Sur deux approches du cloquage des films minces

G. Parry*, A. Cimetière, C. Coupeau, J. Colin

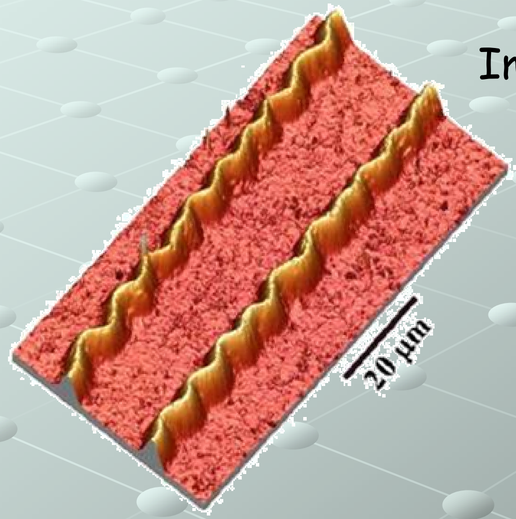
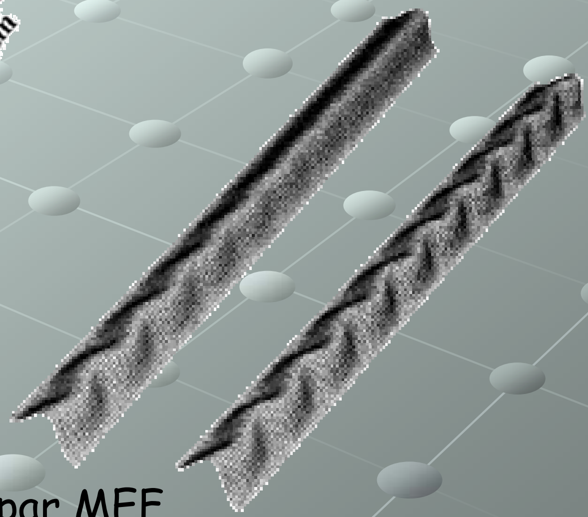
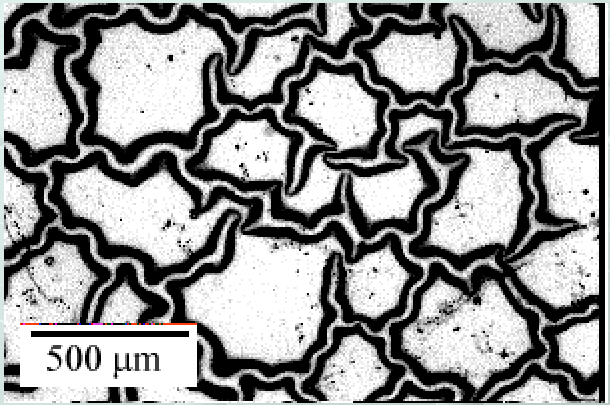


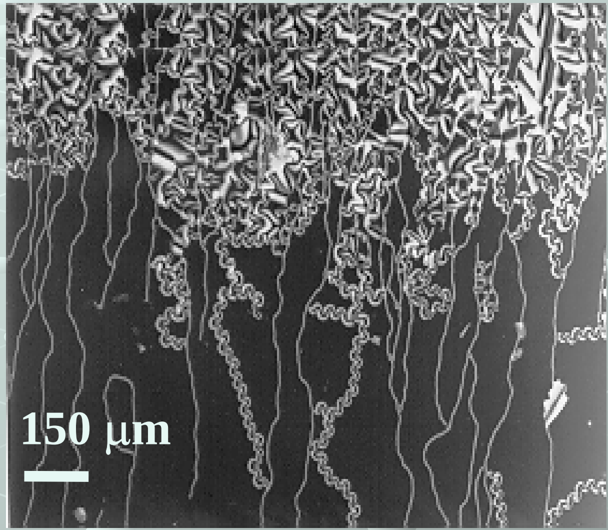
Image AFM

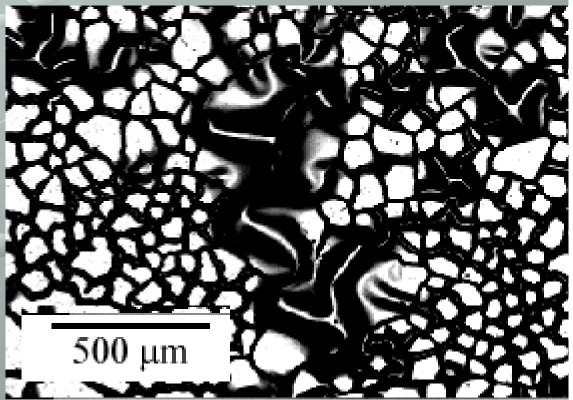


Calcul par MEF

Phénomène de cloquage spontané des films minces sur substrats







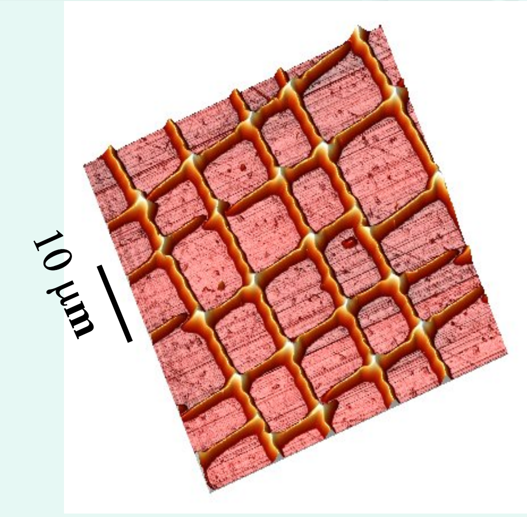
Observations par microscopie optique

✓ Présence de fortes contraintes de compression σ:
- thermiques (coefficients de dilatation)
- externes par sollicitations mécaniques (compression, nano-indentation…)
- intrinsèques liées à la technique de dépôt (≈GPa par pulvérisation ionique)

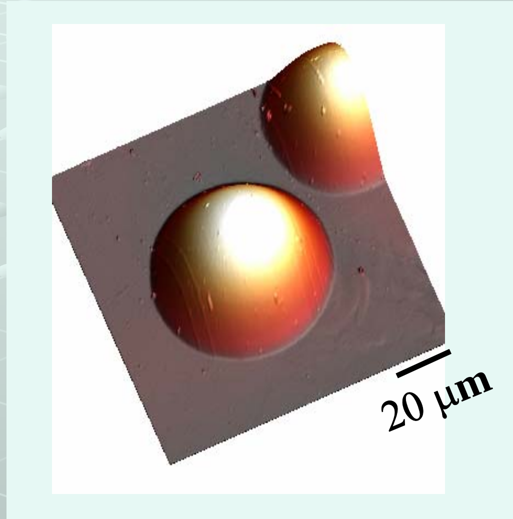
✓ Possibilité de cloquage et délaminage des films minces: apparition de décollements de structures et dimensions très variées

Phénomène de cloquage spontané des films minces sur substrats

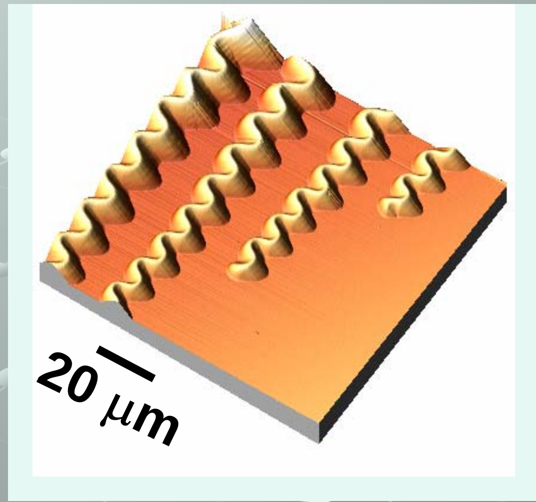
✓ **Différents faciès de flambage** (*C. Coupeau et al.*)



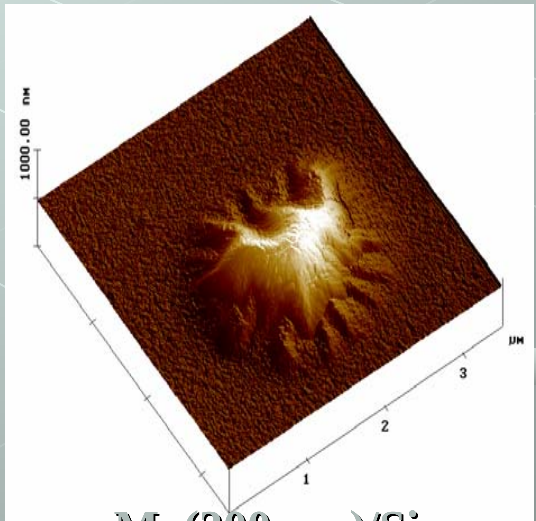
Acier inox(200 nm)/PC



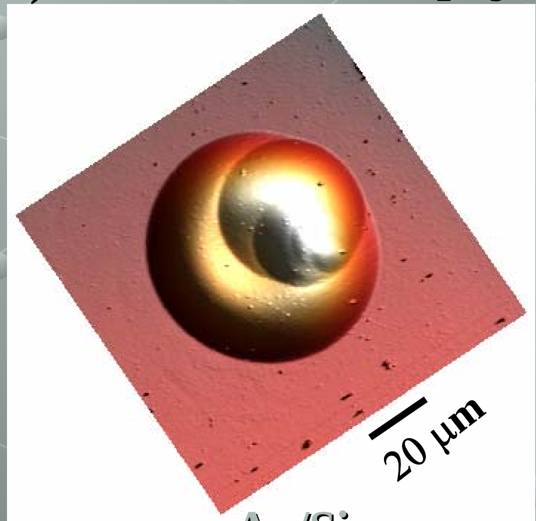
Au(630 nm)/Si



Y_2O_3(30-50nm)/GaAs



Mo(300 nm)/Si



Au/Si

SOMMAIRE

I. Modèle de plaque non linéaire géométrique avec contact

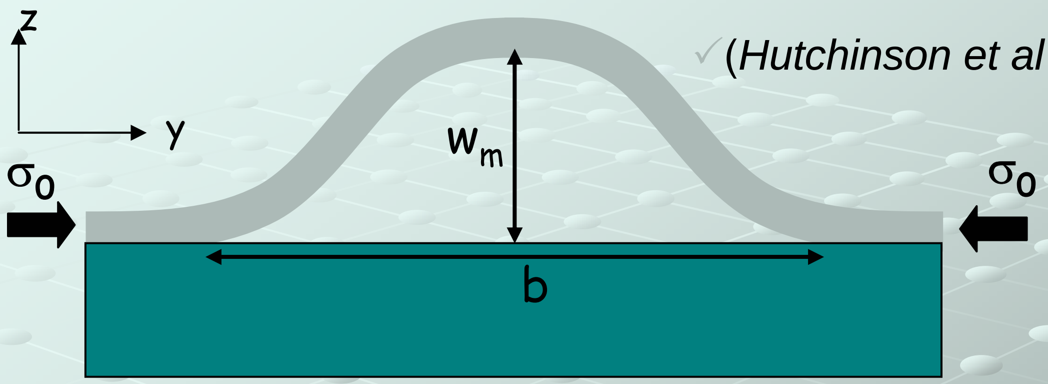
- **Modélisation du flambage unilatéral des films minces.**
- **Exploration des équilibres de cloquage.**
- **Prédiction des structures de cloquage.**

II. Système modèle constitué de barres et de ressorts

SOMMAIRE

1. Modélisation du flambage

Un exemple de résolution analytique: la ride droite



✓(*Hutchinson et al*. 1992)

Intensité de la contrainte dans la partie plane du film: σ_0

($N = \int \sigma dz$)

- Résolution rendue simple par l'invariance suivant la longueur
- Mode de flambage et contrainte critique

$$w(y) = w_m \frac{1 + \cos\left([(N_0 - N_{yy})/D]^{1/2} y \right)}{2} \qquad N_{yy} = N_c = \frac{4D\pi^2}{b^2}$$

- Hauteur de la ride en fonction du niveau de l'intensité des contraintes dans le film:

$$w_m = h \left[\frac{4}{3} \left(\frac{N_0}{N_c} - 1 \right) \right]^{1/2}$$

1. Modélisation du flambage

Bilan de la modélisation

✓ **Difficulté de la résolution analytique**

Intégration numérique (éléments finis)

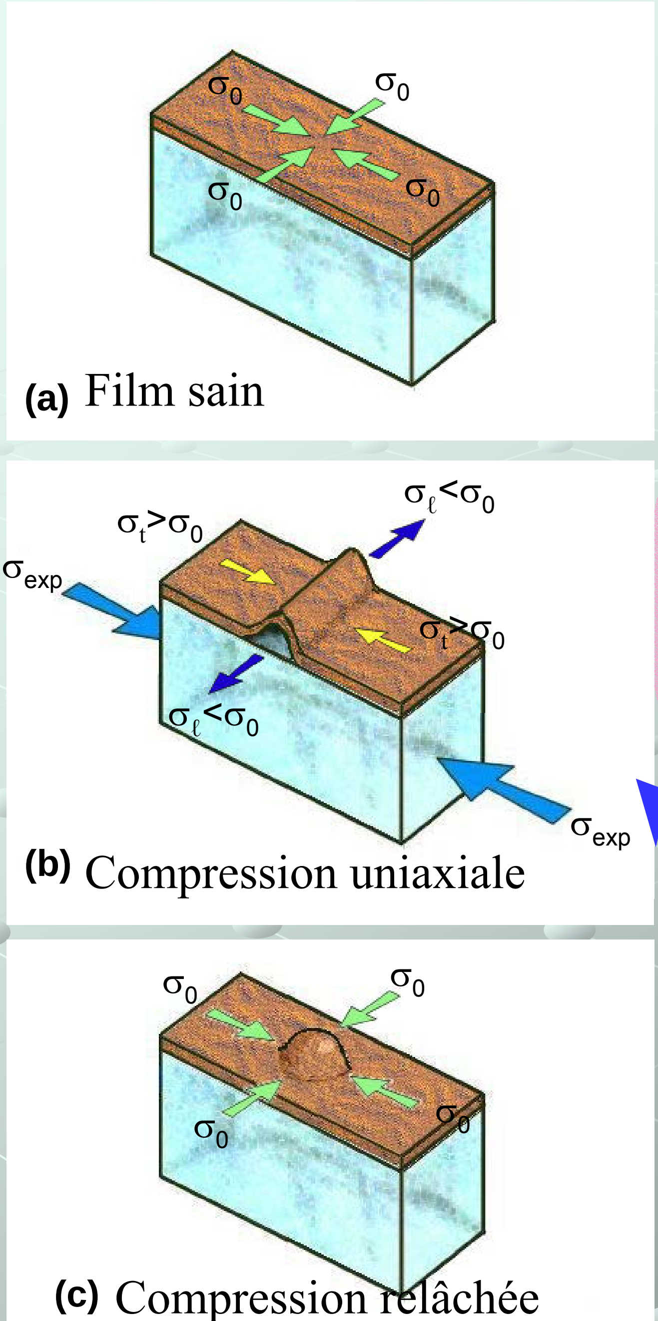
• Calculs en grands déplacements (non-linéarité géométrique)

• Cas du support rigide
Introduction du contact unilatéral sans frottement

• Cas du support élastique
Couplage d'éléments solides (3D) et d'éléments coques (2D)

SOMMAIRE

2. Exploration des structures de cloquage
Variation de l'état de contraintes



On fait varier l'état de contraintes dans le film en contrôlant la compression du substrat

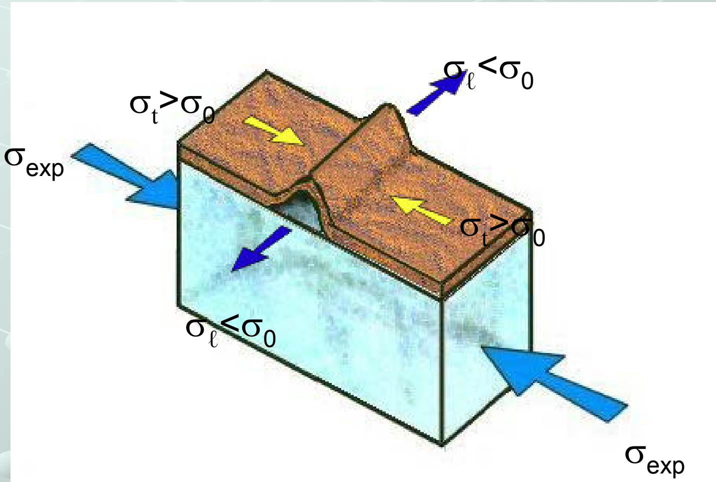
Contraintes induites dans le film (Hyp. $\varepsilon_{ij}^{substrat}=\varepsilon_{ij}^{film}$)

$$\Delta\sigma_{yy} = \frac{E_f}{E_s}\frac{1-\nu_f\nu_s}{1-\nu_f^2}\sigma_{yy}^{exp} \geq 0 \qquad \Delta\sigma_{xx} = \frac{E_f}{E_s}\frac{\nu_f-\nu_s}{1-\nu_f^2}\sigma_{yy}^{exp} \leq 0$$

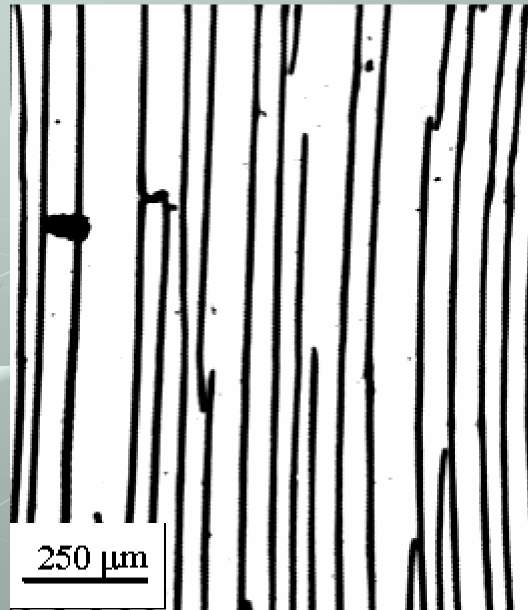
Cyclage possible

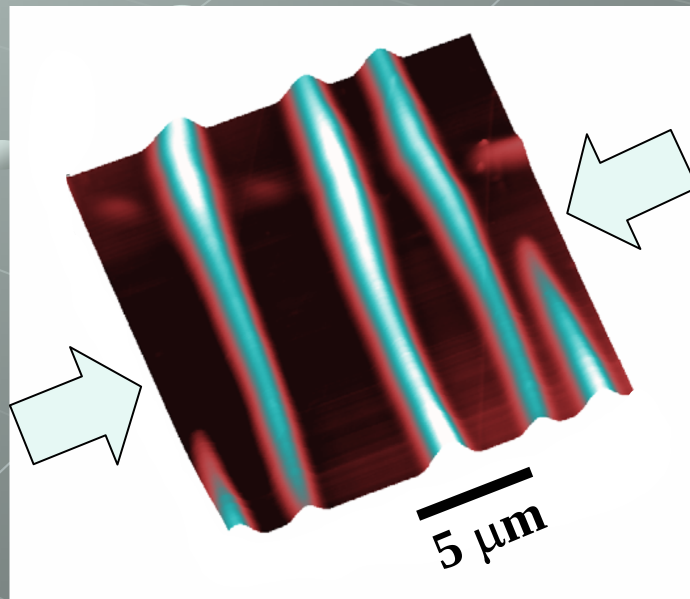
✓ **Etape 1: compression uniaxiale du substrat (contrainte σ_0)**

- Apparition de bandes rectilignes
- Création de rides droites stabilisées par une forte surcompression latérale



(b) Compression uniaxiale



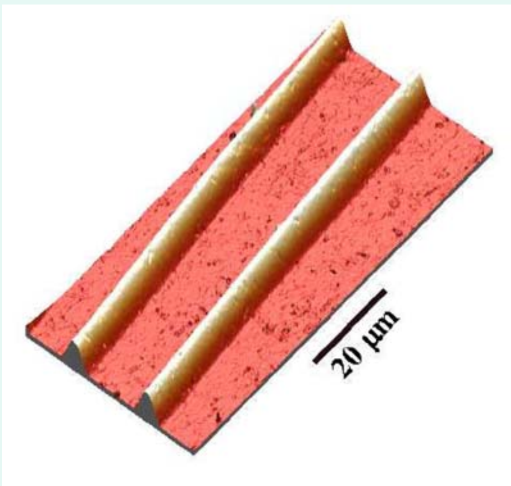


✓ Nickel(320nm)/Polycarbonate

✓ **Etape 2: compression extérieure relâchée**

Observé expérimentalement

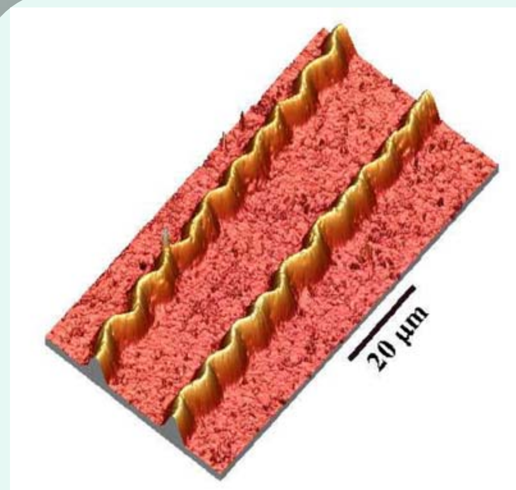
Rangées de bulles



Rides droites

Transitions entre équilibres
Evolution des équilibres

Observé expérimentalement



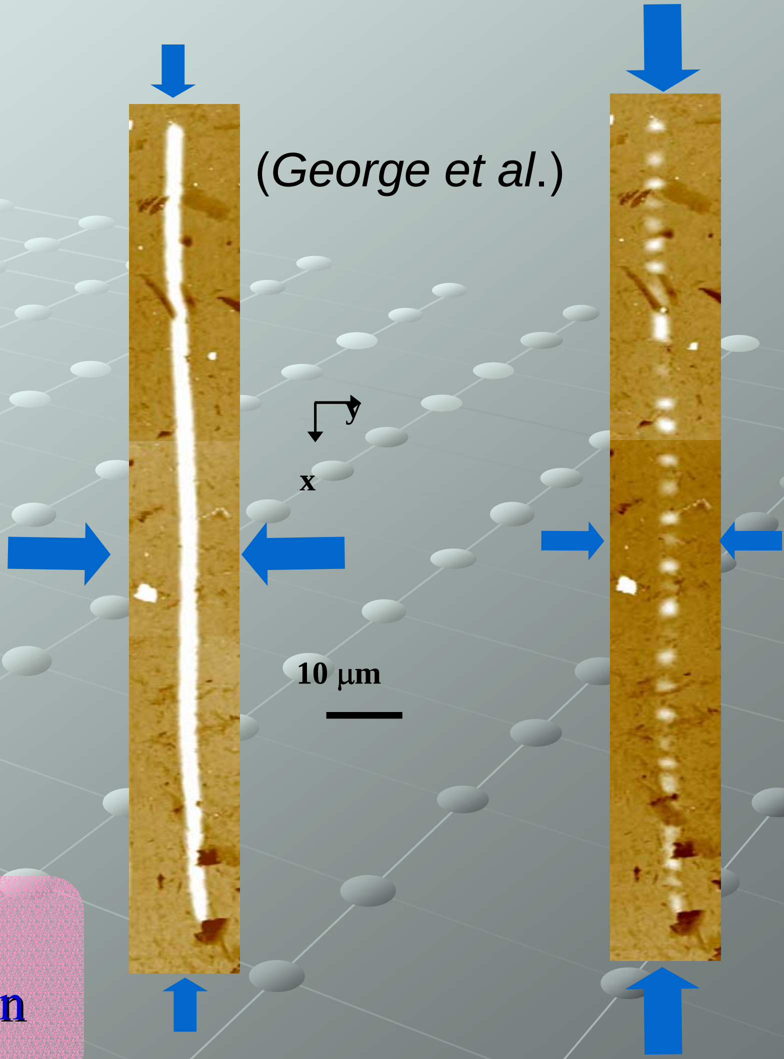
Cordons de téléphone

?

2. Exploration des structures de cloquage

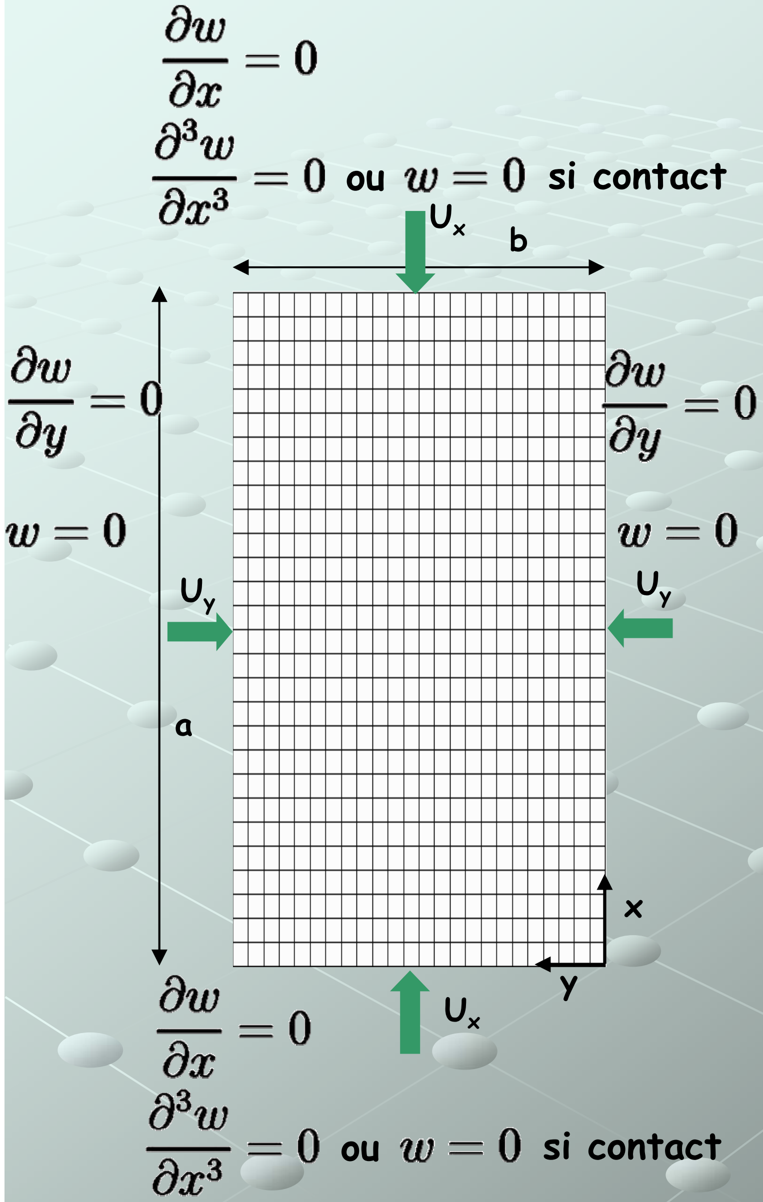
Transition ride-bulles:observations expérimentales

- surcompression latérale: rides stables
- transition rides-bulles provoquée par une surcompression longitudinale
- film redéposé entre les bulles (contact avec le substrat)
- distribution périodique des bulles



Rapport des contraintes σ_{yy} et σ_{xx} :
Paramètre critique déterminant dans la transition

2. Exploration des structures de cloquage
modélisation par éléments finis



Hypothèses du calcul

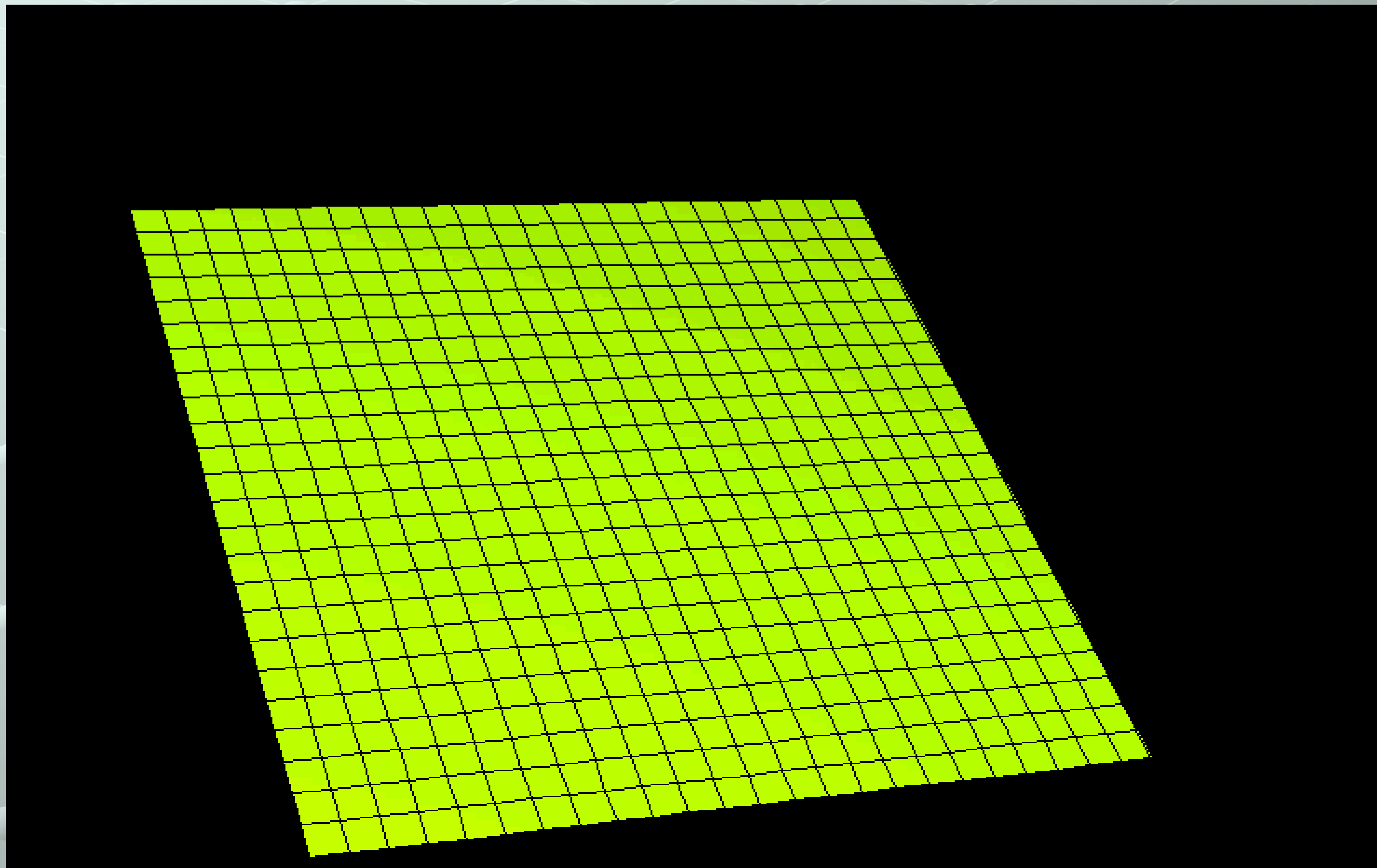
- Prise en compte des non linéarités géométriques
- Eléments de coques
- Déformations membranaires finies et grandes rotations

Conditions aux limites

- Déplacements imposés sur les bords
- Conditions d'encastrement suivant la longueur
- Conditions de périodicité suivant la largeur
- support rigide ($w \geq 0$) (substrat)

2. Exploration des structures de cloquage
calcul de la transition ride-bulle

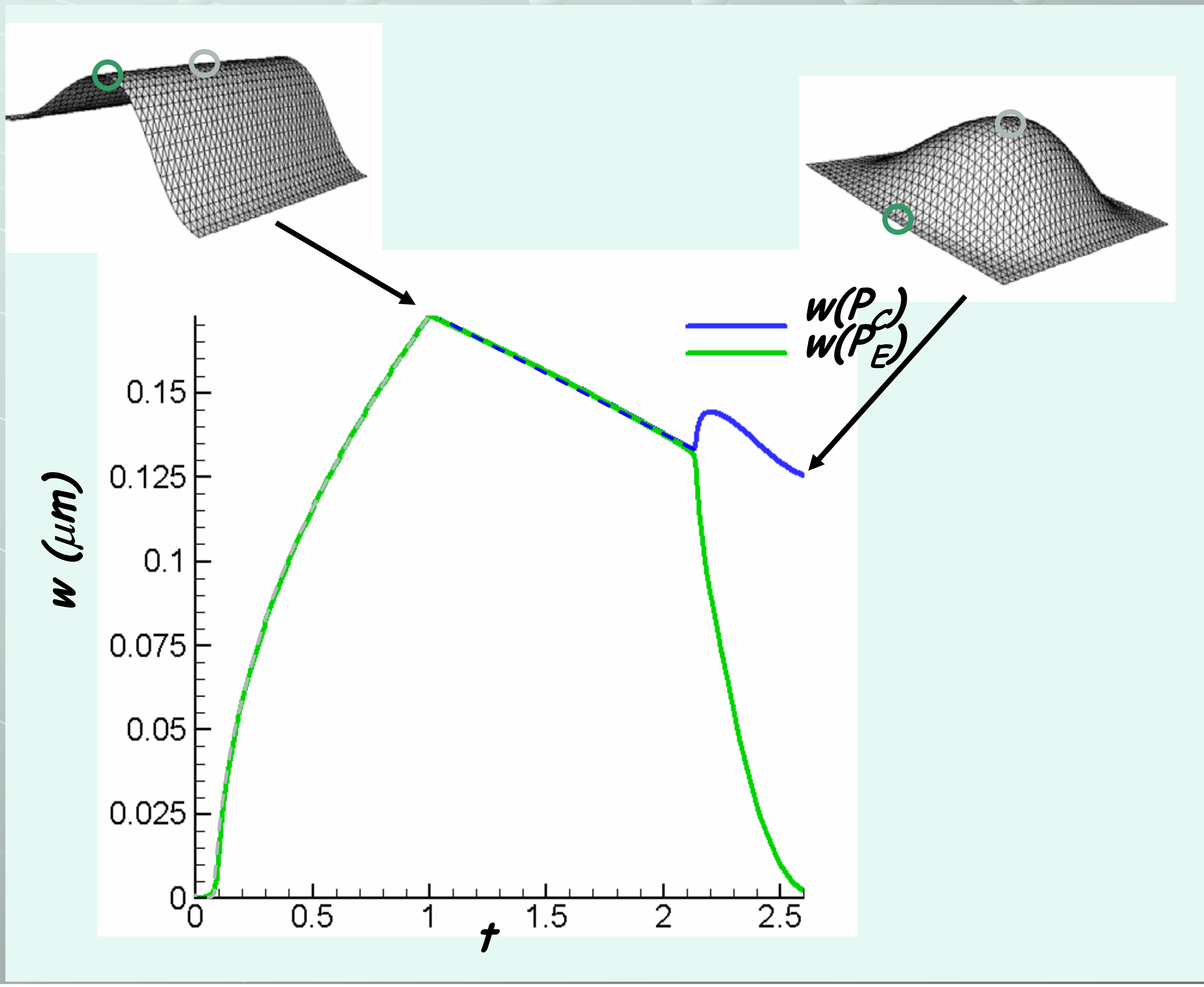
- ↗ Contrainte latérale : formation de la ride
- ↗ Contrainte longitudinale : formation de la ride
- Etat final: Bulle complètement déposée sur le substrat



2. Exploration des structures de cloquage

Transition ride-bulles:résultats du calcul

- suivi de la bifurcation et du régime post-critique
- point P_E: contact bulle-substrat
- point P_c: montée puis stabilisation au niveau du sommet de la bulle



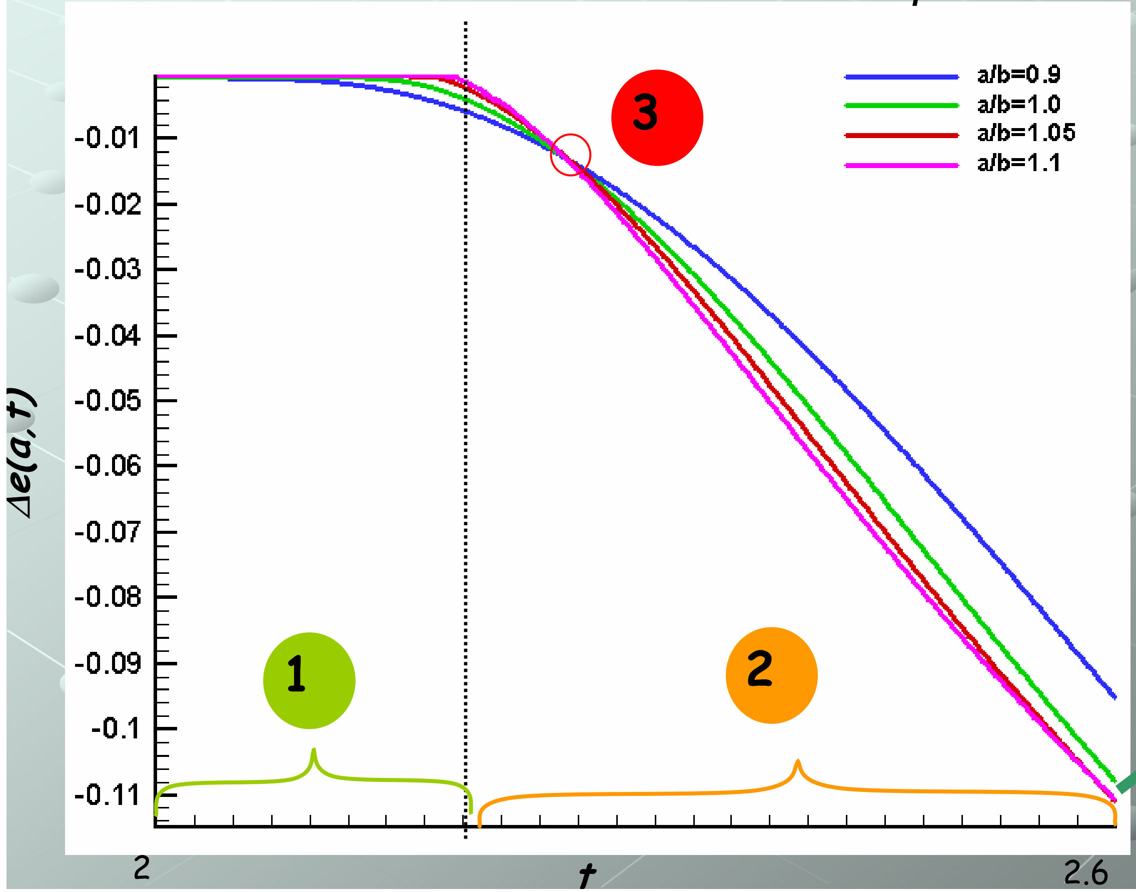
2. Exploration des structures de cloquage

Transition ride-bulles:sélection de la longueur d'onde

1 Flambage naissant — *Longueurs d'onde courtes $a^* \approx 0.9\ b$*

2 Régime post-critique — *Longueurs d'onde plus grandes $a^* \approx 1.1\ b$*

3 Point équi-énergétique — *Plusieurs longueurs d'onde vérifient le critère de relaxation optimale de l'énergie*

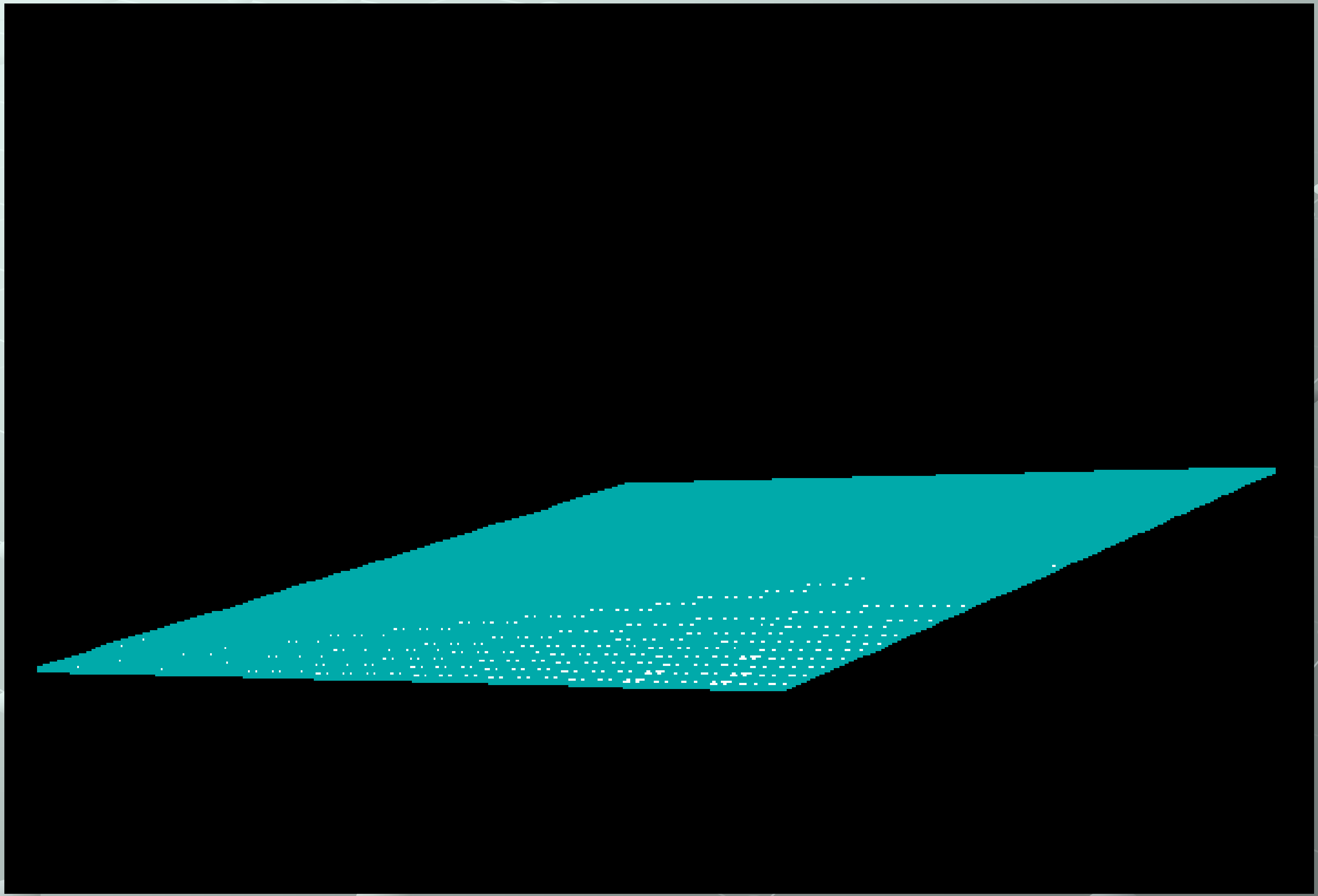


Il est important de raisonner dans le régime post-critique lointain de la ride

a/b = 1.1 en accord avec l'expérience

2. Exploration des structures de cloquage
Transition ride-bulles:prévision numérique d'un claquage

- Augmentation monotone du chargement conduit à une transition violente

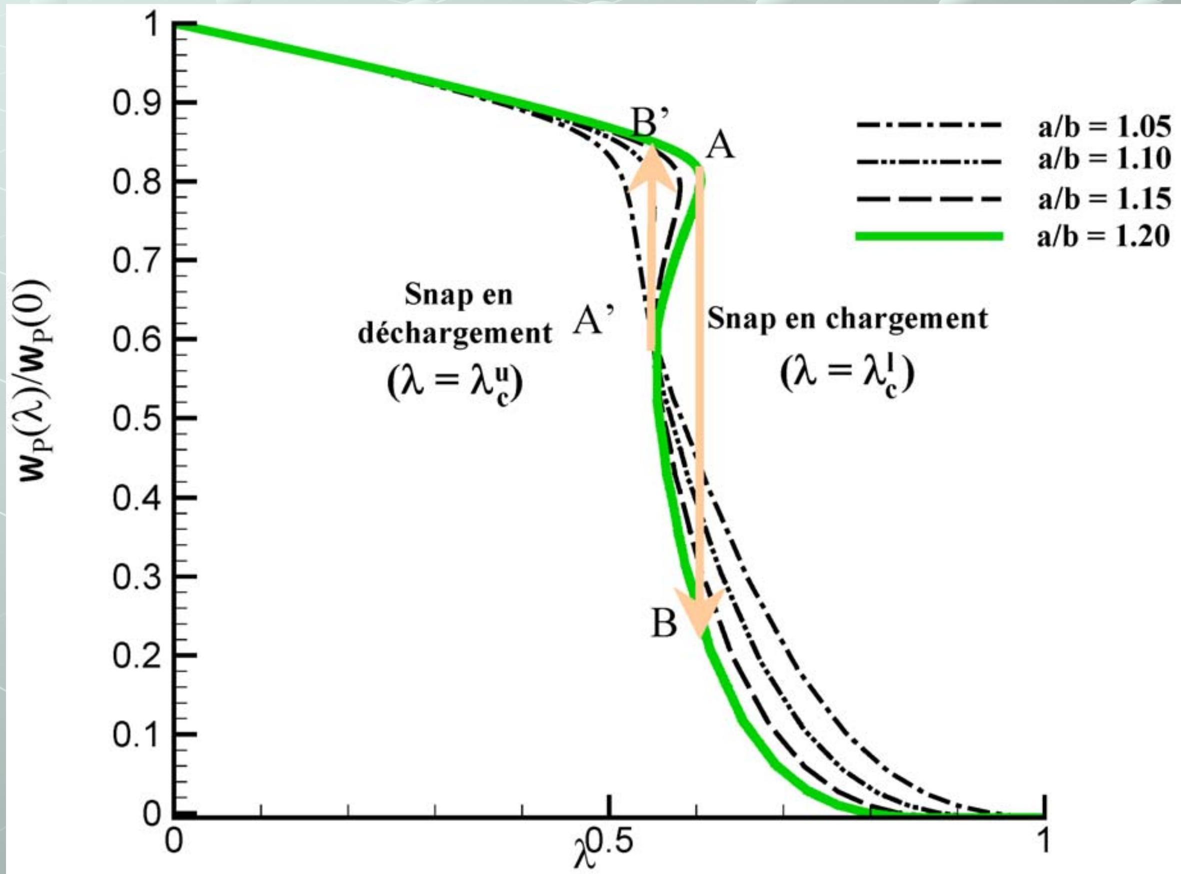


Transition ride-bulles par claquage

2. Exploration des structures de cloquage

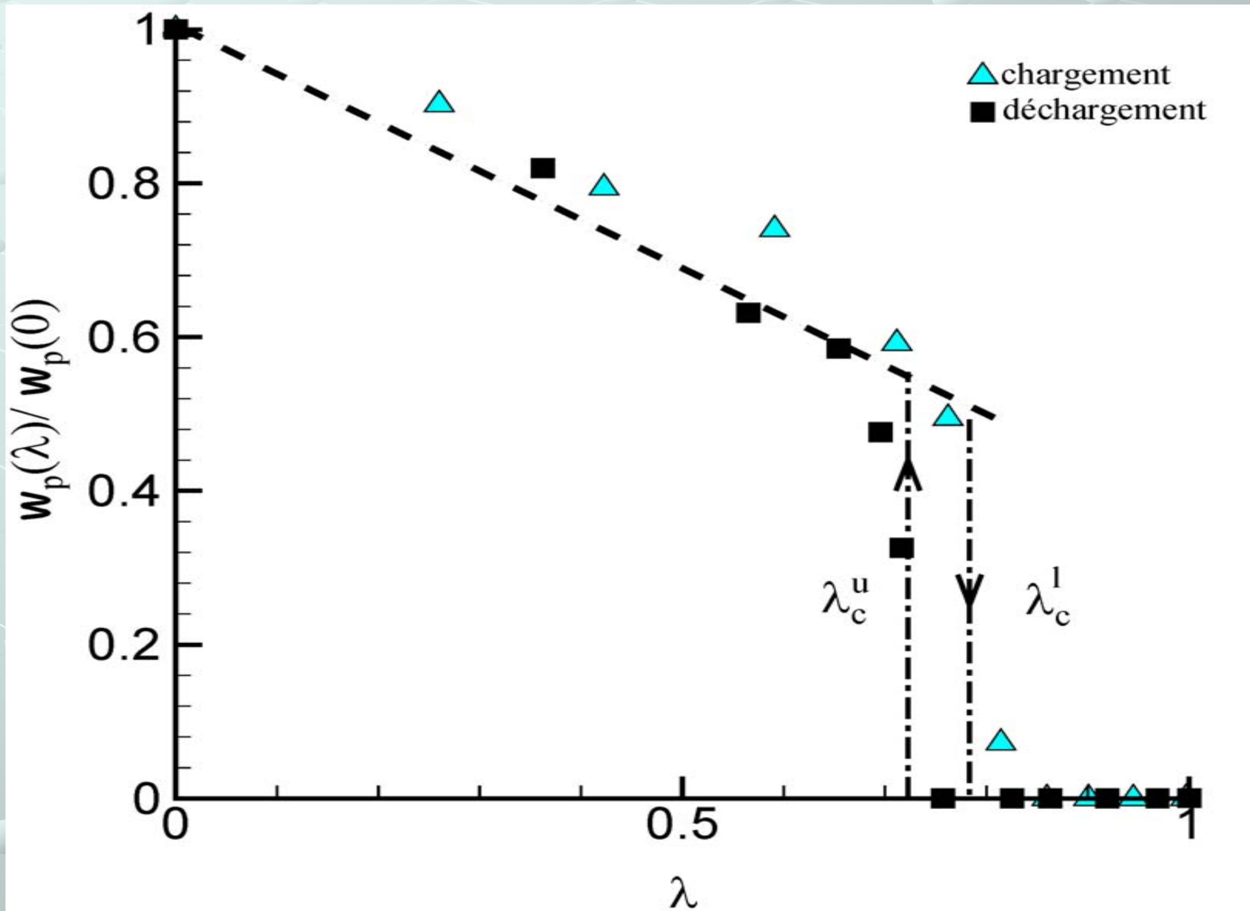
Transition ride-bulles:prévision numérique d'un claquage

- Transition par claquage : flambage sous force décroissante
- Hystérésis $\rightarrow$ charge critique différente en charge et en décharge
- Valeur critique du rapport de forme a/b au delà duquel un claquage survient



2. Exploration des structures de cloquage
Transition ride-bulles: observation expérimentale du claquage

- Hystérésis constaté
- Claquage observé pour des bulles longues



(*Foucher et al.*)

Transition bulles-ride par claquage

2. Exploration des structures de cloquage

Faits marquants

- Caractérisation complète de la transition ride-bulles:
 ondulations naissantes → bulle déposée sur le substrat

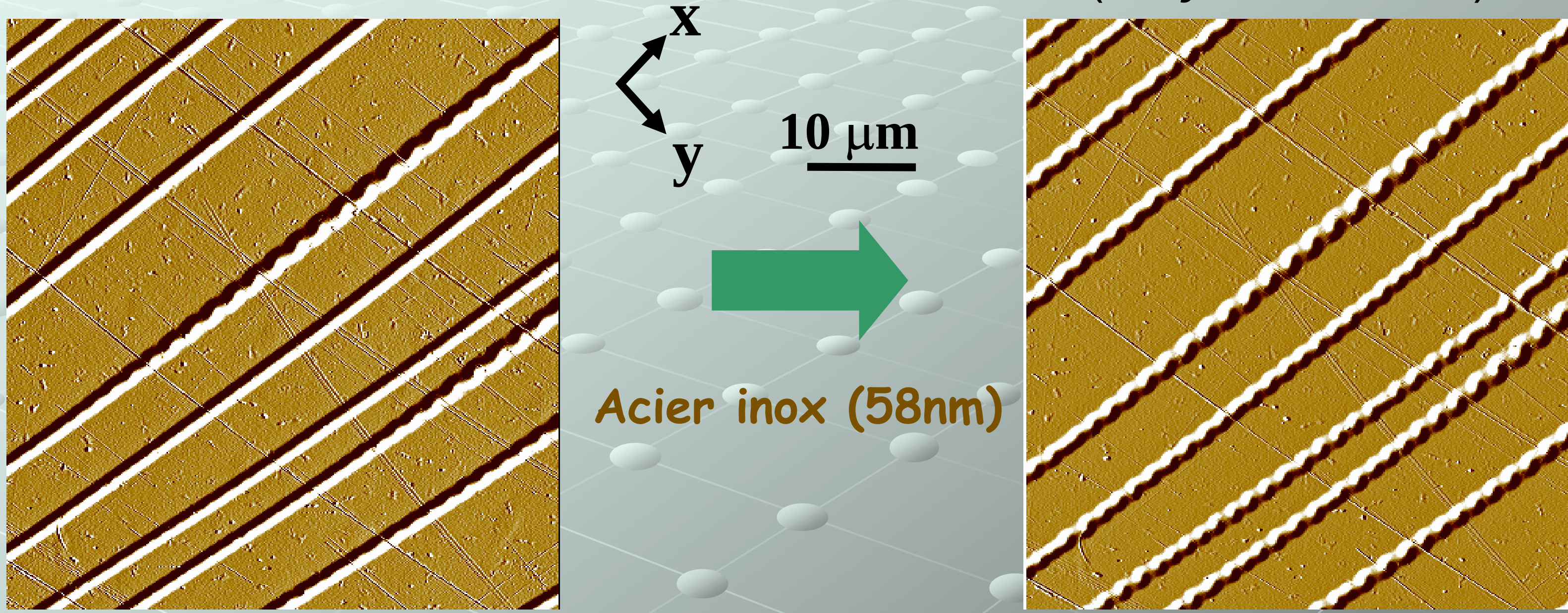
- Calcul de la longueur d'onde optimale en fonction du chargement
Caractérisation d'un point équi-énergétique → plusieurs longueurs d'ondes

- Mise en évidence d'un claquage au delà d'un rapport de forme critique a/b des bulles

- Bon accord entre les calculs et l'expérimentation

2. Exploration des structures de cloquage
Transition ride-cordon:observation par AFM

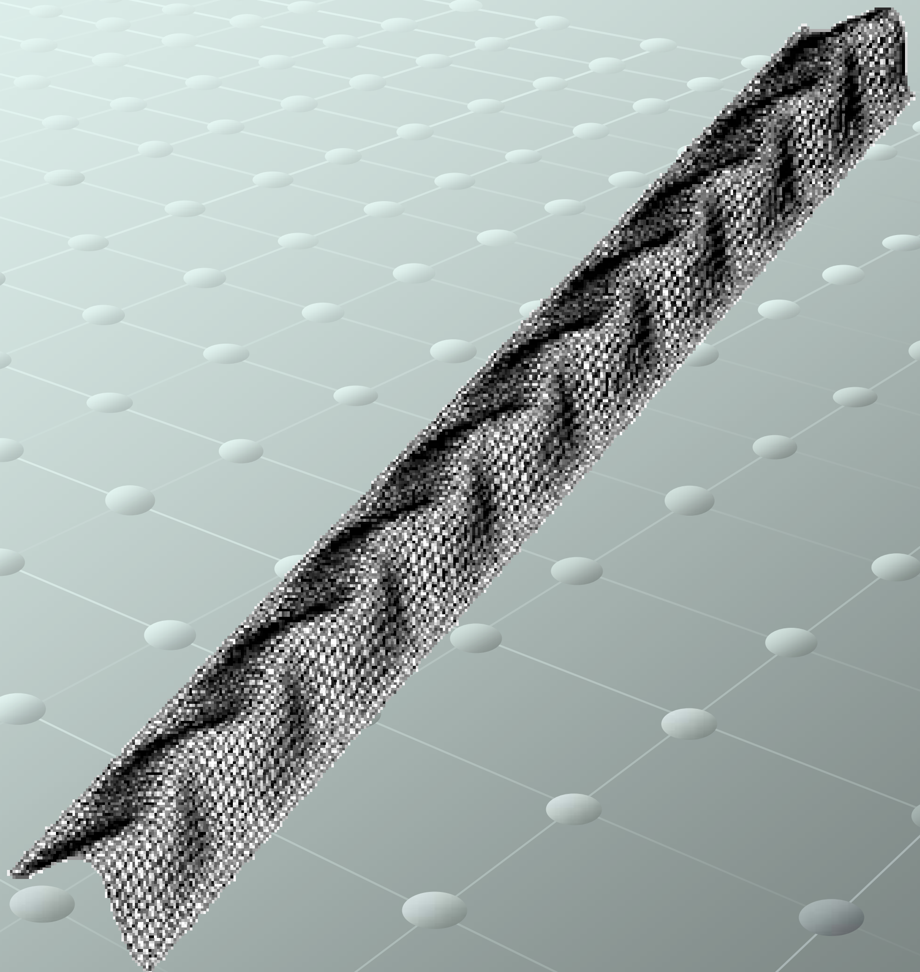
(*Cleymand et al.*)



- apparitions localisées
- propagation progressive le long des rides droites

2. Exploration des structures de cloquage
Transition ride-cordon:calcul

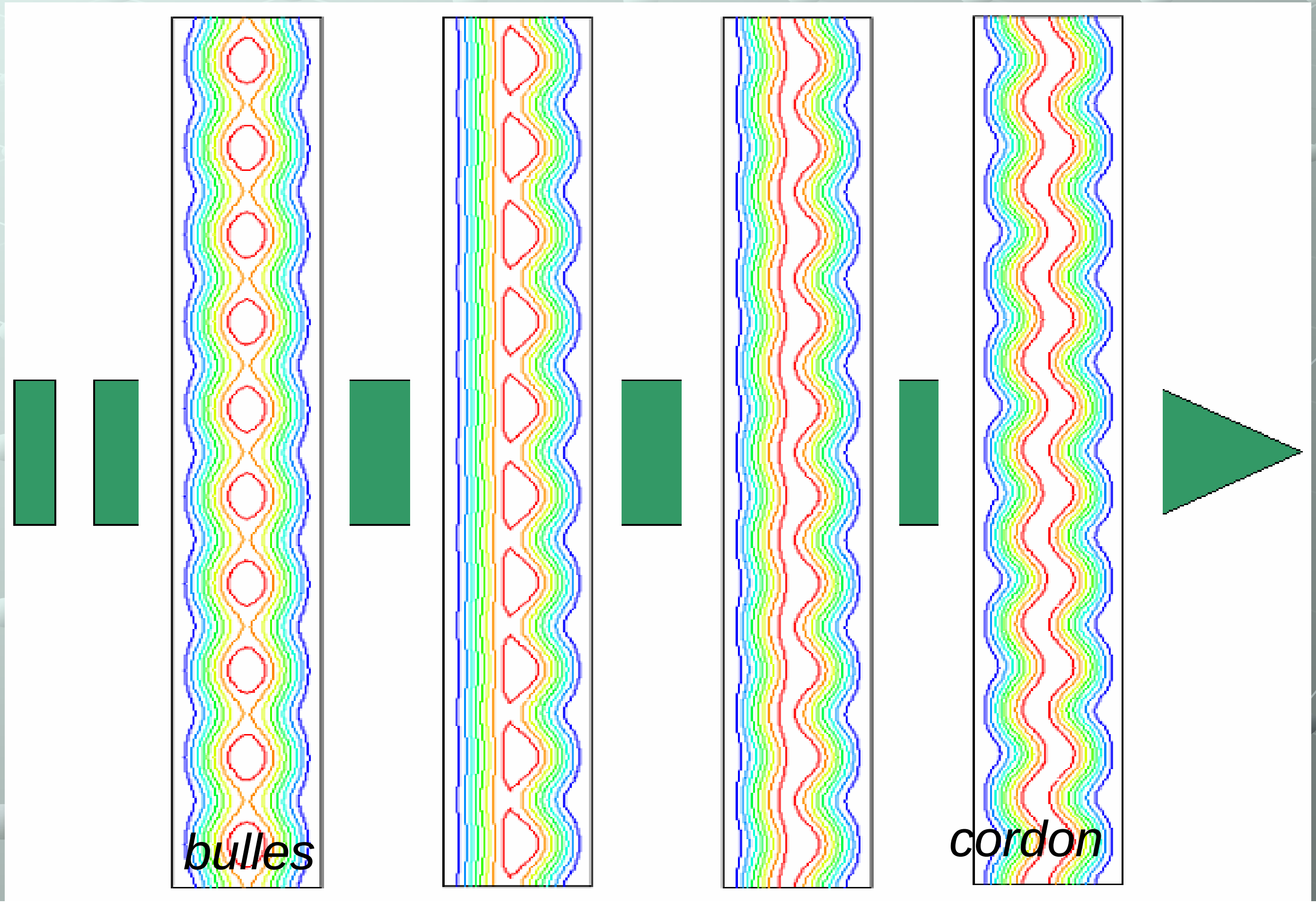
- ✓ Equilibre de cordon (calcul)



2. Exploration des structures de cloquage
Autres transitions prévues par le calcul

✓ Transition bulles-cordon

- Augmentation de la contrainte transversale à partir d'une distribution périodique de bulles
- Exemple de calcul suscitant de nouvelles expérimentations



SOMMAIRE

I. Modèle de plaque non linéaire géométrique avec contact

- Modélisation du flambage unilatéral des films minces.
- Exploration des équilibres de cloquage.
- **Détermination de la structure de cloquage.**

II. Modèle discret à base de barres et de ressorts

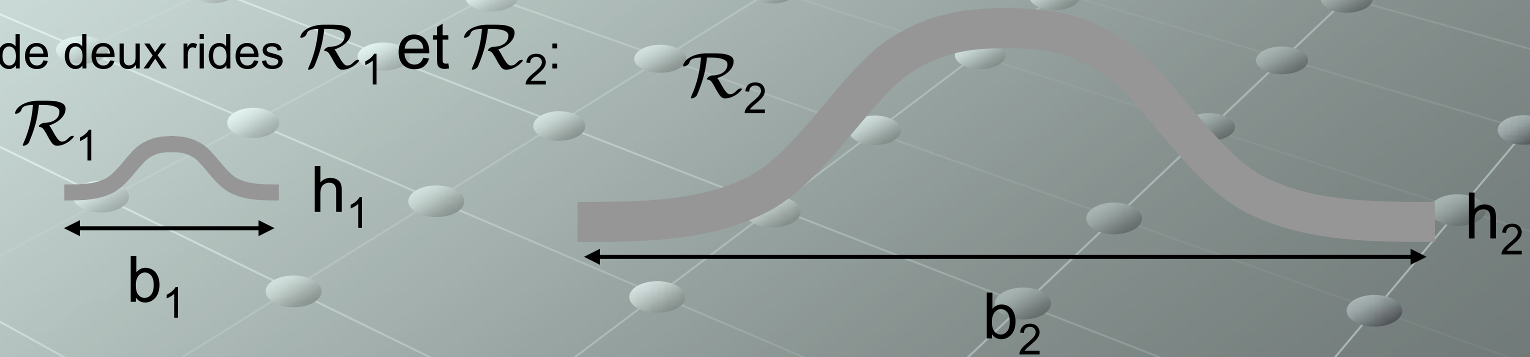
✓ Paramètre de chargement adimensionnel

Il a pu être démontré que deux équilibres de même nature formés sur deux domaines délaminés homothétiques de rapport $\alpha = b_2/b_1$ (cas des bandes) subissent la même transition pour une même valeur du paramètre adimensionnel:

$$\frac{\sigma}{\bar{E}}\frac{b^2}{h^2} \quad \text{ou} \quad \epsilon\frac{b^2}{h^2}$$

Ce paramètre permet de s'affranchir des paramètres géométriques (épaisseur du film, largeur des bandes)

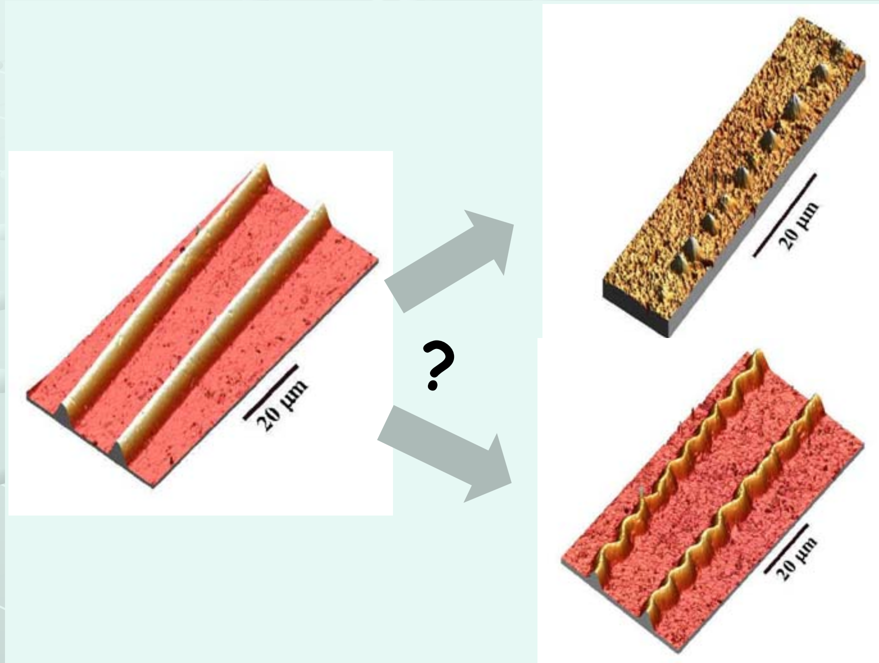
- Exemple de deux rides $\mathcal{R}_1$ et $\mathcal{R}_2$:



Si $\mathcal{R}_1$ subit une transition pour un état de contrainte σ_1, alors $\mathcal{R}_2$ subit la même transition pour un état de contrainte σ_2 telle que: $\boldsymbol{\sigma_2(b_2/h_2)^2=\sigma_1(b_1/h_1)^2}$

3. Prédiction des structures de cloquage
Cartographie des équilibres

✓ **Bulles ou cordons ?**



Ni (50 nm) / PC

- Transition: valeur critique du coefficient de Poisson ν (*Audoly et al.*)

- Preuve expérimentale de la coexistence des cordons et des bulles sur le même échantillon (*Coupeau et al.*)

✓ Détermination de l'équilibre le plus stable pour un chargement donné

Espace d'étude: (β_t, β_l)

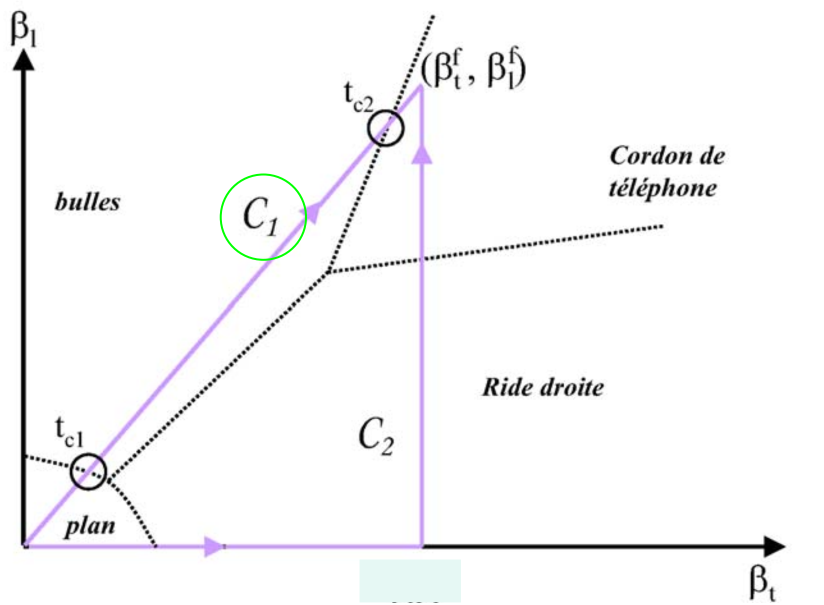
$$\beta_t = \frac{\bar{\sigma}_{yy}}{\bar{E}}\left(\frac{b}{h}\right)^2$$

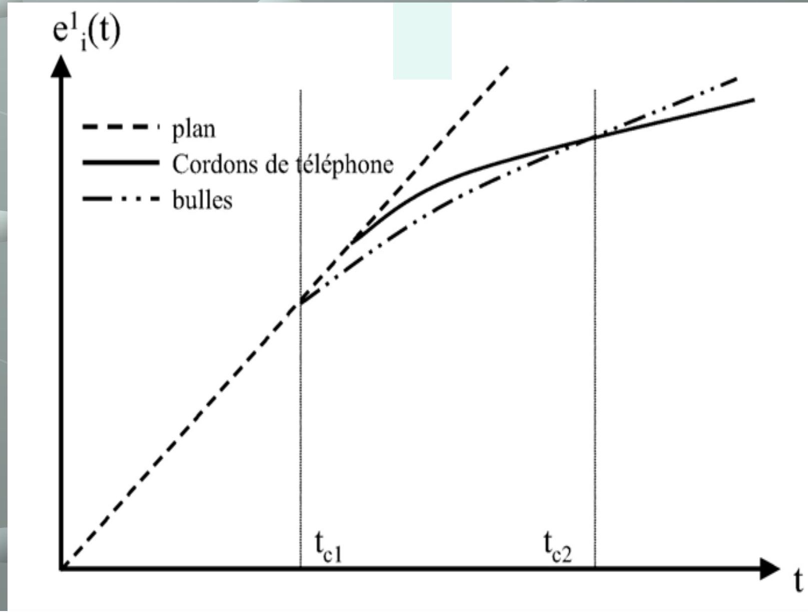
$$\beta_l = \frac{\bar{\sigma}_{xx}}{\bar{E}}\left(\frac{b}{h}\right)^2$$

b: largeur de la bande
h: épaisseur du film
$\overline{\sigma}_{yy}$: contrainte transversale
$\overline{\sigma}_{xx}$: contrainte longitudinale
$\overline{E} = E/(1-\nu^2)$

- Chargement (β_t, β_l) donné → *m* équilibres différents
- Calcul de la densité d'énergie par unité de longueur: $e^k(\beta_t, \beta_l)$, $k \in 1..m$
- Equilibre *i* stable si $e^i(\beta_t, \beta_l) = \min\{e^k(\beta_t, \beta_l), k \in 1..m\}$
- Détermination des frontières

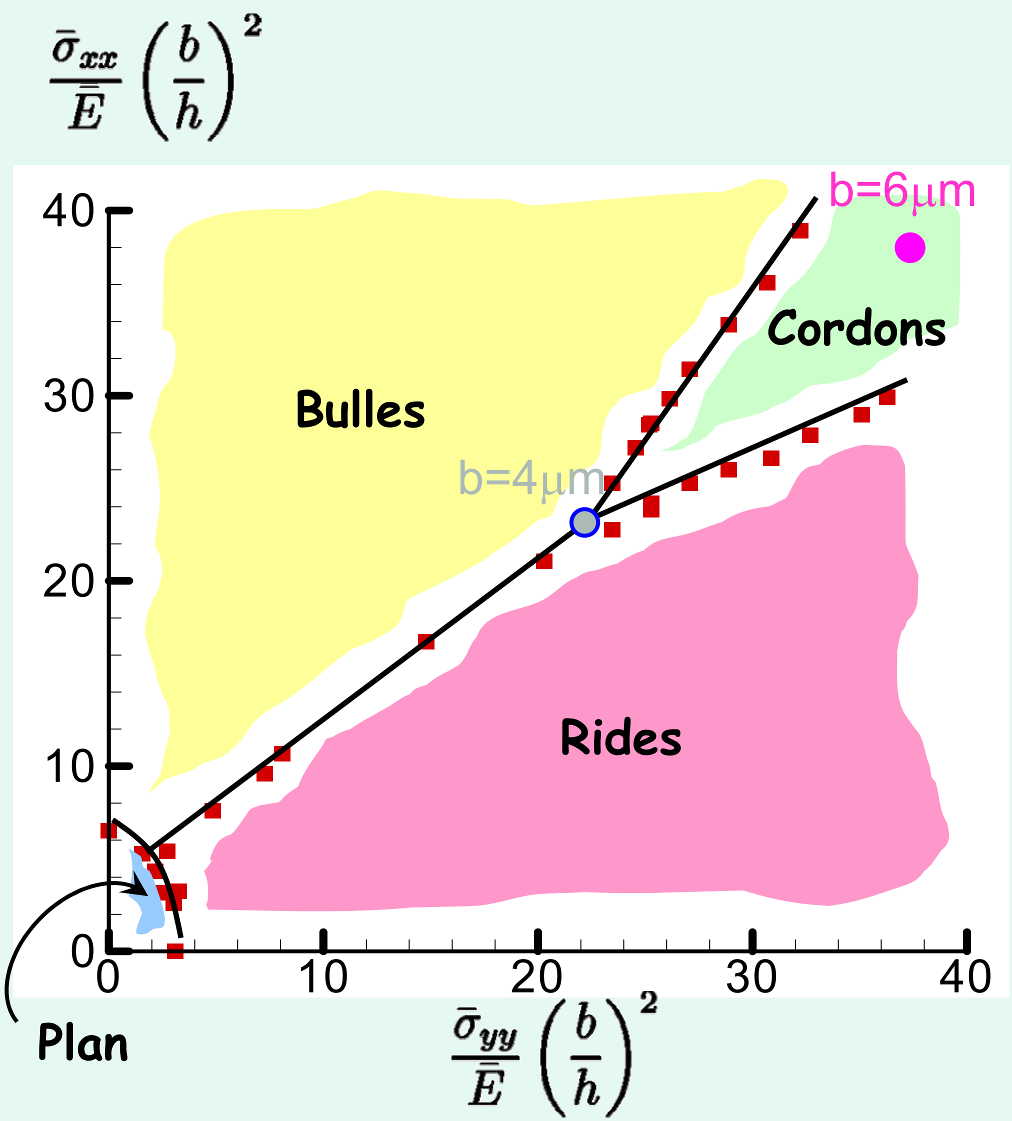
trajet de chargement





✓ **Domaines de stabilité**

Parry et al., Phys. Rev. E ***74*** *(2006) 066601*



- *Cordons de téléphone* :

- Niveaux de contraintes équibiaxiales d'intensité importante

- *Bulles* :

- Relaxation des contraintes latérales

- « Diagramme de phase » des états d'équilibre

- Pour un film donné, on peut connaitre le type d'équilibre présent en fonction de l'état de contrainte

- Inversement, forme des équilibres → informations locales sur l'état de contrainte

- Explication de la coexistance: largeur des bandes

I. Modèle de plaque non linéaire géométrique avec contact

- Modélisation du flambage unilatéral des films minces.
- Exploration des équilibres de cloquage.
- Prédiction des structures de cloquage.

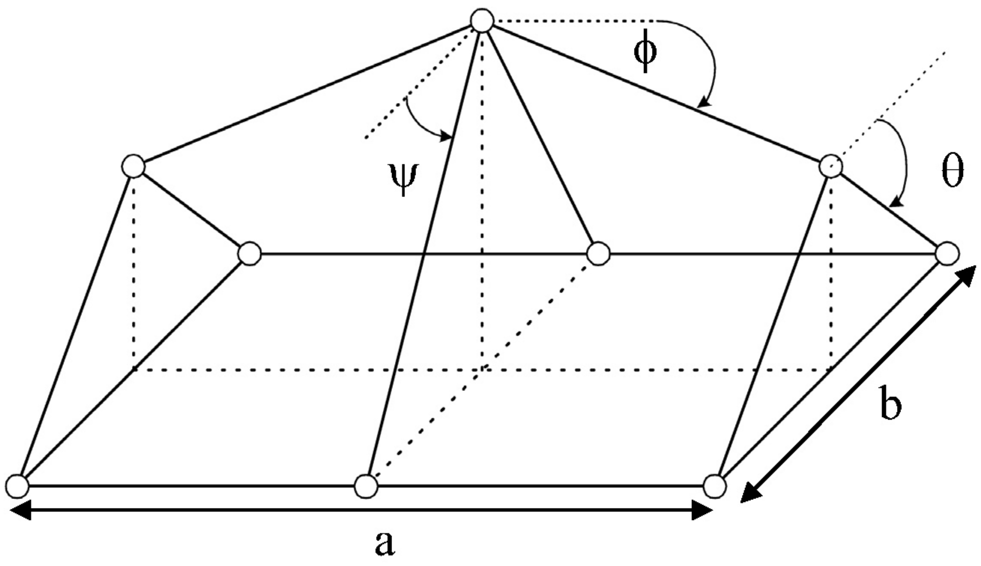
II. Système modèle constitué de barres et de ressorts

Modèle simplifié

Système modèle constitué de barres et de ressorts

- Portion de bande délaminée largeur **b** longueur **a** → assemblage barres/ressorts
  ↳ comportement mécanique le plus proche possible de celui de la plaque

- Modèle simple: 2 ddl → étude **analytique** de la transition ride-bulles



- Problème à deux paramètres

ψ et ϕ caractérisent la forme de la structure

$$\theta = f(\phi, \psi)$$

- Moments de rappel
- Barres élastiques

Énergie potentielle

Identification des raideurs en flexion

Potentiel

$$V = \frac{1}{2}C_1\theta^2 + \frac{1}{2}C_2\psi^2 + \frac{1}{2}C_3\phi^2 + C\phi(\psi - \theta) + V_0$$

C_1, C_2, C_3, C: constantes de raideur

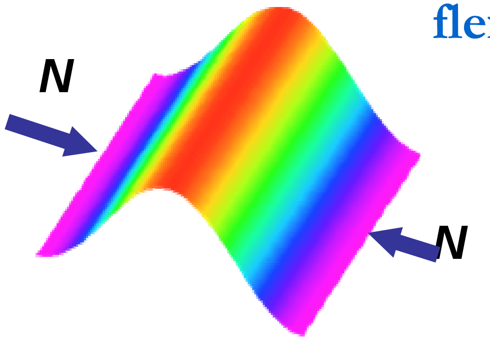
V_0: énergie de déformation membranaire

N : force par unité de longueur le long des bords

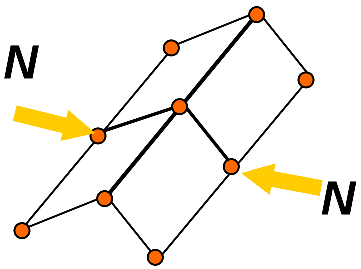
Termes de flexion/cisaillement

Identification avec les **charges critiques** associés aux modes de **flambage naissant** particuliers calculés dans la théorie des **plaques** ⇨ détermination des coefficients

flexion



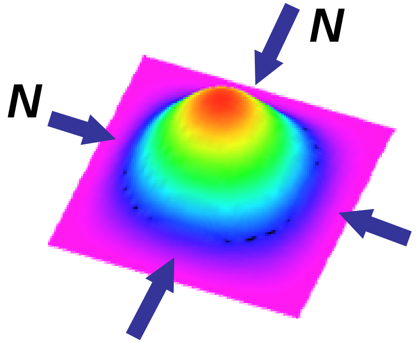
$$N_c = \frac{4D\pi^2}{b^2}$$



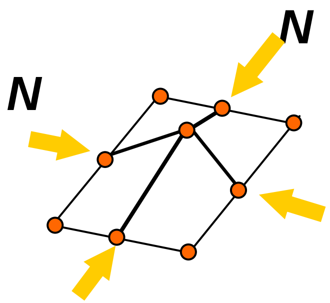
$$C_1 = C_2 = 2\pi^2 D\frac{a}{b}$$

$$C_3 = 2\pi^2 D\frac{b}{a}$$

cisaillement



$$N_c = \frac{4\pi^2 D}{b^2}\,\frac{2(a/b)^2 + 3 + 3(a/b)^4}{3(a/b)^2\left(1 + (a/b)^2\right)}$$



$$C = \frac{2}{3}$$

Énergie potentielle.
Identification des raideurs en traction/compression

Potentiel

$$V = \frac{1}{2}C_1\theta^2 + \frac{1}{2}C_2\psi^2 + \frac{1}{2}C_3\phi^2 + C\phi(\psi - \theta) + V_0$$

C_1,C_2,C_3,C: constantes de raideur
V_0: énergie de déformation membranaire
N : force par unité de longueur le long des bords

Termes de compression

Identification avec compression d'une plaque plane:

- compression suivant la longueur: $k_i = Eh\frac{b}{a}$
- compression suivant la largeur: $k_i = Eh\frac{a}{b}$

Gestion du contact

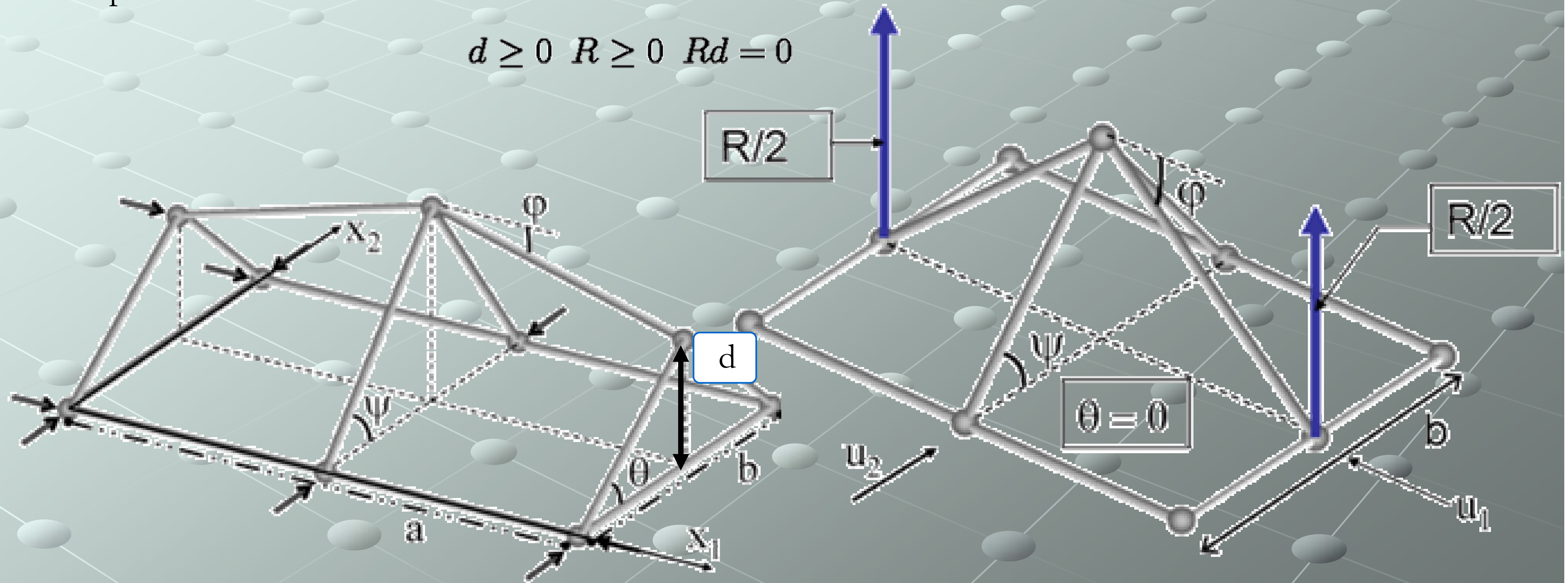
Le déplacement vertical **d** des rotules latérales est lié au déplacement latéral $\mathbf{u_2}$ et à l'angle $\boldsymbol{\theta}$:

$$d = (\frac{b}{2} - u_2)\tan(\theta) = \frac{b}{2}(1 - \epsilon_2)\tan(\theta)$$

Lorsque les rotules touchent le plan rigide (**d**=0), une force de réaction **R** apparaît.

Le déplacement **d** et la force de réaction **R** doivent satisfaire les relations suivantes:

$$d \geq 0 \quad R \geq 0 \quad Rd = 0$$



Pas de contact: R=0, d≠0

Contact: R≠0, d=0

Énergie potentielle : forme adimensionnelle

✓ **Energie potentielle V du système:**

$$\tilde{V} = \tilde{a}\theta^2 + \tilde{a}\psi^2 + \frac{1}{\tilde{a}}\varphi^2 + \frac{2}{3}\varphi(\psi - \theta) + \tilde{k}\tilde{a}\epsilon_1^2 +$$

$$\tilde{k}\tilde{a}\left(1 - \frac{1-\epsilon_1}{\cos\varphi}\right)^2 + \tilde{k}\tilde{a}\left(1 - \frac{1-\epsilon_2}{\cos\theta}\right)^2 + \tilde{k}\tilde{a}\left(1 - \frac{1-\epsilon_2}{\cos\psi}\right)^2$$

$$-\lambda d(\theta)$$

avec $k = \dfrac{Ehb^2}{4\pi^2 D} = \dfrac{E}{\sigma_c} = \dfrac{1}{\epsilon_c}$: *raideur en compression / raideur en flexion*

$\tilde{a} = a/b$: *longueur/largeur de bulle*

ϵ_1 **et** ϵ_2 : *déformations imposées dans les deux directions*

$\lambda = \dfrac{Rb}{2\pi^2 D}$: *Force de réaction*

Équations d'équilibre

- **Choix du chargement:**

$$\begin{cases} \epsilon_1 = \varrho\epsilon \\ \epsilon_2 = \epsilon \end{cases}$$

avec ϱ un paramètre caractéristique du chargement

- **Les équilibres vérifient:**

En absence de contact:

$$V_1(\varphi, \psi, \epsilon) = V(\varphi, \psi, \lambda = 0, \epsilon)$$

$$\begin{cases} \dfrac{\partial V_1}{\partial \psi} = f_1(\varphi, \psi, \epsilon) = 0 \\ \dfrac{\partial V_1}{\partial \varphi} = f_2(\varphi, \psi, \epsilon) = 0 \end{cases}$$

En présence de contact:

$$V_2(\psi, \lambda, \epsilon) = V(\varphi = \tfrac{b}{a}\psi, \psi, \lambda, \epsilon)$$

$$\begin{cases} \dfrac{\partial V_2}{\partial \psi} = g_1(\psi, \lambda, \epsilon) = 0 \\ \dfrac{\partial V_2}{\partial \lambda} = g_2(\psi, \lambda, \epsilon) = 0 \end{cases}$$

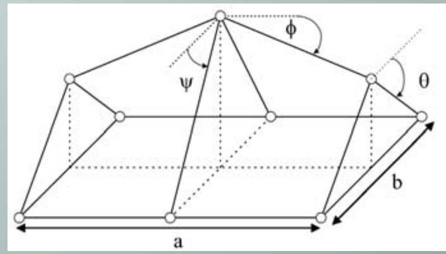
$\Rightarrow$

Etude de la stabilité au sens de la seconde variation du potentiel

$$\frac{\partial^2 V}{\partial u_i \partial u_j}_{1 \leq i \leq 2, 1 \leq j \leq 2}$$

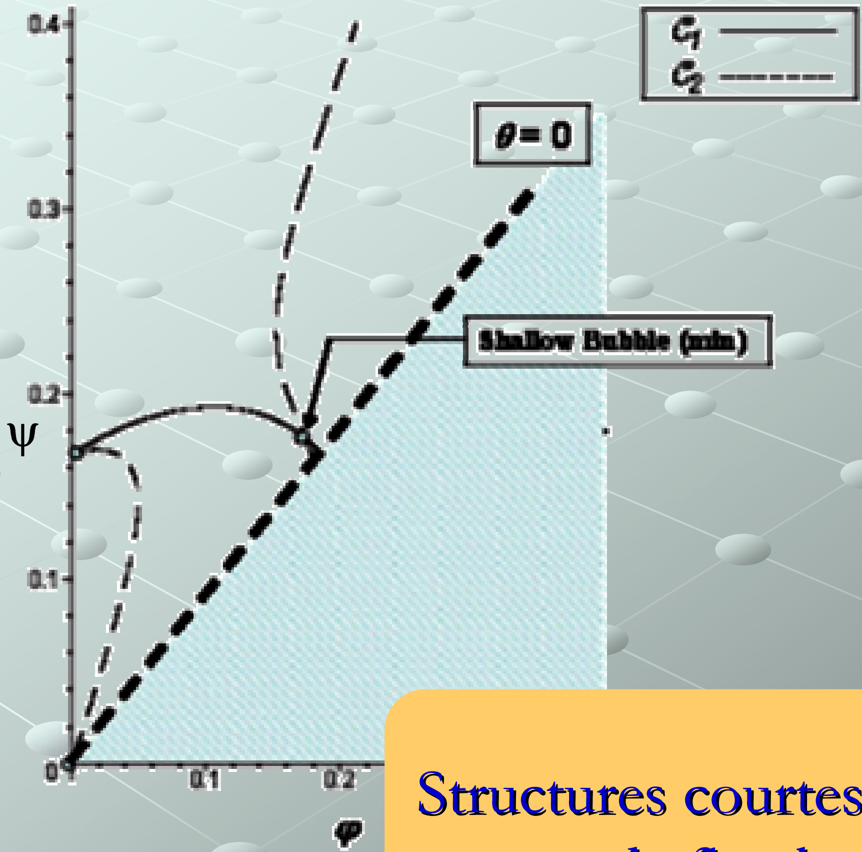
Résultats: nature des équilibres, effet de taille, stabilité

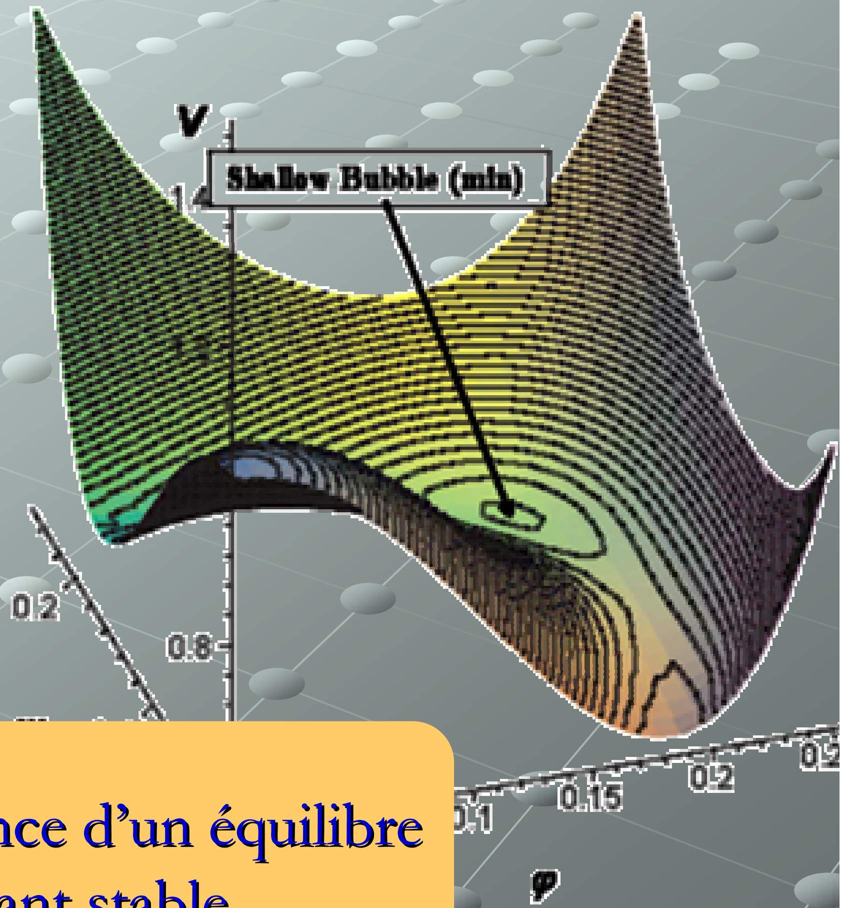
- **Bulles courtes**



Déformation $\varepsilon = 15.10^{-3}$

Rapport de forme: <u>a/b = 0.9</u>





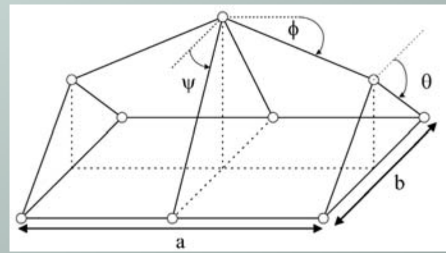
Structures courtes: existence d'un équilibre de flambage naissant stable

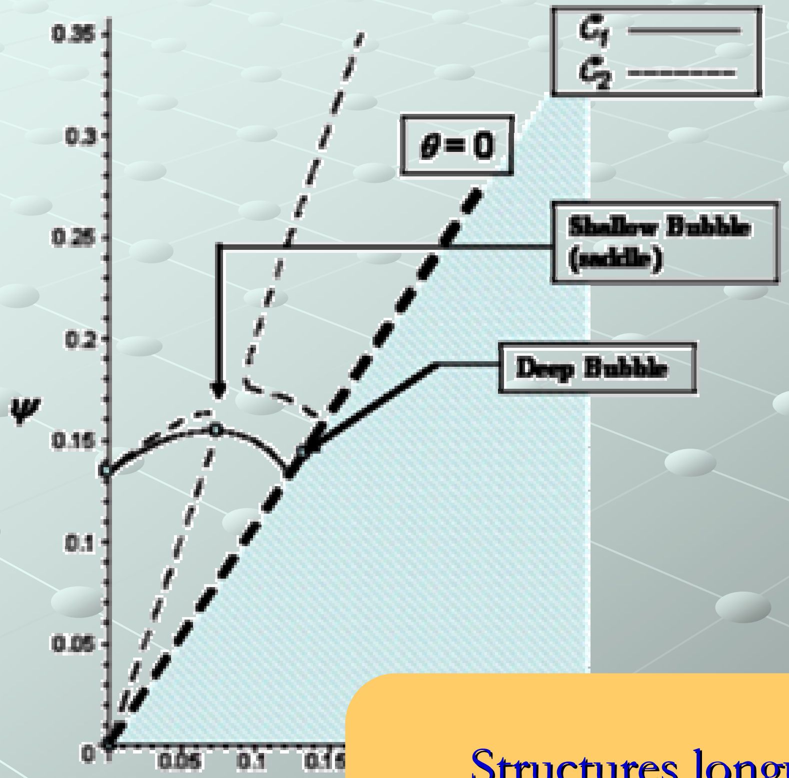
Résultats: nature des équilibres, effet de taille, stabilité

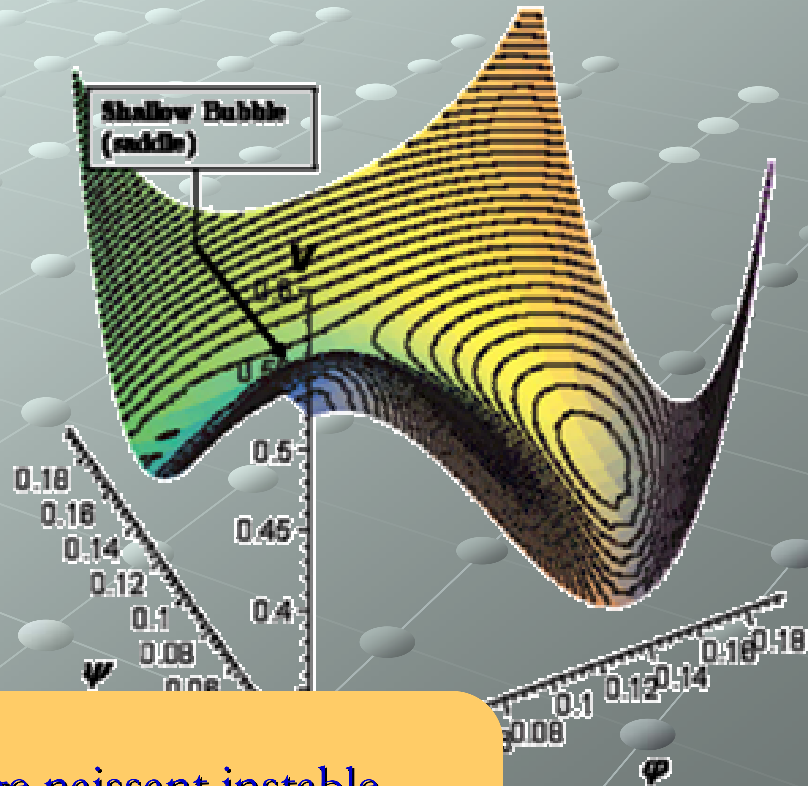
- **Bulles longues**

Déformation $\varepsilon = 10.10^{-3}$

Rapport de forme: a/b = 1.2







Structures longues: flambage naissant instable
Existence d'un équilibre de bulles déposées stable
Risque de claquage

Conclusion

⇨ **Existence de deux équilibres sous forme de bulle**

- équilibre I : bulle peu profonde
- équilibre II: bulle déposée

$\left.\begin{array}{l}\text{bulles courtes} \rightarrow \text{équilibre I stable} \\ \text{bulles longues} \rightarrow \text{équilibre II stable}\end{array}\right\}$ paradoxe cohabitation bulles courtes et longues

⇨ **Perte de stabilité associée à un élancement a/b critique**

Au delà d'un rapport a/b critique, I devient instable et II devient stable → à rapprocher du **claquage** observé expérimentalement et numériquement.

⇨ **Modèle**

Bonne représentation des phénomènes observés (nombre et nature des équilibres, étude de stabilité)

Prédictif au niveau des valeurs (valeurs critiques chargement, longueurs critiques)