

Etude des sollicitations mécaniques aux interfaces d'un empilement de couches minces

Application à la mesure d'adhérence par la technique de flexion 4 points

Gérard Delette, Guillaume Huchet, Jérôme Laurencin

*Commissariat à l'Energie Atomique - Grenoble
Laboratoire LITEN/DTH/LEV
17 rue des Martyrs 38054 Grenoble Cédex 9
gerard.delette@cea.fr*

Résumé :

Le CEA-LITEN utilise une méthode de mesure d'énergie interfaciale basée sur la technique de flexion 4 points proposée par Charalambides. La valeur de mixité modale doit être connue pour exploiter les résultats de ces essais. Dans cette étude, la simulation par la Méthode des Eléments Finis a été mise en oeuvre pour préciser la mixité modale en fonction des propriétés mécaniques des matériaux et de la configuration des éprouvettes. Dans un second temps, le rôle des contraintes d'élaboration, importantes dans le cas des cellules de SOFC, a été étudié. Ces calculs permettent de dimensionner les éprouvettes.

Abstract :

CEA LITEN has developed a method to measure the interfacial energy based on a technique initially proposed by Charalambides. The analysis of the results of this test requires the value of the modal mixity. In this study, Finite Element Analysis has been performed to establish the modal mixity as a function of the mechanical properties of materials and the sample geometry. Then, the effect of internal stresses, which are significant in SOFC cells, has been considered. The results allow the dimensioning of the test samples.

Mots-clefs :

adhérence ; modélisation

1 Introduction

De nombreuses applications en microélectronique et dans le domaine des Nouvelles Technologies de l'Energie sont basées sur le développement de structures planaires comprenant un empilement de couches fonctionnelles. Or, l'endommagement par délaminage au sein de ces structures, lors de l'élaboration ou en fonctionnement, devient un facteur limitant notamment pour la mise en œuvre de nouveaux matériaux.

La résistance à la rupture d'une interface peut être évaluée par la connaissance d'une grandeur couramment appelée adhérence, qui correspond à l'énergie minimale à apporter pour permettre la propagation d'une fissure à l'interface. Il est important de prendre en compte le fait que, généralement, l'adhérence dépend du mode de sollicitation mécanique (mixité modale).

Le CEA LITEN a développé un essai de flexion 4 points, basé sur la technique initialement proposée par Charalambides (1989), pour mesurer l'énergie interfaciale. La simulation par la Méthode des Eléments Finis (M.E.F) est nécessaire pour exploiter les résultats de cet essai.

Dans cette étude, nous présentons la méthodologie mise en œuvre pour déterminer les valeurs de la mixité modale et du taux de restitution d'énergie en présence de contraintes internes, dans le cadre d'une application aux cellules de SOFC (Solid Oxide Fuel Cell).

2 Méthodes et hypothèses de calcul

2.1 Champ de contrainte en fond de fissure à l'interface d'un bi-matériau

Une pointe de fissure à l'interface d'un bi-matériau constitue une singularité géométrique et matérielle (cf. figure 1). Dans l'hypothèse d'un comportement élastique et en l'absence de contraintes internes, Rice (1988) montre que l'état de contrainte le long de l'interface, à une distance r de la pointe de fissure, est décrit par un nombre complexe :

$$(\sigma_{yy} + i\sigma_{xy})_{\theta=0} = \frac{\underline{K} r^{i\varepsilon}}{\sqrt{2\pi r}} \quad \text{avec} \quad \underline{K} = K_I + iK_{II} = |\underline{K}| e^{i\psi} \quad (\text{Equ.1})$$

Le paramètre ε caractérise l'hétérogénéité des constantes élastiques des 2 matériaux (ε est nul lorsque les 2 matériaux sont identiques). Le facteur d'intensité de contrainte \underline{K} est aussi un nombre complexe dont la partie réelle représente le mode I d'ouverture et la partie imaginaire le mode II. L'argument de ψ de \underline{K} représente la mixité modale en pointe de fissure. Sa valeur numérique dépend de l'unité de longueur choisie. Pour s'en affranchir, on définit un angle de mixité modale normalisé en ajoutant à ψ la quantité $[\varepsilon \ln R]$ où R est une distance particulière à la pointe de la fissure.

$$\psi^*(R) = \psi + \varepsilon \ln R = \arctan \left(\frac{\sigma_{xy}}{\sigma_{yy}} \right)_{R, \theta=0} \quad (\text{Equ.2})$$

Le résultat, ψ^* dépend de la distance R et caractérise le champ de contrainte en pointe de fissure. Par convention, nous prendrons R égale à R_k , la taille de la zone de K -dominance que l'on peut estimer par la règle : $R_k = h/10$ où h représente l'épaisseur de la couche la plus fine (Laurencin (2002)).

2.2 Simulation par la méthode des Éléments Finis

La géométrie de l'éprouvette de mesure d'adhérence est représentée sur la figure 2. L'empilement de couches minces est inséré entre deux plaques rigides de même épaisseur. L'assemblage, obtenu par collage, est chargé en flexion 4 points. La plaque inférieure est entaillée afin de permettre l'amorçage d'une fissure en début d'essai. Le délaminage se poursuit ensuite à un niveau de charge qui peut être relié à l'adhérence à l'aide d'un modèle. Pour $a \gg h$, le taux de restitution d'énergie G ne dépend pas de la longueur de fissure ($dG/da = 0$).

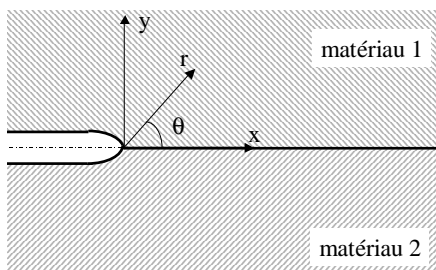


Fig. 1 – Repère local pour une fissure à l'interface d'un bi-matériau

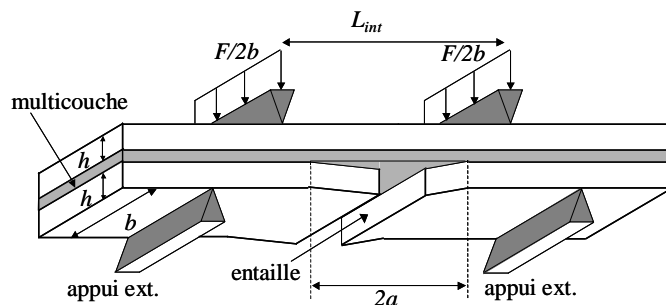


FIG. 2 – Configuration de l'essai de mesure d'adhérence par la technique de flexion 4 points

Dans la simulation par la M.E.F de cet essai, on suppose qu'une fissure s'est amorcée le long d'une des interfaces de l'empilement de chaque côté de l'entaille (cas symétrique) ou d'un seul côté (cas asymétrique). Les calculs en 2D ont été réalisés à l'aide du code Cast3M (CEA - DEN/DM2S/SEMT) en considérant le mode de déformations planes. Des éléments quadratiques à 8 nœuds ont été utilisés pour le maillage de l'éprouvette. Une attention particulière a été portée au maillage de la zone en pointe de fissure. L'hypothèse d'un comportement élastique a été retenue pour tous les matériaux de l'assemblage.

2.2.1 Calculs sans prise en compte de contraintes internes

La procédure de calcul du taux de restitution d'énergie, appelée $G-\theta$, est basée sur une méthode d'extension virtuelle de fissure décrite par Miannay (1995). Pour extraire les valeurs de K_I et de K_{II} nous avons reconduit l'approche semi-analytique proposée par Laurencin (2002) qui utilise les valeurs des déplacements relatifs des lèvres de fissure.

2.2.2 Calcul avec prise en compte des contraintes internes

Dans le cas des cellules de SOFC, les contraintes internes sont issues de l'élaboration qui comprend une étape de co-frittage des matériaux à haute température (état libre de contrainte). Lors du refroidissement, des contraintes se développent dans la cellule du fait des différences entre les coefficients d'expansion thermique des matériaux (électrodes et électrolyte). Ces contraintes internes induisent une courbure initiale des cellules.

La simulation de l'essai de flexion sur une éprouvette comprend alors 4 étapes :

1. le refroidissement de la cellule depuis la température de frittage (1200°C) jusqu'à l'ambiante (calcul en déformations planes généralisées),
2. le redressement de la cellule et l'assemblage avec les 2 plaques rigides,
3. l'introduction de l'entaille sur la plaque inférieure et d'une fissure de longueur $2a$ sur une interface donnée de l'empilement,
4. le chargement en flexion 4 points de l'éprouvette.

A chaque nouvelle étape, les contraintes et déplacements calculés en fin de l'étape précédente sont introduits comme valeurs initiales des champs correspondants. A l'issue de l'étape 4 on applique la procédure $G-\theta$ pour calculer le taux de restitution d'énergie. Toutefois, on a souhaité vérifier que la méthode pouvait s'appliquer en présence de contraintes internes en comparant les résultats obtenus avec ceux issus d'une approche différente.

Howard *et al.* (1994) montrent qu'en présence de contraintes internes, le taux de restitution d'énergie totale G_{tot} sous l'action d'un chargement externe peut être décomposé en trois termes :

$$G_{tot} = G_r + G_p + G_{pr} \quad (\text{Equ.3})$$

Le terme G_r correspond au taux de restitution d'énergie en l'absence de chargement mécanique et le terme G_p est le taux de restitution calculé sans contraintes internes.

G_r peut être calculé par un bilan de l'énergie élastique, W^{elas} , emmagasinée dans l'éprouvette en fin de l'étape 3. Deux simulations successives étant réalisées avec comme longueurs de fissure a puis $a + \delta a$, ce bilan s'écrit :

$$G_r = \frac{W^{elas}(a + \delta a) - W^{elas}(a)}{\delta a} \quad (\text{Equ.4})$$

Le terme de couplage G_{pr} est calculé à partir de la relation : $G_{pr} = -\frac{F}{2} \frac{\delta u_r}{\delta a}$ (Equ.5)

où F désigne la force externe, u_r représente le déplacement résiduel au point d'application de la force après propagation de la fissure et décharge de l'éprouvette ($F = 0$). La valeur de δu_r est également extraite des deux simulations précédentes.

3 Résultats

Le tableau 1 regroupe les caractéristiques de l'éprouvette modélisée. La longueur totale est de 40 mm et la largeur est de 7 mm. L'écartement des appuis extérieurs (L_{ext}) est de 35 mm, celui des appuis intérieurs (L_{int}) est de 20 mm. La fissure est située dans l'interface entre la cathode et l'électrolyte. L'influence de l'épaisseur des plaques rigides sur le terme dG/da a d'abord été étudiée afin de déterminer les cas où la propagation peut être considérée comme stationnaire ($dG/da = 0$). Dans un second temps, le cas d'une fissuration dissymétrique, fréquemment observée expérimentalement, a été analysé et l'influence des propriétés mécaniques des couches est discutée. Ensuite, les contraintes d'élaboration sont prises en compte dans la simulation.

Empilement	Epaisseur (μm)	Module d'Young (MPa)	Coef. de Poisson	Coef. d'exp. thermique 10^{-6} K^{-1}
Plaque supérieure Silicium	725	180000	0,06	
Anode cermet zircone YSZ - NiO	62	10000	0,28	12,5
Electrolyte zircone YSZ	133	200000	0,3	10,5
Cathode LSM	33	50000	0,36	12
Plaque inférieure Silicium entaillée	725	180000	0,06	

TAB. 1 – Caractéristiques des couches constitutives de l'éprouvette

3.1 Effets géométriques

Les résultats des simulations par éléments finis pour différentes épaisseurs de plaque ($h = 0,725 - 3 \text{ et } 5 \text{ mm}$) sont représentés sur la figure 3. Chaque valeur du taux de restitution d'énergie, G , a été rapportée à la valeur fournie par une solution analytique, G_a . Cette solution analytique proposée par Charalambides (1989) est basée sur la théorie des poutres. Elle correspond à un régime de propagation stationnaire.

Les valeurs du taux de restitution normalisé, G/G_a , sont tracées en fonction de la longueur de fissure sur les figures 3 et 4. La figure 3 montre que les valeurs s'écartent nettement de la solution stationnaire lorsque l'épaisseur des plaques augmente et ne peut plus être considérée comme négligeable devant la longueur de la fissure. On constate également sur la figure 4 que les résultats obtenus dans le cas d'une propagation asymétrique ne s'écartent pas sensiblement des résultats calculés dans le cas d'une fissuration symétrique, pour une même longueur de fissure. Ce dernier résultat montre qu'un essai conduisant à un délaminage dissymétrique peut être retenu. Enfin, l'angle de mixité modale est dans tous les cas proche de 45° .

3.2 Effets des hétérogénéités des propriétés élastiques des matériaux

La figure 5 présente les valeurs de mixité modale obtenues en faisant varier le rapport des modules d'Young des matériaux 2 (cathode) et 1 (électrolyte) situés de part et d'autre de l'interface fissurée (cf. figure 1). On constate qu'une forte hétérogénéité des constantes élastiques des matériaux modifie sensiblement l'angle de mixité modale (pour $E_2/E_1 \ll 1$). Ce niveau d'hétérogénéité n'intervient pas dans les cellules de SOFC (pour $E_2/E_1 \sim 0,25$) mais se rencontrent couramment dans les lignes d'interconnexion en microélectronique, dans lesquelles les matériaux diélectriques utilisés ont de très faibles modules d'Young ($E_2/E_1 \sim 1/40$). Il est alors nécessaire de prendre en compte cet effet pour déterminer l'angle de mixité modale correspondant à l'adhérence mesurée.

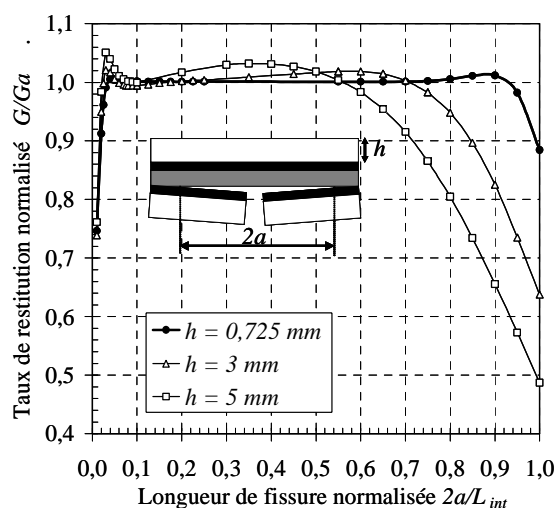


FIG. 3- Influence de l'épaisseur des plaques rigides sur l'évolution du taux de restitution d'énergie en fonction de la longueur de fissure (cas symétrique)

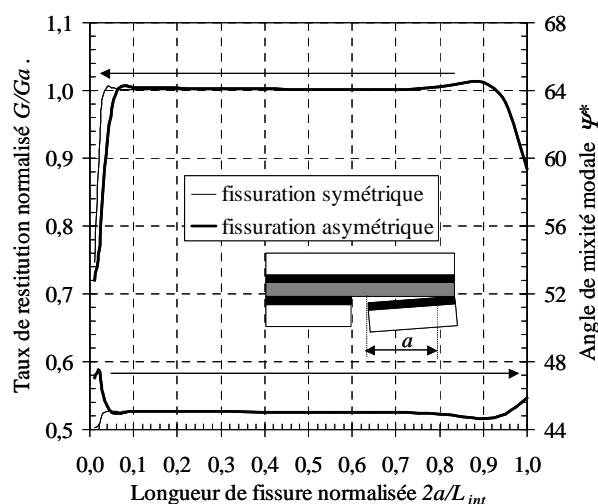


FIG. 4- Influence du mode de fissuration (symétrique/asymétrique) sur l'évolution du taux de restitution d'énergie et de l'angle de mixité modale Ψ^* en fonction de la longueur de fissure ($h = 0,725$ mm)

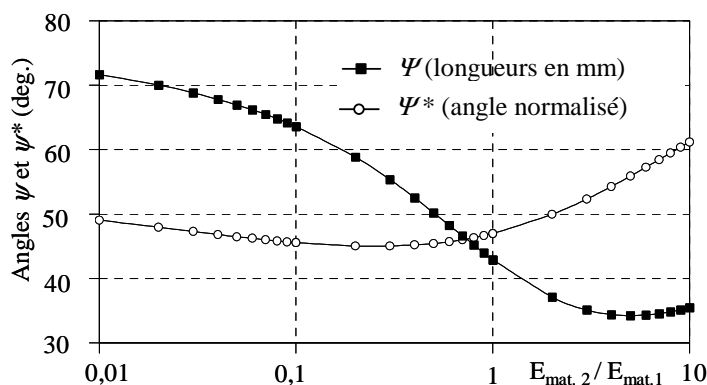


FIG. 5 - Influence de l'hétérogénéité des modules d'Young sur l'angle de mixité modale Ψ et Ψ^* (deg.) en fonction du rapport des modules d'Young $E_{mat.2}/E_{mat.1}$. $h = 0,725$ mm et $F = 50$ N. Le taux de restitution d'énergie est constant (26 J.m^{-2})

3.3 Effet des contraintes internes

3.3.1 Validité de la méthode $G-\theta$ en présence de contraintes internes

La figure 6 permet de comparer les valeurs du taux de restitution d'énergie G_{tot} obtenues avec l'approche de Howard *et al.* (1994) avec celles fournies par la méthode $G-\theta$. On constate que les résultats sont en très bon accord, ce qui permet de valider l'application de la procédure $G-\theta$ en présence de contraintes internes.

3.3.2 Dimensionnement des éprouvettes

Une étude de sensibilité a été réalisée et montre que l'augmentation de l'épaisseur des plaques rigides permet de réduire l'effet des contraintes internes (cf. figure 7), au détriment toutefois, de la stabilité du mode de propagation qui tend à s'écarter du cas stationnaire. L'utilisation de plaques d'épaisseur voisine de 1 mm apparaît donc comme un bon compromis pour tester ce type de cellules de SOFC.

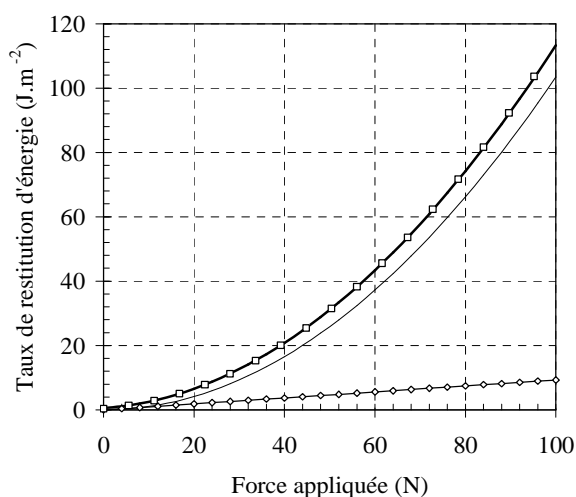


FIG. 6- Contribution des différents termes intervenant dans le calcul du taux de restitution d'énergie ($h = 0,725$ mm).

— calcul $G-\theta$ sans contraintes internes
 □ calcul $G-\theta$ avec contraintes internes
 ◇ terme de couplage G_{pr} — terme G_{tot}

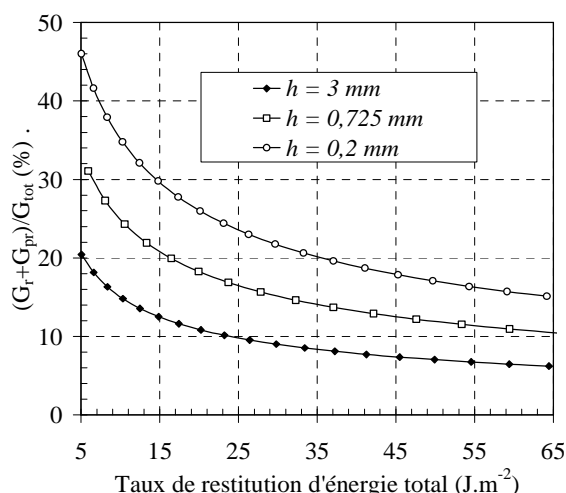


FIG. 7- Influence de l'épaisseur h des plaques sur la contribution au taux de restitution d'énergie total des termes dus aux contraintes résiduelles

4 Conclusions

Une méthodologie de calcul est proposée pour dimensionner et exploiter les essais de mesure d'adhérence par la technique de flexion 4 points appliquée aux cellules de SOFC. Elle permet notamment de prendre en compte les contraintes internes dans le calcul du taux de restitution d'énergie. Les essais sur ce type d'éprouvette sont en cours de réalisation. Les auteurs tiennent à remercier M. Dupeux (SIMAP-INP Grenoble) pour ses nombreux conseils scientifiques.

Références

- Charalambides P.G., Lund J., Evans A.G., McMeeking R.M., 1989 A test for determining the fracture resistance of bi-material interfaces. *Journal of Applied Mechanics*, **56**, 77-82
- Howard, S. J., Tsui Y. C., Clyne T. W., 1994 The effect of residual stresses on the debonding of coatings—I. A model for delamination at a bimaterial interface *Acta Metallurgica et Materialia*, **42**, 8, 2823-2836
- Laurencin J., 2002 Amorçage et propagation d'une fissure à l'interface d'un bi-matériau. *Mémoire CNAM Grenoble*, France.
- Miannay D., 1995 Mécanique de la rupture (ed. Les éditions de physique), pp. 167-169 Les Ulis, France.
- Rice J.R., 1988 Elastic fracture mechanics concepts for interfacial cracks, *J. of Appl. Mech.*, **55**, 98-103