent, plutôt rigide avec un module d'Young variant entre 2 et 4 GPa et il possède une bonne résistance au choc. Dérivé du pétrole raffiné, il est composé d'éthylène glycol $C_2H_6O_2$ et de connexions téréphtalate et partiellement transformées avec l'oxygène.

Selon la forme finale souhaitée, le PET peut être transformé par extrusion, par injection, par filage ou par extrusion-soufflage. Nos revêtements sont déposés sur des films de PET fabriqués généralement par extrusion avec filière plate appelée « cast-film ».

Le « cast-film » est un procédé industriel complexe permettant d'obtenir des films de polymères d'épaisseurs variant entre 10 μm et 300 μm . La ligne d'extrusion est composée d'une extrudeuse mono vis munie d'une tête d'extrusion avec filière droite, d'une lame d'air, de cylindres refroidisseurs et d'un ensemble de tirage et d'enroulement du film. Le polymère dans son état fondu passe à travers l'extrudeuse. Il sera par la suite étiré à l'air sur une courte distance puis refroidi très rapidement. Il enchaîne les passages entre des rouleaux successifs pour terminer son refroidissement et sera emballé sous forme de rouleaux.

Le poly-éthylène-co-tétrafluoroéthylène : **ETFE** est un co-polymère thermoplastique semi cristallin appartenant à la famille des fluopolymères plus précisément au second groupe de cette famille. Ce groupe est thermiquement plus stable et plus doux que le premier. L'ETFE a été développé pour répondre à un besoin important de polymère plus résistant mécaniquement.

Il a été utilisé dans la construction en Génie civil sous forme de films comme alternative au verre puisqu'il offre de nombreuses possibilités de design et de formes, et peut être appliqué en couche simple ou double, par exemple comme coussin pour des façades ou des toits de bâtiments.

De nombreux monuments célèbres ont été construits avec ce matériau tel que les dômes de l'Eden Project, le stade Allianz Arena à Munich ou le centre national de natation de Pékin. Ces usages découlent de ses propriétés mécaniques et thermiques remarquables. Ce co-polymère est très résistant à la déchirure et à la rupture, son élongation à la rupture est comprise entre 420 et 460% et selon la méthode de production et du fabricant, son module d'Young peut aller de 1 à 8 GPa.

Une caractéristique majeure a favorisé son utilisation dans les bâtiments : sa légèreté. Une film d'épaisseur 200 μm pèse 350 g/m^2 . Sa haute transparence, sa durabilité (durée de vie $>$ à 25 ans), sa souplesse ainsi que sa résistance aux produits chimiques les plus connus surtout à la peinture, le classe parmi les matériaux les plus innovants dans les domaines de bâtiments.

L'oxyde de zinc : **ZnO**, est un composé chimique réalisé à partir du zinc et de l'oxygène. C'est une substance insoluble dans l'eau mais stable dans l'acide et les milieux alcalins. Il est utilisé dans plusieurs domaines comme additif chimique dans l'industrie du caoutchouc, des céramiques, de la peinture ou des lubrifiants. On le trouve aussi sous forme d'additif biocompatible dans des compositions médicales ou de nombreux produits cosmétiques.

Une propriété importante du ZnO est qu'il soit semi-conducteur à grande bande interdite (3.37V) correspondant à une transition dans le proche ultraviolet. Il est transparent dans le visible et dans le proche infrarouge ce qui lui vaut un grand intérêt pour les domaines du photovoltaïque, des diodes électroluminescentes pour l'éclairage, des oxydes transparents conducteurs (TOC) ou encore des capteurs.

D'autres propriétés attractives du ZnO comme sa dureté, sa piézoélectricité et sa thermo-chromicité, lui permettent d'occuper une place importante dans l'industrie électronique sous forme de couches minces.

L'oxyde de titane : **TiO_x** se forme à la surface du titane sous forme d'une couche. Cette couche est généralement composée d'un mélange de trois différents oxydes : TiO_2 , TiO et Ti_2O_3 . Elle a comme fonction principale de protéger le titane de la corrosion et de ralentir la libération des ions titane. L'oxyde le plus stable et le plus utilisé étant le dioxyde de titane TiO_2 . Le TiO_2 est largement employé dans les domaines de haute technologie du fait de sa résistance à la corrosion ou sa biocompatibilité conduisant à sa présence comme revêtement d'implants chirurgicaux.

Tout comme le ZnO, il est utilisé dans l'industrie photovoltaïque pour son coefficient de réfraction élevé. Il possède une constante diélectrique élevée ce qui permet son utilisation dans les dispositifs *MOSEFT* (*Metal Oxide Semiconductor Field Effect Transistor*). Ce semi-conducteur possède également une activité photo-catalytique reconnue, lui permettant d'être utilisé par exemple pour les vitres autonettoyantes.

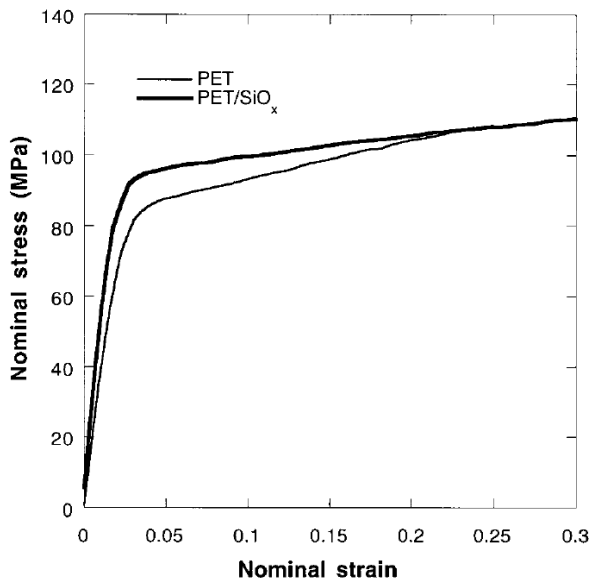
L'argent : **Ag** est utilisé sous forme des couches minces dans plusieurs applications. Un dépôt de couche mince en Ag sur un vitrage permet une économie d'énergie en limitant son émissivité thermique : on parle alors de vitrage à basse émissivité (présenté dans le chapitre 0).

En effet les vitrages standards ont une émission de 0.84 sur l'ensemble du spectre, ce qui signifie qu'il rayonne 84% du maximum théorique. Un vitrage à basse émissivité (appelé Low E) ne laisse échapper que 4% de la chaleur qu'il reçoit. Pour arriver à ce résultat, une couche mince métallique transparente d'or, d'argent ou de bismuth est déposée sur la surface intérieure de la vitre. Le vitrage empêche alors les rayonnements solaires de grandes longueurs d'onde (i.e. infrarouge) de quitter la pièce.

Grâce à sa réflectivité élevée, les radiations thermiques provenant du chauffage par exemple se conservent mieux dans une pièce équipé d'un vitrage à basse émissivité (avantage évident en hiver) Une couche mince d'épaisseur comprise entre 20 et 50 nm est transparente favorisant son utilisation pour ce type d'application. La nature de la couche utilisée dépend des longueur d'onde d'infrarouge que l'on veut laisser passer ou non.

Sur la figure 2.1(b), une couche d'argent est emprisonnée entre deux couches d'oxyde principalement diélectriques ce qui permet d'ajuster les propriétés optiques de l'empilement dans le domaine du visible et de l'infrarouge. Ces couches diélectriques possèdent aussi d'autres fonctions, comme par exemple d'assurer une bonne croissance de la couche d'argent, ou d'empêcher la migration des éléments alcalins du verre par exemple lorsqu'il est utilisé comme substrat ou encore d'améliorer la durabilité chimique et mécanique des empilements. Ces couches diélectriques sont souvent des couches d'oxydes tels que ZnO , TiO_2 , SnO_2 , $SnZnO$ et/ou de nitrures (Si_3N_4). Ces couches minces déposées sont, en général, polycristallines : elles se composent de grains dont les joints de grains constituent les défauts.

En plus de leurs capacités diélectriques et optiques, les couches d'oxyde permettent aussi d'améliorer les propriétés mécaniques du substrat en polymère sur lequel elles sont déposées. En effet, Leterrier et al. [51], ont effectué des essais de traction uniaxial sur des échantillons en PET nu et d'autres en PET/ SiO_x dont les résultats sont montrés sur la figure 2.2. Ils ont montré que l'ajout de cette couche mince d'oxyde de silicium SiO_x de 100nm d'épaisseur permet d'augmenter le module d'Young et la limite élastique du système PET/ SiO_x par rapport au substrat nu. De plus, les travaux réalisés par Bachari et al en 2001 [5] ont montré la grande efficacité des couches minces de ZnO déposées par pulvérisation cathodique pour protéger le polymère (PET) sur laquelle elles sont déposés contre la photo-dégradation.



Material	Elastic Modulus (MPa)	Nominal Yield Stress (MPa)	Nominal Yield Strain (%)
PET	3920	85.0	2.1
PET/SiO _x	4550	95.0	2.0

(a)

(b)

FIGURE 2.2 – Résultats d'essais de traction uniaxiale effectués sur un substrat en PET nu et en présence d'un couche mince d'oxyde de silicone SiO_x de 100 nm d'épaisseur [51] (a) Courbe de la contrainte nominale en fonction de la déformation nominale (b) Tableau récapitulatif des propriétés mécaniques des systèmes testés.

2.1.2 Dispositifs expérimentaux

La caractérisation mécanique de nos substrats est primordiale pour la suite de notre étude expérimentale et numérique. Pour cela, des essais de traction uni-axiale sur des substrats nus ont été effectués au SIMaP.

La machine de traction, employée dans notre étude est une Tinius Olsen (voir la figure 2.3). Elle possède une cellule de force de 5 kN et permet de tester à température ambiante une large gamme de matériaux. Cette machine est composée de deux mors auto-serrants : un fixe et un autre mobile.

Les essais sont pratiqués à une vitesse de déplacement constante qui varie entre $0,1$ et 200 mm/min . Cette machine est équipée d'un capteur de force fixé sur la traverse mobile et d'un capteur de déplacement. Ces mesures permettent de remonter aux champs de contraintes et de déformations subis par l'échantillon en cours de la traction, et ainsi extraire la loi de comportement du matériau.



FIGURE 2.3 – Machine de traction uni-axiale Tinius Olsen.

L'analyse de la multi fissuration et du cloquage des couches minces nécessite généralement des observations in-situ sous microscopes numériques ou optiques ([30, 15]), des microscopes à force atomique AFM ([56, 18, 16]) ou microscopes électroniques à balayage MEB ([35, 59]).

Pour notre étude, des essais de micro-traction ou micro-déplacement à température ambiante ont été réalisés sur une machine DEBEN (Figure 2.4). Cette micro machine de traction est destinée à une utilisation in-situ. Munie d'une cellule de force de 5 kN , ses

deux mors se déplacent simultanément au cours du chargement et sont liés à un capteur de force et un extensomètre donnant respectivement la force appliquée et la position des mors.

Le pilotage de cette machine et l'enregistrement en contenu de la force et le déplacement pendant l'essai se fait à travers un ordinateur via une interface graphique. La vitesse de déplacement des mors est imposée et constante de manière à obtenir une vitesse de déformation sur la longueur utile de l'échantillon de l'ordre de 0,2 à 4 %/s.

Pour nos essais, la vitesse de déformation a été choisi à 1 %/s.

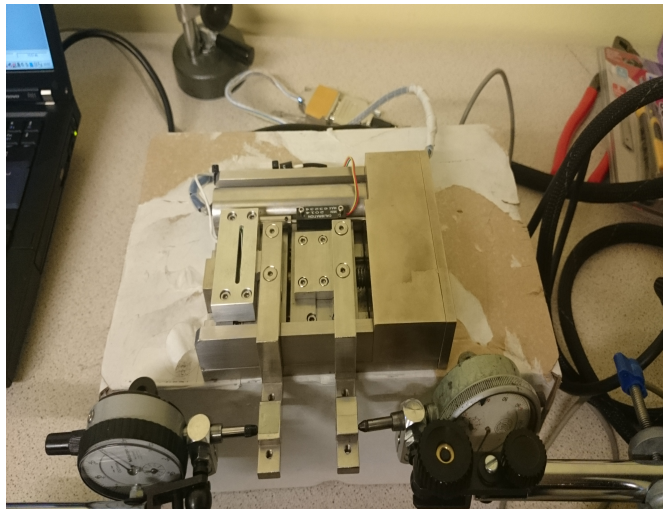


FIGURE 2.4 – Machine de micro traction DEBEN.

Afin d'observer l'apparition des fissures dans les revêtements, notre micro-machine de traction a été placée sous un microscope numérique Keyence de la série VHX-5000. Ce microscope permet l'observation des fissures apparues sur les échantillons en traction. Un objectif de haute résolution permettant un grossissement de 500 à 5000x à une distance d'observation minimale de 4,4mm a été fixé sur un support mobile motorisé dans les 3 axes XYZ offrant une possibilité d'analyse selon un angle libre. L'objectif se déplace seulement dans la direction Z à un angle fixe de 0° permettant une mesure perpendiculaire à la surface des échantillons.

Pour les observations in-situ des fissures, la machine DEBEN a été placée sur une platine pilotée en X et en Y équipée d'un éclairage LED à transmission comme le montre la figure 2.5. Les essais de traction sont interrompus à plusieurs niveaux de déformation. A chaque arrêt, plusieurs images à différentes résolutions sont prises afin d'analyser l'évolution de la distance inter fissures au cours du chargement.

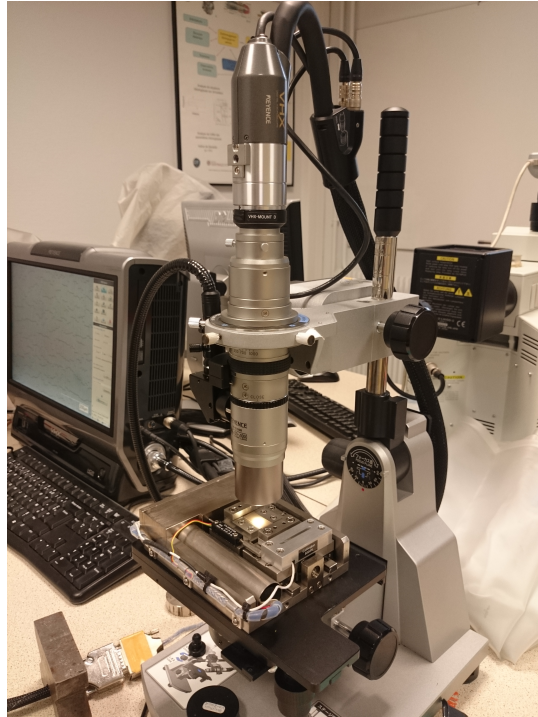


FIGURE 2.5 – Observations in situ sous microscope numérique de la distance inter fissure.

2.2 Résultats expérimentaux

En utilisant les dispositifs expérimentaux présentés précédemment, des essais de traction sont effectués pour déterminer les comportements mécaniques de deux substrats (PET et ETFE). D'autres essais de traction in-situ combinés à des observations microscopiques ont été utilisés pour visualiser le processus d'endommagement des empilements présentés sur la figure 2.1.

Les résultats de ces différents tests sont présentés dans cette section.

2.2.1 Echantillons

Plusieurs études ([79, 8, 51]) ont montré l'influence des propriétés mécaniques du substrat en polymère sur la multifissuration des films minces. Il est donc nécessaire d'identifier les propriétés mécaniques de nos substrats : le PET et l'ETFE.

Ces polymères ont été caractérisés en traction uniaxiale sous une machine Tinius Olsen. Pour cela des éprouvettes de traction conformes à la norme ISO 527-1 (Figure 2.6) ont été découpées sur une machine de découpe automatique du CEA de Grenoble.

Pour les systèmes film(s)/substrat qui feront l'objet d'une observation in-situ sous microscope numérique (Keyence) on ne s'intéresse pas à la rupture. Donc des simples bandes

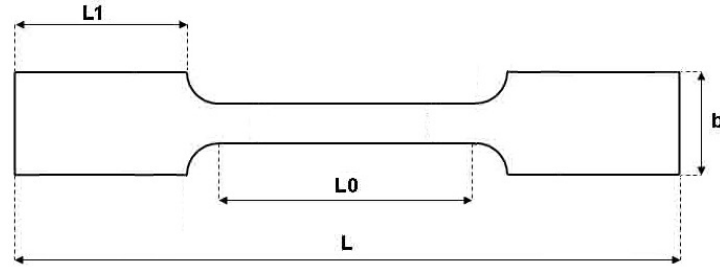


FIGURE 2.6 – Modèle d'éprouvette de traction normalisée utilisée pour l'essai de traction ($L_0=50\text{mm}$, $L_1=10\text{mm}$, $L=80\text{mm}$ et $b=10\text{mm}$).

rectangulaires de $50 \times 5\text{mm}^2$ ont été découpées et placées dans la machine de micro-déplacement (Deben).

2.2.2 Loi de comportement en traction uniaxiale

Essai de traction des substrats en polymère

La figure 2.7 montre l'évolution de la contrainte globale $\sigma = F/S_0$ où $S_0 = 2.5\text{mm}^2$ en fonction de la déformation globale $\epsilon = \Delta L/L_0$ où $L_0 = 50\text{mm}$ pour nos deux polymères. Conformément à la norme ISO 527-2, les modules élastiques en traction sont calculés comme suit :

$$E_T = \frac{\sigma_{0.005} - \sigma_{0.0025}}{\epsilon_{0.005} - \epsilon_{0.0025}} \quad (2.1)$$

Où : $(\sigma_{0.005}, \epsilon_{0.005})$ et $(\sigma_{0.0025}, \epsilon_{0.0025})$ sont les points sur les courbes de la figure 2.7 pour un déplacement respectivement de 0.005 et 0.0025 mm. En effet, ces points sont choisis de telle sorte à garantir que les polymères sont bien dans leur domaine élastique.

Les propriétés mécaniques des deux polymères sont regroupées dans le tableau suivant :

Ploymère	E_s (GPa)	σ_y (MPa)	ϵ_y (%)	R_m (MPa)	A (%)
PET	4 ± 0.3	95 ± 7.5	2.4 ± 0.8	223 ± 12	98 ± 8.5
ETFE	1 ± 0.55	21 ± 3.5	2.1 ± 0.75	57 ± 5	450 ± 10

TABLE 2.1 – Propriétés mécaniques du PET et de l'ETFE en traction uniaxiale.

Avec :

- $E_s = E_T$: le module de Young donné par l'équation (2.1)
- σ_y : la contrainte à la limite élastique

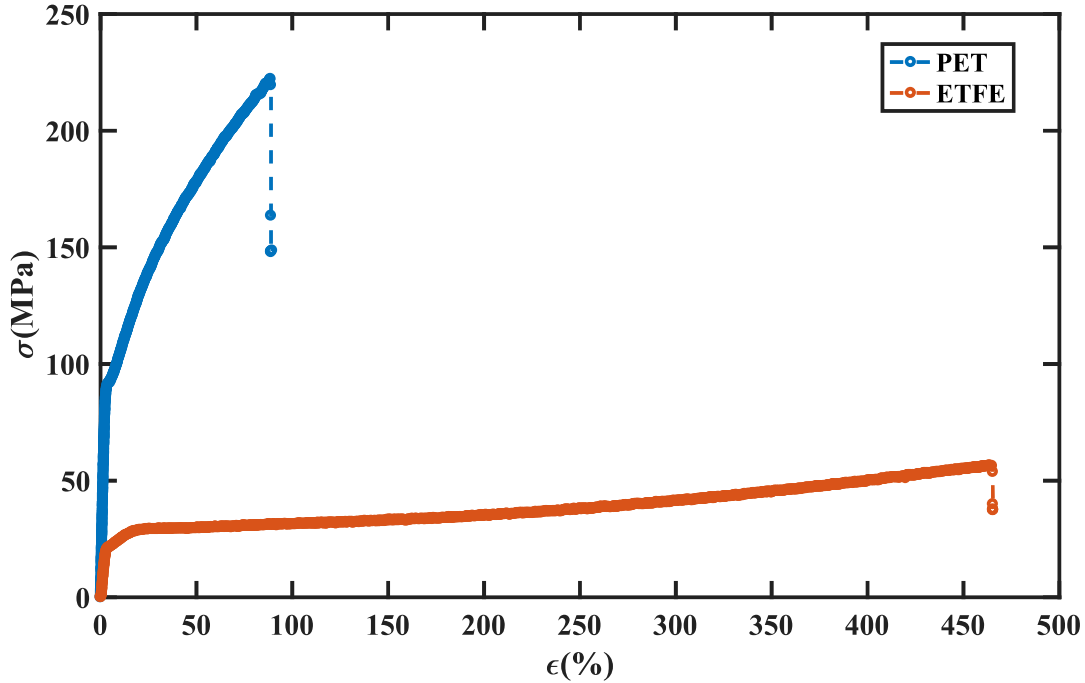


FIGURE 2.7 – Évolution de la contrainte en fonction de la déformation pour le PET (en bleu) et pour l'ETFE (en rouge) à une vitesse de déplacement de **3 mm/min**.

- ϵ_y : la déformation à la limite élastique
- R_m : la contrainte de rupture
- A : l'allongement maximal

Bien que les polymères présentent un comportement élasto-plastique, l'ETFE s'avère beaucoup plus souple et plus résistant que le PET. Cela est directement lié à leur microstructure : un ETFE est un co-polymère qui résulte d'une polymérisation régulière ou aléatoire d'au moins deux monomères différents, alors que le PET est un homopolymère qui comporte des motifs de monomères tous identiques.

Les deux courbes de la figure 2.1 débutent par une pente quasi-linéaire à l'origine. Sur la figure 2.1 pour une déformation $\epsilon \leq 2.5\%/s$, le PET (courbe bleue) est dans son domaine élastique avec un module d'Young $E_f \approx 4 \text{ GPa}$. Sa limite élastique pour une vitesse de déplacement de 3 mm/min est autour de 95 MPa . Au-delà de cette limite, le polymère subit un écrouissage et le module d'Young sécant ou effectif est égal à $E_{EC} \approx 140 \text{ MPa}$.

En ce qui concerne l'ETFE, la courbe de traction fait apparaître trois régimes distincts (courbe rouge). Le polymère se déforme élastiquement pour une déformation $\epsilon \leq 2.1\%/s$ avec un module de Young $E_f \approx 1 \text{ GPa}$. Pour des déformations comprises entre 2.1% et 20%, un premier écrouissage apparaît. Le polymère entre dans un domaine plastique ca-

ractérisé par un module de Young sécant de $E_{EC_1}=28\text{MPa}$. Pour des déformations supérieures à 20%, un deuxième régime d'écrouissage commence. Le module de Young sécant subit une diminution et est égal à $E_{EC_2} \approx 4\text{MPa}$. Le substrat supporte une grande élongation jusqu'à 450% et se déforme plastiquement avec une contrainte presque constante $\sigma_p = 27\text{MPa}$.

A des vitesses de sollicitation plus importantes, les deux polymères sont plus rigides. En fait, le polymère subit un durcissement structural lié à l'orientation des chaînes selon la direction principale de déformation. Par suite, les chaînes du polymère n'ont pas le temps de se réorienter lors de l'extension.

Ce durcissement peut être rapide (cas du PET) ou très lent (cas de l'ETFE). Il est influencé par la vitesse de déformation (comme le montre la figure 2.8) et surtout par la température de l'essai (non testé dans cette étude).

Effet de la vitesse de sollicitation

Les polymères sont des matériaux sensibles à la vitesse de déformation. Le comportement viscoélastique se traduit par une réponse réversible mais fonction du temps ou de la vitesse de sollicitation. Ce comportement est essentiellement assuré par la phase amorphe dans les polymères semi-cristalin.

Des tests de tractions uni axiale à différentes vitesses pour les deux polymères dans cette étude ont été effectués et leurs résultats sont présentés sur la figure 2.8.

On remarque que pour le PET, la limite d'élasticité augmente de 5,26 % pour une vitesse de déformation de 1%/s et de 15,78% à 2%/s par rapport à la valeur obtenue à 0.1%/s.

Pour l'ETFE, on constate une augmentation de la limite élastique de 14,28 % à une vitesse de 1%/s par rapport à la limite trouvée à 0.1%/s. Le ETFE est plus viscoélastique que le PET. La différence microstructurale entre les deux polymères peut expliquer ce décalage macroscopique.

Une influence de la vitesse de traction est peu existante. Pour les deux polymères on remarque une légère augmentation plus de la limite d'élasticité.

Cette influence a été aussi montrée dans les travaux de J. Marthelot [54] qui il a tracé l'évolution de la contrainte nominale en fonction de la déformation nominale lors des essais de traction uniaxiale sur du ETFE pour différentes vitesses de déformations (voir la figure 2.9). Il a montré l'existence d'un petit saut des courbes de la contrainte pour les vitesses les plus élevées. La limite d'élasticité semble augmenté de moins de 4MPa en passant d'une vitesse de 0.25%/s à 25%/s.

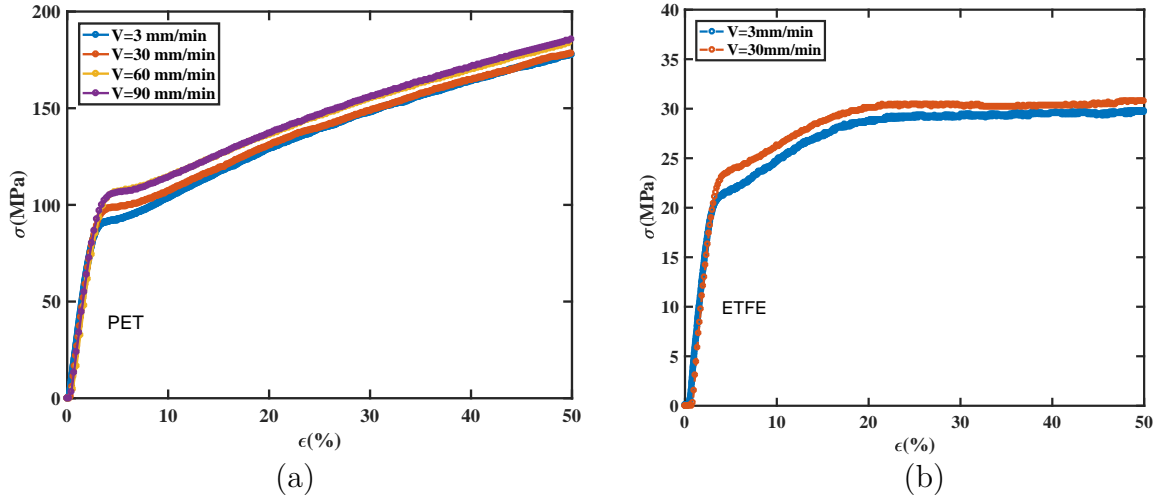


FIGURE 2.8 – Mise en évidence de l'effet de la vitesse de déplacement sur le comportement mécanique (a) du PET (4 différentes vitesses de déplacement : 3 mm/min (en bleu), 30 mm/min (en rouge), 60 mm/min (en jaune) et 90 mm/min (en violet)) (b) de l'ETFE (2 différentes vitesses de déplacement : 3 mm/min (en bleu), 30 mm/min (en rouge)).

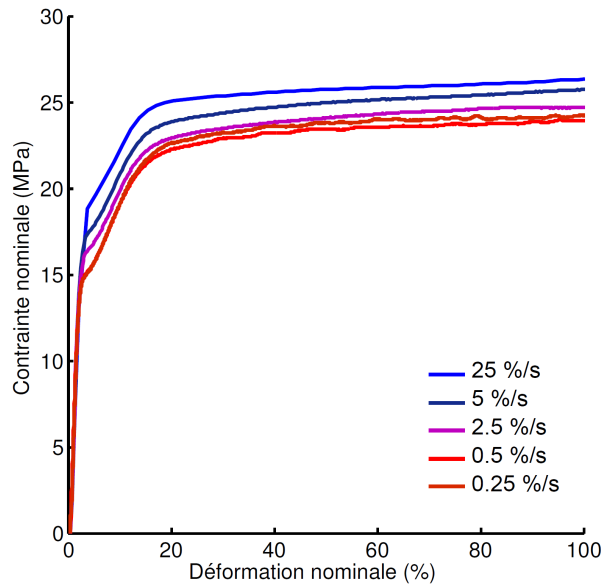


FIGURE 2.9 – Évolution de la contraînte nominale en fonction de la déformation nominale pour pour le ETFE à différentes vitesses de déformation[54].

2.2.3 Etude de la multifissuration des monocouches de TiOx

Dans cette section, nous nous intéressons à des couches d'oxyde de Titane déposée sur du PET. Nous avons développé les résultats des observations microscopiques et nous

avons expliqué le mécanisme de multi fissuration de la couche avec un intérêt particulier pour l'influence de l'épaisseur.

La figure 2.10 montre la surface de la couche d'oxyde pour des échantillons sollicités en traction uni-axiale à différents niveaux de déformation. On constate un endommagement progressif qui se traduit par une densité de fissures qui augmentent très rapidement jusqu'à une saturation. En effet à partir d'environ 10% de déformation, presque aucune nouvelle fissure n'apparaît sur la surface du revêtement alors que l'échantillon continue de s'étirer. On remarque aussi l'apparition de cloques de délaminage dans le sens de compression par effet Poisson.

A n'importe quel niveau de déformation, les fissures sont parallèles et traversent toute la zone d'observation dans une direction perpendiculaire à la direction du chargement. Une analyse approfondie de l'endommagement de cette couche d'oxyde, montre que les fissures se propagent sur la quasi-totalité de la longueur du revêtement.

Ces observations ont été déjà présentées dans plusieurs travaux ([51, 17, 54, 16]). Dans [54], des observations sous MEB et sous AFM des monocouches de ZnO sur un substrat en ETFE ont montré que les fissures dans le film ne pénètrent pas dans le substrat.

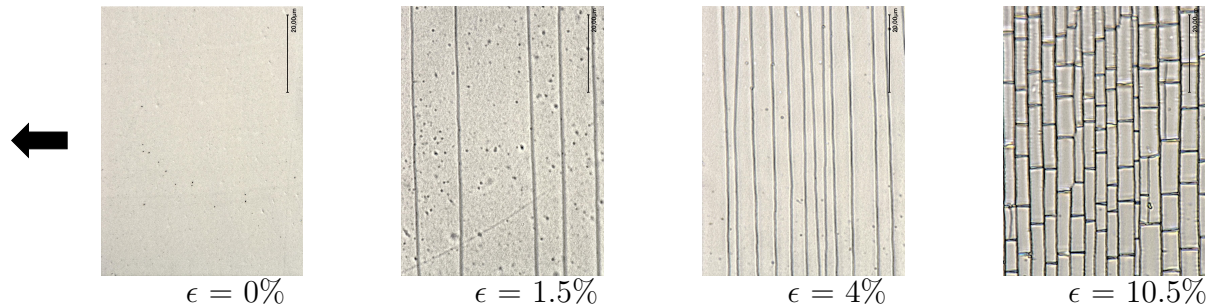


FIGURE 2.10 – Multifissuration d'une couche d'oxyde de titane TiOx d'épaisseur 60nm déposée sur un substrat en PET à différents niveaux de déformation. Les flèches noires désignent le sens de la traction.

L'historique de l'apparition des fissures (i.e : l'évolution de leur densité en fonction de la déformation imposée) dans la couche d'oxyde de titane TiOx est représenté sur la figure 2.11. Trois phases peuvent être distinguées :

- **Phase I : Apparition aléatoire de fissures**

Les premières fissures qui apparaissent pour de faible niveau de déformation sont contrôlées par une distribution statistique des défauts. Ces défauts se forment généralement au cours du processus de fabrication.

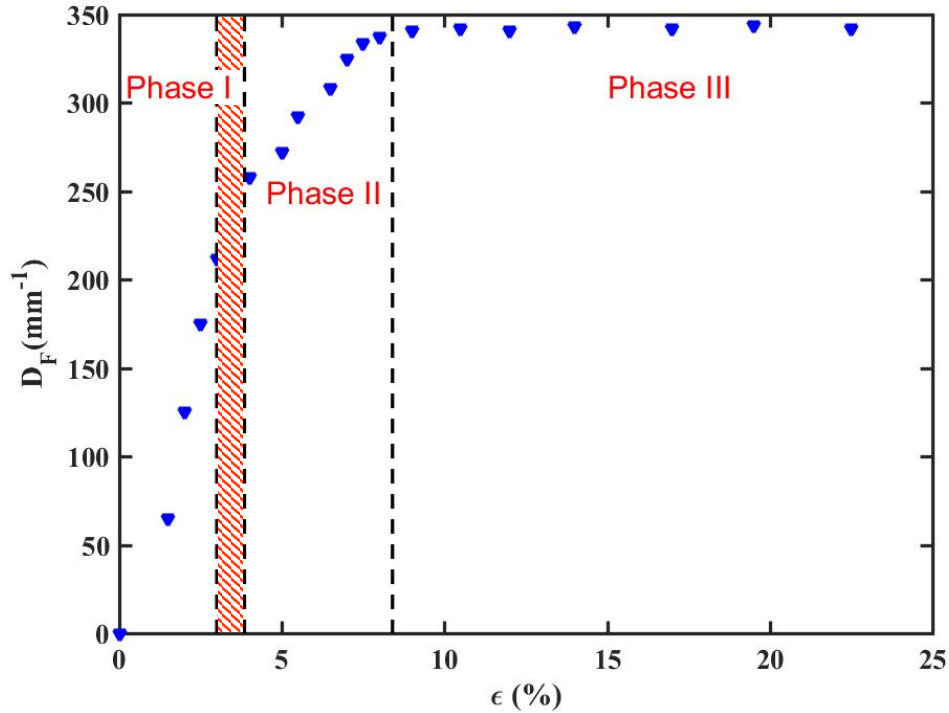


FIGURE 2.11 – Evolution de la densité des fissures au cours du chargement pour une couche d'oxyde de titane TiO_x de 60 nm d'épaisseur déposée sur un substrat en PET.

Nous avons constaté qu'au cours de ce stade les fissures se propagent très rapidement sur la totalité de la zone d'observation. Au cours de ce premier stade, l'interaction entre les fissures est négligeable et les longueurs des fragments H formés sur la surface du film sont importantes.

Un paramètre important peut-être quantifié : la déformation critique ϵ_{crit} de l'apparition des premières fissures. Pour cet exemple i.e couche d'oxyde d'épaisseur 60 nm $\epsilon_{crit} \approx 1.3\%$.

Il reste difficile de savoir la fin exacte de cette phase donc le début de la phase suivante ; cela nécessite des sollicitations très lentes et des observations plus fines des images expérimentales. Pour plusieurs échantillons étudiés, nous avons pu observer le début de la phase suivante entre 3.5 et 4.25 % de déformation.

- **Phase II : Fissures intermédiaires**

Les nouvelles fissures se forment dans une zone située presque au milieu de deux anciennes fissures déjà existantes permettant ainsi aux anciens fragments de se casser en deux.

La pente de la courbe représentée sur la figure 2.11 diminue notablement. Les observations microscopiques au cours de cette phase montrent que les fissures apparaissent plus difficilement et se propagent plus lentement sur la totalité de zone d'observation.

L'apparition de ces nouvelles fissures est contrôlé dans cette phase par l'interaction

élastique entre les fissures et par transfert de l'effort via l'interface ([36, 51, 77]). On peut remarquer aussi la formation de quelques cloques de délaminage à partir d'un niveau de déformation $\epsilon_{cloq} \approx 5\%$. Cela est directement lié à l'augmentation de la déformation transverse sous effet Poisson, permettant ainsi la relaxation de la contrainte du film.

- **Phase III : Saturation et cloquage**

Au cours de cette phase, un arrêt du processus de fragmentation est observé. Le mécanisme dominant dans cette phase est plutôt le cloquage.

Les fragments de la couche formés n'arrivent plus à se charger jusqu'à la limite de rupture. Par contre, dans le sens de la compression, la déformation générée devient de plus en plus élevée et la densité de cloques augmente très rapidement jusqu'à finir aussi par saturer. Il n'y a donc plus de transfert d'effort du substrat à la couche ni en traction ni en compression à très forte déformation.

Une distance interfissure de saturation L_{sat} peut aussi être déduite de la densité de fissure à saturation. Dans le cas d'une couche de TiOx de 60 nm d'épaisseur, on a une densité à saturation d'environ 340 mm^{-1} soit une $L_{sat} \approx 2.9 \mu\text{m}$

2.2.3.1 Influence de l'épaisseur de la couche

Dans la suite de ce travail, nous nous sommes intéressés à l'endommagement de monocouches d'oxyde de différentes épaisseurs (25, 50, 75, 100 et 125 nm) déposées sur du PET pour mettre en évidence l'effet de l'épaisseur sur le mécanisme de fissuration. Cet effet a déjà été montré dans plusieurs travaux ([59, 58, 72, 50, 54, 48]).

Les images des états finaux de ces couches (ie : 25% de déformation) sont présentées sur la figure 2.12.

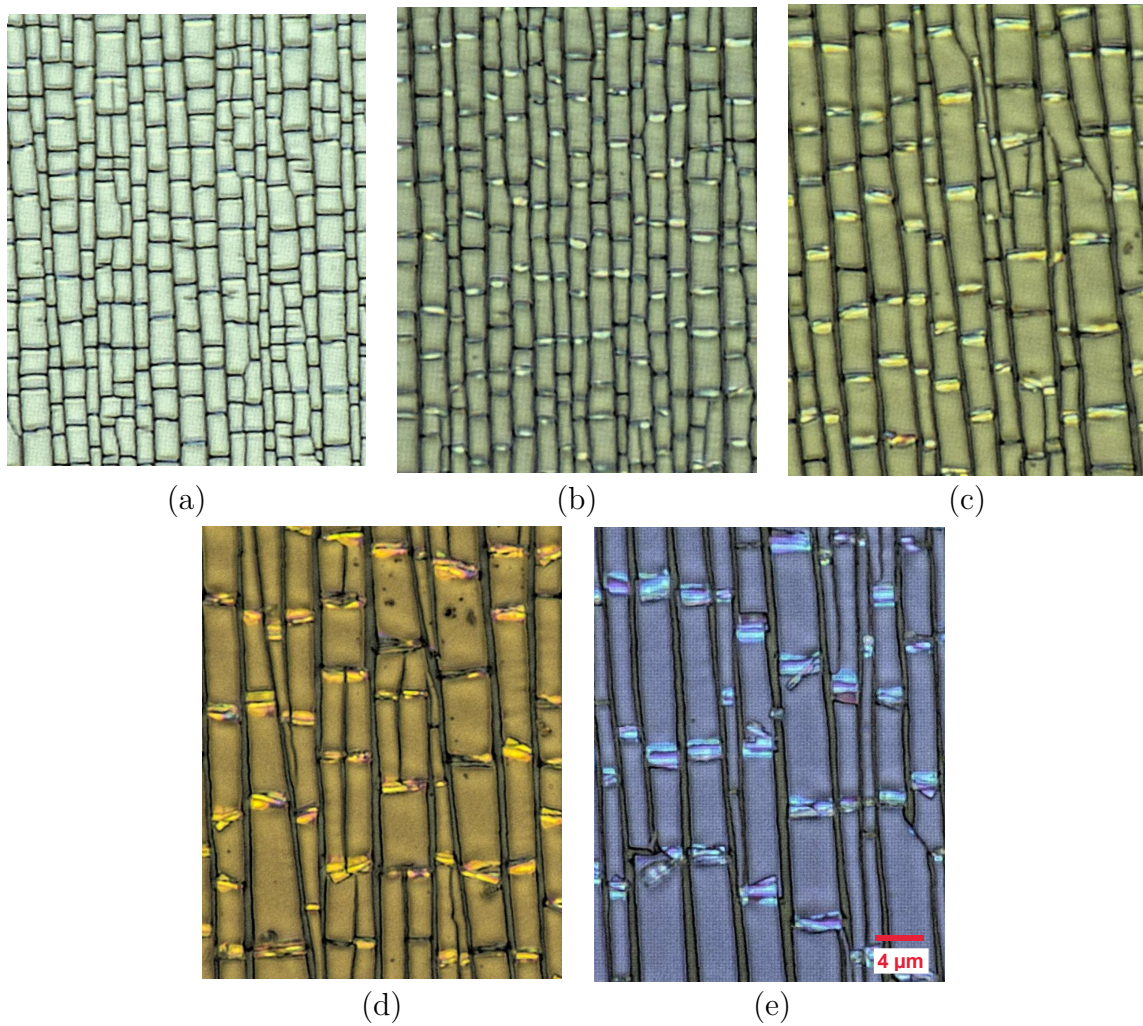


FIGURE 2.12 – Fissuration d’une monocouche d’oxyde de titane d’épaisseur $h_f = 25$ nm (a), 50 nm (b), 75 nm (c), 100 nm (d) et 125 nm (e) ; à 20% de déformation

En traçant l’évolution de la distance inter-fissures pour les différentes épaisseurs (Figure 2.13), nous avons remarqué que les trois phases décrites ci-dessus sont présentes. Une analyse détaillée de ces trois phases montre l’influence de ce paramètre (Tableau 2.2).

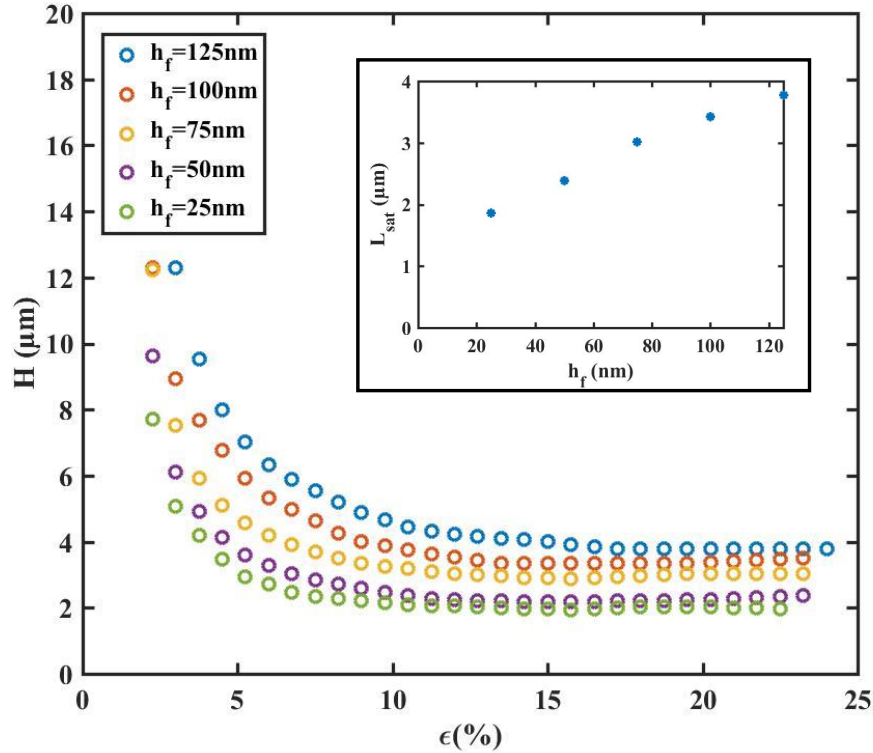


FIGURE 2.13 – Évolution de la distance inter-fissures au cours du chargement pour différents épaisseurs de film : 125 nm (en bleu), 100 nm (en rouge), 75 nm (en jaune), 50 nm (en violet) et 25 nm (en vert).

h_f (nm)	ϵ_{crit} (%)	L_{sat} (µm)	D_F (mm ⁻¹)	D_{cloq} (mm ⁻²)
25	1.9 ± 0.2	1.8 ± 0.12	558 ± 36	87601 ± 105
50	1.55 ± 0.2	2.3 ± 0.18	420 ± 18	72237 ± 120
75	1.15 ± 0.2	3 ± 0.15	330 ± 15	33693 ± 144
100	0.95 ± 0.2	3.4 ± 0.08	292 ± 25	21025 ± 128
125	0.76 ± 0.2	3.9 ± 0.1	265 ± 32	14016 ± 132

TABLE 2.2 – Tableau récapitulatif des différents paramètres de la multi fissuration des monocouches d'oxydes de titane TiOx de différentes épaisseurs déposées sur un substrat en PET

Nous avons constaté que ces valeurs sont du même ordre de grandeur que les résultats de la multi fissuration des monocouche d'oxyde de Silicium de différentes épaisseurs déposées par PVD sur un substrat en PET (Letterier et al. [50]).

La figure 2.13 (courbe en insertion) montre que la distance inter-fissures augmente avec l'épaisseur du film h_f . Cet effet a déjà été observé dans les plusieurs travaux expérimentaux ([50, 16, 54]).

Cela peut être expliqué par le fait que la déformation critique d'apparition des fissures

ϵ_{crit} est inversement proportionnelle à l'épaisseur du film (Tableau 2.2). Nous avons constaté d'après les observations microscopiques et les résultats regroupés dans le tableau 2.2 qu'au cours de la première phase de la multi fissuration, la déformation critique d'apparition des fissures ϵ_{crit} varie de $1.9 \pm 0.2 \%$ à $0.76 \pm 0.2 \%$ pour une épaisseur h_f qui augmente de 25 à 125 nm.

Dans [50], Leterrier et al ont déjà montré cet effet pour des films en oxyde de Silicium déposé sur du PET. Ils ont trouvé que ϵ_{crit} augmente de 1.2 à 2 % quand h_f passe de 156 à 30 nm. Dans [16], Cordill et al ont montré que pour des films fragiles en chrome, ϵ_{crit} est lié principalement à la densité de défauts. Cette dernière augmente avec h_f par suite ϵ_{crit} diminue.

Dans notre étude, la couche d'oxyde de Titane possède un module de Young ≈ 100 GPa. D'après les valeurs de ϵ_{crit} données dans le tableau 2.2, la valeur moyenne de la limite de rupture σ_r varie entre 1900 et 760 MPa pour des épaisseurs qui augmentent de 25 à 125 nm.

2.2.3.2 Prédiction des modèles de relaxations de contraintes

Les modèles théoriques de relaxations des contraintes au voisinage d'une fissure dans le film (modèle de *Shear Lag*) de Hu et Evans [35] et de Agrawal et Raj [1] ont été détaillés dans le chapitre 0. En utilisant les propriétés du film et du substrat, les auteurs ont proposé un encadrement de la distance entre les fissures à saturation L_{sat} . Ces modèles se basent sur la relaxation de contrainte du film aux bords des fissures par transfert d'une contrainte de cisaillement du substrat au film via l'interface. Hu et Evans supposent que ce cisaillement est constant sur une longueur L_{relax} alors que Agrawal et Raj proposent une évolution sinusoïdale de ce cisaillement sur la même distance. Tous les deux prennent l'hypothèse d'un substrat élasto-plastique parfait. Les encadrements suivants sont obtenus :

$$\left\{ \begin{array}{l} \sqrt{3}h_f \frac{\sigma_r}{\sigma_y} < L_{sat} < 2\sqrt{3}h_f \frac{\sigma_f}{\sigma_y} ; \text{Modèle de Hu et Evans} \\ \pi\sqrt{3}h_f \frac{\sigma_r}{\sigma_y} < L_{sat} < 2\pi\sqrt{3}h_f \frac{\sigma_f}{\sigma_y} ; \text{Modèle d'Agrawal et Raj} \end{array} \right. \quad (2.2)$$

Nous avons mené à une comparaison entre les valeurs de L_{sat} mesurées expérimentalement et celles prédites par les deux modèles en se basant sur les deux équations 2.2.

Les valeurs expérimentales de L_{sat} sont placées sur la figure 2.14 en bleu. En utilisant les propriétés de nos couches d'oxyde de titane et en adaptant chaque σ_r à chaque h_f , nous avons tracé les valeurs des limites inférieures et supérieures de L_{sat} prédites par le modèle de Hu et Evans (figure 2.14(a)) et celles prédites par le modèle d'Agrawal et Raj (figure 2.14(b)).

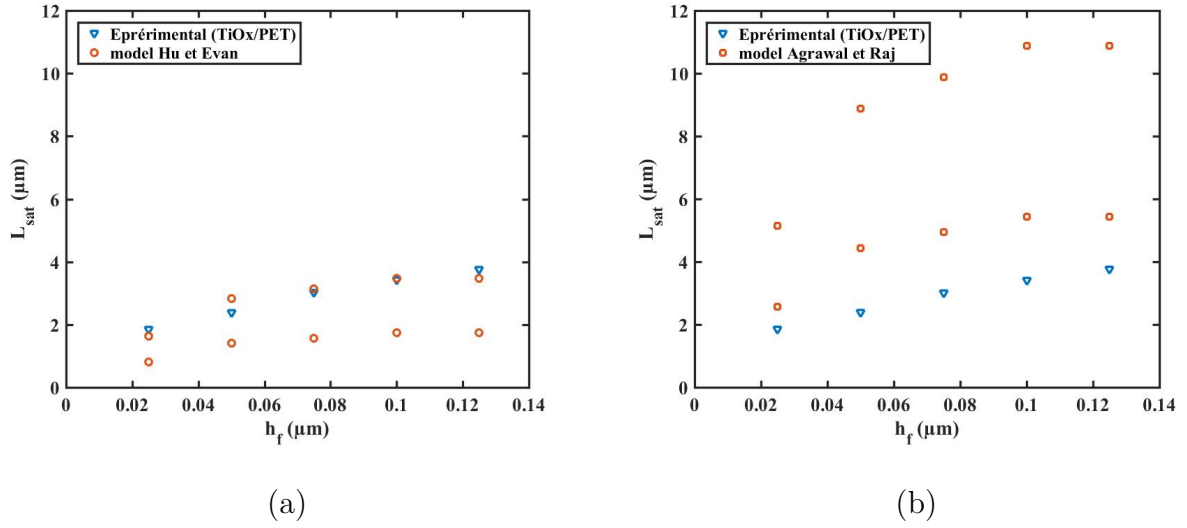


FIGURE 2.14 – Comparaison entre les distances moyennes entre les fissures L_{sat} trouvés expérimentalement (en bleu) et (a) les prédictions des limites inférieure et supérieure de L_{sat} donnée par (a) le modèle de He et Evans [35] et (b) le modèle d’Agrawal [1].

D’après ces courbes, nous observons que l’évolution de L_{sat} moyenne trouvée expérimentalement (courbe en bleu) en fonction de h_f n’est pas parfaitement linéaire. Pour les modèles théoriques, cette non linéarité est aussi présente.

Malgré le fait que ces modèles supposent une loi élastique plastique parfaite pour le substrat, l’encadrement de L_{sat} proposé par Hu et Evans rend compte des résultats expérimentaux. Par contre, le modèle d’Agrawal et Raj surestime la distance entre les fissures. Cette tendance est aussi trouvée à partir des résultats expérimentaux de Lettierier et al [50]. Nous avons pu constater que les prédictions données par le modèle de Hu et Evans se rapprochent beaucoup de L_{sat} expérimentale mais le modèle d’Agrawal surestime les valeurs de L_{sat} .

Dans le cas où le polymère possède une limite d’élasticité plus basse, comme pour le ETFE avec $\sigma_Y=15\text{MPa}$, les encadrements analytiques (2.2) sont souvent mis en défaut. Dans [54], si on prend l’exemple d’une couche d’épaisseur 100nm, la distance entre les fissure à saturation L_{sat} trouvée expérimentalement est $3.5\mu\text{m}$. La déformation critique de rupture du film ϵ_r est estimée à 0.8% de déformation, ce qui donne une limite de rupture σ_r de 800MPa. Les prédictions de la limite minimale et maximale proposées par le modèle de Hu et Evans sont respectivement égale 10.96 et $21.93\mu\text{m}$. Celle du modèle d’Agrawal sont plus élevées et égales respectivement à 34.46 et $68.92\mu\text{m}$. On remarque que pour le cas d’une couche de ZnO d’épaisseur 100nm déposée sur un substrat en ETFE, les deux modèles théoriques surestiment L_{sat} .

Une approche d'ajustement de la limite élastique du substrat σ_Y avec une limite équivalente $\bar{\sigma}_Y$ permet aux modèles théoriques de prédire un meilleur encadrement de L_{sat} . Pour le PET, le modèle d'Agrawal et Raj (voir la figure 2.14(b), la limite équivalente $\bar{\sigma}_Y$ permettant d'encadrer les résultats expérimentaux est autour de 220MPa qui s'approche de sa limite de rupture R_m .

En ce qui concerne l'ETFE (résultats de la thèse de J.Marthelet [54]), une limite équivalente $\bar{\sigma}_Y \approx 90\text{MPa}$ pour modèle de Hu et Evans et $\bar{\sigma}_Y \approx 210\text{MPa}$ pour celui d'Agrawal et Raj leur permettent de s'approcher des résultats expérimentaux d'une couche d'épaisseur de 100nm.

Dans le chapitre suivant, un modèle 2D numérique prendra en compte le comportement élasto-plastique du substrat. Nous allons étudier l'influence de la contrainte critique de rupture σ_r sur la distance inter fissure à saturation L_{sat} .

Dans la suite de ce chapitre, nous allons étudier, la multi fissuration des empilements de couches en oxyde et en argent déposés sur un substrat en PET (Figure 2.1(b)).

2.2.4 Endommagement des empilements fragiles/ductile

Dans la première partie de ce chapitre, la multi-fissuration d'une monocouche d'oxyde de titane a été étudiée. Mais, dans la plupart des revêtements utilisés dans les applications industrielles, des multicouches composées d'une ou plusieurs alternances des couches métalliques et oxydes sont utilisées. Pour notre étude, on a choisi d'étudier la configuration présentée par la figure 2.1(b).

Dans cette section, seuls les empilements composés d'une couche d'argent (Ag) entre deux couches d'oxydes de titane (TiOx) déposées sur un substrat en PET seront présentés.

Nous avons pu constater un changement dans le mécanisme d'endommagement des empilements en présence de la couche métallique. Les images présentées sur la figure 2.15 montrent l'état de la surface du revêtement au cours de chargement.

A 2% de déformation (figure 2.15(a)), des petites fissures (en zigzag) très localisées apparaissent et se propagent sur une petite longueur sur la surface de l'échantillon. En augmentant la déformation, plusieurs petites fissures apparaissent à la surface de l'échantillon avec une longueur de moins en moins importante (voir la figure 2.15(b)). Dans ce cas la direction de propagation des fissures n'est plus perpendiculaire à la direction du

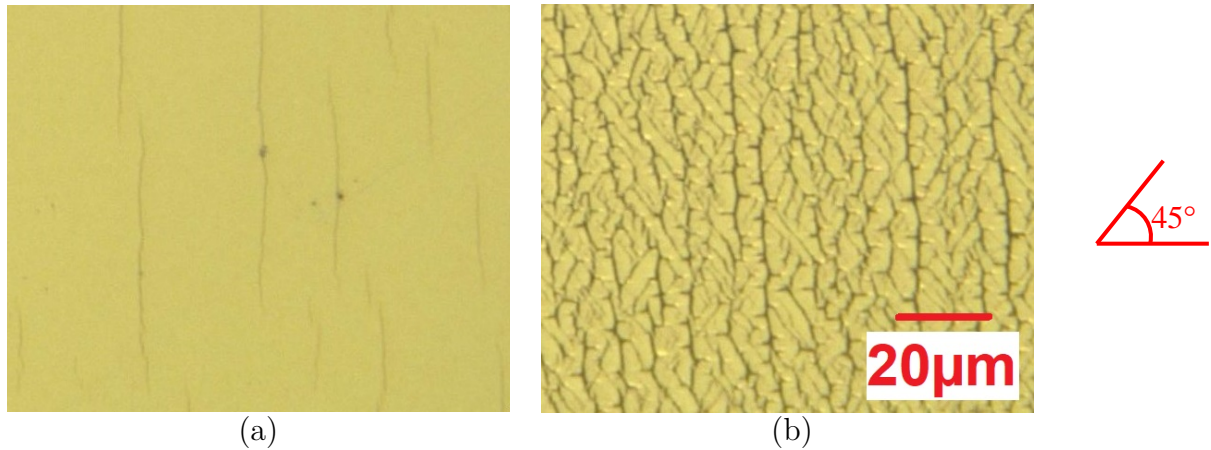


FIGURE 2.15 – Etat de fissuration d'un empilement de multicouches (TiOX,Ag,TiOx) d'épaisseurs respectivement (10,60,15)nm à (a) 2% (b) 25% de déformation.

chargement. La direction privilégiée de l'endommagement est de 45° de la direction de sollicitation. Cette inclinaison peut être due au champ de cisaillement qui se développe après la fissuration de la couche métallique.

Plusieurs travaux se sont intéressés à la fissuration des couches métalliques [17, 54]. Ils ont montré que l'adhésion entre le revêtement et le substrat est meilleure en présence d'une couche d'oxyde mais cela n'empêche pas l'endommagement. Le fait que l'orientation des fissures est à 45° et les propriétés interfaciales sont bien meilleures en présence de la couche d'argent, nous avons constaté une diminution très marquée des cloques de délaminage sur l'échantillon. Sur la figure 2.15(b), les cloques se forment à partir des fissures presque droites apparues généralement à faible niveau de déformation. Elles sont plus courtes et moins nombreuses comparées à celle des monocouches d'oxyde.

La variation de l'épaisseur de la couche d'argent influence notablement le mécanisme de fissuration. Sur la figure 2.16, nous avons présenté l'état d'endommagement de différents empilements ayant des épaisseurs d'oxyde de Titane identiques et différentes épaisseurs de couches d'argent.

Dans le premier cas présenté sur la figure 2.16(a), une faible couche d'argent d'épaisseur 10nm a été insérée entre deux couches d'oxyde de zinc d'épaisseur 30nm chacune. Des fissures « fragiles » identiques à celles observées pour les monocouches d'oxyde apparaissent. Ces fissures traversent toute la surface de l'échantillon dans une direction perpendiculaire à la direction de sollicitation comme le cas des monocouches d'oxydes.

Tandis que pour des épaisseurs d'argent plus élevées (figure 2.16(b) et (c)), ce mécanisme disparaît laissant place à des fissures « ductile ». Il s'agit dans ce cas de fissures

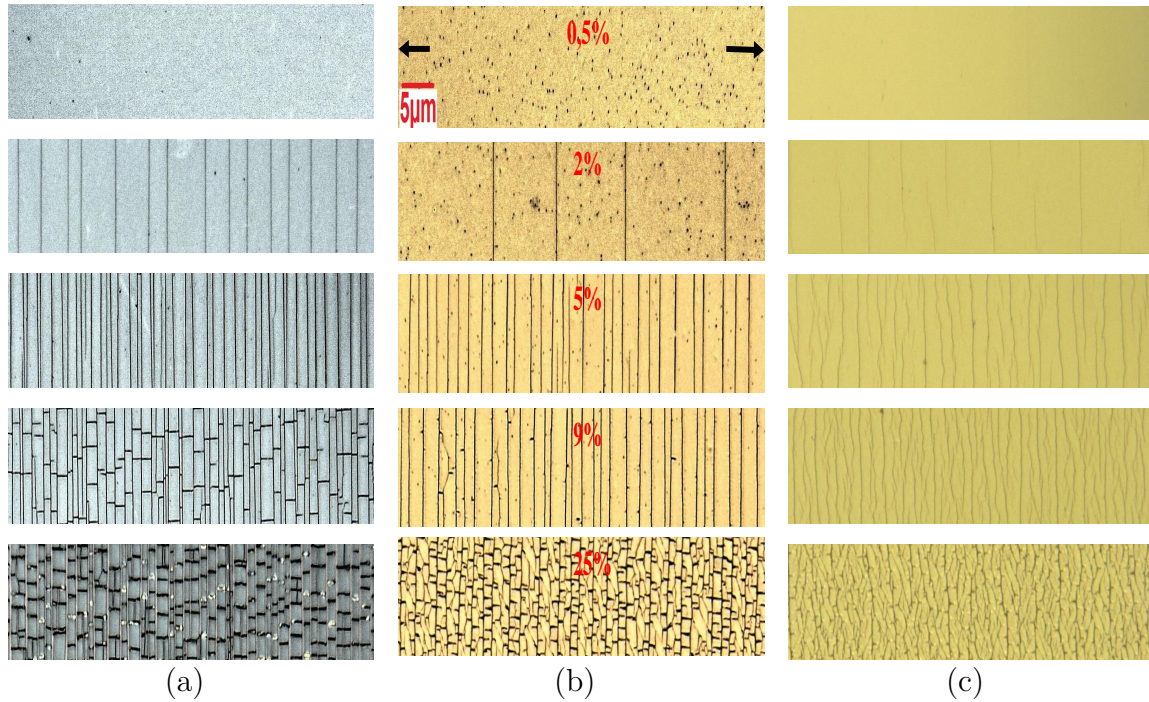


FIGURE 2.16 – Evolution de l'apparition des fissures à différents niveaux de déformation pour des empilements de multicouches (TiOx,Ag,TiOx) d'épaisseurs (a) (30,10,30)nm (b) (30,50,30)nm (c) (30,80,30)nm.

courtes qui se propagent en zigzag sur la surface de l'empilement. J.Marthelet et al [54] ont aussi observé le même processus d'endommagement pour des empilement de couches d'oxyde de zinc et d'argent sur du ETFE.

Pour le cas d'un empilement possédant une couche d'argent d'épaisseur 50nm (figure 2.16(c)), nous avons distingué aussi la coexistence des deux mécanismes d'endommagement. Pour des faibles niveaux de déformation $>$ à 9%, les fissures traversantes causées par l'aspect fragile des couches d'oxyde apparaissent. Pour des déformations plus importantes, la couche ductile va influencer le mécanisme de fissuration donnant lieu à des fissures ductiles en zigzag. Par conséquent, il existe une épaisseur critique h_{fc} de la couche d'argent ou un rapport critique entre l'épaisseur des couches fragiles et de la couche ductile à partir duquel il y aura une transition d'une fissuration droite à une fissuration en zigzag.

Conclusion

Dans ce chapitre, la partie expérimentale a été détaillée. Les deux substrats (PET et ETFE) utilisés dans cette étude ont été caractérisés.

L'étude de la fragmentation des monocouches d'oxyde de titane de différentes épaisseurs déposés sur un substrat de PET a été menée. Cela a révélé l'existence de 3 phases

de fissurations. En dessous d'une déformation critique d'apparition de fissures ϵ_{crit} , la fragmentation est gouvernée par les défauts pré-existants dans la couche. Ensuite, l'interaction élastique entre les fissures augmente et les nouvelles fissures apparaissent au centre des fragments déjà fissurés et leurs densités augmente jusqu'à atteindre une saturation.

L'influence de la présence d'une couche d'argent sur la fragmentation de l'empilement a été aussi étudiée. En changeant l'épaisseur de cette couche ductile, nous avons remarqué que les fissures peuvent passer des fissures droites et traversantes toute la longueur de l'échantillon (« fragiles ») à des fissures courtes avec une propagation en zigzag à $\approx 45^\circ$ (« ductiles »).

Pour mieux comprendre l'influence du comportement élasto-plastique sur l'endommagement du revêtement, un modèle 2D simulant le phénomène de multifissuration d'une monocouche d'oxyde fragile déposé sur un substrat souple élasto-plastique sera développé en détail dans le chapitre suivant.

Chapitre 3

Modélisation mécanique et simulation numérique

Dans le chapitre précédent, la démarche expérimentale pour l'identification du comportement mécanique du substrat ainsi que le mécanisme d'endommagement des films minces ont été présentés.

A partir de ces résultats expérimentaux, un modèle mécanique 2D utilisant des zones cohésives pour représenter la fissuration est développé. Les méthodes employées et les points essentiels à la réalisation de l'implémentation numérique sous le logiciel d'éléments finis ABAQUS sont précisés, comme le type d'éléments, les lois de comportement, les conditions aux limites et le chargement.

L'utilisation de modèle des zone cohésive (MZC) requiert le choix d'un ensemble de paramètres tels que la raideur initiale, la taille des éléments, l'énergie de rupture et la traction maximale à l'initiation de la rupture. Une étude paramétrique sera accomplie afin d'évaluer l'influence des différents paramètres sur les résultats des simulations.

L'analyse des résultats du modèle permettra de comprendre l'influence de la plasticité du substrat sur le mécanisme d'endommagement du film mince en particulier au stade de la saturation de la multi-fissuration. Le délaminage de l'interface film/substrat sera aussi considéré. L'endommagement du substrat sera aussi brièvement examiné en fin d'étude.

Sommaire

3.1	Présentation du modèle	70
3.1.1	Choix du modèle de zones cohésives MZC	70
3.1.2	Insertion dans le modèle	72

3.1.3	Maillage et conditions aux limites	73
3.2	Modélisation de la multi-fissuration	73
3.3	Étude paramétrique des facteurs influençant L_{sat}	78
3.3.1	Influence de T_{max}	78
3.3.2	Influence de ΔT_{max}	80
3.3.3	Influence de l'interface	81
3.3.4	Influence de la loi de comportement en régime plastique du substrat	82
3.4	Cellule représentative : CR	84
3.4.1	Présentation	85
3.4.2	Étude d'un cas	85
3.4.3	Influence de la taille de la cellule	89
3.4.4	Influence de l'épaisseur du film	94
3.4.5	Influence de l'écroissage	95
3.5	Comparaison des résultats du grand modèle avec ceux de la cellule représentative	99
3.6	Influence du substrat	100
	Conclusion	108

3.1 Présentation du modèle

Le modèle mécanique 2D décrit dans cette partie et implémenté numériquement dans ABAQUS, aura pour principal objectif la simulation de la multi-fissuration d'un film mince fragile déposé sur un substrat en polymère élasto-plastique, avec un délaminage interfacial rendu possible.

3.1.1 Choix du modèle de zones cohésives MZC

Afin de décrire l'endommagement d'un élément cohésif, on a choisi une loi de traction-séparation bilinéaire proposée par Camanho [12] représentée sur la figure 3.1. Cette loi a été décrite dans le premier chapitre, section 1.4. Nous reprenons ici l'essentiel de la description et nous détaillons le critère d'amorçage ainsi que l'évolution du paramètre d'endommagement.

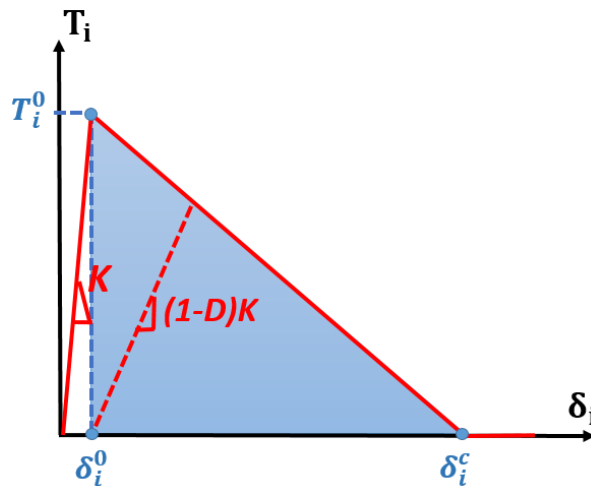


FIGURE 3.1 – Évolution de la loi traction/ouverture bilinéaire. $i = n$ si l'ouverture est normale (mode I) et $i = t$ si l'ouverture est tangente au plan de la fissure (mode II).

Cette loi est implémentée dans le logiciel ABAQUS, est caractérisée par trois paramètres indépendants :

- La traction maximale à l'initiation de la rupture $T_{i,0}$
- L'ouverture critique $\delta_{i,c}$, au delà de laquelle plus aucune interaction n'existe entre les lèvres de la fissure ($T = 0$), ou bien alternativement, le travail de séparation $G_{i,c}$ aire sous la courbe $T = f(\delta)$.
- La raideur K

Les vecteurs traction \vec{T} et ouverture $\vec{\delta}$ peuvent être décomposés suivant leur composante normale (δ_n, T_n) correspondant au mode I et leur composante tangentielle dans le plan de la fissure (δ_t, T_t) correspondant au mode II. La loi linéaire adoucissante décrite par la figure 3.1 comporte deux stades. Avant d'atteindre le pic de traction, la loi traction-ouverture est linéaire réversible : $\vec{T} = K\vec{\delta}$.

Pour l'initiation, nous avons choisi un critère quadratique. Ainsi, le pic de traction est atteint pour un couple $(T_n, T_t) = (T_n^0, T_t^0)$ vérifiant :

$$\left(\frac{T_n^0}{T_{n,max}}\right)^2 + \left(\frac{T_t^0}{T_{t,max}}\right)^2 = 1 \quad (3.1)$$

L'ouverture à l'amorçage est $\delta^0 = (\delta_n^0, \delta_t^0)$

Une fois le pic atteint (deuxième stade), l'adoucissement intervient avec pour résultat une diminution de la traction.

Le choix de la norme de l'ouverture à séparation complète, $\delta^c = \sqrt{(\delta_n^c)^2 + (\delta_t^c)^2}$, détermine un travail de séparation $G_c = \frac{1}{2}\delta^c T^0$, avec $T^0 = \sqrt{(T_n^0)^2 + (T_t^0)^2}$.

La loi d'adoucissement est gérée par une variable d'endommagement D avec :

$$\vec{T} = K(1 - D)\vec{\delta} \quad (3.2)$$

La variable D est définie par :

$$D = \frac{\delta^c}{\delta} \left(\frac{\delta - \delta^0}{\delta^c - \delta^0} \right) \quad (3.3)$$

avec $\delta = \sqrt{\delta_n^2 + \delta_t^2}$

On a ainsi :

$$\vec{T} = T^0 \left(\frac{\delta^c - \delta}{\delta^c - \delta^0} \right) \left(\frac{\vec{\delta}}{\delta} \right) \quad (3.4)$$

Finalement, le choix de T_n^0 et T_t^0 se fait par le critère quadratique. Le choix de δ_c détermine ensuite complètement \vec{T} dans le phase d'adoucissement comme le montre l'équation (3.4).

On peut noter deux choses importantes dans notre cas particulier.

- Nous considérons que l'ouverture de l'interface avant initiation de la rupture est artificielle. Nous choisissons K tel que δ^0 soit négligeable devant δ_c
- En raison du chargement auquel est soumis le film, nous aurions pu remplacer le critère quadratique par un critère sur T_n uniquement tel que $T_n^0/T_{n,max} = 1$. En pratique, on a en effet toujours $|T_t| \ll |T_n|$ pour les fissures apparaissant dans le film, et donc $T_n^0 \approx T_{max}$.

3.1.2 Insertion dans le modèle

Pour simuler la multi-fissuration d'un film mince, une densité élevée de sites potentiels de nucléation de fissures est autorisée comme le montre la figure 3.2.

Entre chaque couple d'éléments voisins du film, un élément cohésif est inséré. Chaque trait rouge sur la figure 3.2 contient ainsi plusieurs éléments cohésifs et forme une seule zone cohésive ZC permettant de simuler une fissure possible dans l'épaisseur du film.

On obtient une distance entre chaque ZC égale à la taille de l'élément choisi pour le film. Ce choix permet d'éviter une influence du maillage sur la saturation des fissures, dans le mesure où la taille d'un élément est très petite devant la distance inter-fissure à saturation.

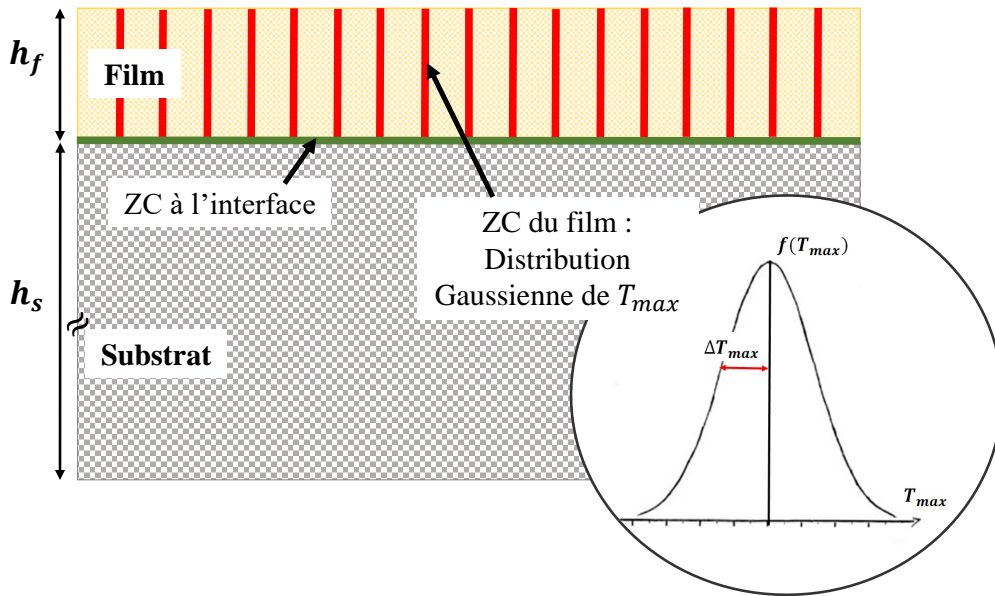


FIGURE 3.2 – Représentation schématique du modèle numérique 2D de multi fissuration.

Il faut noter qu'une distribution de T_{max} a été choisie pour les ZC du film pour éviter les ouvertures simultanées des fissures. Ceci permet de prendre en compte le régime aléatoire du premier stade de la fissuration et également de définir un problème bien posé numériquement, évitant une ouverture simultanée et identique de l'ensemble des fissures. On note ainsi :

$$T_{max}^{(i)} = \bar{T}_{max} + \delta T_{max}^{(i)} \quad (3.5)$$

Avec $T_{max}^{(i)}$ la contrainte critique à l'amorçage de l*i*-ème zone cohésive, \bar{T}_{max} la valeur moyenne de la distribution et $\delta T_{max}^{(i)}$ la valeur du bruit pour la *i*-ème zone cohésive. Ce qui permet à chaque $T_{max}^{(i)}$ de suivre une loi Gaussienne dont la valeur moyenne \bar{T}_{max} et un écart type ΔT_{max} (Figure 3.2 en bas à droite).

La modélisation du délaminage interfacial est beaucoup plus simple. Des éléments cohésifs de paramètres identiques ont été insérés tout au long de l'interface film/substrat (trait vert sur la figure 3.2). Pour mieux s'approcher de la réalité, tous les éléments cohésifs ont une épaisseur initiale nulle.

3.1.3 Maillage et conditions aux limites

Pour cette simulation, on travaille sous l'hypothèse de déformation plane. Pour les ZC, des éléments cohésifs à 4 nœuds ont été choisis (appelés COH2D4 dans ABAQUS). Pour le film et le substrat, le choix était d'utiliser des éléments à déformation plane à 4 nœuds (CPE4). Le maillage été choisi de telle sorte à garantir qu'il y a au moins 5 éléments dans l'épaisseur du film. Le maillage du film est uniforme contrairement au substrat. Pour ce dernier, on a utilisé la même taille que celle utilisé dans le film sur une épaisseur égale à l'épaisseur du film puis la densité du maillage est progressivement augmentée en descendant vers le bas du substrat, grâce à l'utilisation d'éléments triangulaires à 3 nœuds (CPE3). Ce procédé est nécessaire en raison de la très grande épaisseur du substrat par rapport au film

Le modèle est de longueur L . Un déplacement horizontal U est imposé sur le bord droit (i.e $x = L$). Le bord gauche (i.e $x = 0$) est bloqué horizontalement et celui du bas est bloqué verticalement.

Des conditions périodiques ont été introduite dans la cellule de calcul de telle sorte que tous les points du bord droit et du bord gauche ont le même déplacement vertical : $U_y(0, y) = U_y(L, y) \forall y$ où x et y sont les coordonnées d'un point quelconque dans le modèle.

3.2 Modélisation de la multi-fissuration

Afin de valider le modèle, nous comparons les prédictions de ce dernier à des résultats obtenus dans le cadre de la thèse de J.Marthelet [54] sur la multi-fissuration d'un film d'oxyde de zinc (ZnO) sur un substrat en poly-éthylène-co-tétrafluoroéthylène (ETFE).

Pour cela, une épaisseur de film $h_f=0.1 \mu\text{m}$ est choisie. Ce dernier est considéré comme élastique isotrope de module d'Young $E_f=100\text{GPa}$ et de coefficient de Poisson $\nu_f=0,35$.

Le substrat ETFE est considéré comme élasto-plastique isotrope à écrouissage iso-

trope. Son comportement mécanique est déduit de courbes d'essais de traction [54] présentées sur la figure 3.3(a).

Les propriétés plastiques ne semblent pas évoluer de manière significative avec la vitesse de déformation. Nous avons retenu la valeur de 1GPa pour le module d'Young, et une limite d'élasticité σ_{Y1} de 15MPa (obtenue pour $\dot{\epsilon} = 0.25\%/s$).

Un écrouissage de type bi-linéaire a été retenu, basé sur les données expérimentales. On a ainsi les deux points ($\epsilon_{Y1} = 1,5\%$, $\sigma_{Y1} = 15\text{MPa}$) et ($\epsilon_{Y2} = 20\%$, $\sigma_{Y2} = 23\text{MPa}$) reportées sur la figure 3.3(b).

Les modules tangents des deux plages d'écrouissage sont respectivement : $E_{s1} = 70\text{MPa}$ et $E_{s2} = 4\text{MPa}$.

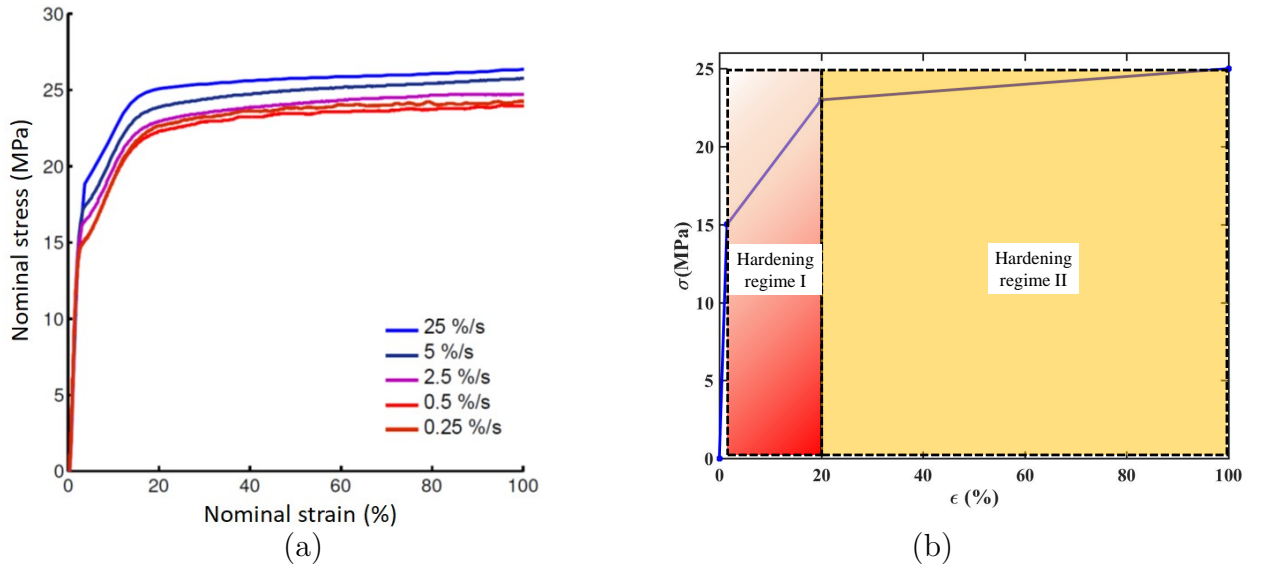


FIGURE 3.3 – Loi de comportement de l'ETFE (a) donnée par [54] après des essais expérimentaux de traction uni-axiale (b) insérée dans le modèle mécanique ; écrouissage bi-linéaire donnée par les points ($\epsilon_{Y1} = 1,5\%$, $\sigma_{Y1} = 15\text{MPa}$) et ($\epsilon_{Y2} = 20\%$, $\sigma_{Y2} = 23\text{MPa}$).

En ce qui concerne les zones cohésives introduites dans le film, on a choisi un $T_{n,max} = T_{t,max} = T_{max} = 400\text{MPa}$ et $\Delta T_{max} = 10\% T_{max}$. Cela signifie que T_{max} des CZ du film varient entre 360 et 440 MPa. Leur G_c est fixé à $0,8\text{J}/\text{m}^2$.

Pour la ZC de l'interface, on a pris $T_{n,max} = T_{t,max} = T_{max}^{int} = 100\text{MPa}$ avec une énergie de séparation $G_c = 5\text{J}/\text{m}^2$.

La longueur totale du modèle est $L = 30\ \mu\text{m}$. Le déplacement maximum imposé est égal à $0.15\ \mu\text{m}$, ce qui correspond à une déformation nominale imposée de $\bar{\epsilon} = 50\%$.

Chaque élément ayant une taille de $0.02\ \mu\text{m}$, 1498 sites potentiels de fissuration sont ainsi insérés dans le film.

La figure 3.4(a) représente l'état final de la contrainte dans le sens de la traction dans le système à $\bar{\epsilon}=50\%$. Les ouvertures (trous) dans le film correspondent à toutes les zones cohésives ouvertes. Parmi tous les sites possibles de fissuration, on distingue à la fin de l'essai que seulement 6 fissures se sont ouvertes.

Sur la figure 3.4(b), la distribution de la contrainte dans le film est tracée. Les positions de fissures correspondent à une contrainte moyenne nulle (i.e. un bord libre). A la fin de la simulation, la contrainte moyenne sur chaque fragment formé n'atteint plus une valeur suffisante pour générer des nouvelles fissures. On arrive donc au stade de la saturation de la fissuration, observée aussi expérimentalement.

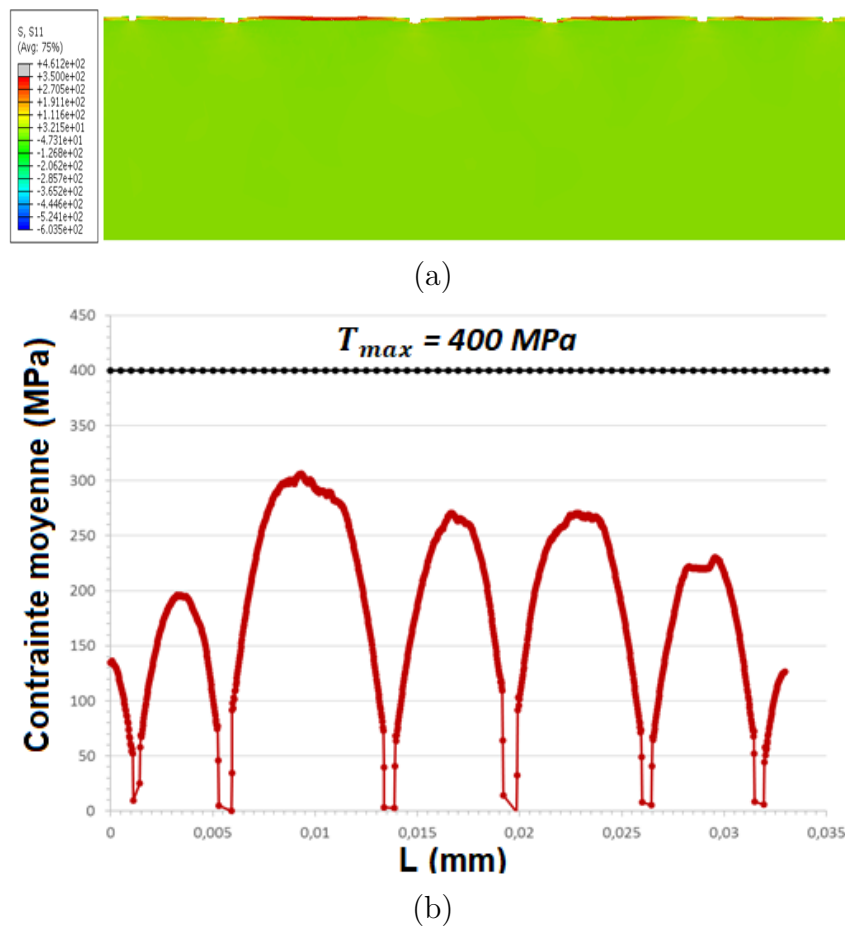


FIGURE 3.4 – Résultats de la simulation numérique avec le modèle de la multi fissuration à $\bar{\epsilon}=50$ (a) l'état final de la contrainte dans le sens de la traction dans le système. (b) Contrainte moyenne dans le substrat $\bar{\sigma}$ dans le film sur la direction x .

Pour mieux comprendre l'origine de cette saturation, on s'est intéressé aux niveaux intermédiaires de déformation. Les cartographies de la déformation plastique équivalente ainsi que la distribution de la contrainte moyenne dans le film sont présentées sur la figure 3.5.

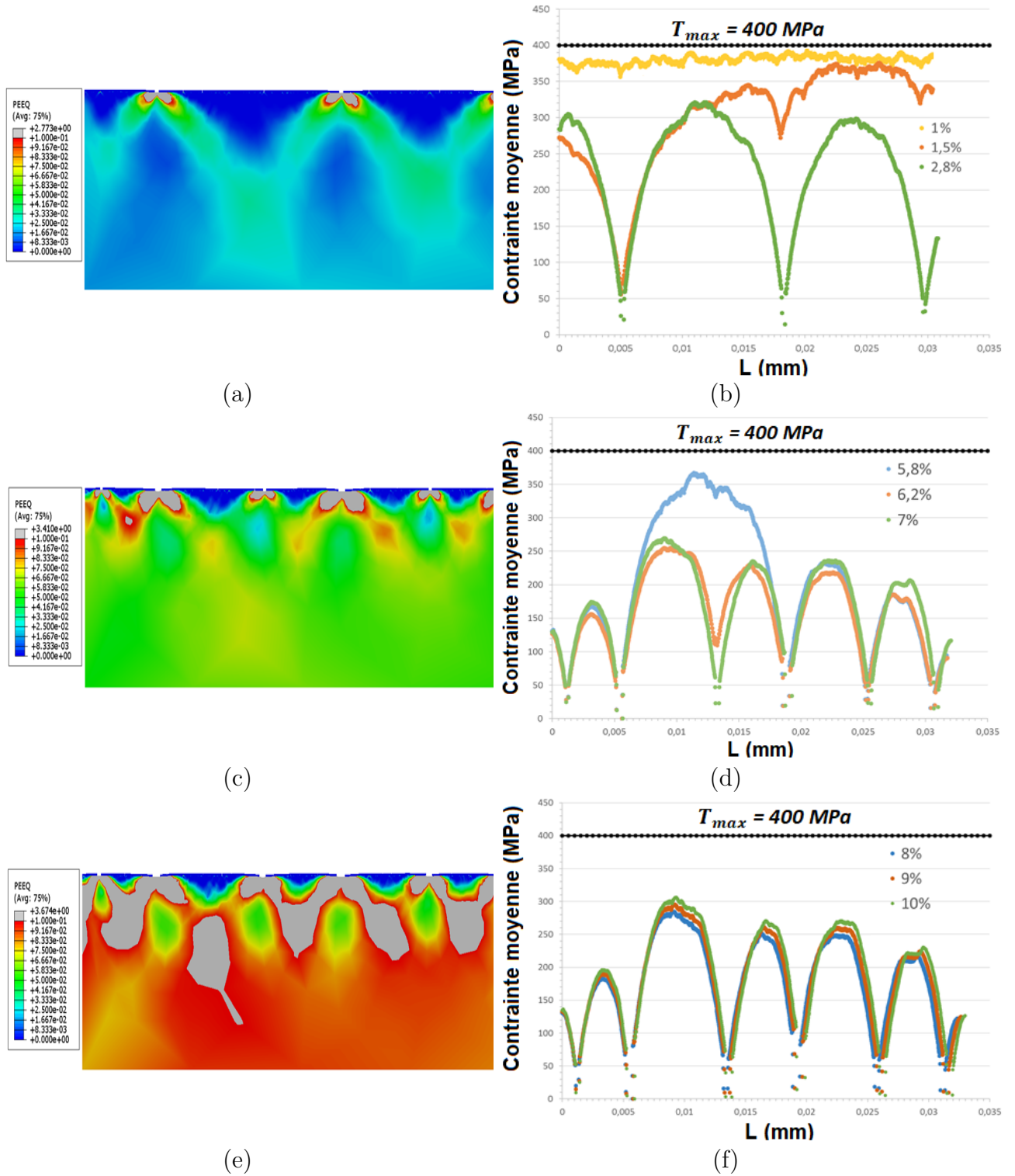


FIGURE 3.5 – Résultats de la simulation numérique avec le modèle de la multi fissuration (a),(c),(d) : Cartographies de la déformation plastique ϵ_p du substrat à différents stades du chargement. (b),(d),(f) : Évolution de la contrainte moyenne dans le substrat $\bar{\sigma}$ dans le film sur la direction x . Sur ces courbes, les positions des fissures dans le film correspondent à $\bar{\sigma} = 0$.

Sur les figure 3.5(b), on distingue une apparition aléatoire des fissures à faible niveau de déformation. La forme de la courbe de distribution de la contrainte moyenne dans le film à très faible niveau de déformation (1%) est caractéristique de la distribution aléatoire de T_{max} dans le film.

Ainsi les micro-fissures que l'on devine correspondent aux CZ ayant un T_{max} plus faible, ont peut associer à des défauts dans le film dans la réalité.

La nucléation de fissures n'a pas commencé au centre du modèle et on voit que les premières fissures n'interagissent pas ou peu entre elles. Une fois la fissure apparue, la contrainte chute brusquement à zero dans le film autour de cette fissure traduisant la création de 2 bords complètement libres et formant 2 fragments du film de part et d'autre de la fissure. On appelle H la largeur des fragments obtenus.

Les positions des fissures dans le film peuvent être identifiées par des trous sur les cartographies présentés à gauche de la figure 3.5. Ces trous provoquent une concentration des contraintes dans le substrat en dessous des fissures. On observe ensuite la création des bandes de cisaillement dans le le substrat. Ce phénomène sera détaillé dans la section 3.4.2.

A mesure que $\bar{\epsilon}$ augmente, ces fragments continuent à se charger en raison de la contrainte transmise par le substrat via l'interface jusqu'à atteindre de nouveau T_{max} .

Au fur et à mesure que la contrainte augmente (voir les figures 3.5(c) et (d)), on remarque que la fissuration devient régulière : les nouvelles fissures apparaissent au milieu de fragments déjà formés diminuant donc leur longueur. Ceci correspond au deuxième régime de fissuration observé expérimentalement.

Pour des niveaux de déformations relativement élevés, $\bar{\sigma}$ n'est plus capable d'atteindre T_{max} et par conséquent aucun fragment ne se casse de nouveau. Il y a donc un arrêt de fissuration alors que le chargement $\bar{\epsilon}$ continue à augmenter.

La saturation de la fissuration limite le nombre des fissures finales à 6 fissures. Ainsi, la longueur moyenne des fragments formés représente la distance inter-fissure moyenne à saturation L_{sat} est autour de 5 μm pour les paramètres choisis.

Plusieurs auteurs ont lié le régime de saturation de la multi fissuration au délaminage à l'interface entre le film et le substrat ([79, 45, 48]). Dans le calcul, on remarque qu'il y a peu de décohésion interfaciale.

Sur la figure 3.6, un zoom au niveau de l'interface film/substrat a été fait. Il révèle que seul trois éléments sont totalement endommagés, ce qui fait une longueur de délaminage L_D inférieur à h_f .

En mesurant toutes les L_D de part et d'autre de chacune des six fissures obtenues à la fin de la simulation, on constate que $L_D \leq h_f$ est vérifié à chaque fois. Par conséquent, le délaminage interfacial n'est pas le seul paramètre qui contrôle la saturation. En revanche, il semble clair à travers cet exemple que le développement de la plasticité dans le volume

du substrat a une grande influence sur le mécanisme d'endommagement du film et de la saturation de la multi fissuration.

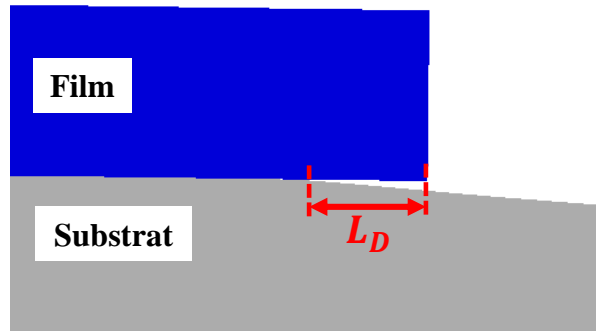


FIGURE 3.6 – Délaminage au niveau de l'interface entre le film et le substrat donné par le modèle numérique.

3.3 Étude paramétrique des facteurs influençant L_{sat}

La distance interfissure à saturation L_{sat} peut être influencée par plusieurs paramètres. Dans cette section, on s'intéresse à la traction maximale à l'amorçage de la fissuration T_{max} , intervenant dans le modèle de zone cohésive utilisé pour le film. On étudie également l'influence de l'écart type ΔT_{max} associé à la distribution gaussienne de T_{max} dans le film. Une dernière partie est dédiée à l'influence de la loi de comportement dans le régime plastique du substrat.

3.3.1 Influence de T_{max}

Dans cette partie, nous avons choisi d'imposer une ouverture critique δ_c constante de l'ordre de 10 nm, qui semble raisonnable pour un matériau de type céramique fragile¹. On fait ainsi varier les couples (T_{max}, G_c) de manière à maintenir δ^c constant ($\delta^c=4\text{nm}$). Par ailleurs la taille L de la cellule périodique est aussi adaptée de manière à avoir toujours à peu près le même nombre de fissures dans la largeur de la cellule (environ une dizaine). Ceci est possible empiriquement dans la mesure où nous avons pu remarquer

1. Dans notre cas avec des valeurs de T_{max} élevées et des valeurs de δ^c faible, le comportement est « fragile », dans le sens où la rupture est contrôlée par T_{max}

que la distance entre les fissures à saturation avait tendance à augmenter assez régulièrement avec T_{max} . Les propriétés de l'interface film/substrat ont été quant à elles fixées à $T_{max}^{int}=100\text{MPa}$ et $G_c^{int} = 5\text{J}/\text{m}^2$ pour l'ensemble des calculs. Les épaisseurs du film et du substrat ont été fixées respectivement à $h_f = 0.1\ \mu\text{m}$ et à $h_s = 100\ \mu\text{m}$.

La déformation nominale imposée au substrat est augmentée progressivement (augmentation du déplacement U imposé sur le côté droit de la cellule). A chaque fois que la contrainte dans le film atteint localement T_{max} , une nouvelle fissure apparaît et se propage rapidement dans l'épaisseur, faisant varier la largeur des fragments H cassés et diminuant la distance entre les fissures. Les valeurs des largeurs finales des fragments formés dans les différents essais pour chaque T_{max} sont regroupées dans l'histogramme de la figure 3.7.

Pour chaque T_{max} ce diagramme comporte en fait la densité normalisée des fragments

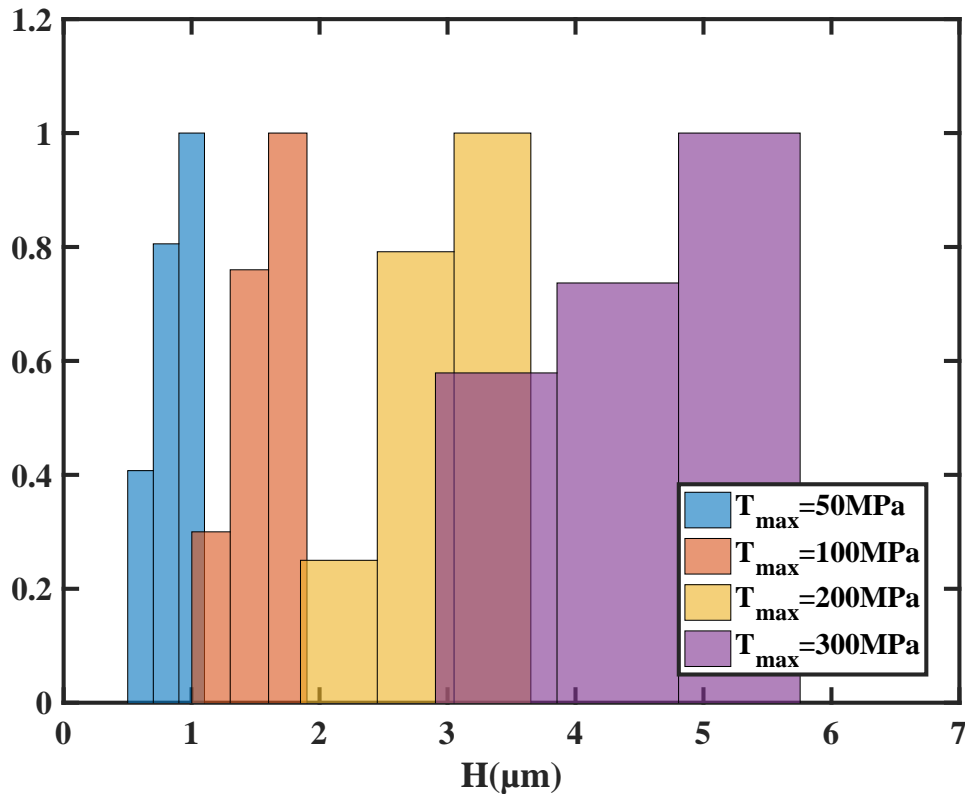


FIGURE 3.7 – Histogramme de la distance inter-fissures H à saturation obtenu pour plusieurs simulations du modèle numérique de la multi-fissuration avec différents T_{max} . Pour chaque T_{max} , les valeurs sont normalisées.

en fonction de leur largeur H à saturation. Le tableau 3.1 présente les intervalles de H et la distance moyenne entre les fissures L_{sat} trouvés pour chaque valeur de T_{max} .

D'après l' histogramme et les valeurs regroupées dans le tableau précédent, on remarque que quelles que soient les propriétés des ZC du film, la distance inter-fissures est très

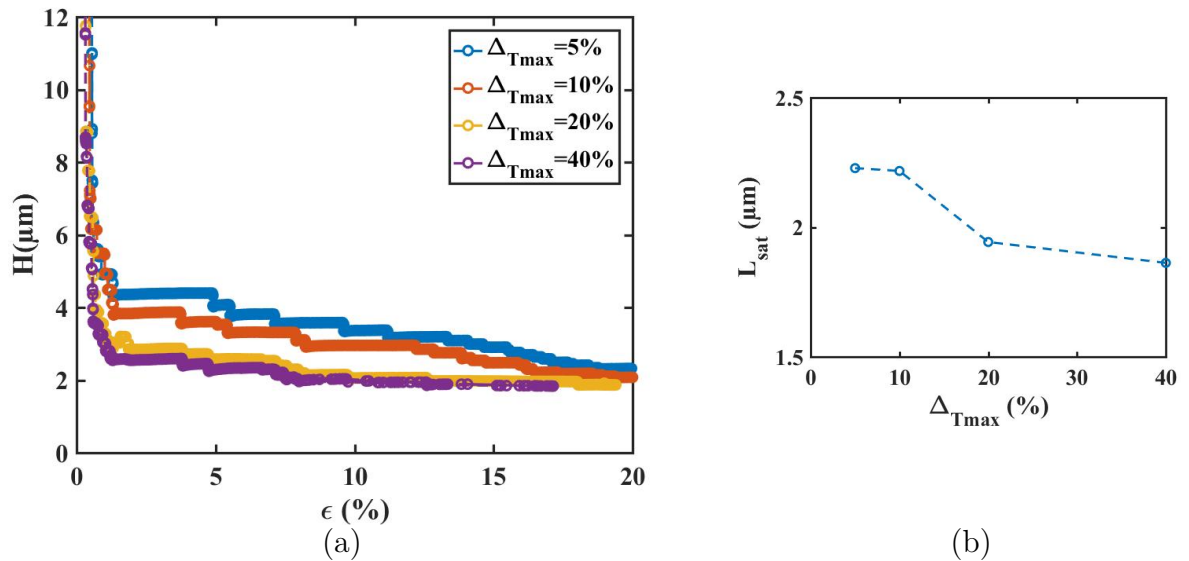
T_{max} (MPa)	$H(\mu m)$	$L_{sat}(\mu m)$
50	[0.5;1.2]	0.85
100	[1;1.9]	1.45
200	[1.85;3.1]	2.475
300	[2.9;5.75]	4.325

 TABLE 3.1 – H et L_{sat} pour chaque T_{max} .

grande devant l'épaisseur du film. On constate aussi que L_{sat} augmente avec T_{max} , donc plus le film est résistant à la rupture plus les fissures sont écartées. L'écart entre les valeurs minimale et maximale de H trouvées pour chaque essai augmente aussi avec T_{max} .

3.3.2 Influence de ΔT_{max}

Les cellules étudiées dans cette section ont la même géométrie : $h_f = 0.1 \mu m$, $h_s = 100 \mu m$ et $L=50 \mu m$. Les propriétés de ZC de l'interface sont telle que $T_{max}=100MPa$ et $G_c = 5J/m^2$. La traction maximale à l'amorçage de la fissuration des ZC du film T_{max} est fixée à 200MPa et l'énergie de rupture G_c est égale à $0.45J/m^2$. On ne fait varier que l'écart type ΔT_{max} de la répartition gaussienne des valeurs de T_{max} dans le film. La figure 3.8(a) présente l'évolution de la distance inter-fissures au cours du chargement pour quatre calculs menés avec des écarts types ΔT_{max} différents.


 FIGURE 3.8 – Influence ΔT_{max} (a) sur variation de la taille de fragments fissurés H au cours du chargement (b) sur la distance inter-fissure à saturation.

On remarque que quel que soit le cas étudié, la distance inter-fissures diminue au cours du chargement. On distingue trois régimes différents dans lesquels on peut reconnaître les trois stades de multi-fissuration observés expérimentalement.

Pour un faible écart type ($\Delta T_{max} \leq 10\%$), les valeurs de T_{max} au sein du film sont assez proches. Elles varient entre 190 et 210 MPa. Les valeurs les plus faibles de T_{max} , pilotant le stade I, étant plus hautes dans ce cas, on observe logiquement une plus faible densité de fissure en fin de stade I comparée à celle obtenue dans le cas d'un écart type plus élevé. La longueur moyenne des fragments H à l'issue du stade I est donc plus élevée lorsque ΔT_{max} est plus faible.

Par suite, le processus de subdivision des fragments par le milieu (stade II) met plus longtemps à se déployer pour les ΔT_{max} plus faibles dans la mesure où la valeur T_{max} à atteindre entre deux fissures pour une nouvelle fragmentation est en moyenne plus élevée. Ainsi, le troisième stade de saturation de la multi-fissuration est plus rapidement atteint, vers 10% de déformation, pour les valeurs les plus fortes de ΔT_{max} alors que la saturation est plutôt atteinte autour de 18% pour les plus faibles valeurs de ΔT_{max} .

L'effet de ΔT_{max} sur la distance inter-fissures à saturation L_{sat} semble en revanche assez faible (voir figure 3.8(b)). On remarque que les L_{sat} correspondants à un $\Delta T_{max}=5\%$ ou 10% sont presque identiques. Une diminution de 12% de cette valeur peut être observée pour les cas $\Delta T_{max}=10\%$ et 20%. Entre de 20% et 40% d'écart type, la différence de L_{sat} est très faible.

3.3.3 Influence de l'interface

L'influence des propriétés de l'interface pour le cas d'un film d'oxyde déposé sur un substrat ETFE fait l'objet de cette section. Pour cela, on a pris une cellule de longueur $L=50\ \mu\text{m}$ comportant un film d'épaisseur $h_f = 0.1\ \mu\text{m}$ et un substrat d'épaisseur $h_s = 100\ \mu\text{m}$. Les ZC introduite dans le film sont caractérisées par $T_{max}=100\text{MPa}$ et un $G_c = 0,2\text{J}/\text{m}^2$. L'écart type ΔT_{max} de la répartition gaussienne de T_{max} dans le film est fixé à 10%. On va fait varier les propriétés de la ZC de l'interface T_{max} et G_c pour garder une ouverture maximale δ_{max} identique pour tous les cas étudiés.

La figure 3.9(a) présente l'évolution de la longueur moyenne H des fragments formés au cours du chargement pour tous les calculs menés. Les valeurs de T_{max} de l'interface varient entre 100 et 5000 MPa simulant le passage d'une interface d'assez bonne tenue à une interface extrêmement résistante.

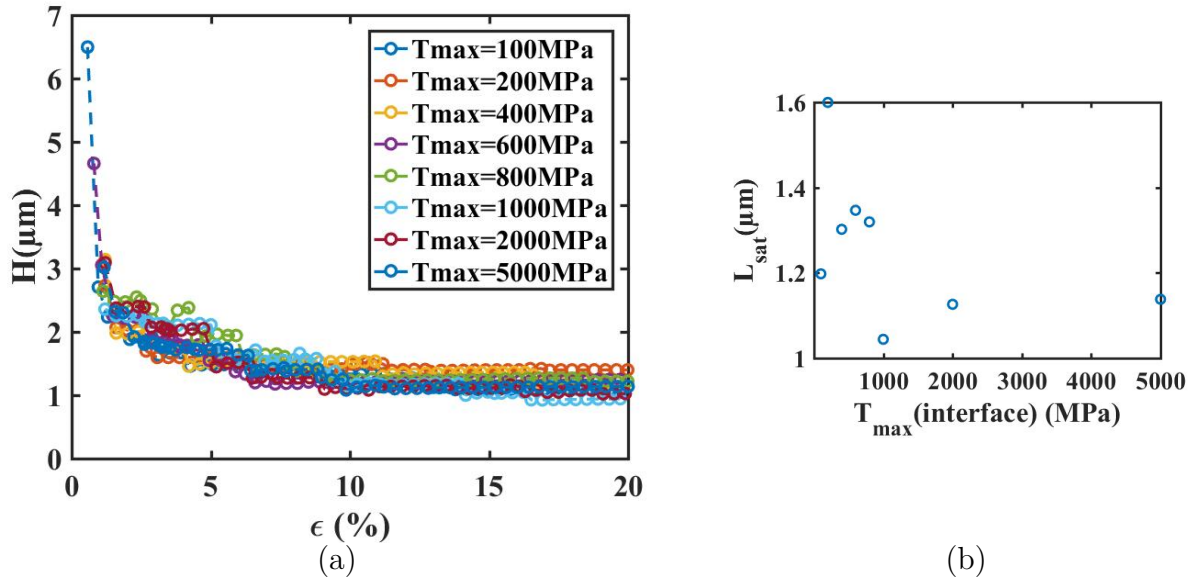


FIGURE 3.9 – Influence des propriétés de l'interface film/substrat (a) sur variation de la taille de fragments fissurés H au cours du chargement (b) sur la distance inter-fissure à saturation.

Pour tous les cas étudiés, on remarque que H diminue au début très rapidement, puis plus lentement, jusqu'à arriver à un plateau vers 15% de déformation. On retrouve la même évolution qualitative de H qui traduit les trois stades de multi-fissuration. Ces courbes montrent en fait que l'interface n'a pas une grande influence sur la distance inter-fissures à saturation L_{sat} et que cette dernière reste comprise entre 1,1 et 1.6 μm .

3.3.4 Influence de la loi de comportement en régime plastique du substrat

La loi de comportement en régime plastique du substrat a une influence sur l'endommagement du film mince. Comme discuté dans les chapitres précédents, plusieurs travaux n'ont considéré qu'un comportement purement élastique du substrat et d'autres ont introduit la plasticité comme mécanisme pouvant modifier le mécanisme de fissuration du film.

Nous avons choisi de comparer le cas d'un substrat purement élastique et celui d'un substrat plastique. La figure 3.10 représente le comportement mécanique des deux substrats. Les deux modèles correspondant aux deux cas de substrats étudiés sont de longueur $L=30\ \mu\text{m}$ et sont constitués d'un film et d'un substrat d'épaisseurs respectives de $h_f = 0.1\ \mu\text{m}$ et $h_s = 100\ \mu\text{m}$. Les éléments cohésifs à l'interface ont un $T_{\text{max}}=100\ \text{MPa}$ et un $G_c = 5\ \text{J/m}^2$. Pour cette étude, les propriétés des ZC introduites dans le film varient

(i.e. $\bar{T}_{max}=50, 100, 200$ ou 300 MPa).

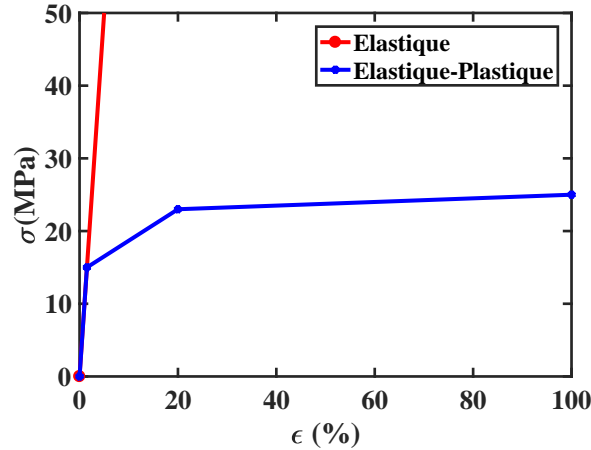


FIGURE 3.10 – Comportement mécanique de deux cas étudiés : substrat élastique pur en rouge et substrat élastique-plastique en bleu.

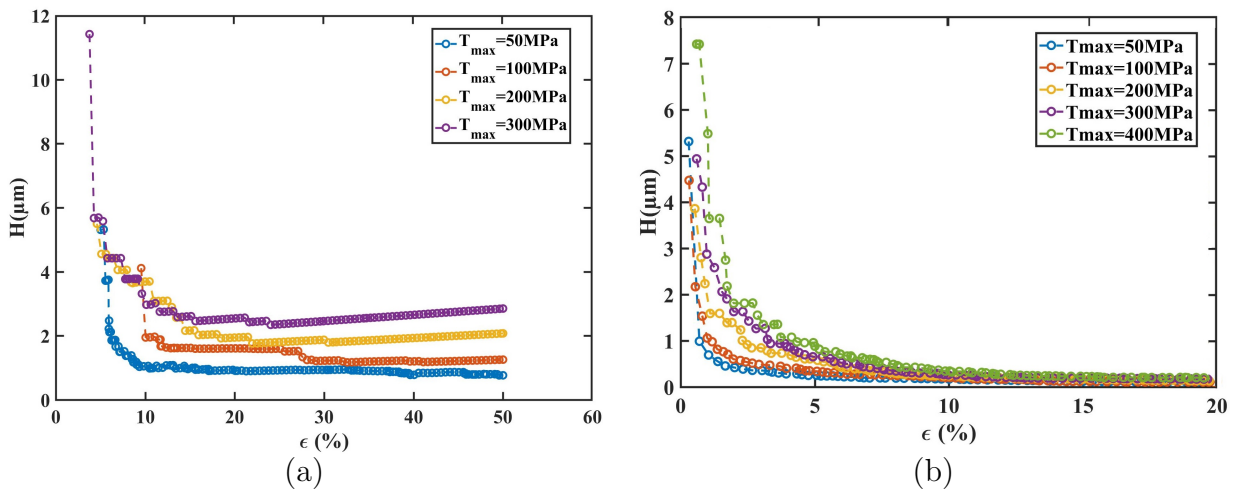


FIGURE 3.11 – Évolution de la longueur des fragments H au cours de la déformation pour différents T_{max} (a) dans le cas d'un substrat élasto-plastique (b) dans le cas d'un substrat purement élastique

Les longueurs des fragments H formés au cours du chargement sont tracés sur la figure 3.11. On constate que pour les deux cas d'étude (substrat élastique et substrat plastique), H diminue au début très rapidement en fonction de la déformation imposée. Puis sa diminution devient plus lente jusqu'à atteindre une saturation.

Sur la figure 3.11(a), on constate que T_{max} a une influence sur l'endommagement du film. Plus T_{max} est élevée, plus H est élevé pour les mêmes niveaux de déformation. A saturation, on constate que L_{sat} dépend de T_{max} , la valeur de L_{sat} augmentant avec celle de T_{max} .

Dans le cas d'un substrat élastique (figure 3.11(b)), on remarque que T_{max} n'a aucune influence sur le processus du multi-fissuration du film. De plus, dans ce cas L_{sat} est presque égale à h_f contrairement au cas du substrat plastique où elle avoisine 10 fois h_f pour $T_{max}=50\text{MPa}$.

Les résultats trouvés dans nos simulation avec un substrat élastique sont tout à fait cohérents avec les résultats analytiques de Xia et Hutchinson [ref]. En effet selon leur modèle, quelle que soit la taille d'un fragment, la contrainte au centre du fragment peut atteindre une valeur arbitrairement élevée à condition d'imposer une déformation suffisante. Ainsi, quelle que soit la valeur de T_{max} intrinsèque au film, on peut toujours fracturer un fragment en son milieu ; il suffit pour cela de choisir une valeur de la déformation imposée d'autant plus forte que T_{max} est grand. On peut donc s'attendre à une fragmentation ininterrompue jusqu'à ce que la taille des fragments atteigne environ une dimension de l'ordre de l'épaisseur du film (limite du modèle analytique). C'est bien ce que l'on observe dans nos simulations.

En revanche, dans le cas d'un substrat élasto-plastique, les principales différences sont que :

- une saturation existe bien.
- la valeur de L_{sat} est clairement influencée par la valeur de T_{max} . La capacité qu'a la contrainte de remonter entre deux fissures, à mesure que la déformation nominale augmente, est vraisemblablement affectée par la déformation plastique au sein du substrat.

3.4 Cellule représentative : CR

Le modèle de la multi-fissuration a servi à modéliser les trois stades de multi-fissuration observés expérimentalement et de mieux comprendre l'influence de propriétés des CZ employées à l'interface ou dans le film, sur l'endommagement du film. Dans ce modèle, l'effet de la plasticité du substrat sur la multi-fissuration du film a été aussi constaté.

Mais cette modélisation est un peu coûteuse du point de vue du temps de calcul et de la taille des fichiers de résultats en raison de la grande dimension latérale des cellules.

De plus le but principal de notre modélisation est la prédiction de la saturation de la fissuration du film. Pour mieux approfondir notre étude et évaluer finement les champs de contrainte et de déformation, nous avons simplifié notre modèle en une cellule représentative **CR** associée à des conditions aux limites périodiques.

3.4.1 Présentation

La cellule représentative **CR** représentée sur la figure 3.12 se compose d'un film d'oxyde ayant un module d'Young $E_f=100\text{GPa}$ d'épaisseur h_f et d'un substrat élasto-plastique dont le comportement mécanique est représenté sur la figure 3.3. Il s'agit d'un substrat en ETFE qui a un module d'Young E_s de 1 GPa et son épaisseur est h_s fixée à 100 μm .

Dans le film, on a inséré une ZC centrale qui modélise une fissure dans le film repré-

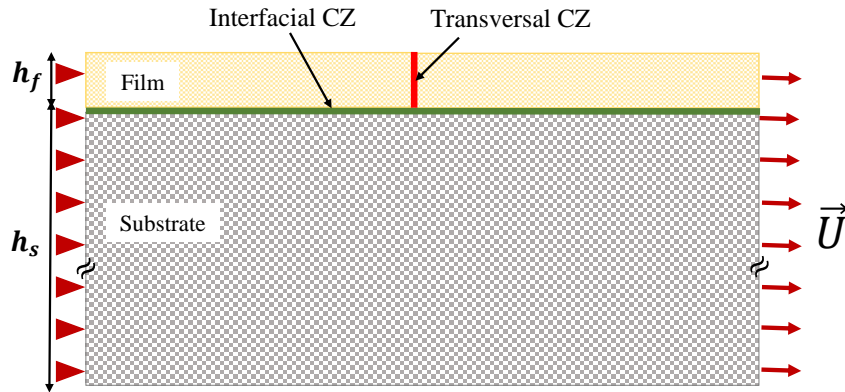


FIGURE 3.12 – Représentation schématique de la cellule représentative CR

senté par un trait rouge sur la figure 3.12. Les propriétés mécaniques de cette ZC sont extrêmement faibles de telle sorte qu'elle s'ouvre dès le début de la simulation. Comme dans le cas du modèle de la multi-fissuration sur la grande cellule, des éléments cohésifs sont utilisés pour simuler l'interface entre le film et le substrat avec un $T_{max}=100\text{MPa}$ et un $G_c = 5\text{J}/\text{m}^2$. Un déplacement U est imposé sur le bord droit et des conditions aux limites périodiques sont introduites sur les bords gauche et droit de la cellule.

Cette CR va nous permettre de modéliser et analyser uniquement le deuxième et le troisième stade de la multi-fissuration.

3.4.2 Étude d'un cas

Dans cette partie on s'intéresse au cas d'une cellule représentative CR de longueur $L=5\mu\text{m}$ contenant un film d'oxyde d'épaisseur $0.1\mu\text{m}$ déposé sur un substrat d'ETFE d'épaisseur $100\mu\text{m}$.

Il faut noter que dans le cas de la CR, L représente en fait la distance entre deux fissures voisines et c'est un des paramètres clés de notre étude.

Sur cette CR un déplacement de $0.5\mu\text{m}$ est imposé sur le bord de droite avec des conditions aux limites périodiques décrites dans le cas de la grande cellule.

Sur la figure 3.13(a), on remarque qu'il y a concentration d'une déformation plastique dans le substrat en dessous de la fissure du film. Cette concentration de plasticité était déjà observée expérimentalement dans les travaux de J.Marthelet [54] (Figure 3.14)

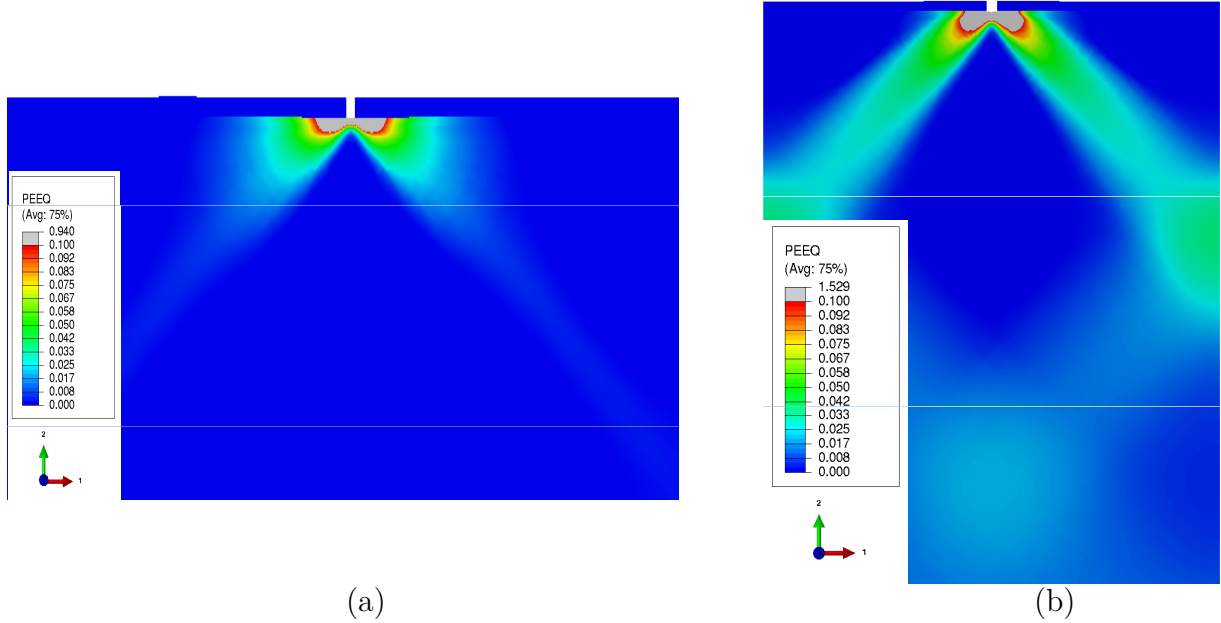


FIGURE 3.13 – Distribution de la déformation plastique dans le substrat au cours du chargement (a) concentration de la plasticité à l'interface autour de la la fissure en forme 'd'ailes de papillon' (b) développement de bandes de cisaillements qui se propagent dans le substrat à 45°.

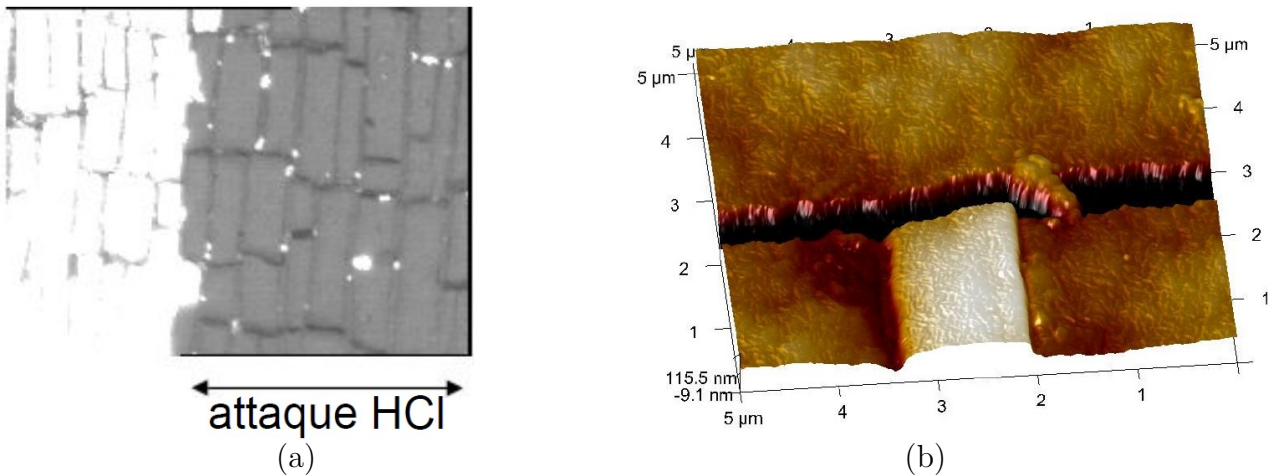


FIGURE 3.14 – (a) une attaque chimique du film déjà fissuré (b) Observation sous AFM de la surface du substrat : une forte déformation plastique localisée dans le substrat en dessous de la fissure du film, cette figure est issue du travaux de thèse de J. Marthelet [54].

Donc une des conséquences directe de la présence d'une fissure est la concentration de la contrainte de cisaillement à l'interface autour de cette fissure ce qui conduit en premier lieu à la création d'une zone plastique confinée au voisinage de cette fissure. On s'intéresse maintenant à l'évolution des contraintes et des déformations plastiques dans le film en présence d'un fissure.

La figure 3.15 (gauche) montre la redistribution de la contrainte normale moyenne dans le film au cours du chargement. On remarque que la contrainte est nulle pour $x = 0$ (autour de la fissure) ce qui indique bien la rupture totale de le ZC centrale et la création de deux surfaces libres.

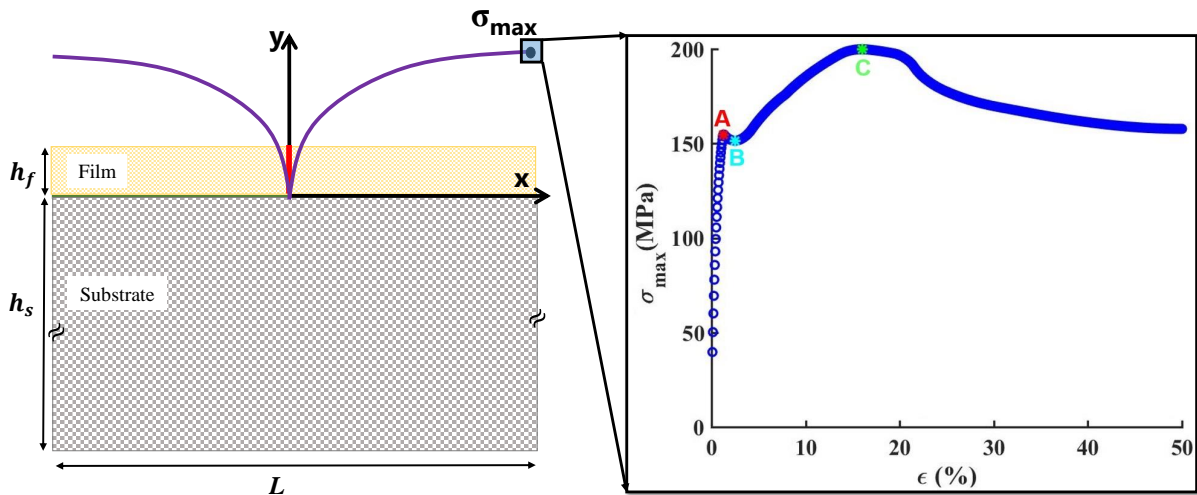


FIGURE 3.15 – Réponse du film en présence d'une fissure. *A gauche* : distribution de la contrainte sur la longueur de film pour une déformation imposée fixe. *A droite* : Évolution de la contrainte moyenne maximale au bord du film au cours du chargement. Trois points remarquables peuvent être distingués : **A** : Maximum local, **B** : Minimum local et **C** : Maximum global

Si on s'éloigne de la fissure, la contrainte augmente jusqu'à atteindre un maximum σ_{max} pour $x = \pm L/2$. Les calculs analytiques de ([7, 77]) ont déjà prédit ce profil qualitatif de contrainte le long du film dans un cas de substrat élastique.

Une nouvelle fissure sera initiée entre deux fissures existantes si σ_{max} atteint T_{max} . Il faut bien noter qu'une fois la fissure centrale créée dans le film, ce dernier est soumis à la contrainte transmise via l'interface. la contrainte moyenne de traction remonte progressivement à mesure que l'on s'éloigne de la fissure.

Sur la figure 3.15 (droite), la variation de σ_{max} au cours de la déformation nominale imposée a été tracée. Cette variation n'est pas monotone et contient trois points remarquables **A**, **B** et **C**. Cela permet de diviser la courbe en trois stades. Pour mieux comprendre la présence de ces trois stades, il faut considérer le comportement élasto-plastique du substrat présenté sur la figure 3.3.

Au cours du premier stade (avant le point A), une zone plastique d'étendue a se

propage principalement à l'interface entre le film et le substrat (voir la forme de papillon figure 3.13(a)).

Comme l'indique la figure 3.16, cette propagation s'arrête presque au même moment où le substrat entre globalement dans son premier régime d'écroutissage. Cet arrêt est

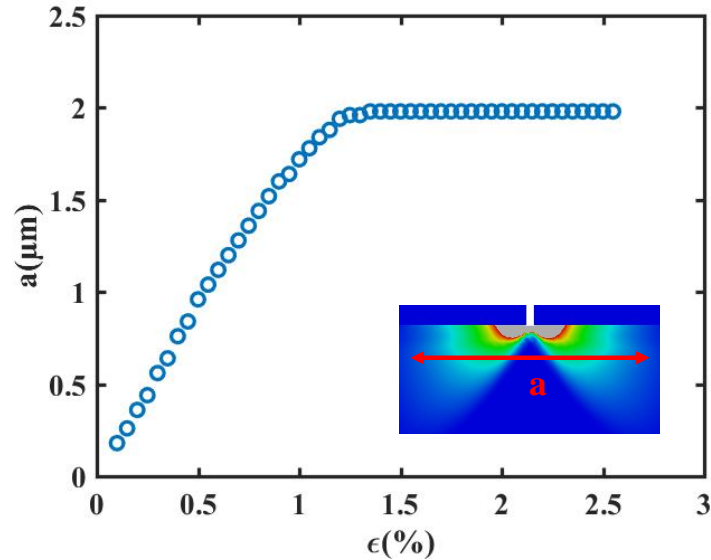


FIGURE 3.16 – Évolution de l'étendue de la déformation plastique interfaciale au cours du chargement pour une CR de longueur $L=5 \mu\text{m}$.

accompagné par la formation des bandes de cisaillement qui se propagent rapidement jusqu'aux bords de la cellule à 45° comme le montre la figure 3.13(b). Au même moment se produit une légère chute de la contrainte σ_{max} créant un deuxième stade entre les points A et B . Sachant que les conditions aux limites périodiques ont été imposées sur les bords du modèle, quand ces bandes atteignent les bords du substrat cela signifie qu'elles croisent les bandes créées par les cellules périodiques voisine « virtuelles ». Au fur et à mesure que la déformation imposée augmente, la plasticité concentrée sous forme de bandes augmente et la contrainte σ_{max} augmente également.

Un maximum global indiqué par le point C est atteint à un niveau de déformation imposée correspondant à la fin du premier régime d'écroutissage du substrat et le passage au deuxième régime. Ce maximum $\sigma_{max}(C)$ est un maximum global de σ_{max} . Si il est inférieur à la contrainte limite de rupture du film T_{max} , une nouvelle fissure ne pourra pas apparaître quelle que soit la déformation imposée, marquant ainsi la saturation de la fissuration.

À partir du point C , la contrainte dans le film ne fait que baisser. Cette baisse de contrainte n'est très grande. En effet, le déclenchement du deuxième régime d'écroutissage de substrat à partir de 20% de déformation crée un durcissement micro structurale du substrat qui maintient par suite le film en tension mais toujours en dessous de $\sigma_{max}(C)$.

La valeur maximale de la contrainte $\sigma_{max}(C)$ (obtenue au point C) est un deuxième paramètre clé de l'étude de la CR. Donc, à partir de cette valeur maximale un régime de saturation de fissuration est atteint, comme observé expérimentalement.

Par conséquent pour ce cas d'étude, une distance inter-fissures de $L/2 = 2.5 \mu\text{m}$ est obtenue pour un film ayant une limite à rupture T_{max} inférieure ou égale à 200 MPa (i.e. $\sigma_{max}(C)$). Il faut noter que, comme commenté précédemment, dans le cas d'un substrat purement élastique la contrainte σ_{max} aura une variation monotone au cours de chargement ce qui empêche forcément la saturation.

En ce qui concerne le délaminage interfacial, on constate qu'il est identique à ce qu'on a déjà trouvé dans le modèle de la multi-fissuration (Figure 3.6), avec une extension de part et d'autre de la fissure de taille inférieure à l'épaisseur du film.

3.4.3 Influence de la taille de la cellule

Pour comprendre l'influence de la distance inter-fissures sur la réponse du film en présence d'une fissure, des simulations identiques à celle présentées précédemment ont été effectuées. Dans ces nouvelles simulations, nous avons fait varier L de 1 à 8 μm .

Pour chaque cas, la contrainte maximale σ_{max} dans le film au cours du chargement a été tracée. Ces variations sont représentées sur la figure 3.17. Les observations présentées dans la section 3.4.2 restent qualitativement semblables pour toutes les cellules quelle que soit leur dimension. Les courbes montrent que *la valeur maximale $\sigma_{max}(C)$ est une fonction croissante de la taille L des fragments*. Cette relation monotone a des repercussions importantes sur le mécanisme de subdivision/saturation.

En effet, elle explique pourquoi le processus de subdivision des fragments (stade II) conduit à une saturation, car quel que soit le T_{max} de l'oxyde, on peut toujours trouver une taille limite L_{lim} de L en dessous de laquelle $\sigma_{max}(C) < T_{max} \forall \bar{\epsilon}$.

Par ailleurs, plus T_{max} est grand, plus L_{lim} sera grand, traduisant le fait que *la distance inter-fissures à saturation est effectivement une fonction croissante de la contrainte limite à rupture T_{max} de l'oxyde*. On constate aussi que pour les cellules les plus petites, dont la longueur est comprise entre 1 et 2 μm , σ_{max} est quasi constant et relativement faible.

De manière à pouvoir prédire la distance inter-fissure à saturation de manière qualitative, nous pouvons nous appuyer sur les courbes de la figure 3.17 pour construire des « scénarios » d'évolution de la fragmentation une fois le premier stade de fissuration terminé. Pour cela :

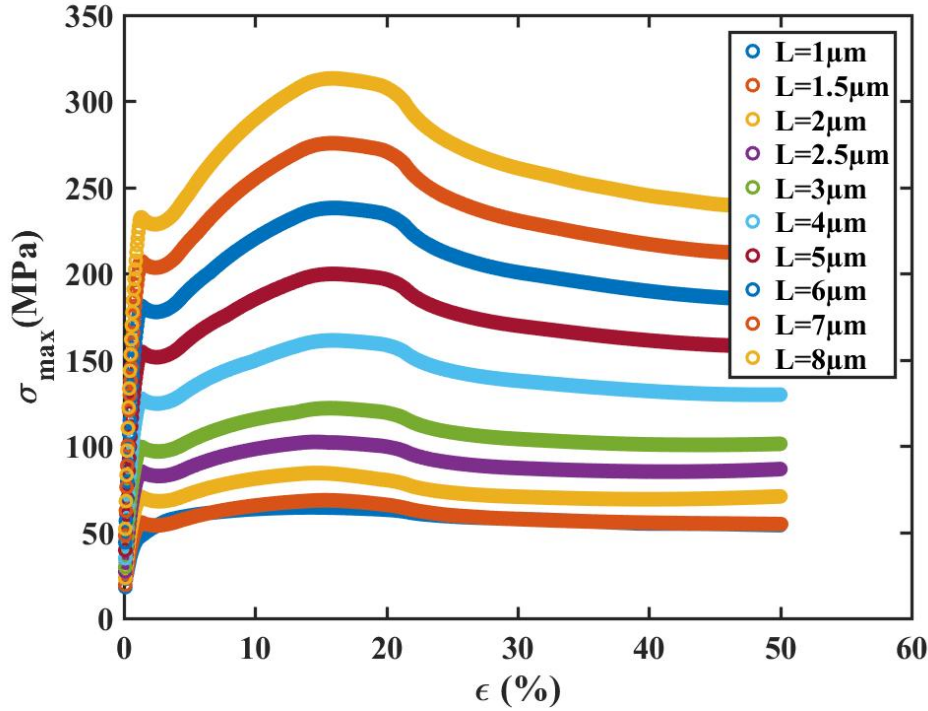


FIGURE 3.17 – Variation de la contrainte maximale σ_{max} dans le film au cours de chargement pour des longueurs de cellule L allant de 1 à 8 μm

- on suppose un film de traction à rupture de valeur T_{max} donnée.
- on suppose qu'il y a eu une formation des fragments de longueur moyenne L_0 au cours du premier stade de fissuration aléatoire (qui a lieu pour des valeurs très faible de $\bar{\epsilon}$).
- à partir de cet état initial, on considère une augmentation progressive de $\bar{\epsilon}$.

On peut dans un premier temps visualiser les étapes sur la figure 3.17. Pour suivre la valeur de σ_{max} au centre des fragments de longueur L_0 , on se déplace le long de la courbe $\sigma_{max}(L_0, \bar{\epsilon})$, jusqu'à une valeur critique de la déformation $\bar{\epsilon} = \bar{\epsilon}_1$ conduisant à la rupture. Cette déformation critique $\bar{\epsilon}_1$ est définie comme $\sigma_{max}(L_0, \bar{\epsilon}_1) = T_{max}$. A partir de ce moment, les nouveaux fragments ont des tailles $L_1 = L_0/2$. Ainsi, pour le chargement ultérieur ($\bar{\epsilon} > \bar{\epsilon}_1$), on connaîtra la valeur de σ_{max} en se déplaçant sur la courbe $\sigma_{max}(L_1, \bar{\epsilon})$. Une nouvelle fragmentation aura lieu pour une valeur critique de la déformation $\bar{\epsilon} = \bar{\epsilon}_2$, définie telle que $\sigma_{max}(L_1, \bar{\epsilon}_2) = T_{max}$.

Considérons la n -ième fissurations, à l'issue de laquelle les fragments finissent avec une longueur moyenne $L = L_n = L_0/2^n$ pour une déformation imposée de $\bar{\epsilon}_n$. Cette fragmentation est la dernière si $\sigma_{max}(L_n, \bar{\epsilon}) < T_{max}$, $\forall \bar{\epsilon} > \bar{\epsilon}_n$. On a alors saturation, avec une distance inter-fissures moyenne à saturation sera égale à L_n .

Pour une approche plus pratique, les isovaleurs de σ_{max} en fonction de L et $\bar{\epsilon}$ on

été tracées sur la figure 3.18. Pour connaître l'histoire de chargement *d'un fragment de longueur L donné* à $\bar{\epsilon}$ croissant, il suffit de suivre une *ligne horizontale* et de regarder les isovalues de σ_{max} traversées. Cette figure met en évidence une plage de déformations où

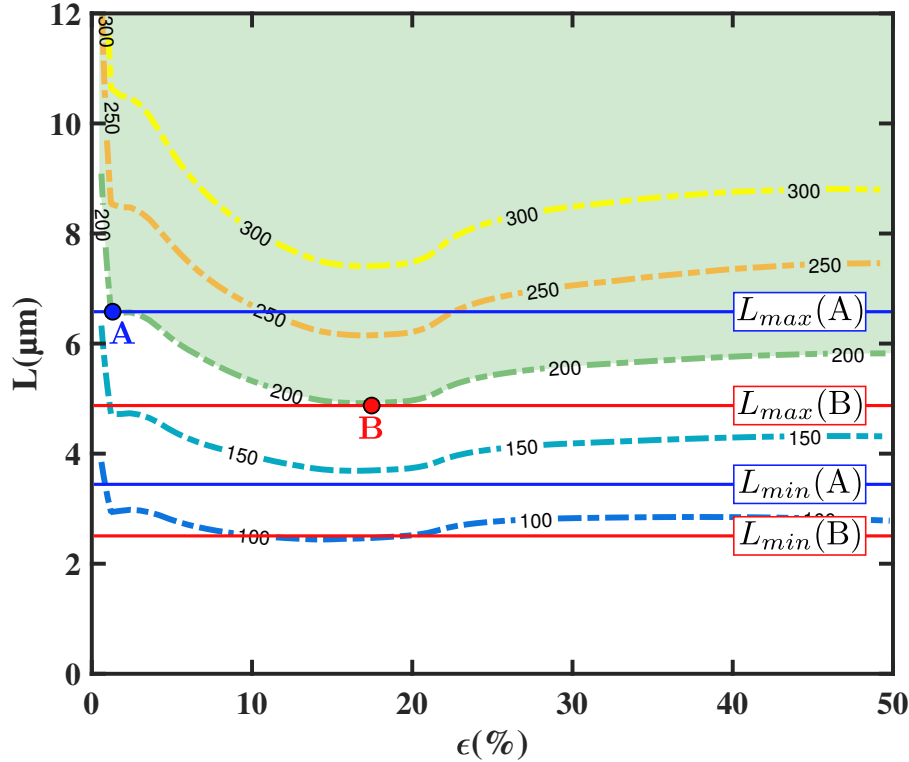


FIGURE 3.18 – Iso valeurs de σ_{max} en fonction de $\bar{\epsilon}$ (déformation nominale imposée) et L (taille des fragments). Des points remarquables ont été placés pour illustrer le cas d'un film ayant pour caractéristique $T_{max} = 200 MPa$

la variation de σ_{max} est très rapide, jusqu'à 2 ou 3% de déformation imposée. La variation de σ_{max} avec $\bar{\epsilon}$ est ensuite beaucoup plus lente. Nous illustrons la fragmentation d'un film de $T_{max}=200$ MPa pour l'exemple.

Pour des faible niveaux de déformation (avant le point A) σ_{max} atteint rapidement T_{max} et tous les fragments de longueur initiale supérieure à $6.5 \mu m$ se divisent en deux. Ce qui donne des nouveaux fragments dont la longueur est comprise entre $L_{max}(A) = 6.5 \mu m$ et $L_{min}(A) = L_{max}(A)/2 = 3.25 \mu m$.

Ensuite sur la plage de variation lente de σ_{max} , entre les points A et B , les isovalues sont plus plates. Cela signifie que l'apparition des fissures devient « plus lente » (i.e. demande des déformations plus importantes). Tous les fragments ayant une longueur comprise entre $L_{max}(A) = 6.5 \mu m$ et $L_{max}(B) = 5 \mu m$ issues du premier régime vont se diviser en deux pour finir avec une longueur comprise entre $L_{min}(A) = 3.25 \mu m$ et $L_{min}(B) = 2.5 \mu m$.

En même temps, pour les fragments formés avant d'atteindre le point A , dont la longueur comprise entre $L_{max}(B) = 5 \mu m$ et $L_{min}(A) = 3.25 \mu m$, la contrainte ne peut pas dépasser 200 MPa. Ainsi ces fragments vont résister.

A la fin, après le point B , la saturation de la fissuration commence à partir d'une déformation $\epsilon_{sat} = 18\%$.

Enfinement la distance inter-fissures moyenne L_{sat} est comprise entre $L_{max}(B) = 5 \mu\text{m}$ et $L_{min}(B) = L_{max}(B)/2 = 2.5 \mu\text{m}$ pour un $T_{max}=200\text{MPa}$. Cette analyse peut être faite pour toutes les valeurs de T_{max} . Cela permet d'obtenir de manière quantitative l'influence de T_{max} sur la distance inter-fissures à saturation L_{sat} .

Sur la figure 3.19, on constate une variation linéaire de la distance inter-fissures L_{sat}

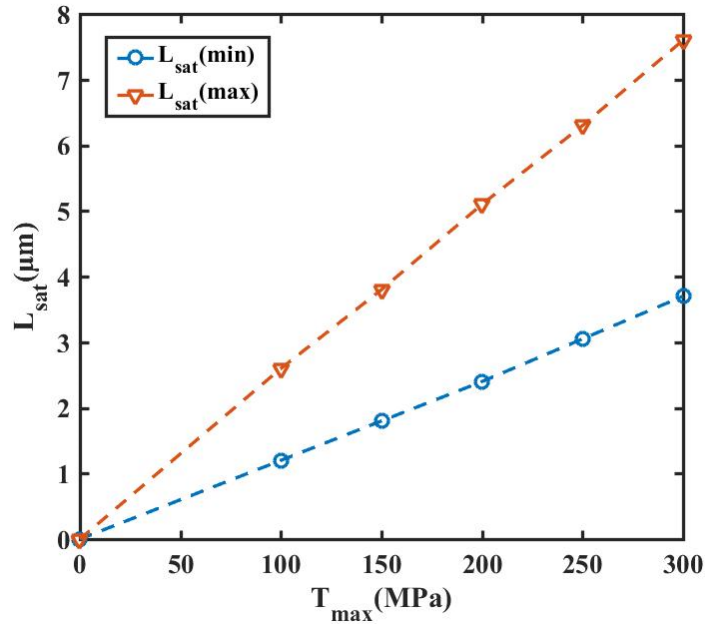


FIGURE 3.19 – Encadrements de L_{sat} pour différents T_{max}

en fonction de T_{max} . De plus, on remarque que l'écart entre la valeur de L_{sat} minimale et maximale augmente avec T_{max} . Cela correspond au fait que l'écart entre les points A et B augmente pour des valeurs croissantes de T_{max} , comme observé figure 3.18. Ainsi, plus le film est fragile, plus les fissures sont proches et plus la densité des fissures est importante.

Il est intéressant de suivre le développement de la déformation plastique au sein du substrat, à mettre en parallèle avec les phénomènes de fragmentation/saturation dans le film. L'évolution de l'étendue latérale la zone de déformation plastique sous l'interface film/substrat est tracée en fonction de la déformation imposée $\bar{\epsilon}$ pour toutes les cellules étudiées (voir figure 3.20). On constate que quelle que soit la longueur L , a croît linéairement jusqu'à saturer pour une déformation autour de $1,3\%$. Ce phénomène d'étalement d'une zone plastique au niveau de l'interface film/substrat peut évoquer le modèle du shear-lag. En revanche, on voit que cet étalement de zone plastique à l'interface est limitée à $1,3\%$ de déformation, alors que la déformation de saturation de

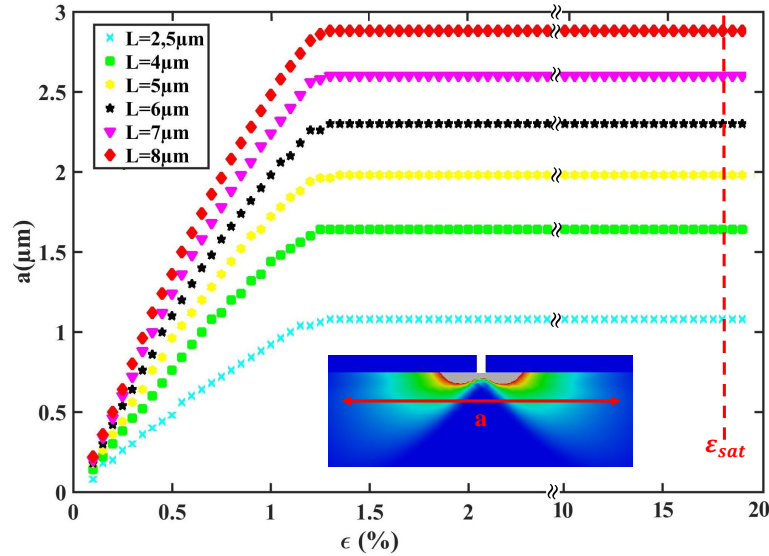


FIGURE 3.20 – Évolution de l'étendu de la déformation plastique interfaciale au cours du chargement pour une CR des longueurs de cellule L allant de 2.5 à 8 μm .

la fragmentation ϵ_{sat} est *beaucoup plus importante*. Entre les deux il y a eu apparition des bandes de cisaillement et déformation du substrat localisé dans ces bandes. De telles bandes de cisaillement ont été déjà observées dans les travaux expérimentaux de [30] et les calculs numériques de [69]. Ces phénomènes complexes ne sont pas pris en compte dans le shear-lag, qui regarde seulement comment la plasticité se propage à l'interface pour expliquer la saturation.

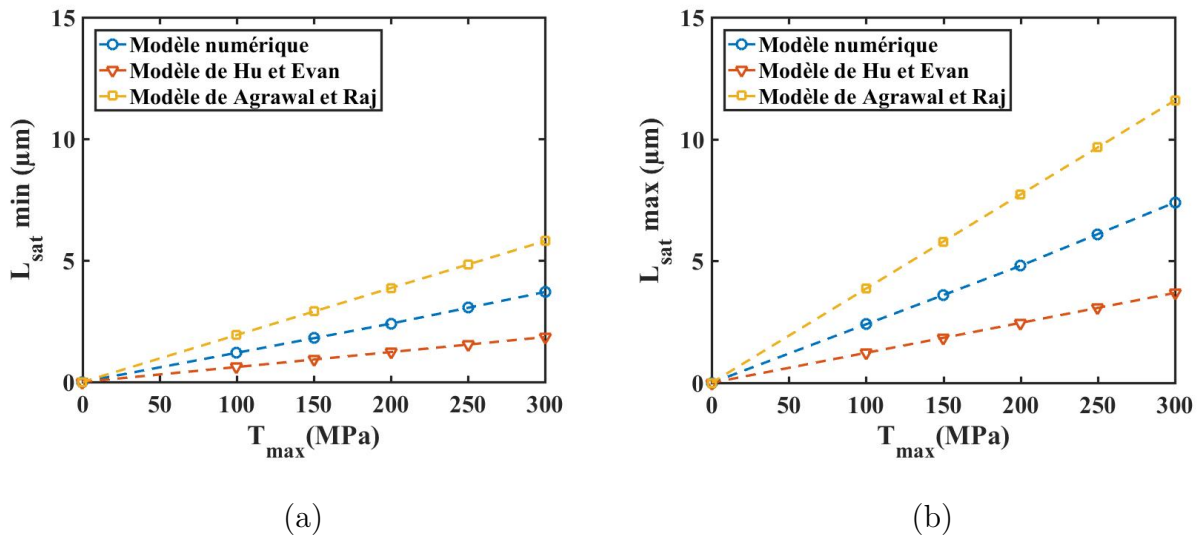


FIGURE 3.21 – Comparaison des résultats d'encadrement fournis par notre modèle mécanique et les modèles analytiques de Hu et Evans [35] et Agrawal et Raj [1] (a) distance inter-fissure $L_{sat} min$ (b) distance inter-fissures maximale ($L_{sat} max$).

Une comparaison entre les distances inter-fissures à saturation minimale ($L_{sat} min$) et maximale ($L_{sat} max$) obtenues à partir de notre modélisation ainsi que celles issues des modèles analytiques de shear lag sont présentés sur la figure 3.21. On remarque qu'il y a un décalage entre les trois modèles et que les distances inter-fissures minimales et maximales que nous avons obtenues numériquement sont toujours comprises entre les deux modèles analytiques. Il semblerait ainsi que L_{sat} soit sous-estimée par le modèle de Hu et Evans et surestimée par Agrawal et Raj.

3.4.4 Influence de l'épaisseur du film

Les résultats expérimentaux présentés dans le deuxième chapitre montrent que l'épaisseur du film h_f a une influence sur la distance inter-fissures à saturation L_{sat} . En effet, plus h_f est grande plus L_{sat} est importante. Cette observation a été rapportée dans divers travaux expérimentaux [59, 58, 72, 50, 16, 54, 48]

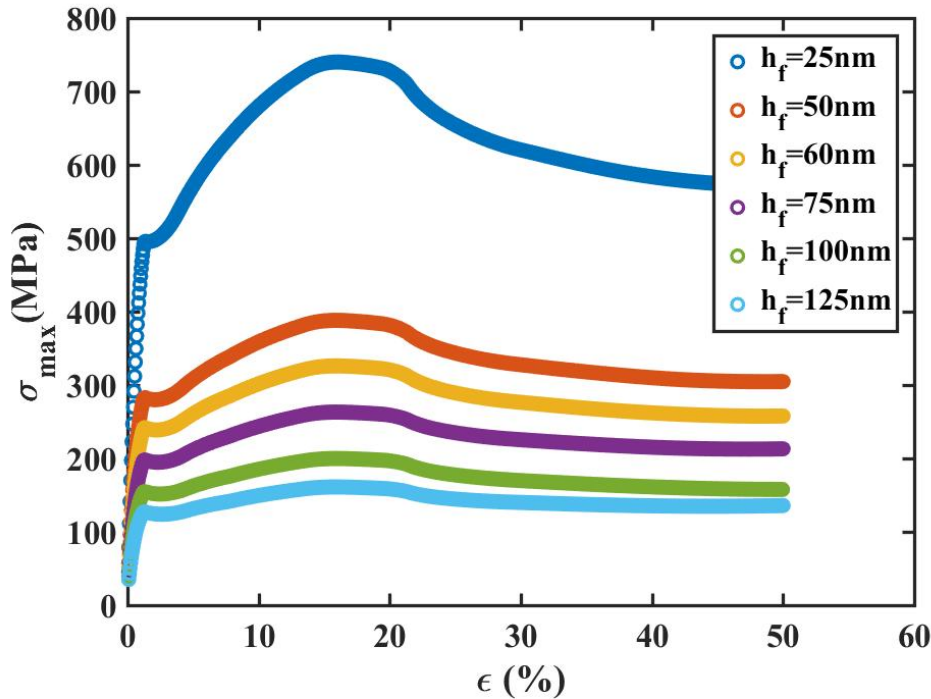


FIGURE 3.22 – Variation de σ_{max} en fonction de la déformation nominale imposée $\bar{\epsilon}$, pour différentes épaisseurs de films. Tous les calculs sont menés pour une cellule périodique de longueur $L = 5\mu m$.

Nous illustrons ici l'influence de h_f sur L_{sat} par une série de calculs sur la cellule périodique. Contrairement à la partie précédente, la longueur de la CR est fixée à $5\mu m$. L'épaisseur du film varie entre 25 nm et 125 nm. Cette CR contient une ZC centrale

simulant une fissure dans le film, une ZC interfaciale et une substrat avec la loi de comportement de l'ETFE (élasto-plastique). Les cellules étudiées ont les mêmes conditions aux limites et sont soumises au même chargement.

On retrouve pour toutes les cellules les mêmes observations déjà décrites dans la section 3.4.2. La figure 3.22 contient l'évolution de la contrainte maximale au bord σ_{max} entre deux fissures au cours du chargement pour les différentes cellules étudiées. Sur les courbes, on constate que σ_{max} est une fonction décroissante de h_f . Loin de la fissure, la contrainte transmise au film à travers l'interface est ainsi plus importante si le film moins épais.

Si on prend l'exemple d'un film qui aurait une contrainte limite à rupture T_{max} de 250MPa, on constate que la contrainte sur toutes les cellules ayant un $h_f > 75$ nm ne peut pas dépasser 250MPa au cours du chargement. Donc, leurs L_{sat} vont être forcément supérieures ou égales à 5 μm . Par contre les cellules dont l'épaisseur de film $h_f \leq 75$ nm, vont se fracturer de nouveau, et seront caractérisées par une $L_{sat} < 2.5$ μm .

De manière générale, *l'aspect monotone de la variation de σ_{max} en fonction de h_f* permet de conclure que la cellule la moins épaisse aura une distance inter-fissures finale plus petite et donc la densité de fissure sera plus grande.

3.4.5 Influence de l'écrouissage

La loi de comportement élasto-plastique du substrat a une influence sur le comportement à rupture du film en multi-fissuration. Pour mieux comprendre cette influence, nous allons garder la même forme qualitative de la loi d'écrouissage relative à l'ETFE mais en modifiant le début de chacun de deux régimes d'écrouissage.

Pour tous les cas d'études de cette partie, la longueur des CR utilisée est fixé à 5 μm , l'épaisseur du film h_f est égale à 0.1 μm et celle du substrat h_s est de 100 μm .

Premier régime d'écrouissage

Dans cette partie, on s'intéresse au premier régime d'écrouissage. Pour cela, on va effectuer trois simulations avec trois différents seuils de plasticité σ_{Y1} . Ainsi pour cette étude, σ_{Y1} prendra les 3 valeurs : 15, 20 et 30 MPa. En revanche nous ne modifions pas les modules tangents. Ainsi, puisque E_s est pour les trois cas égale à 1 GPa, ϵ_{Y1} prend les valeurs 1,5, 2 et 3%.

Les lois de comportement du substrat relatives aux nouvelles simulations sont pré-

sentées sur la figure 3.23(a) et la variation de la contrainte maximale moyenne σ_{max} dans le film pour les trois cas étudiés sont tracés sur la figure 3.23(b).

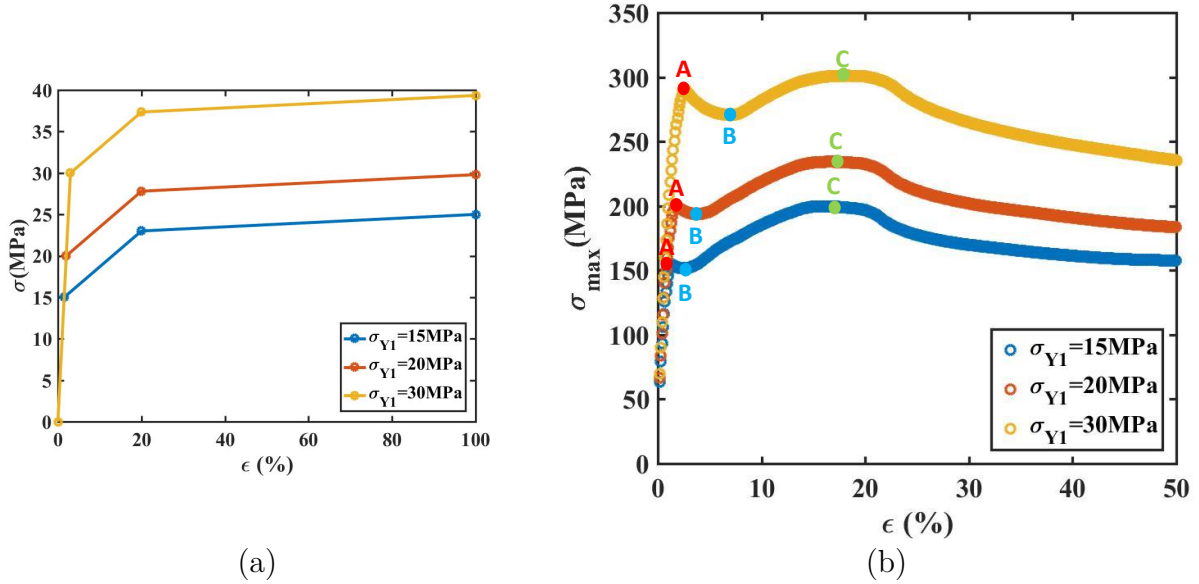


FIGURE 3.23 – Influence du premier régime d'érouissage (a) Lois de comportements associées aux trois simulations testées avec différents $(\sigma_{Y1}, \epsilon_{Y1})$ (b) Variation de la contrainte maximale σ_{max} dans le film pour les trois cas étudiés.

On voit que le premier régime de variation rapide de σ_{max} au sein du film, tel que décrit par la figure 3.15 (régime avant le point A), est contrôlé par le comportement purement élastique du film. Il se prolonge jusqu'à un niveau de déformation d'autant plus élevé que σ_{Y1} est grand. C'est dans ce régime que la bande de déformation plastique s'étend le long de l'interface.

On s'intéresse donc également à ce qui se passe localement autour de la fissure au cours du chargement. La courbe tracée sur la figure 3.24 présente l'étendue de la déformation plastique à l'interface pour les trois cas d'étude. On constate que l'étendue finale de la plasticité interfaciale est la même mais on remarque que la zone plastique à l'interface s'étale plus rapidement pour un substrat ayant la limite σ_{Y1} la plus faible. Pour les trois cas étudiés les bandes de cisaillement ne se déclenchent pas au même niveau de déformation, ce qui laisse le temps à la contrainte d'augmenter au sein du film. Donc pour un substrat ayant le σ_{Y1} le plus faible, le point B représentant un minimum locale est rapidement atteint. On observe en même temps un écart entre le maximum local (point A) et le minimum local (point B) de plus en plus grand à mesure que σ_{Y1} augmente.

Après cette légère chute, σ_{max} augmente de nouveau jusqu'à atteindre un maximum global (point C) presque au même niveau de déformation pour les trois différents σ_{Y1} . On

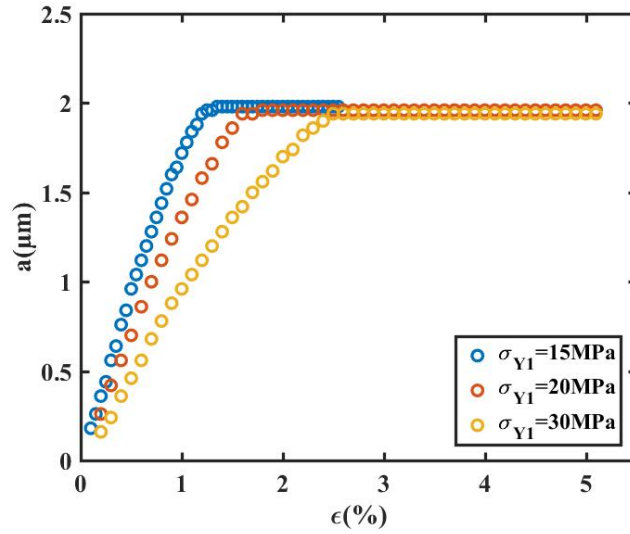


FIGURE 3.24 – Évolution de l'étendu de la déformation plastique interfaciale au cours du chargement pour une CR de longueur $L = 5 \mu\text{m}$ pour trois différents couples $(\sigma_{Y1}, \epsilon_{Y1})$

arrive à la saturation de la fissuration au même moment, où le premier régime d'écroutissage est fini et le deuxième régime est commencé.

Sur les courbes de la figure 3.23(b) on constate que plus σ_{Y1} est élevé plus le maximum global (point C) est important. Cela signifie que pour un substrat moins ductile, la contrainte critique nécessaire pour créer une fissure est plus rapidement atteinte. Par suite, la distance moyenne entre les fissures à saturation L_{sat} sera plus petite pour un substrat ayant un σ_{Y1} plus élevé.

Deuxième régime d'écroutissage

Dans cette partie, nous gardons le seuil de plasticité constant ($\sigma_{Y1}=15\text{MPa}$) et nous faisons varier la limite σ_{Y2} entre le premier et le deuxième régime d'écroutissage. Trois différentes simulations ont été lancées pour des limites ϵ_{Y2} égales à 20, 30 et 40% (voir la figure 3.25(a)). Comme au cours des études précédentes, l'évolution de la contrainte maximale dans le film σ_{max} au cours du chargement pour les trois cas étudiés a été tracée sur la figure 3.25(b).

Dans les trois cas, σ_{Y1} est identique donc le maximum local a la fin du régime élastique du substrat est le même sur les trois courbes. La plasticité interfaciale s'étale de la même manière en fonction de la déformation imposée et atteint la même largeur comme l'indique la figure 3.26. Le minimum locale est aussi identique pour les trois simulations.

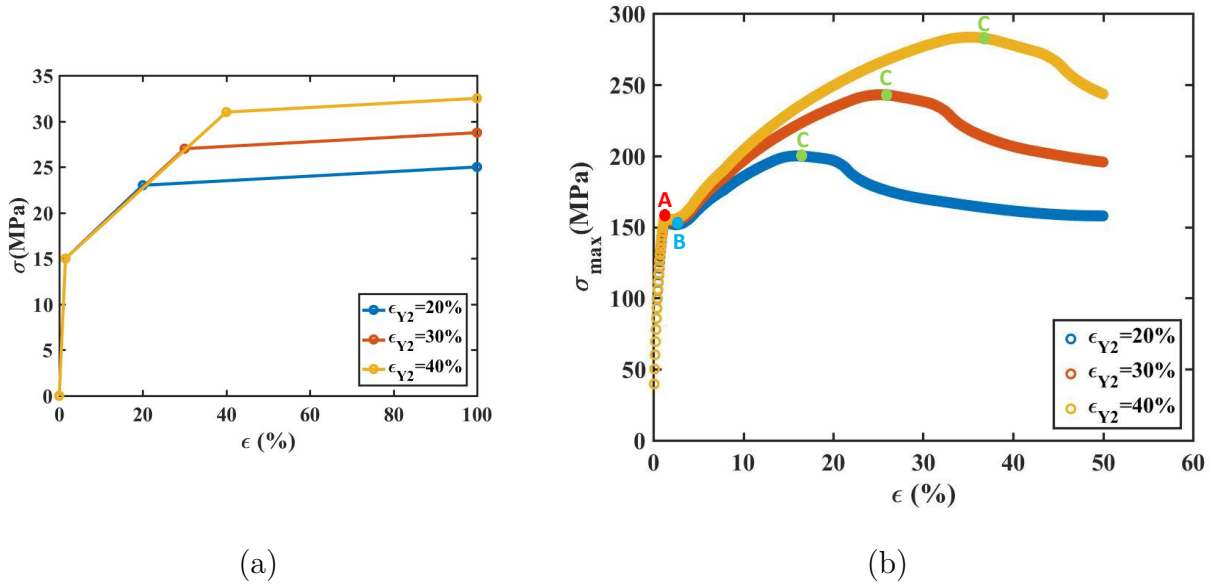


FIGURE 3.25 – Influence du deuxième régime d'écroutissage (a) Lois de comportements associées aux trois simulations testées avec trois différents couples $(\sigma_{Y2}, \epsilon_{Y2})$ (b) Variation de la contrainte maximale σ_{max} dans le film pour les trois cas étudiés.

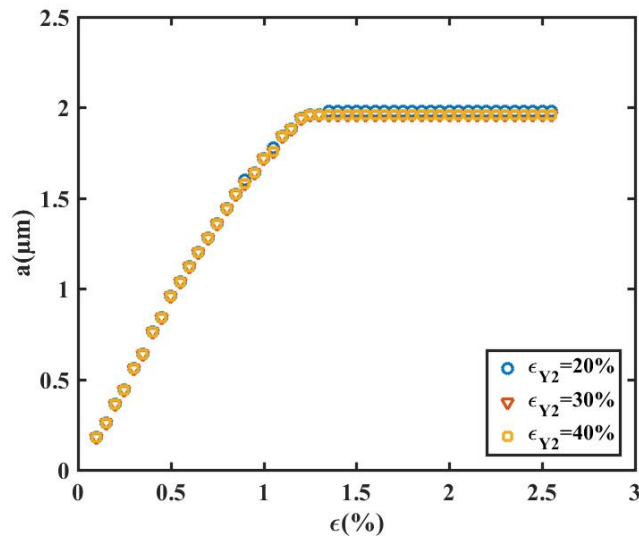


FIGURE 3.26 – Évolution de l'étendu de la déformation plastique interfaciale au cours du chargement pour une CR de longueur $L = 5 \mu\text{m}$ pour trois différents couples $(\sigma_{Y2}, \epsilon_{Y2})$.

A partir de ce point, la contrainte moyenne maximale σ_{max} augmente dans le film jusqu'à atteindre un maximum global $\sigma_{max}(C)$. Puis cette contrainte baisse et le déclenchement du deuxième régime d'écroutissage conduit à la stabilisation de la contrainte à un niveau bien inférieur à $\sigma_{max}(C)$.

A partir de ces études, on constate que σ_{max} est forcément influencé par le régime élastique plastique du substrat ce qui va influencer la distance inter-fissures moyenne à saturation L_{sat} . On a constaté que lorsque σ_Y (σ_{Y1} ou σ_{Y2}) augmente, le niveau de

contraintes dans le film entre deux fissures est plus élevé. L'effet est le même dans les deux cas : l'obtention d'un σ_{max} plus élevé donc une diminution de la distance inter-fissures à saturation. Il faut noter que la courbe représentative de σ_{max} en fonction de $\bar{\epsilon}$ a une allure complexe et fortement non linéaire. Les modifications de σ_{Y1} et de σ_{Y2} ont des effets assez différents localement sur cette courbe, même si l'allure globale reste qualitativement la même. On note que la hauteur du pic A relativement à celle de la bosse C varie assez fortement suivant que l'on fait varier σ_{Y1} ou σ_{Y2} .

Ces résultats sont en accord qualitatif avec les calculs théoriques de Hu et Evan [35] et ceux de Agrawal et Raj [1], qui ont exprimé la distance entre les fissures en fonction de la contrainte σ dans un film d'épaisseur h_f ainsi que la limite d'élasticité σ_Y . D'après les expressions de ces deux modèles, si on augmente σ_Y en gardant les tous autres paramètres constants, cette distance inter-fissures diminue. Donc les fissures sont plus proches pour un matériau plus ductile.

3.5 Comparaison des résultats du grand modèle avec ceux de la cellule représentative

Dans les sections précédentes, on s'est intéressé aux résultats donnés par le modèle numérique de multi-fissuration et ceux de la cellule représentative CR séparément. Dans cette partie, on va procéder à une comparaison entre les deux modèles pour voir la cohérence des résultats en terme de prédiction de la distance entre les fissures à saturation L_{sat} .

La figure 3.27 comporte l'histogramme déjà tracé sur la figure 3.7 combiné avec les résultats trouvés en utilisant les données issues des calculs sur la CR, rapportés de la figure 3.18. Les valeurs minimales et maximale de L_{sat} trouvées avec les CR sont représentées sur la figure 3.19 en traits pointillés. On rappelle que les valeurs de T_{max} indiquées pour les histogrammes sont en fait les valeurs moyennes de la distribution gaussienne, soit \bar{T}_{max} . Dans les CR, il n'y a pas de distribution de T_{max} . considérant que la fissuration est contrôlée par les valeurs les plus faibles de T_{max} dans le cas des grandes cellules, nous avons comparé à chaque fois deux à deux :

- un calcul réalisé avec \bar{T}_{max} sur la grande cellule.
- un calcul réalisé avec $T_{max} = \bar{T}_{max} - \Delta T_{max}$ sur la CR.

On constate sur la figure que les longueurs des fragments H formés à saturation sont influencées par la valeur de T_{max} , quel que soit le modèle utilisé. De plus, les valeurs minimales de H trouvées par les CR ou par le modèle de la multi-fissuration sont très

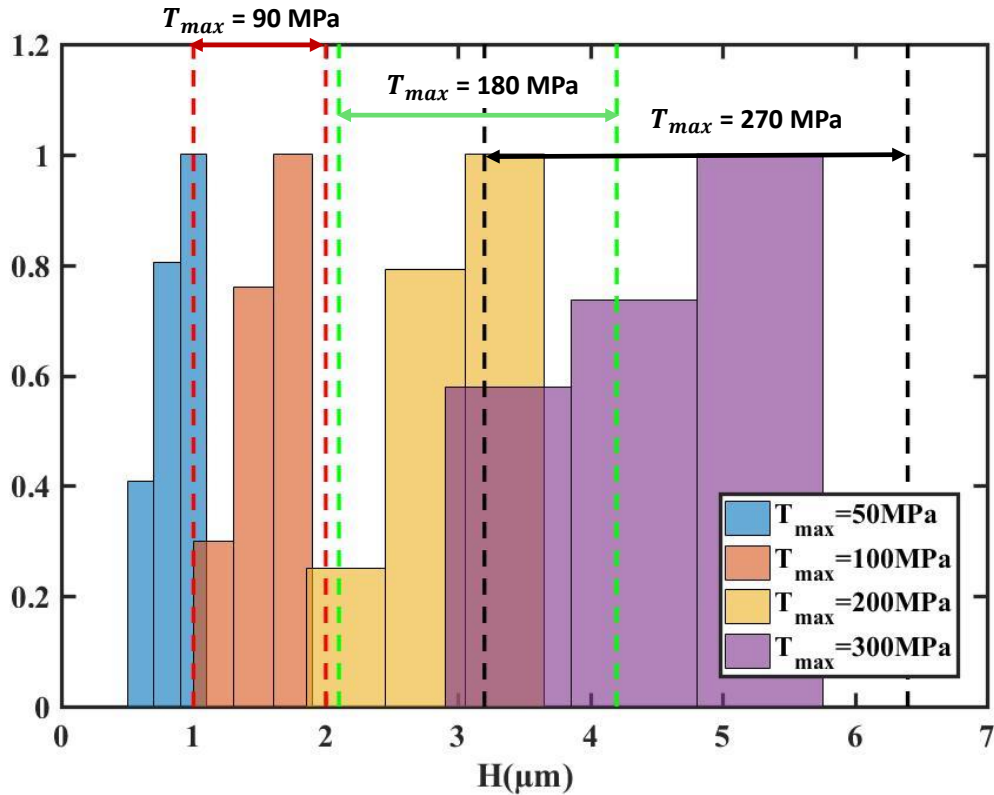


FIGURE 3.27 – Histogramme de la distance inter-fissures H à saturation obtenu pour plusieurs simulations du modèle numérique de la multi-fissuration avec différents T_{max} combinés avec les résultats d’encadrement de L_{sat} fournis par la CR.

proches. Par contre les valeur correspondante à la limite supérieure sont un peu décalées. Ce décalage peu venir du fait que, sur les grandes cellules, les plus grandes distances entre fissures ne sont pas bien représentées statistiquement, en raison de la taille finie de la cellule (même si elle est grande). On peut quand même souligner la très bonne cohérence des deux approches.

3.6 Influence du substrat

Pour élargir notre étude de l’influence du comportement élasto-plastique du substrat sur la distance inter-fissures à saturation, nous avons repris l’étude faite dans les sections 3.4.2 et 3.4.3 en modifiant la loi de comportement du substrat. Dans cette étude, le substrat est le PET, dont la comportement est représenté sur la figure 3.28 (issu de nos essais du laboratoire). Nous présentons ici des résultats obtenus en menant des calculs sur la cellule représentative (CR).

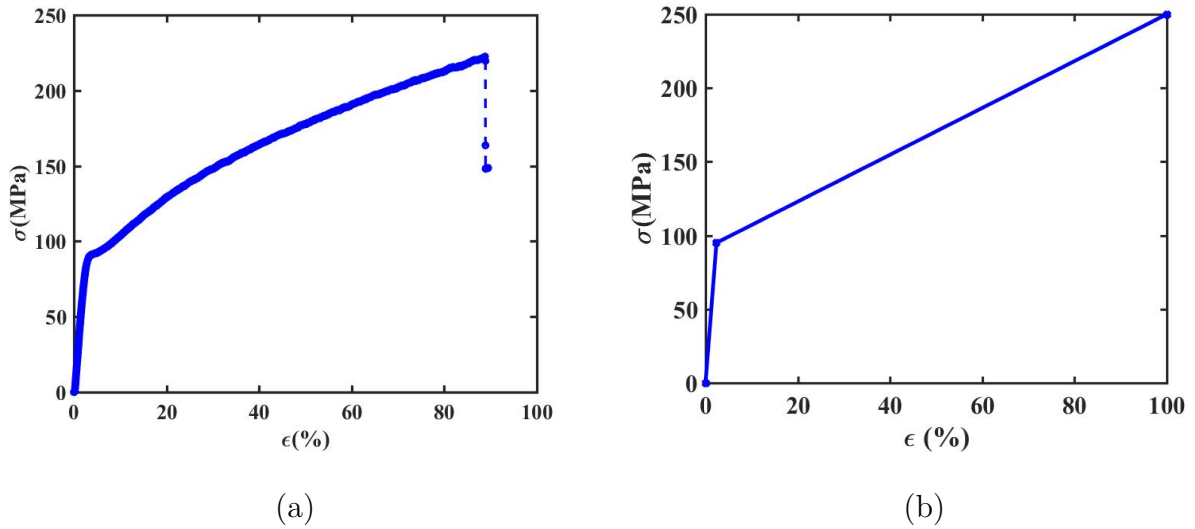


FIGURE 3.28 – Loi de comportement du substrat (a) trouvée expérimentalement (b) insérée dans le modèle mécanique.

La CR est identique à celle utilisée dans la cas d'un substrat en ETFE. Elle se compose d'un film d'oxyde (élastique, isotrope), d'un substrat en PET (élastique plastique, avec écrouissage isotrope), d'une CZ centrale dans le film simulant une fissure et d'une CZ à l'interface film/substrat. Les propriétés de cette CZ d'interface sont identiques à celles utilisées dans la section 3.4.2 (i.e. $T_{max}^{int}=100\text{MPa}$ et $G_c^{int} = 5\text{J}/\text{m}^2$).

Sur la figure 3.29, l'évolution de la contrainte maximale σ_{max} dans le film pour une cellule de longueur $L = 5\ \mu\text{m}$ est tracée. On peut observer deux points caractéristiques (points A et C). En analysant les cartographies de la déformation plastique au cours de

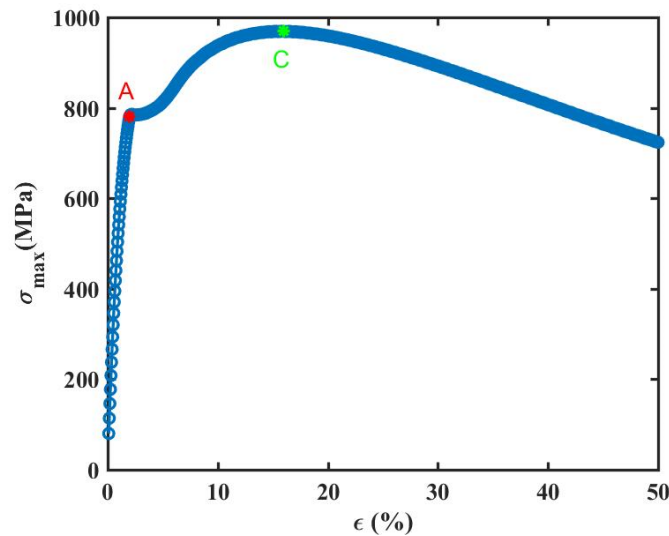


FIGURE 3.29 – Évolution de la contrainte maximale σ_{max} au cours du chargement pour une CR de longueur $L = 5\ \mu\text{m}$.

la déformation, on constate qu'avant le point A la déformation plastique s'étend prin-

cipalement dans une zone voisine de l'interface. Cette propagation interfaciale s'arrête quasiment au moment où le substrat entre globalement dans son régime d'écroutissage. La contrainte maximale σ_{max} dans le film augmente quasi linéairement jusqu'à atteindre un maximum local au point **A**. A partir de ce point, des bandes de cisaillements à 45° commencent à se propager dans le substrat, ce qui correspond à une baisse remarquable de la pente de la courbe et la contrainte est presque constante jusqu'à ce que les bandes arrivent au bord de la boîte de simulation. Ensuite, σ_{max} augmente progressivement dans le film jusqu'à atteindre un maximum global au point **C**.

Dans le cas d'un substrat en ETFE, l'évolution de σ_{max} dans le film été divisée en trois parties, associées à quelques points remarquables : point *A* (maximum local) et *C* (maximum global), mais également un minimum local (point *B*). Ici, si les points *A* et *B* peuvent aussi être observés, on remarque en revanche qu'il n'y a pas de minimum local suivant le point *A*.

De plus, pour le cas d'un substrat en ETFE après le point *C*, σ_{max} diminue légèrement puis forme un plateau (voir figure 3.17). En revanche pour le substrat en PET, après le point *C*, il y a une diminution continue de σ_{max} jusqu'à la fin du chargement.

Il est intéressant de constater que pour les deux substrats (ETFE et PET), même si l'écroutissage est très différent, on a existence d'un maximum absolu de σ_{max} en un point *C*, suivi d'une décroissance ce qui garantit une saturation des fissures. Par contre, la valeur de ce maximum $\sigma_{max}(C)$ est beaucoup plus importante dans le cas du PET, qui a une limite d'élasticité plus élevée et un écroutissage plus fort.

Dans le cas de l'ETFE, comme vu précédemment, cette décroissance semble associée à la localisation des déformations plastiques dans le réseau de bandes de cisaillement qui se forment à l'intérieur du substrat, en dessous de l'interface. Durant cette phase associée à une saturation de la multi-fissuration, la déformation juste en dessous des îlots fragmentés est très faible par rapport à la déformation prenant place dans ces bandes. En revanche dans le cas du PET, la source de cette diminution de contraintes est plus diverse, comme nous l'expliquons plus loin dans le texte.

Nous avons fait varier la longueur de la cellule de 2 à $L = 7 \mu\text{m}$. Pour chaque CR de longueur L , l'évolution de σ_{max} au cours du chargement a été tracée (voir figure 3.30). Les observations déjà faites dans le cas d'une cellule de longueur $L = 5 \mu\text{m}$ restent qualitativement semblables pour toutes les cellules quelles que soient leur longueurs. Les courbes montrent que la valeur maximale de $\sigma_{max}(C)$ augmente avec L . Ce qui conduit au fait que la valeur de L_{sat} augmente avec T_{max} , tout comme dans les cas précédemment étudiés.

Nous avons tracés les isovaleurs de σ_{max} en fonctions de L et $\bar{\epsilon}$ pour un substrat en PET sur la figure 3.31.

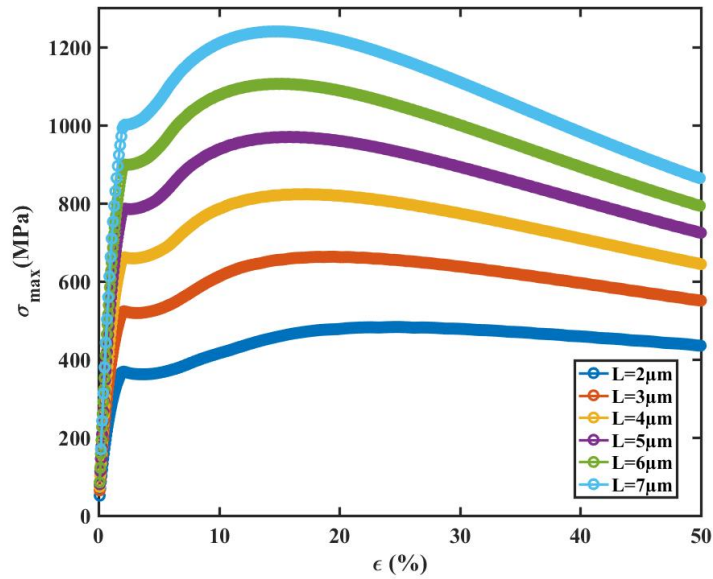


FIGURE 3.30 – Évolution de la contrainte maximale σ_{max} au cours du chargement pour des CR de différentes longueurs (cas du substrat PET).

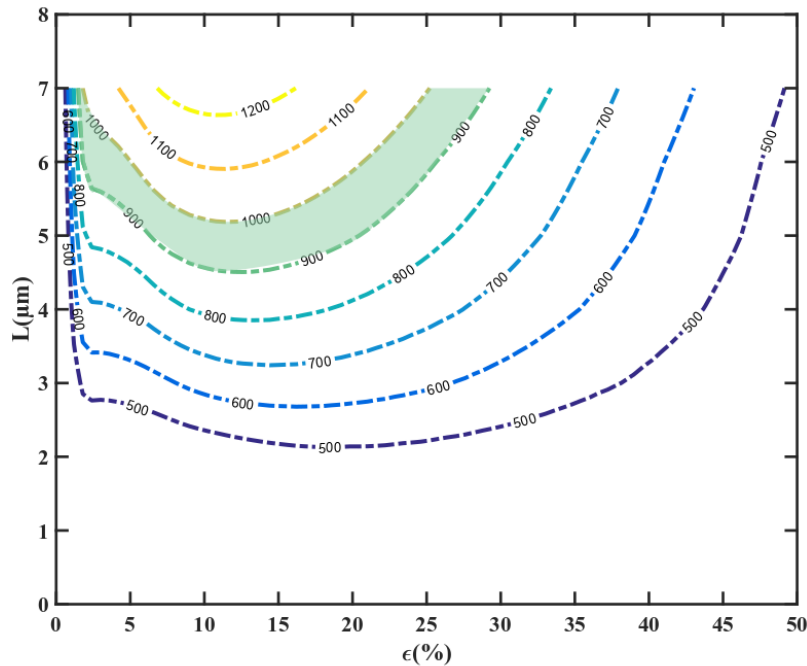


FIGURE 3.31 – Iso valeurs de σ_{max} en fonction de $\bar{\epsilon}$ (déformation nominale imposée) et L (taille des fragments) dans le cas d'un substrat en PET.

Les résultats Fig. 3.31 permettent d'associer à chaque valeur de T_{max} un encadrement des valeurs de la distance inter-fissures à saturation L_{sat} , comme cela a été fait dans le cas de l'ETFE (Fig. 3.18). Dans le cas de l'ETFE, les expériences de traction uniaxiale avaient permis d'observer une valeur de L_{sat} moyenne de $3,5 \mu m$ pour un film d'épaisseur $h_f = 100 nm$ [54]. Notre modélisation nous permet d'identifier une valeur $T_{max}=200MPa$

pour obtenir la mêmes valeurs de L_{sat} moyenne avec une simulation sur un film de ZnO de 100 nm d'épaisseur. Dans ce cas la simulation donne en effet des valeurs de L_{sat} telles que $2,5 \leq L_{sat} \leq 5\ \mu\text{m}$.

Pour les échantillons de $TiOx$ de $h_f = 0.1\ \mu\text{m}$ sur des substrats en PET, on a constaté expérimentalement une plage de valeurs similaires pour L_{sat} . En utilisant notre modèle avec le substrat PET, on identifie alors une valeur de T_{max} dans de film dans la fourchette $900 - 1000\text{ MPa}$. Ces valeurs, plus élevées que celles trouvées dans le cas du film ZnO sur ETFE, sont toutefois en accord avec les résultats expérimentaux trouvés par Letterier et al. [50]. Ces auteurs ont en effet mesuré expérimentalement la contrainte limite de rupture σ_r des monocouches d'oxyde de silicium ($SiOx$) de différents épaisseurs déposés sur du PET. Ils ont trouvé que pour une couche d'épaisseur 100nm , σ_r est de l'ordre de 1500MPa (σ_r correspond à T_{max} dans notre cas).

Le décalage entre les valeurs de T_{max} trouvées dans les deux cas n'est pas forcément une surprise, dans la mesure où les procédés de dépôt utilisés pour élaborer les deux systèmes sont bien différents.

En ce qui concerne les simulations numériques, le grand écart entre les valeurs de T_{max} trouvés dans le cas d'un substrat en ETFE et celui avec du PET menant au même encadrement de L_{sat} est clairement dû à la différence de lois de comportement dans le régime plastique de ces deux polymères.

On notera que dans le cas des simulations réalisées avec le substrat PET, on a observé un plus grand délaminage au niveau de l'interface, même si les propriétés de la zone cohésive interfaciale ont été choisies identiques à celles employées pour l'étude impliquant le substrat ETFE. En effet, le PET ayant une limite élastique σ_Y élevée et surtout un écrouissage fort, il est capable de transmettre plus de contraintes de cisaillement à l'interface film/substrat même lorsqu'il est en régime plastique.

Nous nous somme donc intéressés à comparer le délaminage à l'interface à un même niveau de déformation dans le cas d'un substrat en PET d'une part et en ETFE d'autre part. Pour cela nous avons pris le cas d'une CR de $L = 7\ \mu\text{m}$ contenant un substrat en ETFE et une autre contenant un substrat en PET, avec les mêmes propriétés d'interface.

Sur la figure 3.32, nous avons tracé l'évolution de σ_{max} au cours du chargement pour les deux substrats. Quel que soit le niveau de déformation imposée, les valeurs de σ_{max} du PET (courbe en rouge) sont plus élevées que celles obtenue dans le cas de l'ETFE (courbe en bleu). Les cartographies de la déformation plastique et de l'état de l'interface, prélevées à 25% de déformation, sont présentées sur la figure 3.32. Elles montrent que la longueur de délaminage L_D pour un substrat en PET est de l'ordre de $10xh_f$ alors que celui du ETFE est $\leq h_f^2$. De plus, on peut constater que la zone de forte déformation

2. On a zoomé autour de la fissure de l'interface. Celle ci n'occupe pas toute la longueur de la boîte de simulation !

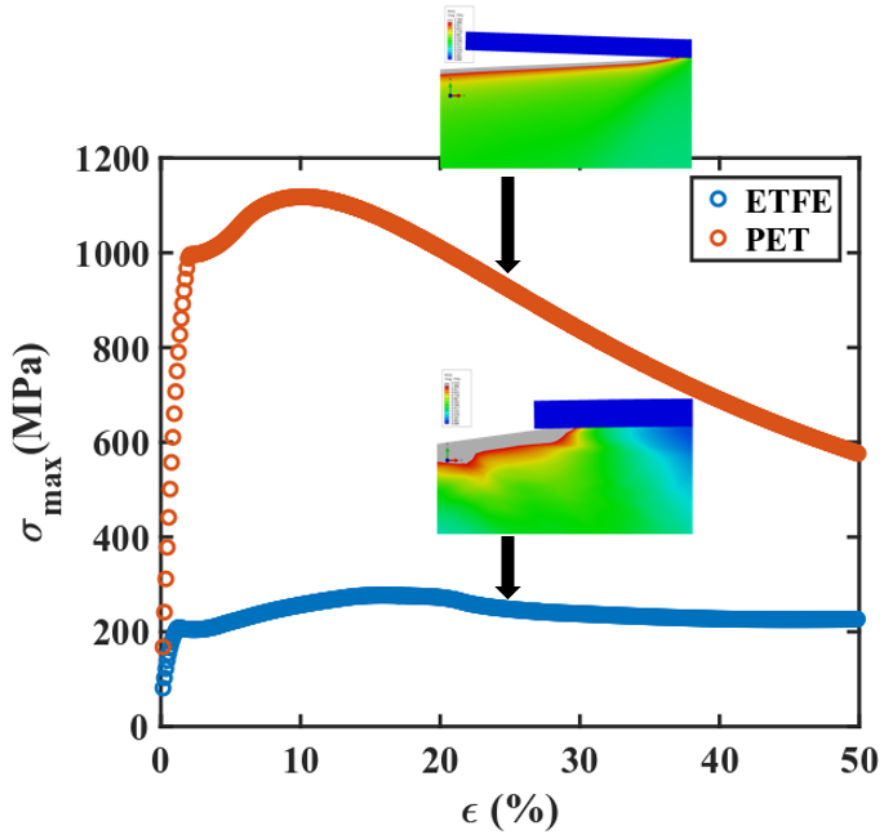


FIGURE 3.32 – Comparaison de l'évolution de la contrainte maximale σ_{max} au cours du chargement pour de CR de longueur $L = 7 \mu\text{m}$ entre un substrat en ETFE (bleu) et un substrat en PET (rouge). Des cartographies ont été ajoutées pour montrer la déformation plastique dans le substrat ainsi que l'état de l'interface dans les deux cas à 25% de déformation.

plastique en dessous de la fissure du film est plus profonde dans le cas d'un substrat en ETFE.

Cela confirme donc que la relaxation de la contrainte dans le film a plutôt tendance à être contrôlée par le délaminage interfacial dans le cas d'un substrat en PET. Par contre pour l'ETFE, la contrainte est plutôt relaxée dans le substrat en créant de la plasticité.

Pour mieux approfondir nos analyses concernant le délaminage interfacial dans le cas d'un substrat en PET, nous avons choisi une interface plus rigide avec un T_{max}^{int} de 500MPa et un G_c^{int} de $50\text{J}/\text{m}^2$. Sur la figure 3.33, nous avons tracé l'évolution de σ_{max} au cours du chargement dans le cas d'une CR contenant cette interface extrêmement résistante (courbe en rouge) et une CR avec une interface d'assez bonne résistance (courbe en bleu). Les deux CR ont une longueur $L = 5 \mu\text{m}$. Pour les deux CR, la variation de σ_{max} est très proche jusqu'à arriver au point A. Puis les valeurs de σ_{max} pour la CR avec l'interface extra-forte (présentant très peu de délaminage) deviennent de plus en plus élevées (croissance monotone) alors que les valeurs de σ_{max} obtenues avec l'interface assez bonne (se délaminant partiellement) diminuent après le point C.

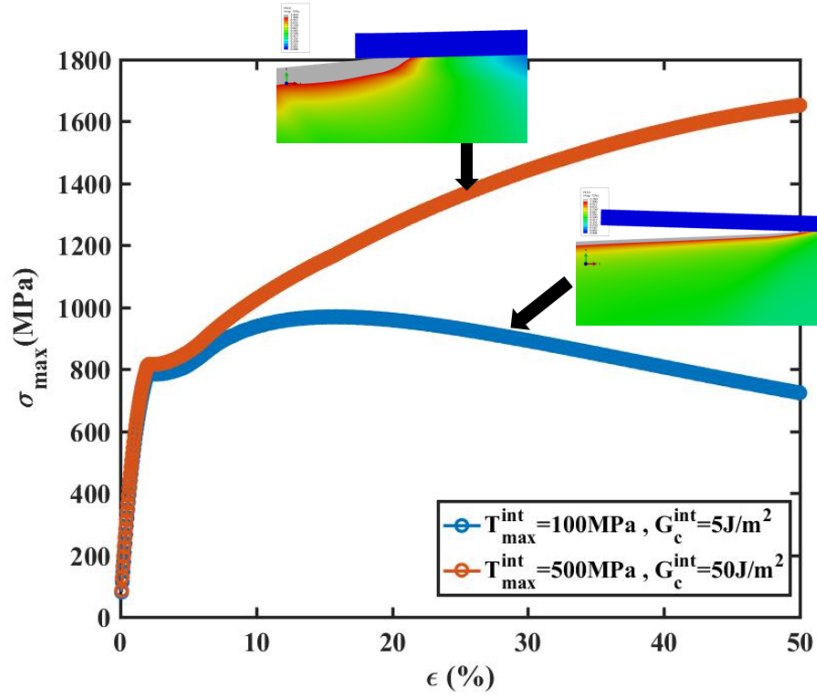


FIGURE 3.33 – Comparaison de l'évolution de la contrainte maximale σ_{max} au cours du chargement pour de CR de longueur $L = 5 \mu\text{m}$ dans le cas un substrat en PET pour une interface extrêmement résistante (courbe en rouge) et une interface d'assez bonne résistance (courbe en bleu).

En regardant localement en dessous de la fissure, on peut observer que la déformation dans le substrat peut atteindre 350%.

Dans le cas d'un substrat en ETFE, cela ne pose pas de problème puisque l'allongement jusqu'à la rupture peut atteindre 460% de déformation. En revanche pour le PET, cela devient problématique puisque son allongement jusqu'à la rupture ne dépasse pas 100% en général.

Pour résoudre ce problème, nous avons procédé à un enrichissement de notre modèle mécanique en introduisant un critère d'endommagement dans les éléments du substrat tout en gardant le reste du modèle identique. Ce critère est défini par une valeur de la déformation principale maximale critique ϵ_{crit} à partir de laquelle un élément commence à s'endommager. Nous avons fixé ϵ_{crit} à 100%. Une fois cette valeur critique atteinte, la rigidité de l'élément est ensuite dégradée via une variable d'endommagement D variant de 0 (élément sain) à 1 (élément totalement endommagé). Un travail de rupture plastique G_c nécessaire à dégrader complètement l'élément doit également être choisi. Nous l'avons fixé à 0.5 J/m^2 . Cette valeur est arbitraire. Nous voulions favoriser une apparition de fissure dans le substrat s'étendant à une profondeur de l'ordre de grandeur de l'épaisseur du film, ce qui nous semble raisonnable³. Sur la figure 3.34, l'évolution de σ_{max} dans le

3. Communication privée avec des collègues du LSPM de Villeneuve, ayant observé à l'AFM des fissures pénétrant au sein de leur substrat jusqu'à une profondeur de cet ordre de grandeur

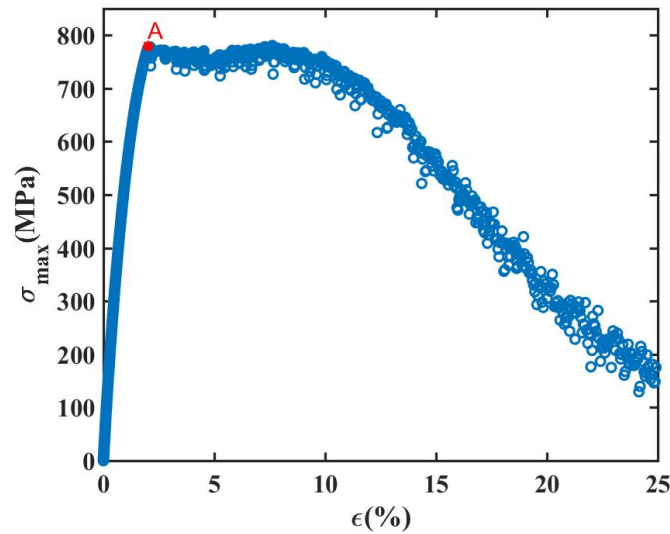


FIGURE 3.34 – Évolution de la contrainte maximale σ_{max} au cours du chargement pour de CR de longueur $L = 5 \mu\text{m}$ un substrat en PET en utilisant le critère d'endommagement. Des cartographies montrent la déformation plastique dans le substrat ainsi que l'évolution de la fissuration, à 25% de déformation.

film pour une cellule de $L = 5 \mu\text{m}$ a été tracée. On constate que dans ce cas, un seul point remarquable peut être identifié : le point A. Avant ce point, la contrainte dans le film augmente quasi linéairement et la plasticité interfaciale se développe dans le modèle. Une fois le point A atteint, l'endommagement des éléments du substrat commence. La contrainte dans le film reste presque constante au même niveau que celui du point A jusqu'à 10% de déformation environ puis commence à diminuer jusqu'à devenir assez faible au bout de 20-25% de déformation.

Nous avons procédé par la suite à une comparaison entre trois CR de longueur $L = 5 \mu\text{m}$: une CR contenant un substrat en ETFE, une CR possédant un substrat en PET et une dernière comportant un substrat en PET endommageable. L'évolution σ_{max} au cours du chargement pour les trois cas, ainsi que les cartographies des déformations plastiques au sein du substrat et la visualisation de la fissuration pour 25% de déformation sont présentées sur la figure 3.35. On peut observer que l'endommagement reste concentré en dessous de la fissure.

On observe que, avec les paramètres d'endommagement de l'interface choisis, le délaminage de l'interface disparaît au profit de l'endommagement/plasticité au sein du substrat. Autour de 20% de déformation, on retrouve environ au sein du film les contraintes qui avaient été obtenues dans le cas de l'ETFE. Même si la fissure descend uniquement dans le substrat à une profondeur de l'ordre l'épaisseur du film, cela conduit à un écartement très fort des deux surfaces libres du film et les bandes de cisaillement se formant dans le substrat semblent assez larges.

Dans le cas d'un substrat comme le PET, l'introduction d'un endommagement pos-

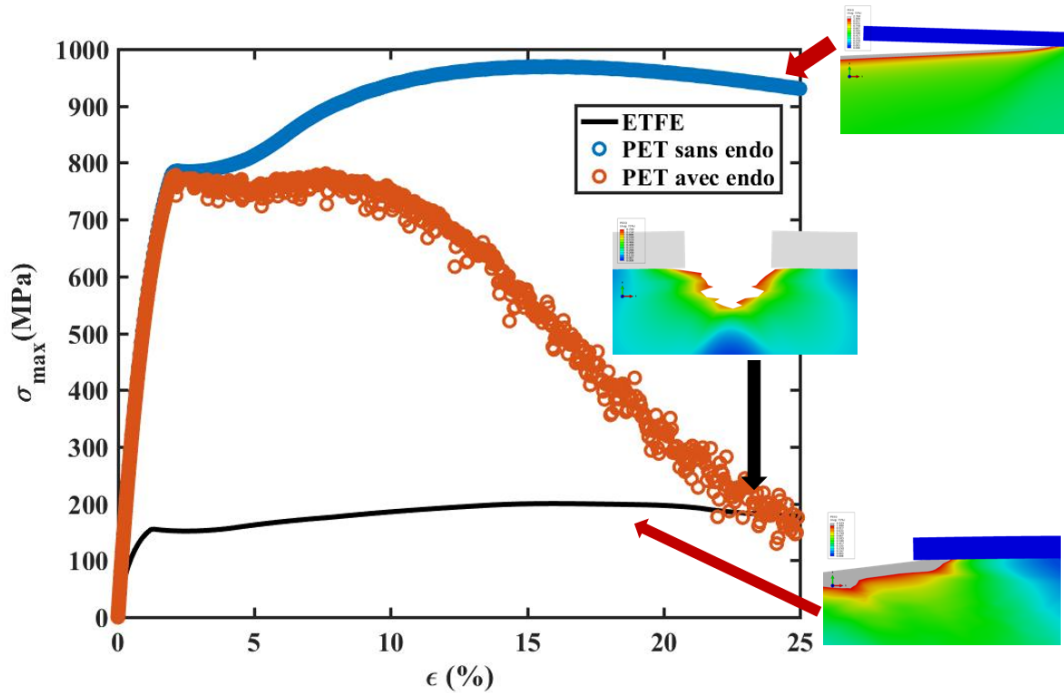


FIGURE 3.35 – Comparaison de l'évolution de la contrainte maximale σ_{max} au cours du chargement pour trois CR de longueur $L = 5 \mu\text{m}$: une CR avec un substrat en ETFE (trait noir continu), une CR avec un substrat en PET (courbe en bleu) et une CR avec un substrat en PET ayant le critère d'endommagement (courbe en rouge) + Cartographies d'Abaqus au niveau de l'interface pour les deux cas étudiés à 25% de déformation.

sible au sein du substrat semble une idée intéressante. *De manière à pouvoir calibrer les paramètres du modèle d'endommagement, des observations expérimentales de l'état du substrat en dessous de la fissure du film pour vérifier son endommagement local et la profondeur de cette fissure sont nécessaires (mesures AFM).*

Conclusion

Le modèle mécanique que nous avons développé s'intéresse uniquement aux mono couches fragiles (oxyde) déposées sur des substrat élasto-plastiques (type polymère ici, mais on pourrait le généraliser à d'autres types de matériaux, comme les matériaux métalliques). Il nous a permis de comprendre les paramètres influençant le mécanisme de la fissuration de ces couches et les distances inter-fissures à saturation.

La méthode des zones cohésives a été choisie pour modéliser la rupture du film et de l'interface film/substrat. Cette méthode permet de représenter sous forme homogénéisée le processus de rupture physique du matériau sous la forme générale d'une loi cohésive donnant localement la traction au niveau de l'élément cohésif en fonction de son ouverture, depuis l'initiation jusqu'à la perte totale d'interaction et donc la rupture.

Il existe plusieurs types des lois cohésives qui peuvent être utilisées. Nous avons choisi la loi bilinéaire caractérisée par trois paramètres indépendants :

- La contrainte à l’amorçage de la rupture T_{max}
- L’ouverture critique δ_c à partir de la quelle l’élément est considéré cassé
- Un raideur K élevé pour s’assurer que l’initiation de la rupture commence à T_{max}

Cette loi était détaillée dans les chapitres 1 (section 1.4.2) et 3 (section 3.1.1)

Dans notre modélisation mécanique, nous avons procédé en deux approches. Nous avons commencé par créer un premier modèle qui se compose d’un film (fragile élastique isotrope d’oxyde), d’un substrat (souple élastique-plastique isotrope en ETFE), une zone cohésive à l’interface film/substrat et plusieurs zones cohésives dans le film qui simulent des sites potentiels de fissures. Ces zones cohésives ont été implantées entre chaque éléments voisins du film, avec une répartition Gaussienne de leur T_{max} avec une écart type ΔT_{max} . Cette répartition Gaussienne sert à simuler le caractère aléatoire de l’apparition des fissures au premier stade d’endommagement du film. Numériquement cette distribution aléatoire permet d’avoir un problème bien posé, dans le sens qu’un nombre très limité de sites atteignent simultanément le critère d’amorçage de la fissuration pour une déformation donnée, et non pas tous les éléments simultanément comme cela serait le cas pour une distribution uniforme de T_{max} .

Ce modèle a permis de reproduire les trois régimes de la multi-fissuration du film observés expérimentalement. L’état de contrainte dans le film et la distribution de la contrainte après l’apparition des fissures ont été étudiés. Nous avons pu remarquer la présence d’un léger délaminage à l’interface film/substrat, d’extension toujours inférieure à l’épaisseur du film.

En utilisant ce modèle, nous avons pu identifier l’influence de plusieurs paramètres. Pour chaque cas, l’évolution de la distance inter-fissures au cours du chargement a pu être tracée, jusqu’à saturation. L’étude paramétrique a commencé par les propriétés des zones cohésives du film. En faisant varier T_{max} de 50 à 300MPa, nous avons pu distinguer que la distance moyenne entre les fissures à saturation L_{sat} augmente de 0,85 à 4.325 μm . Plus le film résiste à l’apparition des fissures, plus L_{sat} est important. L’effet de l’écart type ΔT_{max} sur L_{sat} semble faible. Celles ci ne semble pas modifier le processus de la multi fissuration ni L_{sat} dans le cas de ETFE. Ceci est dû à l’écrouissage faible du substrat, qui se déforme à faible contrainte et ne transmet pas suffisamment d’effort à l’interface pour induire une décohésion.

Nous avons par la suite réduit ce modèle en une cellule représentative CR de longueur L en prenant en compte la présence d’une fissure unique centrale dans la cellule (en réalité une distribution périodiques de fissures car des conditions aux limites périodiques ont été appliquées à la cellule de calcul). Ce modèle réduit a permis d’étudier uniquement les deux derniers régimes de la fissuration et d’évaluer les paramètres qui influent ces

deux régimes, surtout la saturation.

L'étude de la redistribution de la contrainte loin de la fissure (sur le bord du modèle) dans le film à révélé l'existence de quatre stades :

- Un premier stade d'évolution linéaire de la contrainte au bord du film accompagnée par l'étalement d'une zone de déformation plastique depuis la fissure le long de l'interface film/substrat.
- Un deuxième stade au cours duquel la contrainte baisse légèrement dans le film et des bandes de cisaillement apparaissent dans le substrat à 45° jusqu'au bord de la cellule.
- Un troisième stade marqué par une augmentation de la contrainte dans le film et l'élargissement des bandes de cisaillement dans le substrat. Un pic de contrainte σ_{max} indique la fin de ce stade.
- Un quatrième stade au cours duquel la contrainte dans le film baisse légèrement jusqu'à saturer et former un plateau constant (la déformation est alors confinée dans les bandes de cisaillement dans le substrat).

Nous nous sommes particulièrement intéressés à la contrainte σ_{max} au milieu de deux fissures existantes. Le critère de rupture a pu s'exprimer simplement par $\sigma_{max} = T_{max}$.

En changeant la longueur du modèle L , nous avons pu proposer un encadrement de L_{sat} en fonction de T_{max} .

La même démarche a été faite en changeant l'épaisseur du film et en gardant la même longueur L du modèle. Nous avons pu constater que plus le film est épais, plus L_{sat} est grand.

L'influence du comportement élasto-plastique du substrat a une influence sur L_{sat} ([35, 1, 7, 54]). Cela a donc fait partie de cette étude paramétrique. Nous avons commencé par changer les paramètres d'érouissage du substrat étudié (ETFE). Nous avons pu constater un effet sur l'évolution de σ_{max} au cours du chargement et donc sur L_{sat} . Pour un substrat moins ductile (érouissage plus fort), L_{sat} diminue. Nos résultats sont qualitativement cohérents avec les résultats de la littérature ([35, 1, 8]). Cependant, ces derniers ne rendent pas compte de la déformation plastique complexe au sein du substrat, sur laquelle repose en bonne partie le phénomène de saturation de la multi-fissuration. La variation complexe de σ_{max} à la fois avec la taille de cellule H et la déformation imposée $\bar{\epsilon}$ confirme a posteriori la nécessité de notre démarche de modélisation mécanique réaliste s'appuyant sur le calcul numérique. Dans le cas des systèmes ZnO/ETFE ou TiOx/PET, nous avons pu identifier des valeurs de T_{max} à partir des données expérimentales.

Conclusions et perspectives

Conclusions

Lors de cette étude, nous avons utilisé un modèle mécanique pour étudier la multi-fissuration des films minces fragiles déposés sur des substrats souples de polymère. Ce modèle, en déformations planes, se compose :

- d'un film élastique isotrope.
- d'un substrat élasto-plastique, à écrouissage isotrope.
- d'une zone cohésive entre le film et le substrat ayant pour but de prendre en compte le délaminage éventuel du film à l'interface film/substrat.
- de zones cohésives insérées dans le film pour permettre à des fissures de s'initier et de se propager à travers l'épaisseur du film.

La méthode des zones cohésive présente l'avantage de pouvoir gérer à la fois l'initiation et la propagation des fissures.

En toute dernière partie de l'étude, nous avons aussi examiné l'influence de l'endommagement du substrat sur le mécanisme de fissuration.

Ce modèle a été implémentée numériquement au sein du logiciel d'éléments finis ABAQUS.

Les principaux paramètres utilisés dans le modèle ont été extraits d'essais de traction uni-axiale effectués dans le cadre de ce travail. Les détails des essais ont été donnés dans le deuxième chapitre. En particulier l'identification des propriétés mécaniques de deux types de substrats, à savoir le poly-téréphtalate d'éthylène (PET) et le poly-éthylène-co-tétrafluoroéthylène (ETFE), a été effectuée.

De manière à étudier la multi-fissuration, des essais de traction uni-axiale in situ ont été menés principalement sur des mono-couches d'oxyde de titane (TiO_x) de différentes épaisseurs déposées sur du PET. L'analyse des images issues des observations sous microscope numérique a confirmé les résultats des travaux antérieurs ([50, 54]). Il a ainsi pu être observé que le processus de multi-fissuration se produit en 3 régimes :

- Un premier régime d'apparition aléatoire des fissures.

- Un deuxième régime de fissuration régulière (au milieu de deux fissures pré-existantes).
- Un dernier régime de saturation de la fissuration.

Au cours du deuxième régime, des cloques de délaminage à l'interface film/substrat ont également pu être observées. Ces cloques sont causées par la compression apparaissant dans le sens perpendiculaire à la direction de traction (due à la différence des coefficients de Poisson entre le film et le substrat).

A l'issue de ce processus, une distance inter-fissures à saturation L_{sat} a pu être mesurée. Cette distance s'est avérée dépendre de l'épaisseur de la couche. Plus la couche est épaisse plus les fissures sont espacées.

Des essais de traction uni-axiale associés à des observations microscopiques ont également été effectués sur des multi-couches composées de couches d'oxyde de titane (couches fragiles) et d'une couche d'argent (couche ductile) de différentes épaisseurs déposées sur un substrat en PET. Ces analyses ont montré que dans le cas des multicouches fragiles/ductiles, le processus de multi-fissuration diffère en fonction de l'épaisseur de la couche ductile (i.e. couche d'argent) ou du rapport R entre les épaisseurs des couches fragiles (i.e. en oxyde) et ductiles.

En effet, si $R \gg 1$ (i.e. l'épaisseur des couches fragiles est supérieure à celle des couches ductiles), le processus de multi-fissuration est identique à celui observé pour les mono-couches : des fissures longues et droites traversent toute la longueur du film avec l'apparition des trois régimes évoqués plus haut.

Dans le cas où $R \ll 1$, les fissures sont plutôt courtes et se propagent en zigzag à la surface du film.

Nous avons pu aussi remarquer l'existence d'un cas intermédiaire, quand R se rapproche de 1 (épaisseurs des couches fragiles et ductiles presque identiques). Dans ce cas, les premières fissures qui apparaissent à faible niveau de déformation sont longues, droites et traversantes. En augmentant la déformation imposée, les nouvelles fissures deviennent courtes et se propagent en zigzag.

Le modèle mécanique que nous avons mis en place s'intéresse uniquement aux mono-couches fragiles (en oxyde) déposées sur un substrat en polymère. Il nous a permis de comprendre les paramètres influençant le mécanisme de fissuration de ces couches et la distance inter-fissures à saturation.

Pour gérer la rupture, nous avons choisi des zones cohésives caractérisées par une loi traction-ouverture bilinéaire, caractérisée par deux principaux paramètres physiques indépendants :

- La contrainte à l'amorçage de la rupture T_{max} .
- L'ouverture critique δ_c à partir de la quelle l'élément est considéré cassé.

Une première étude a été menée sur une grande cellule de calcul, comportant de nombreux sites potentiels d'initiation de la fissuration au sein du film. Une répartition Gaussienne de T_{max} est distribuée au sein de cette population de sites d'amorçages, avec une écart type $\Delta_{T_{max}}$. Ce modèle a permis de reproduire les trois régimes de la multi-fissuration du film observés expérimentalement.

Une première observation intéressante a été l'influence de la valeur de traction maximale à rupture du film sur la distance inter-fissures à saturation. En faisant varier T_{max} de 50 à 300MPa, nous avons pu distinguer que la distance moyenne entre les fissures à saturation L_{sat} augmentait de 0.85 à 4.325 μm . En revanche, l'effet de l'écart type $\Delta_{T_{max}}$ sur L_{sat} semble faible, avec L_{sat} diminuant de 12% pour un δT_{max} allant de 5 à 40%.

Concernant les propriétés d'adhérence de l'interface, nous avons constaté que dans le cas de l'ETFE (qui a été notre principal cas d'étude), seul un délaminage très faible a l'interface a été observé, et ce que l'interface ait été choisie faiblement adhérente ou fortement adhérente au substrat. Cela vient du fait que l'ETFE a un écrouissage faible et qu'il transmet assez peu de contraintes à l'interface au voisinage de la fissure, ne permettant donc pas le délaminage de cette dernière. En revanche, dans le cas du PET, ayant un écrouissage plus fort, l'interface avait au contraire tendance à de délaminer pour relaxer les contraintes dans le système.

Nous avons ensuite réduit ce modèle a une cellule représentative CR de longueur L en considérant uniquement la présence d'une seule fissure centrale dans le film au milieu de la cellule. Des conditions périodiques ont été choisies sur les bords gauche et droit de la cellule dans ce cas (représentation d'une distribution de fissures régulièrement espacées). Ce modèle réduit nous a permis d'étudier uniquement les deux derniers régimes de la fissuration et d'évaluer les paramètres influant sur ces deux régimes, en particulier la saturation.

L'étude de l'évolution de la contrainte de traction maximale σ_{max} (toujours située à équidistance des fissures) au cours de la déformation imposée $\bar{\epsilon}$ a permis de dégager quatre stades d'une évolution complexe :

- Un premier stade d'évolution linéaire de la contrainte au bord du film accompagnée d'un étalement de zone plastique à l'interface film/substrat.
- Un deuxième stade au cours duquel la contrainte baisse légèrement dans le film et des bandes de cisaillement (déformation plastique localisée) s'étendent dans le substrat à 45° jusqu'au bord de la cellule.
- Un troisième stade marqué par une augmentation de la contrainte dans le film et l'élargissement des bandes de cisaillement dans le substrat. Un pic de contrainte σ_{max} indique la fin de ce stade.
- Un quatrième stade au cours duquel la contrainte dans le film baisse légèrement jusqu'à se saturer et former un plateau constant.

Nous nous sommes particulièrement intéressés à la contrainte σ_{max} au milieu de deux

fissures existantes. Le critère de rupture a pu s'exprimer simplement par $\sigma_{max} = T_{max}$. En changeant la longueur du modèle L , nous avons pu proposer un encadrement de la distance inter-fissures à saturation L_{sat} en fonction de T_{max} . La même démarche a été faite en changeant l'épaisseur du film et en gardant la même longueur L du modèle. Nous avons pu constater que plus le film est épais, plus L_{sat} est grand. Enfin, une valeur de T_{max} a pu être identifiée à partir des données expérimentales en s'appuyant sur le modèle.

Finalement, nous avons changé de substrat en remplaçant l'ETFE par le PET, qui a un écrouissage beaucoup plus fort que l'ETFE. Dans ce cas σ_{max} atteint des valeurs beaucoup plus grandes. On constate alors que l'interface film/substrat a tendance à se délaminer beaucoup plus, et ce même si l'interface est rendue plus résistante (augmentation de T_{max}^{int} et G_c^{int}). Ainsi, un mécanisme de relaxation des contraintes purement basée sur la déformation plastique du substrat dans le cas de l'ETFE est remplacé par un mécanisme conjoint de déformation plastique dans le substrat et à une délaminage de l'interface dans le cas du substrat PET. La valeur de T_{max} identifiée dans ce cas est 3 à 4 fois plus forte que dans le cas de de l'ETFE.

Enfin, un autre mécanisme de relaxation des contraintes est envisagé dans le cas du PET. Il s'agit d'un mécanisme d'endommagement basé sur un critère simple de déformation principale maximale. Dans ce cas, la fissure formée dans l'oxyde se propage dans le substrat, et le film a tendance à moins délaminer. On constate que les valeurs de σ_{max} sont inférieures à celles obtenues avec le mécanisme de délaminage/plasticité seul. Comme perspective, il serait intéressant d'utiliser des techniques expérimentales comme l'AFM pour :

- mesurer la profondeur des fissures dans le substrat.
- évaluer l'ampleur du délaminage à l'interface

Ceci permettrait de calibrer les paramètres du comportement de l'interface et de l'endommagement.

Perspectives

Perspectives expérimentales

Dans le deuxième chapitre, nous avons détaillé des observations expérimentales du mécanisme de fragmentation des films minces. A la suite de ces observations, quelques études complémentaires sont envisageables, notamment en concernant l'ouverture des fissures, la morphologie des cloques de délaminage et l'influence du substrat sur le phénomène de fragmentation des couches minces.

- Ouverture des fissures et morphologie des cloques de délaminage

L'état final des couches minces après leur traction uniaxiale montre une influence de h_f sur l'ouverture finale des fissures. L'exemple de couches d'épaisseur 25 et 125 nm est montré sur la figure 3.36). Dans les deux cas, il s'agit d'une image prise à 20% de déformation. On peut constater que les fissures de la couche de 125nm d'épaisseur sont plus ouvertes que celle de 25nm. C'est un cas typique où la coexistence de la plasticité et de l'endommagement dans le substrat d'une part et la décohésion de l'interface film/substrat d'autre part doivent être pris en compte finement dans les modèles afin de pouvoir faire des prédictions efficaces. Des observations expérimentales fines devraient pouvoir fournir des informations importantes pour la validation des modèles.

D'autre part, sur la figure 3.36, on peut voir que les morphologies des cloques diffèrent pour les deux épaisseurs de films. A gauche, sur la couche d'épaisseur 25nm, les fissures traversantes et les cloques ont des largeurs similaires. Par contre sur la couche d'épaisseur 125nm, les cloques sont plus larges que les fissures. La hauteur de ces cloques est élevée. Le mécanisme de nucléation et de propagation de ces cloques est un problème qu'il serait intéressant d'examiner.

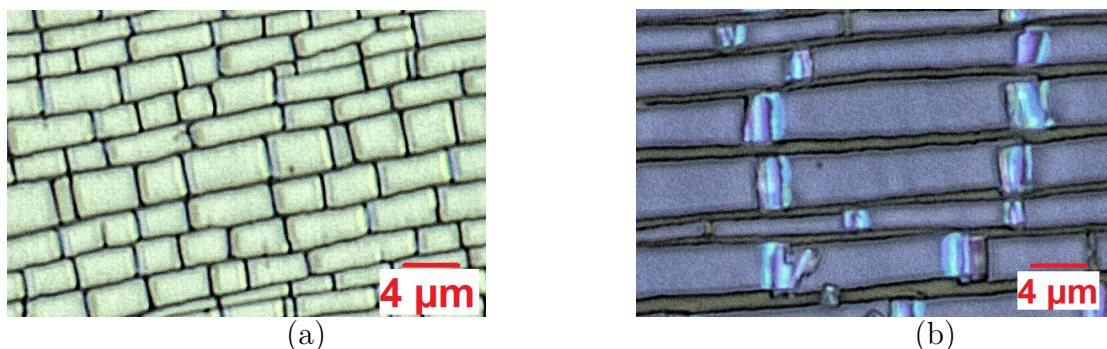


FIGURE 3.36 – Vue d'une mono-couche d'oxyde de titane d'épaisseur (a) 25 nm et (b) 125nm à 20% de déformation.

- Influence du substrat : Comparaison entre PET et ETFE

Il est intéressant de constater que, pour des oxydes et des substrats bien différents, on observe très souvent des dépendances similaires de la distance inter-fissures à saturation L_{sat} en fonction de l'épaisseur des films. A titre d'exemple, des données expérimentales provenant d'essais de traction uni-axiale sont représentées Fig. 3.37. Il s'agit de monocouches d'oxyde de zinc de différentes épaisseurs déposées sur un substrat en ETFE [54] et de monocouches d'oxyde de Silicun SiOx de différentes épaisseurs déposées sur un substrat en PET [50]. Sur la figure 3.37, les distances inter-fissures à saturation L_{sat} on

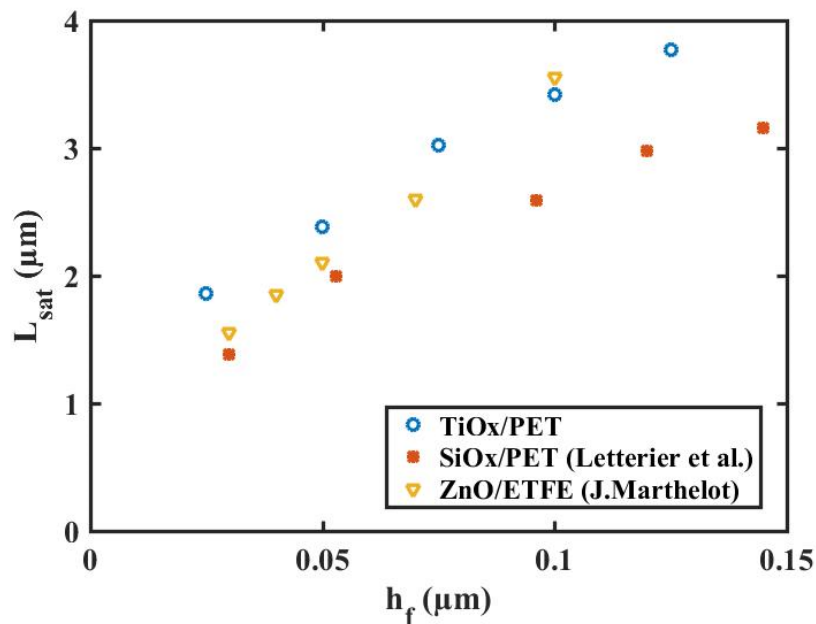


FIGURE 3.37 – Comparaison de distances interfissures à saturation L_{sat} mesurées expérimentalement en fonction des épaisseurs de film h_f : pour un film en TiOx déposée sur du PET (points en bleu) , pour un film en SiOx déposée sur du PET [50] (points en rouge) et un film en ZnO déposée sur du ETFE [54] (points en jaune).

été tracées en fonction de l'épaisseur de la couche h_f à partir des données trouvées dans les deux publications. Dans les trois cas, il s'agit de couches d'oxydes fragiles. Les fissures qui apparaissent sur leur surface sont traversante et droites. Quels que soient l'oxyde et le polymère utilisés, L_{sat} est une fonction croissante de h_f , comme discuté précédemment dans le manuscrit. Ce qui semble remarquable, c'est que dans les trois cas les valeurs de L_{sat} en fonction de h_f sont très proches, malgré les différences de matériaux et procédés d'élaboration.

Or notre étude, comme celles de de Hu et Evans [35] ou encore d'Agrawal et Raj [1] relie L_{sat} à la limite élastique du substrat σ_Y . Ainsi un comportement similaire à saturation pour des systèmes impliquant des substrats ayant des limites d'élasticité si différentes peut paraître paradoxal. Même si un changement du T_{max} d'un système à l'autre peut permettre de retrouver une cohérence des prédictions des modèles avec les

résultats expérimentaux, il est difficile de savoir si il s'agit là d'un procédé ad hoc où si il y a une raison physique sous-jacente. Si T_{max} est bien une propriété intrinsèque à la couche, sa variation qui semble corrélée à celle de σ_Y de manière à donner le même L_{sat} semble pour l'heure un peu mystérieuse et demande à être éclaircie dans des études à venir.

En revanche, dans le cas des multicouches, la différence de comportement des substrats a apparemment une influence plus marquée sur le mécanisme de l'endommagement de l'empilement. En effet, pour les empilements déposés sur le PET, l'endommagement commence très vite en comparaison du cas d'un substrat en ETFE. Par exemple, pour un empilement de (TiOx,Ag,TiOx) d'épaisseurs (10,60,15)nm déposé sur du PET, la déformation nominale critique est $\epsilon_{crit} = 2\%$ alors que pour un empilement de (ZnO,Ag,ZnO) d'épaisseur (10,60,10)nm déposé sur du ETFE, $\epsilon_{crit} = 4,1\%$ [54].

Les remarques formulées ci-dessus demandent plus des corrélations avec des observations expérimentales pour confirmer le rôle du substrat dans le mécanisme de l'endommagement des monocouches et multicouches, et son lien qui semble subtil avec la limite de rupture du revêtement. Pour cela, il faudrait des conditions de dépôt identiques en terme de température et de pression pour éliminer tous les paramètres qui influent sur les propriétés du film lors de l'élaboration.

Perspectives de la modélisation

Nous avons réussi dans ce travail à développer un modèle mécanique en 2D capable de simuler le processus de fragmentation des films minces. Par la suite, plusieurs pistes d'enrichissement sont possibles. En restant dans un cadre 2D, on peut modéliser l'endommagement de multi-couches fragiles/ductiles. Le passage en 3D permettra quant à lui de simuler la propagation de fissures sur la longueur du film (avec la différence entre fissures droites et fissures en zigzag) et aussi l'apparition des cloques transverses dues à l'effet Poisson.

- Modèle d'endommagement des multi couches

Nous avons observé expérimentalement l'influence de la présence la couches d'argent (couche ductile) sur le mécanisme d'endommagement des multicouches fragiles/ductiles. Tout en restant dans un cadre 2D, il serait intéressant de simuler ce phénomène. En introduisant une couche mince ductile en sandwich entre deux couches fragiles et en variant l'épaisseur de la couche ductile, il sera possible de voir l'influence son comportement élastique plastique sur l'endommagement de ce type de revêtements.

- Multifissuration en 3D

Les observations expérimentales montrent que de l'épaisseur de la couche joue sur le mécanisme de fragmentation. On rapporte Fig. 3.38 des résultats de Cordill et al. [16] sur la fragmentation des monocouches de Titane de différentes épaisseurs, déposées sur du polyimide PI, sollicitées en traction uniaxiale. On peut voir que le mécanisme

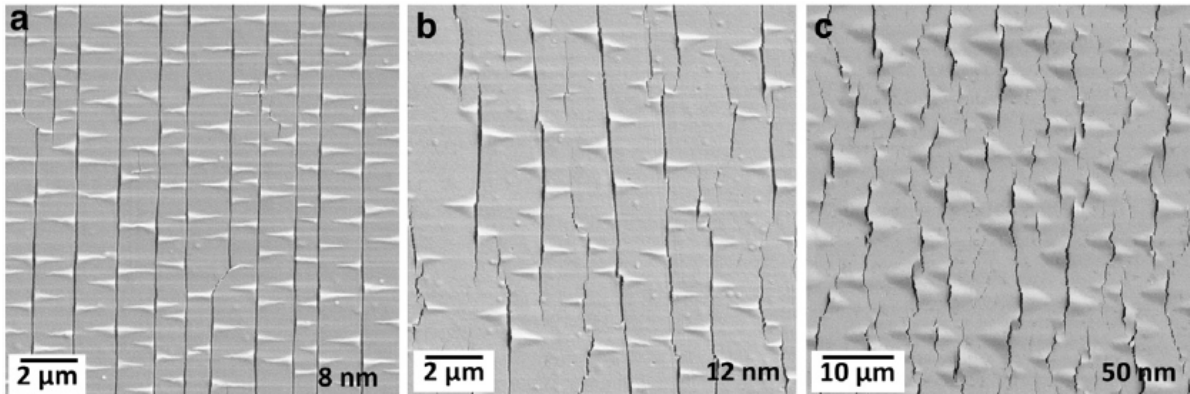


FIGURE 3.38 – Observations microscopiques de l'endommagement des monocouches de titane de différentes épaisseurs déposées sur un substrat en du polyimide PI [16].

d'endommagement change en fonction de l'épaisseur de la couche. On passe des fissures traversantes et droites pour les couches d'épaisseur $\leq 8\text{nm}$ à des fissures courtes qui se propagent en zigzag pour des couches d'épaisseur $\geq 50\text{nm}$. Les auteurs ont aussi constaté l'existence d'une épaisseur de couche critique pour laquelle on observe les deux types de fissures. Il ont aussi remarqué que la morphologie des cloques de délaminage change en fonction de l'épaisseur de la couche.

L'étude de ces différents points nécessite une extension de notre modèle mécanique en 3D.

- Modèle de flambage

Les observations expérimentales ont mis en évidence l'apparition des cloques de délaminage en raison de la compression dans la direction perpendiculaire à la direction de traction due à un effet Poisson.

Pour cela vous avons commencé à développer un modèle mécanique 3D pour modéliser le flambage du film entre deux fissures.

Le modèle de $3 \times 100 \mu\text{m}$ de large est composé d'un film d'oxyde d'épaisseur $0.1 \mu\text{m}$ et d'un substrat en ETFE de $100 \mu\text{m}$ d'épaisseur.

A l'interface film/substrat, une CZ de $T_{max}^{int}=100\text{MPa}$ et de $G_c^{int} = 5\text{J}/\text{m}^2$ est insérée. Cette CZ contient un défaut central de la largeur de l'ordre de l'épaisseur de film.

La traction est imposée dans le direction x sur le substrat uniquement. Ce dernier est

bloqué de tout déplacement dans la direction y et z . La figure 3.39 présente une cartographie montrant le flambage/délaminage du film sous forme d'une ride droite provenant de nos simulations. L'exploitation de ce modèle nécessite plus de travail pour mieux

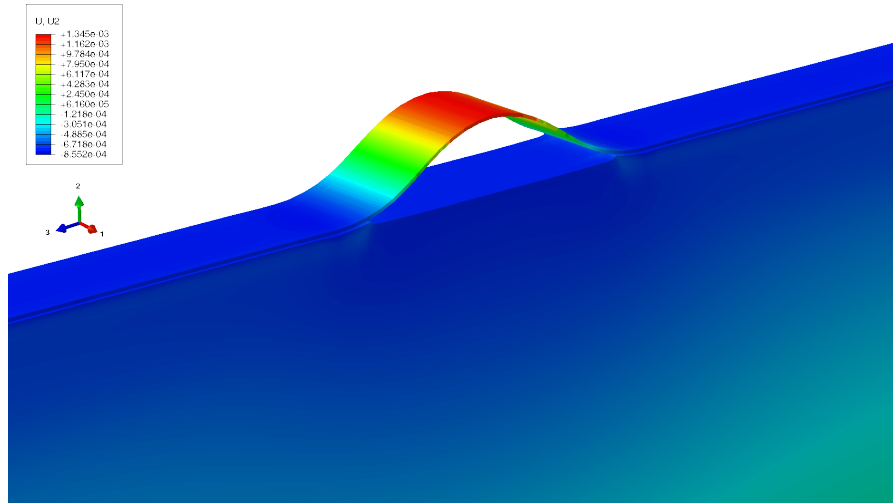


FIGURE 3.39 – . Simulation numérique montrant le flambage/délaminage d'un film d'oxyde sur un substrat elasto-plastique d'ETFE.

corréler en particulier la morphologie des cloques, les propriétés de l'interface (incluant la dépendance à la mixité modale de l'énergie d'adhésion) et du champ de déformation plastique dans le substrat.

Bibliographie

- [1] D. C. Agrawal and R. Raj. Measurement of the ultimate shear strength of a metal-ceramic interface. *Acta Metallurgica*, 37(4) :1265–1270, 1989.
- [2] F. Armero and D. Ehrlich. Numerical modeling of softening hinges in thin euler-bernoulli beams. *Computers & Structures*, 84(10) :641–656, 2006.
- [3] A. Atkinson and R. Guppy. Mechanical stability of sol-gel films. *Journal of materials science*, 26(14) :3869–3873, 1991.
- [4] B. Audoly and A. Boudaoud. Buckling of a stiff film bound to a compliant substrate, part ii : A global scenario for the formation of herringbone pattern. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 56(7) :2422–2443, 2008.
- [5] E. Bachari, S. B. Amor, G. Baud, and M. Jacquet. Photoprotective zinc oxide coatings on polyethylene terephthalate films. *Materials Science and Engineering : B*, 79(2) :165–174, 2001.
- [6] G. I. Barenblatt. The mathematical theory of equilibrium cracks in brittle fracture. *Advances in applied mechanics*, 7 :55–129, 1962.
- [7] J. Beuth. Cracking of thin bonded films in residual tension. *International Journal of Solids and Structures*, 29(13) :1657–1675, 1992.
- [8] J. Beuth and N. Klingbeil. Cracking of thin films bonded to elastic-plastic substrates. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 44(9) :1411–1428, 1996.
- [9] D. Brancherie. *Modèles continus et discrets pour les problèmes de localisation et de rupture fragile et/ou ductile*. PhD thesis, Ecole normale supérieure de Cachan-ENS Cachan, 2003.
- [10] C. Callari and F. Armero. Finite element methods for the analysis of strong discontinuities in coupled poro-plastic media. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 191(39) :4371–4400, 2002.
- [11] G. T. Camacho and M. Ortiz. Computational modelling of impact damage in brittle materials. *International Journal of solids and structures*, 33(20-22) :2899–2938, 1996.
- [12] P. P. Camanho and C. G. Dávila. Mixed-mode decohesion finite elements for the simulation of delamination in composite materials. 2002.
- [13] J. Chaboche, F. Feyel, and Y. Monerie. Interface debonding models : a viscous regularization with a limited rate dependency. *International journal of solids and structures*, 38(18) :3127–3160, 2001.

-
- [14] J. Chan, T. Alegre, A. H. Safavi-Naeini, J. T. Hill, A. Krause, S. Gröblacher, M. Aspelmeyer, and O. Painter. Laser cooling of a nanomechanical oscillator into its quantum ground state. *arXiv preprint arXiv :1106.3614*, 2011.
 - [15] M. Cordill, D. Bahr, N. Moody, and W. Gerberich. Adhesion measurements using telephone cord buckles. *Materials Science and Engineering : A*, 443(1) :150–155, 2007.
 - [16] M. Cordill and A. Taylor. Thickness effect on the fracture and delamination of titanium films. *Thin Solid Films*, 589 :209–214, 2015.
 - [17] M. Cordill, A. Taylor, J. Schalko, and G. Dehm. Fracture and delamination of chromium thin films on polymer substrates. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 41(4) :870–875, 2010.
 - [18] C. Coupeau, P. Goudeau, L. Belliard, M. George, N. Tamura, F. Cleymand, J. Colin, B. Perrin, and J. Grilhé. Evidence of plastic damage in thin films around buckling structures. *Thin Solid Films*, 469 :221–226, 2004.
 - [19] W. Dan, Y. Ya-Jun, X. Hui-Min, and D. Fu-Long. Archimedes spiral cracks developed in a nanofilm/substrate system. *Chinese Physics Letters*, 30(3) :036801, 2013.
 - [20] E. Dion. *Effet de la pression sur le phénomène de cloquage des films minces*. PhD thesis, Poitiers, 2011.
 - [21] D. S. Dugdale. Yielding of steel sheets containing slits. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 8(2) :100–104, 1960.
 - [22] J. Dundurs. Discussion : Edge-bonded dissimilar orthogonal elastic wedges under normal and shear loading. *Journal of applied mechanics*, 36(3) :650–652, 1969.
 - [23] E. N. Dvorkin, A. M. Cuitiño, and G. Gioia. Finite elements with displacement interpolated embedded localization lines insensitive to mesh size and distortions. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 30(3) :541–564, 1990.
 - [24] F. Erdogan and M. Ozturk. Periodic cracking of functionally graded coatings. *International Journal of Engineering Science*, 33(15) :2179–2195, 1995.
 - [25] F. Erdogan and G. Sih. On the crack extension in plates under plane loading and transverse shear. *Journal of basic engineering*, 85(4) :519–527, 1963.
 - [26] J.-Y. Faou, G. Parry, S. Grachev, and E. Barthel. How does adhesion induce the formation of telephone cord buckles? *Physical review letters*, 108(11) :116102, 2012.
 - [27] L. B. Freund and S. Suresh. *Thin film materials : stress, defect formation and surface evolution*. Cambridge University Press, 2004.
 - [28] T. Ganne, J. Crépin, S. Serror, and A. Zaoui. Cracking behaviour of pvd tungsten coatings deposited on steel substrates. *Acta materialia*, 50(16) :4149–4163, 2002.
 - [29] P. H. Geubelle and J. S. Baylor. Impact-induced delamination of composites : a 2d simulation. *Composites Part B : Engineering*, 29(5) :589–602, 1998.
 - [30] B. Gregory, A. Siegmann, J. Im, A. Hiltner, and E. Baer. Deformation behaviour of coextruded multilayer composites with polycarbonate and poly (styrene-acrylonitrile). *Journal of materials science*, 22(2) :532–538, 1987.
 - [31] A. A. Griffith. The phenomena of rupture and flow in solids. *Philosophical transactions of the royal society of london. Series A, containing papers of a mathematical or physical character*, 221 :163–198, 1921.

-
- [32] W. R. Grove. Lxxix. on the electro-chemical polarity of gases. *Philosophical Magazine Series 4*, 4(28) :498–514, 1852.
- [33] G. Guinea, J. Planas, and M. Elices. A general bilinear fit for the softening curve of concrete. *Materials and structures*, 27(2) :99–105, 1994.
- [34] A. L. Highsmith and K. L. Reifsnider. Stiffness-reduction mechanisms in composite laminates. 1982.
- [35] M. Hu and A. Evans. The cracking and decohesion of thin films on ductile substrates. *Acta Metallurgica*, 37(3) :917–925, 1989.
- [36] J. W. Hutchinson and Z. Suo. Mixed mode cracking in layered materials. *Advances in applied mechanics*, 29 :63–191, 1991.
- [37] C. E. Inglis. Stresses in a plate due to the presence of cracks and sharp corners. *Transactions of the institute of naval architects*, 55(219-241) :193–198, 1913.
- [38] G. Irwin. Relation of stresses near a crack to the crack extension force. *9th Cong. App. Mech., Brussels*, 1957.
- [39] G. R. Irwin. Analysis of stresses and strains near the end of a crack traversing a plate. *Journal of applied mechanics*, 24(3) :361–364, 1957.
- [40] N. Jansson, Y. Leterrier, and J.-A. Månson. Modeling of multiple cracking and decohesion of a thin film on a polymer substrate. *Engineering Fracture Mechanics*, 73(17) :2614–2626, 2006.
- [41] H. M. Jensen, J. W. Hutchinson, and K. Kyung-Suk. Decohesion of a cut prestressed film on a substrate. *International Journal of Solids and Structures*, 26(9-10) :1099–1114, 1990.
- [42] S.-R. Kim and J. A. Nairn. Fracture mechanics analysis of coating/substrate systems : Part i : Analysis of tensile and bending experiments. *Engineering Fracture Mechanics*, 65(5) :573–593, 2000.
- [43] M. Klisinski, K. Runesson, and S. Sture. Finite element with inner softening band. *Journal of Engineering Mechanics*, 117(3) :575–587, 1991.
- [44] E. KOLB, E. CLEMENT, C. BEAUVAIS, U. HANDGE, I. SOKOLOV, and A. BLUMEN. Fragmentation d’une couche de peinture déposée sur un substrat élastomérique. In *Journées internationales francophones de tribologie*, pages 190–198, 2002.
- [45] M. Kotoul, O. Ševěček, and T. Profant. Analysis of multiple cracks in thin coating on orthotropic substrate under mechanical and residual stresses. *Engineering Fracture Mechanics*, 77(2) :229–248, 2010.
- [46] N. Laws and G. J. Dvorak. Progressive transverse cracking in composite laminates. *Journal of Composite Materials*, 22(10) :900–916, 1988.
- [47] D. Leguillon, M. Lafarie-Frenot, Y. Pannier, and E. Martin. Prediction of the surface cracking pattern of an oxidized polymer induced by residual and bending stresses. *International Journal of Solids and Structures*, 91 :89–101, 2016.
- [48] D. Leguillon, J. Li, and E. Martin. Multi-cracking in brittle thin layers and coatings using a ffm model. *European Journal of Mechanics-A/Solids*, 63 :14–21, 2017.
- [49] D. Leguillon and E. Martin. Crack nucleation at stress concentration points in composite materials—application to the crack deflection by an interface. *Mathematical Methods and Models in Composites*, 5 :401, 2013.

- [50] Y. Leterrier, J. Andersons, Y. Pitton, and J.-A. Månson. Adhesion of silicon oxide layers on poly (ethylene terephthalate). ii : Effect of coating thickness on adhesive and cohesive strengths. *Journal of Polymer Science Part B : Polymer Physics*, 35(9) :1463–1472, 1997.
- [51] Y. Leterrier, L. Boogh, J. Andersons, and J.-A. Månson. Adhesion of silicon oxide layers on poly (ethylene terephthalate). i : Effect of substrate properties on coating’s fragmentation process. *Journal of Polymer Science Part B : Polymer Physics*, 35(9) :1449–1461, 1997.
- [52] L. Li. *Modélisation numérique de l’endommagement des couches en proche surfacé : application aux systèmes Ni/NiO et Zr/ZrO₂*. PhD thesis, Université de Technologie de Compiègne, 2011.
- [53] K. Liechti and Y. Chai. Asymmetric shielding in interfacial fracture under in-plane shear. *Journal of applied mechanics*, 59(2) :295–304, 1992.
- [54] J. Marthelot. *Rupture et délamination de films minces*. PhD thesis, Université Pierre et marie curie, 2014.
- [55] V. M. Marx, F. Toth, A. Wiesinger, J. Berger, C. Kirchlechner, M. J. Cordill, F. D. Fischer, F. G. Rammerstorfer, and G. Dehm. The influence of a brittle or interlayer on the deformation behavior of thin cu films on flexible substrates : Experiment and model. *Acta materialia*, 89 :278–289, 2015.
- [56] M. Moon, H. M. Jensen, J. W. Hutchinson, K. Oh, and A. Evans. The characterization of telephone cord buckling of compressed thin films on substrates. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 50(11) :2355–2377, 2002.
- [57] J. Mosler and G. Meschke. 3d modelling of strong discontinuities in elastoplastic solids : fixed and rotating localization formulations. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 57(11) :1553–1576, 2003.
- [58] M. Nagl and W. Evans. The mechanical failure of oxide scales under tensile or compressive load. *Journal of Materials Science*, 28(23) :6247–6260, 1993.
- [59] M. Nagl, S. Saunders, W. Evans, and D. Hall. The tensile failure of nickel oxide scales at ambient and at growth temperature. *Corrosion Science*, 35(5-8) :965971–969977, 1993.
- [60] A. Needleman. A continuum model for void nucleation by inclusion debonding. *Journal of applied mechanics*, 54(3) :525–531, 1987.
- [61] A. Needleman. An analysis of tensile decohesion along an interface. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 38(3) :289–324, 1990.
- [62] G. Parry, C. Coupeau, J. Colin, A. Cimetière, and J. Grilhé. Buckling and post-buckling of stressed straight-sided wrinkles : experimental afm observations of bubbles formation and finite element simulations. *Acta materialia*, 52(13) :3959–3966, 2004.
- [63] B. Pham, D. Brancherie, L. Davenne, and A. Ibrahimbegovic. Stress-resultant models for ultimate load design of reinforced concrete frames and multi-scale parameter estimates. *Computational Mechanics*, 51(3) :347–360, 2013.
- [64] M. Plücker. Xlvi. observations on the electrical discharge through rarefied gases. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 16(109) :408–418, 1858.

-
- [65] J. R. Rice. Mathematical analysis in the mechanics of fracture. *Fracture : an advanced treatise*, 2 :191–311, 1968.
- [66] J. H. Rose, J. Ferrante, and J. R. Smith. Universal binding energy curves for metals and bimetallic interfaces. *Physical Review Letters*, 47(9) :675, 1981.
- [67] I. Scheider and W. Brocks. Simulation of cup–cone fracture using the cohesive model. *Engineering Fracture Mechanics*, 70(14) :1943–1961, 2003.
- [68] G. W. Schulze and F. Erdogan. Periodic cracking of elastic coatings. *International Journal of Solids and Structures*, 35(28-29) :3615–3634, 1998.
- [69] T. Seelig. Computational modeling of deformation mechanisms and failure in thermoplastic multilayer composites. *Composites Science and Technology*, 68(5) :1198–1208, 2008.
- [70] J. C. Simo, J. Oliver, and F. Armero. An analysis of strong discontinuities induced by strain-softening in rate-independent inelastic solids. *Computational mechanics*, 12(5) :277–296, 1993.
- [71] P. Steinmann and P. Betsch. A localization capturing fe-interface based on regularized strong discontinuities at large inelastic strains. *International journal of solids and structures*, 37(30) :4061–4082, 2000.
- [72] A. Strawbridge and H. E. Evans. Mechanical failure of thin brittle coatings. *Engineering Failure Analysis*, 2(2) :85–103, 1995.
- [73] Z. Suo. Reliability of interconnect structures. *Interfacial and Nanoscale Failure (W. Gerberich, W. Yang, Editors), Comprehensive Structural Integrity (I. Milne, R.O. Ritchie, B. Karihaloo, Editors-in-Chief)*, 8 :265–324, 2003.
- [74] V. Tvergaard. Effect of fibre debonding in a whisker-reinforced metal. *Materials science and engineering : A*, 125(2) :203–213, 1990.
- [75] V. Tvergaard and J. W. Hutchinson. The relation between crack growth resistance and fracture process parameters in elastic-plastic solids. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 40(6) :1377–1397, 1992.
- [76] M. Williams. The bending stress distribution at the base of a stationary crack. *J Appl Mech*, 24 :109–14, 1957.
- [77] Z. C. Xia and J. W. Hutchinson. Crack patterns in thin films. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 48(6) :1107–1131, 2000.
- [78] X.-P. Xu and A. Needleman. Numerical simulations of fast crack growth in brittle solids. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 42(9) :1397–1434, 1994.
- [79] T. Ye, Z. Suo, and A. Evans. Thin film cracking and the roles of substrate and interface. *International Journal of Solids and Structures*, 29(21) :2639–2648, 1992.

Résumé

Les revêtements semi-conducteurs déposés sur des substrats souples sont utilisés dans différentes applications de haute technologie, par exemple pour la fabrication de composants micro-électroniques flexibles ou de cellules photovoltaïques flexibles. Sous un chargement de traction, ces revêtements subissent un endommagement caractérisé par l'apparition de multiples fissures sur leur surface avec ou sans délaminage à l'interface film/substrat. A la fin du processus de la multi-fissuration, une distance caractéristique entre les fissures peut être mesurée. Cette distance dépend principalement de l'épaisseur du film et du comportement mécanique du substrat.

Dans ce projet, une étude expérimentale sur des monocouches d'oxyde et des multicouches d'oxyde et d'argent de différentes épaisseurs déposées sur deux substrats souples a été menée. Cette étude nous a permis de déterminer le comportement mécanique de chaque substrat, d'identifier les stades de la multi-fissuration des couches minces à savoir un premier stade d'apparition aléatoire de fissures, un deuxième stade de fissuration régulière et un dernier stade de saturation du réseau de fissures. L'influence de l'épaisseur de la couche d'argent a été également étudiée.

Nous avons développé un modèle mécanique 2D basé sur des zones cohésives pour simuler l'amorçage et la propagation de fissures à travers le film. Ce modèle a permis de simuler numériquement les trois stades de la multi-fissuration des monocouches d'oxyde déposées sur polymère tels qu'observés expérimentalement. Nous avons ensuite réduit le modèle à une cellule représentative permettant de modéliser seulement les deux derniers stades de la multi fissuration. Cette cellule nous a permis d'identifier l'influence des propriétés géométriques et mécaniques des couches minces et de leur substrat sur la distance inter fissures à saturation. L'influence du délaminage interfacial a également été étudiée.

Abstract

Semiconductor coatings deposited on flexible substrates are used in various high-tech applications, for example flexible micro-electronic components or flexible solar cells. When submitted to large tensile strains, these coatings undergo damage characterized by the appearance of multiple cracks on their surface with or without delamination at the film/substrate interface. At the end of the multi-cracking process, a characteristic distance between cracks can be measured. This distance depends mainly on the thickness of the film and the mechanical behavior of the substrate.

In this project, an experimental study on oxide layers and oxide and silver multilayers with different thicknesses deposited on two polymer substrates was carried out. We were able to determine the mechanical behavior of each substrate and to identify the three stages of multi-cracking of thin layers. A first stage of random appearance of cracks, a second stage of regular cracking and a last stage of saturation of the network of cracks were identified. The influence of the thickness of the silver layer has also been studied.

We have developed a 2D mechanical model using cohesive zones to simulate the initiation and propagation of cracks in the film. Using this model, we successfully simulate the three stages of the multi-cracking of oxide monolayers deposited on polymer as observed experimentally. We then reduced the model to a representative cell allowing only the last two stages of multi-cracking to be modeled. This cell allowed us to identify the influence of the geometric and mechanical properties of the thin layers and their substrate on the distance between cracks at saturation. The influence of interfacial delamination has also been studied.