

THÈSE

Pour l'obtention du grade de
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE POITIERS
UFR des sciences fondamentales et appliquées
Pôle poitevin de recherche pour l'ingénieur en mécanique, matériaux et énergétique - PPRIMME
(Diplôme National - Arrêté du 7 août 2006)

École doctorale : Sciences et ingénierie en matériaux, mécanique, énergétique et
aéronautique - SIMMEA (Poitiers)
Secteur de recherche : Milieux denses, matériaux et composants

Présentée par :
Antoine Ruffini

Influence de la plasticité sur le délaminage et le flambage de films minces déposés sur substrats

Directeur(s) de Thèse :
Jérôme Colin, Julien Durinck

Soutenue le 09 octobre 2013 devant le jury

Jury :

Président	Alphonse Finel	Directeur de recherche, ONERA, Châtillon
Rapporteur	David Rodney	Maître de conférences, INP de Grenoble
Rapporteur	Mokhtar Adda-Bedia	Directeur de recherche, ENS de Paris
Membre	Jérôme Colin	Professeur des Universités, Université de Poitiers
Membre	Julien Durinck	Maître de conférences, Université de Poitiers
Membre	Laurent Pizzagalli	Directeur de recherche, CNRS, Université de Poitiers

Pour citer cette thèse :

Antoine Ruffini. *Influence de la plasticité sur le délaminage et le flambage de films minces déposés sur substrats* [En ligne]. Thèse Milieux denses, matériaux et composants . Poitiers : Université de Poitiers, 2013. Disponible sur Internet <<http://theses.univ-poitiers.fr>>



THÈSE

pour l'obtention du grade de

Docteur de l'Université de Poitiers

Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées

Diplôme National - Arrêt du 7 août 2006

École Doctorale : Sciences et Ingénierie
en Matériaux, Mécanique, Énergétique et Aéronautique

Domaine de Recherche : Milieux Denses, Matériaux et Composants

présentée par

Antoine RUFFINI

Influence de la plasticité sur le délaminage et le flambage de films minces déposés sur substrats.

Directeurs de thèse : **Jérôme COLIN** et **Julien DURINCK**

Soutenue publiquement le 09 octobre 2013

Composition du jury

M. ADDA-BEDIA	Directeur de recherche, LPS-ENS, Paris	<i>Rapporteur</i>
D. RODNEY	Professeur, ILM, Lyon	<i>Rapporteur</i>
A. FINEL	Directeur de recherche, LEM-ONERA, Châtillon	<i>Examineur</i>
L. PIZZAGALLI	Directeur de recherche, PPRIME, Poitiers	<i>Examineur</i>
J. COLIN	Professeur, PPRIME, Poitiers	<i>Examineur</i>
J. DURINCK	Maître de Conférences, PPRIME, Poitiers	<i>Examineur</i>

Remerciements

Mes premiers remerciements s'adresseront aux membres du jury. Je remercie ainsi chaleureusement Mokhtar Adda-Bedia et David Rodney pour avoir accepté d'être les rapporteurs de cette thèse. Je devine les efforts supplémentaires que cela implique et suis très heureux que mon travail puisse être évalué par des chercheurs d'aussi grande qualité. Je remercie également Alfonse Finel. Après avoir passé trois mois au sein du Laboratoire d'Étude des Microstructures dont il est le directeur, je veux lui dire ici combien je suis ravi qu'il aie bien voulu accepter cette tâche, autant pour ses qualités humaines que scientifiques. J'ai hâte de poursuivre le travail déjà engagé à ses côtés. Je veux aussi remercier Laurent Pizzagalli que j'ai pu rencontrer en de nombreuses occasions durant mes trois années de doctorat. Je suis ravi qu'il aie accepté d'être dans mon jury de thèse. C'est quelqu'un de très accessible et qui porte une grande considération pour ses interlocuteurs et leurs propos. Sa bonne humeur est communicative... j'espère qu'il la conservera après avoir lu ce manuscrit !

Je veux ensuite remercier mes directeurs de thèse Jérôme Colin et Julien Durinck. Je dois avouer, Jérôme, que tes attraits pour les calculs m'ont fortement influencé pour me décider à choisir cette thèse. Bien sûr, j'étais également attiré par le sujet et les simulations atomistiques, mais je me disais, connaissant tes travaux (de façon assez superficielle à l'époque je l'avoue), que les calculs feraient partie de l'aventure ; autant dire que je n'ai pas été déçu ! J'ai beaucoup appris à tes côtés. Outre les connaissances que tu m'as transmises, tu m'as surtout communiqué ton enthousiasme pour expliquer et comprendre des phénomènes physiques aussi anodins que complexes. Ton style est très direct, parfois assez décoiffant il faut bien l'avouer. Je me souviens par exemple t'avoir présenté une publication en cours d'écriture dont l'une des figures était un tableau que tu as jugé digne « d'un compte-rendu de TP » ! Heureusement, tu trouves autant de facilité pour dire ce qui est moins réussi que ce que tu trouves vraiment bien, et de ce côté là, tu n'as pas été avare en compliments. J'ai pris beaucoup de plaisir à travailler à tes côtés. Encore merci.

Je crois, Julien, que l'une des premières images que tu aies eu de moi c'est celle où tu me vois débarquer dans ton bureau, frapper à la porte de façon timorée

alors qu'elle est ouverte (running-gag de trois ans!), entrer, te présenter un sourire gêné et une attelle soutenant l'auriculaire momifié de ma main droite témoignant d'un tendon coupé lors d'un malencontreux accident de cafetière au matin de mon dernier jour d'examen de master 2... Heureusement que mon travail ne nécessitait qu'un ordinateur! J'imagine ta réaction perplexe quant à mon habilité à mener des travaux de recherche. J'espère t'avoir rassuré ensuite. En tout cas je veux te dire ici que tu as été très rassurant pour moi. Tu t'es montré très ouvert et très généreux dès le départ. Soucieux que je comprenne correctement les choses et me faisant confiance bien plus que je ne l'aurais imaginé. Tu m'as appris énormément de choses. Humainement, tu t'es toujours montré agréable et très respectueux de mon point de vue. Je sais pourtant que mon esprit de contradiction t'as parfois rendu chèvre! Je tiens vraiment à te remercier pour toute l'attention que tu me portes et que je ressens encore aujourd'hui alors que je m'appête à quitter Poitiers. J'ai vraiment apprécié travailler avec toi. Merci encore pour tout cela.

J'aimerais également remercier Christophe Coupeau avec qui j'ai aussi collaboré durant ces trois années de thèse. Christophe s'est toujours intéressé à mon travail et a toujours manifesté beaucoup d'intérêt pour les simulations que nous réalisions avec Julien. Il m'a donné de nombreux conseils et continue aujourd'hui à se soucier de mes projets. Pour tout cela, merci. Je souhaite également m'adresser à Jean Grilhé qui a toujours gardé un œil attentif sur mes travaux et qui, lui aussi, m'a souvent donné de précieux conseils et suggestions. Jean est quelqu'un de très accessible et avec qui l'on prend plaisir à discuter. Qu'il reçoive ici de sincères remerciements.

J'en viens ensuite à mes collègues et anciens collègues doctorants et post-doctorants. Je sais qu'à la lecture de ces lignes, ceux là se seraient attendus à des remarques sarcastiques voire désobligeantes comme je les ai habitués durant ces trois dernières années... mais en valent-ils vraiment la peine? Alors, moins par économie que par soucis d'apaisement : merci à Christopher, Juan Josep, Mathieu G., Cyril, Amélie, Alex, Jean-Baptiste, Guillaume, Éloi, Mathieu B., Vivek, Azzam, Soundes, Julien (« khzpprg » en klingon), Alexia (la Arsène Lupin du M&M's), William (comment va Taboo?), Antoine (« un homme rigide et catégorique » selon M. Thatcher), Eliot (Elick selon l'administration, Bruce Wayne pour les autres...), Arnaud (sa molécule préférée : $\text{CH}_3\text{-CH}_2\text{-OH}$), Wen-Bo (The Perv), Wajdi, Maxime (« memoner » : chanter avec les lèvres accolées), Jonathan, Sébastien, Malaz, Mustapha (l'homme que le Tarot corrompt), Raphaëlle (la femme qui hurlait à l'oreille des chevaux), Jonathan, Kévin et Firas. Vous remarquerez que pour certains, je n'ai pu m'empêcher de faire quelques commentaires...

Je tiens également à citer dans ces remerciements Marco Gigliotti avec qui j'ai travaillé lorsque j'intervenais en tant qu'enseignant à l'IUT-GTE de Poitiers. Julien Godet, victime collatérale de mes entrevues avec Julien Durinck avec qui il partage son bureau ! Victime aussi de mes interventions « Action Plus » dont il est l'un des responsables... Merci également à Sandrine Brochard et Vincent Mauchamp que j'ai parfois sollicité pour des questions numériques. Philippe Goudeau, responsable du département Physique et Mécanique des Matériaux de l'institut P' que je rencontrais notamment lors des conseils de département. Romain Ecault, mon collègue doctorant dans ce conseil. Yann Le Bouar et Benoît Appolaire, membres de l'équipe « champ de phase » du Laboratoire d'Étude des Microstructures de l'ONERA. Et plus généralement, je remercie toutes les personnes du laboratoire avec qui j'interagissais de façon plus ou moins formelle et avec qui « mes rapports furent aussi divers qu'enrichissants »¹.

Je voudrais également profiter de l'occasion qui m'est donnée ici pour remercier ma mère, mon père et mon frère que j'aime de tout mon cœur et à qui je ne le dis pas assez. Je veux également citer ma grand-mère et mes oncles et tantes que je sais fiers de moi. Je tiens à leur dire que cela me touche particulièrement. Merci également à mes amis d'enfance Benoît, Charles, Jérémie, Laurent, Simon et Thomas qui me supportent maintenant depuis quinze ans, voire vingt-deux ans pour certains d'entre eux. Sans oublier François et Lucie. Et aussi : Alain, Amandine, Julie, Julien, Milou, Nata et Sandrine. Je pense également à ceux que je ne cite pas ici et qui, s'ils s'en trouvaient vexés, peuvent se rajouter ci-après :

J'aimerais pour finir remercier Natalie qui sait les sentiments que j'ai pour elle et combien elle compte désormais dans ma vie.

1. Expression employée par C. Binet pour clore ses remerciements à la fin de ses ouvrages de bande dessinée « Les Bidochon ».

Table des matières

Remerciements	i
Table des matières	v
Introduction	1
1 Détails numériques et modèles analytiques	11
1.1 Les simulations atomistiques	11
1.1.1 Modèles d'interaction entre atomes	11
1.1.2 Minimisation d'énergie et dynamique moléculaire	15
1.2 Modèle des plaques minces de Föppl et von Kármán	17
1.2.1 Équations d'équilibre	17
1.2.2 La ride droite encastrée ou colonne d'Euler	20
1.3 Délaminage d'une ride droite encastrée	22
1.3.1 Modèle de Griffith	22
1.3.2 Influence de la mixité modale	24
2 Couplage flambage, délaminage et plasticité	27
2.1 Protocole numérique	27
2.1.1 Construction des bicristaux	27
2.1.2 Caractéristiques des interfaces	29
2.1.3 Déformation et cloquage	32
2.2 Observations	33
2.2.1 Dislocations en pied de ride droite : système Mo-W	33
2.2.2 Glissement et délaminage : système Cu-W	36
2.3 Interprétation dans le formalisme de Föppl et von Kármán	40
2.3.1 Modèle de la ride droite avec glissement	40
2.3.2 Déflexion maximale	43
2.4 Nucléation d'une dislocation à la base d'une ride droite	45
2.4.1 Variation d'énergie	46

2.4.2	Déformation critique de glissement	54
2.5	Délaminage film-substrat	56
2.5.1	Taux de restitution d'énergie	56
2.5.2	Configurations d'équilibre	59
2.5.3	Discussion	64
2.6	Conclusion	66
3	Cloquage induit par la plasticité du substrat	69
3.1	Des faits expérimentaux	69
3.2	Simulation du cloquage induit par la formation d'une marche	71
3.2.1	Construction du bicristal	72
3.2.2	Formation d'une marche dans l'interface	73
3.2.3	Du délaminage au flambage	76
3.2.4	Caractérisation d'un mécanisme de glissement	77
3.3	Cloquage du film mince après délaminage et glissement	80
3.3.1	Modélisation	80
3.3.2	Déformation critique de flambage	85
3.3.3	Rôle de la marche sur la nucléation du cloquage	87
3.4	Influence de la marche sur l'extension de la cloque	91
3.4.1	Observations	91
3.4.2	Profil d'une ride droite localisée sur une marche	93
3.4.3	Délaminage et configuration d'équilibre	96
3.5	Conclusion	98
	Conclusion et Perspectives	101
	Bibliographie	105

Introduction

Les films minces désignent les matériaux dont l'épaisseur est très faible comparée à celle des substrats sur lesquels ils sont déposés (moins de 1 %). Ils sont utilisés dans de nombreux domaines industriels où leurs applications sont très diversifiées. Aux échelles du quotidien par exemple, ces films constituent la plupart des couches anti-corrosives et sont utilisés à des fins esthétiques pour protéger les objets (peintures, enduits, etc.). En aéronautique, des revêtements fins sont employés comme barrières thermiques dans les turbines de réacteurs [1]. En optique, les films d'épaisseur micrométrique servent à fonctionnaliser les surfaces transparentes de certains verres. Le procédé de dépôt est utilisé par exemple pour concevoir des vitres autonettoyantes pour fenêtres et panneaux photovoltaïques (voir figure (1.a)). Ces films sont aussi très utilisés en microélectronique où leur épaisseur peut parfois descendre jusqu'à des échelles de seulement quelques nanomètres. Ils permettent notamment la réalisation des interconnexions métalliques qui relient les composants d'un circuit intégré (voir figure (1.b)).

Au cours de leur processus d'élaboration, les films minces peuvent emmagasiner de fortes contraintes internes qui atteignent parfois plusieurs gigapascals [2, 3]. Ces contraintes proviennent souvent de processus d'accommodation entre le film et le substrat présentant des propriétés physico-mécaniques différentes (cristallographie, coefficient de dilatation thermique, etc.). Plusieurs mécanismes de relaxation ont pu être identifiés. Le film peut par exemple adopter une configuration ondulée [4, 5]. Des événements plastiques tels que la formation de dislocations d'épitaxie ont aussi été observés [6, 7] (voir figure (1.c)). Des phénomènes de fissuration sont également identifiés qui surviennent généralement lorsque le système est en tension [8, 9] (voir figure (1.d)). Enfin, des mécanismes de rupture peuvent parfois se produire à l'interface film-substrat provoquant le délaminage du revêtement de son support [10, 11]. Lorsque le film est en compression, celui-ci peut alors flamber du fait de sa très faible épaisseur ce qui mène généralement à l'accroissement de la zone délaminée. Le cloquage est le terme générique qui recouvre ces deux derniers mécanismes de

flambage et de délaminage. Il constitue l'objet de l'étude réalisée au cours de ce travail de thèse.

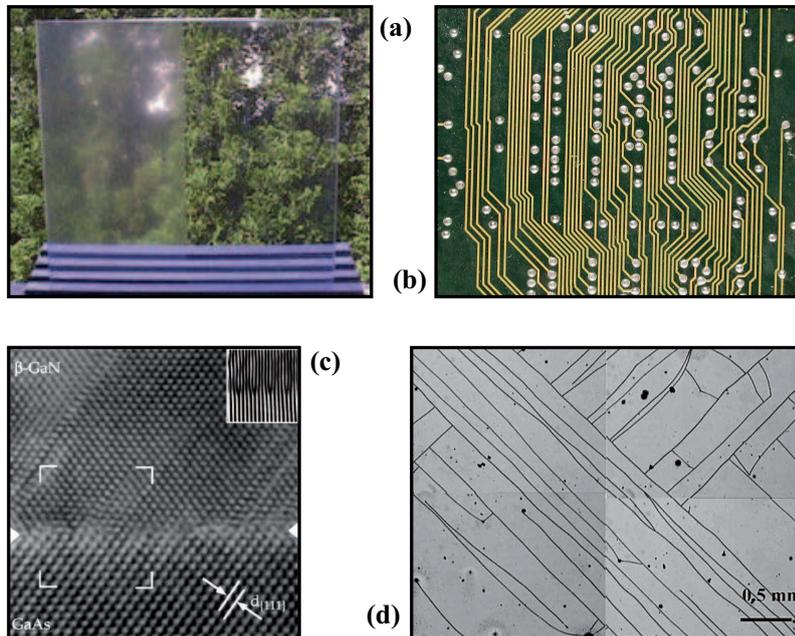


Figure 1 – (a) Vitres autonettoyantes (www.cstc.be). (b) Interconnexions métalliques d'un circuit intégré (www.technologie.ws). (c) Image de microscopie électronique en transmission (MET) de la formation de dislocations d'épitaxie à l'interface β -GaN/GaAs(001) où $d_{[111]} = 0,57$ nm (l'encart présente la transformée de Fourier de la sélection révélant la périodicité du réseau) [7]. (d) Fissures observées en microscopie optique dans un système PbZrTi(PZT)/Si [8].

Les structures de cloquage peuvent être observées à des échelles qui vont du nanomètre au mètre (voir figure (2.a)). Cependant, l'étude du phénomène à l'échelle mésoscopique n'a été entreprise il n'y a qu'une trentaine d'années seulement suite au développement des techniques d'observation par microscopie à force atomique (AFM). Parmi les nombreuses morphologies observées, certaines sont assimilées à des rides droites [12, 13] (voir figure (2.b)), des cordons de téléphone [14, 15] (voir figure (2.c)) ou bien des cloques circulaires [16, 17] (voir figure (2.d)) qui s'organisent généralement en réseaux [18, 19] (voir figure (2.e)).

Dans les années 1980, la communauté scientifique qui travaille sur ce sujet a proposé une description du comportement élastique de ces structures flambées en s'appuyant sur le modèle des plaques minces développé au début du XIX^{ième} siècle par A. Föppl [20] et T. von Kármán [21] (noté FvK par la suite). Dans le cas général, ce modèle rend compte d'une situation plutôt complexe puisque non-linéaire, dans le sens où la configuration adoptée par le film mince pour une sollicitation mécanique donnée modifie elle-même la façon dont le système va réagir. Les premières études ont donc concerné des structures relativement simples telles que des rides droites ou des cloques circulaires isolées pour lesquelles des solutions analytiques ont pu être

déterminées. Ces travaux ont permis de caractériser les structures observées de façon satisfaisante et de proposer les premiers scénarii de délaminage induit par flambage [22, 23].

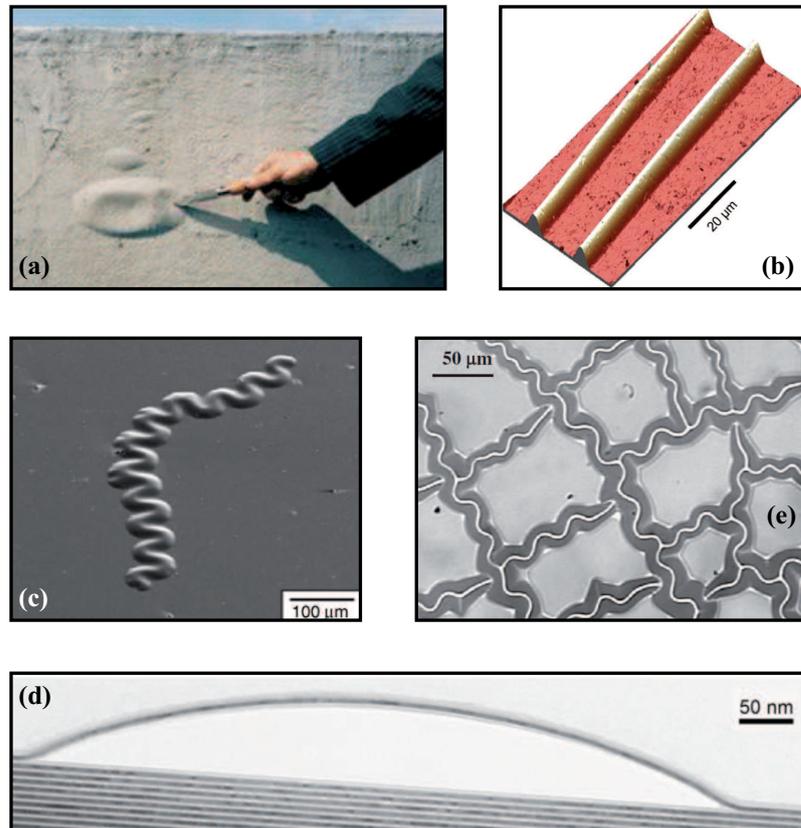


Figure 2 – (a) Cloquage du revêtement d’un mur extérieur (www.facop.ma). (b) Vue par microscopie à force atomique (AFM) de rides droites dans un système Ni/polycarbonate [13]. (c) Vue en microscopie électronique à balayage (MEB) d’un cordon de téléphone dans un système DLC/verre [15]. (d) Observation MET de la coupe d’une cloque circulaire dans un système multicouche Mo(foncé)/Si(clair) [17]. (e) Vue AFM d’un réseau de cordons de téléphone dans un système SiN/polycarbonate [19].

Dans ces descriptions, il est également nécessaire de rendre compte de la façon dont le film se décolle du substrat. Cet aspect repose sur le modèle de A. A. Griffith proposé en 1921 qui consiste à faire le bilan entre l’énergie qu’une structure de cloquage est susceptible de libérer et l’énergie nécessaire pour fracturer l’interface [24]. Expérimentalement, il apparaît cependant difficile de rendre compte de tous les processus physiques intervenant au cours du délaminage. De plus, nous constatons généralement que l’énergie nécessaire à la rupture d’une interface dépend elle-même de la façon dont le front de la zone de décohésion est sollicité mécaniquement [25]. Malgré ces difficultés, une loi de comportement phénoménologique générale a pu être proposée au début des années 1990, notamment par J. W. Hutchinson et Z. Suo [26],

qui, couplée au modèle de FvK, a permis de rendre compte de façon satisfaisante de configurations d'équilibre ainsi que de la cinématique de croissance de structures observées expérimentalement [27] (voir figure (3)). Il reste que l'identification des différents mécanismes physiques mis en jeu lors du délaminage ainsi que la façon dont ils interviennent constituent, encore aujourd'hui, l'une des problématiques importantes de ce champ de recherche.

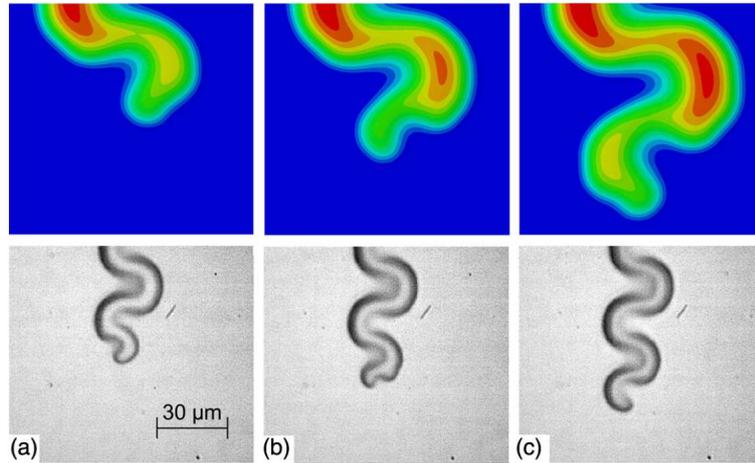


Figure 3 – (haut) Simulation par éléments finis de l'évolution cinématique d'un cordon de téléphone : la formation des méandres, également observés par microscopie optique dans un système Mo/Si (bas), s'explique par la prise en compte de la façon dont la propagation du délaminage à la base des cloques est phénoménologiquement décrite [27]

En se basant sur ces premières descriptions théoriques du flambage couplé au délaminage, plusieurs travaux se sont concentrés alors sur la compétition entre l'endommagement par cloquage et la formation de craquelures [28, 29]. La caractérisation de la forme de certaines structures de cloquage a également permis de déterminer l'énergie d'adhésion de matériaux revêtus [30, 31] ainsi que les propriétés élastiques de films minces métalliques, propriétés qui diffèrent généralement de celles de ces mêmes matériaux à l'état massif [13, 32].

Au milieu des années 1990, les travaux s'orientent vers de nouvelles problématiques : comment expliquer la forme des structures de cloquage plus complexes qui sont aussi celles qui sont le plus couramment observées ? Il s'agit alors d'étudier la stabilité des cloques en fonction des sollicitations mécaniques des systèmes. Ces études profitent à la fois du développement des moyens d'observation et de simulation ainsi que de l'approfondissement des calculs reposant sur le modèle de FvK [33, 34]. Dans ces études statiques, résumées en partie dans le diagramme de la figure (4), le film est généralement assimilé à une plaque mince autoportée [14]. Il est alors montré que lorsque les contraintes biaxiales d'un film mince tendent à être isotropes, les structures de cloquage les plus attendues sont les cordons de téléphone. Lorsque

croissent les contraintes transversales, les rides droites apparaissent plus favorables, alors que lorsqu'elles diminuent au profit des contraintes longitudinales, ce sont les "lignes de bulles" qui deviennent plus favorables [35]. Cette dernière transition est illustrée par l'image de microscopie optique obtenue au laboratoire de Poitiers également présentée sur la figure (4) [36, 37].

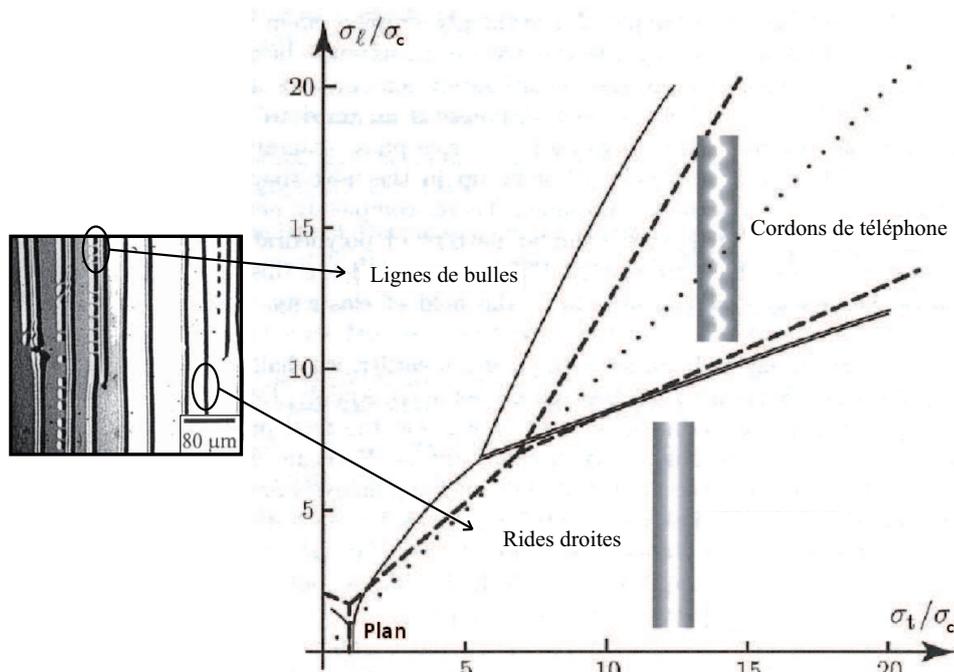


Figure 4 – Diagramme de stabilité des structures de cloquage en fonction des contraintes biaxiales longitudinale (σ_l) et transversale (σ_t) normalisées par rapport à la contrainte critique (σ_c) à partir de laquelle un film mince flambe en une ride droite. Les domaines délimités par les traits pleins ont été établis par Audoly *et al.* à l'aide du formalisme de FvK dans le cas où les effets du substrat sont négligés [35]. Les lignes en pointillés rendent compte des mêmes limites établies par Parry *et al.* à l'aide de simulations par éléments finis dans lesquelles les effets du substrat sont pris en compte [38]. La diagonale (ligne de points) rend compte du chargement isotrope ($\sigma_l = \sigma_t$). L'observation en microscopie optique présente l'évolution morphologique de rides droites en lignes de bulles dans un système Ni/polycarbonate [36].

Durant cette même période, d'autres travaux permettent de caractériser certains des aspects de la cinématique de croissance des réseaux de cloques [39, 40] (voir figure (5)). Une étude portant sur la dynamique de flambage d'une membrane autoportée montre par exemple qu'il existe des similitudes entre la répartition des structures de cloquage et la formation des domaines de Weiss au sein d'un matériau ferromagnétique [41]. Des études plus récentes se focalisent également sur la formation de motifs lors du flambage de membranes ou d'objets biologiques de faible épaisseur [42].

Dans ces travaux, les effets du substrat ne sont généralement pas considérés. Cette problématique est abordée au début des années 2000. L'idée notamment est

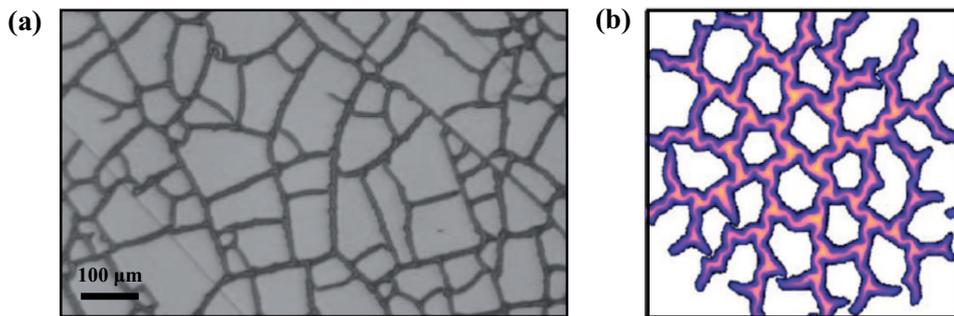


Figure 5 – (a) Vue en microscopie optique d’un réseau de cloques observé dans un système Nb/Polycarbonate [43]. (b) Simulation numérique par ”réseau de ressorts” de la formation d’un réseau de cloques [40] (le potentiel d’interaction entre les nœuds du maillage est le potentiel harmonique classique d’un ressort).

de préciser les mécanismes physiques pouvant être à l’origine du délaminage du film de son substrat. Les configurations d’équilibre des cloques sont alors étudiées en fonction de la courbure du support [15, 44] mais aussi en fonction de ses déformations élastiques. Des études montrent par exemple que le cloquage d’un film mince peut entraîner une déformation significative du substrat qui modifie les conditions critiques de délaminage ainsi que la forme des structures cloquées [45, 46]. Ces travaux trouvent aujourd’hui des applications directes dans le domaine de l’électronique flexible ; ils concentrent ainsi une assez grande partie des publications de ces cinq dernières années. Les travaux les plus récents portent également sur des effets jusqu’alors non pris en compte comme l’influence de la surface qui modifie dans certains cas les conditions critiques de cloquage des structures sub-micrométriques [47, 48].

À Poitiers, après des premières études consistant à identifier et à caractériser des structures comme des cordons de téléphone ou des lignes de bulles dans le formalisme de FvK (voir figure (4)), une large partie des travaux a concerné cette problématique de l’influence du substrat sur le phénomène de cloquage. Au cours de son travail de thèse (2002–2005) [49], G. Parry a ainsi entrepris des simulations par éléments finis dans lesquelles les effets du substrat sont pris en compte. Ses travaux ont permis notamment l’identification de phénomènes de claquage et d’hystérèse au cours de la transition ”ride droite”–”ligne de bulles” [50, 51]. Il a montré aussi que la présence d’un substrat compliant a pour effet d’abaisser la contrainte critique de cloquage d’un film mince [52]. De même, des effets de pincement et de dépression du substrat en pied de ride droite ont pu être identifiés comme le montre la figure (6). Finalement, ces études ont permis de préciser les effets du support sur la forme des cloques en fonction de la répartition des contraintes biaxiales du film mince [38] (voir figure (4)).

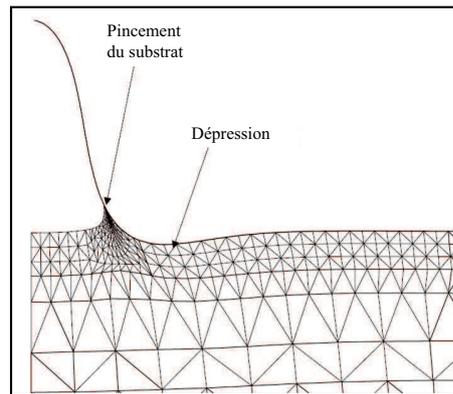


Figure 6 – Simulations par éléments finis d'une ride droite reposant sur un substrat : mise en évidence d'un effet de pincement et de renforcement du substrat en pied de structure [52].

Nous voyons que malgré ces travaux, la question qui concerne le couplage entre le flambage et les mécanismes physiques mis en jeu au cours du délaminage reste ouverte. À l'échelle mésoscopique, une autre des voies explorées à Poitiers pour comprendre cet aspect a consisté à étudier les effets de la pression sur les cloques. Ce travail plus récent a fait l'objet de la thèse d'E. Dion (2009–2011) [53]. En s'appuyant sur des résultats expérimentaux et le modèle de FvK, il a par exemple été montré que du vide est généralement présent sous une ride droite, ce vide ayant pour effet d'abaisser de façon mesurable la déflexion maximale de la structure cloquée [54, 55]. Les travaux réalisés au laboratoire de Poitiers ont aussi porté sur le rôle de la plasticité sur le cloquage des films minces à l'échelle atomique. C'est dans ce contexte que s'inscrit ce travail de thèse.

Jusqu'au milieu des années 2000, la question du rôle de la plasticité au cours du délaminage et du flambage des films minces reste encore peu abordée [30, 56]. Au laboratoire de Poitiers, les premiers travaux sur ce sujet ont d'abord révélé que de l'endommagement plastique pouvait être observé et caractérisé à la base de cloques circulaires [57]. Dans le cadre de la thèse de F. Foucher (2005–2007) [58], les effets de la plasticité du substrat ont ensuite été étudiés. Ses travaux ont permis de montrer en particulier que l'émergence d'une marche induite par le passage de dislocations dans l'interface d'un film initialement pré-délaminé sur une partie du substrat peut initier le cloquage du film mince [59]. Par la suite, il a été question de rendre compte de la plasticité au sein du film mince lui-même. À Poitiers, des processus d'endommagement en pied de structures ont ainsi été caractérisés. Il a été modélisé en particulier que sous certaines conditions de sollicitation mécanique, la formation d'une pliure plastique au pied d'une cloque circulaire était énergétiquement plus favorable que la conformation purement élastique [60] (voir figure (7.a)). Des travaux semblables ont ensuite porté sur les mécanismes de fissuration observés

au sommet de rides droites, cette fissuration pouvant être expliquée par la présence de joints de grains préexistants au sein du film mince [61] (voir figure (7.b)). Plus récemment, des simulations atomistiques, également réalisées à Poitiers, ont révélé que pendant le flambage d'un film mince autoporté, des dislocations peuvent être nucléées au sommet d'une ride droite et se propager dans le système en provoquant un abaissement significatif de la déflexion maximale de la cloque [62, 63] (voir figure (7.c)).

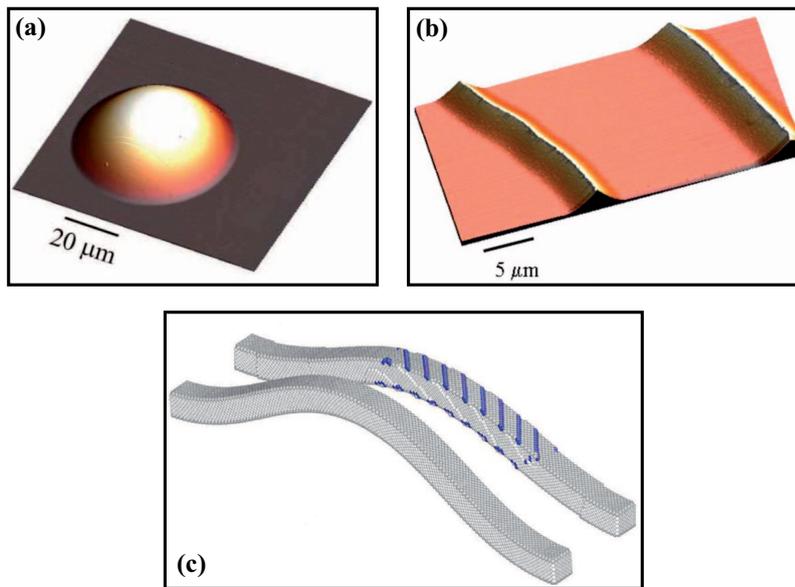


Figure 7 – (a) Vue AFM d'une cloque circulaire dont la base présente une pliure plastique dans un système Au/Si [60]. (b) Vue AFM de rides droites dont le sommet a craqué au niveau de joints de grain préexistant dans un système $Y_2O_3/GaAs$ [61]. (c) Simulation atomistique du flambage d'un film mince d'aluminium : des dislocations sont nucléées au sommet de la ride droite ce qui se manifeste par l'émergence de marches en surface (bleu) [62].

Dans ces travaux, les événements plastiques considérés surviennent ou bien au sein du substrat seul ou bien au sein du film mince seul. Ces événements ont pu être intégrés dans des modèles élastiques pour décrire le comportement des structures de façon satisfaisante. Dans ces études cependant, les mécanismes plastiques élémentaires susceptibles d'intervenir au cours du délaminage et les effets de cette plasticité sur le flambage lui-même ne sont pas pris en compte. Or nous pensons que de tels processus peuvent apporter des informations supplémentaires sur la façon dont s'effectue le délaminage d'un film de son substrat. Rappelons en effet qu'à l'échelle mésoscopique, ce processus reste décrit par des lois phénoménologiques.

Un autre aspect aujourd'hui peu abordé dans la littérature est la question de la nucléation des structures de cloquage. Il est en effet généralement admis que ces structures prennent naissance au niveau de défauts comme le montre la figure (8)

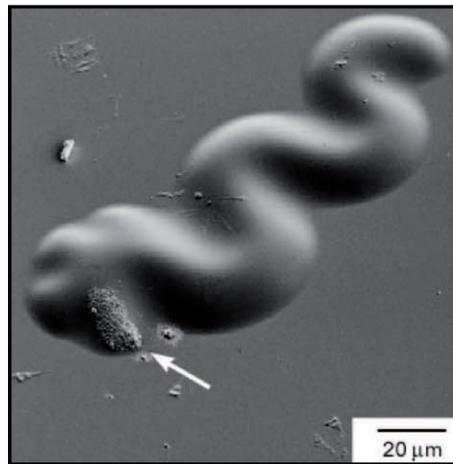


Figure 8 – Nucléation d’un cordon de téléphone à partir d’une imperfection dans un système DLC/verre [64].

[64]. D’autres types d’imperfections pouvant initier le cloquage sont également rapportés dans la littérature : zones de fissurations [65], zones de forte rugosité [66, 67] ou encore imperfections d’interface [68, 69]. Il reste que dans ces études, aucun mécanisme précis n’a réellement été caractérisé, en particulier à l’échelle atomique où ont lieu les premiers stades de la nucléation du délaminage. Nous pensons que la plasticité du substrat joue là aussi un rôle important qu’il s’agit de caractériser.

La problématique qui nous concerne sera donc double : caractériser le rôle de la plasticité sur le flambage et le délaminage de films minces déposés sur substrats et identifier les mécanismes plastiques à l’origine de l’initiation de ce phénomène de cloquage. Pour traiter ces questions, des simulations atomistiques seront réalisées afin d’identifier et de caractériser des processus plastiques survenant à l’échelle atomique. L’idée sera ensuite d’intégrer ces processus plastiques dans des modèles élastiques continus afin de proposer une description multiéchelle du cloquage.

Dans le premier chapitre, nous exposerons brièvement les méthodes employées pour réaliser les simulations atomistiques ainsi que les modèles analytiques de FvK et de Griffith qui permettent, dans le cadre de la mécanique des milieux continus, de caractériser le flambage et le délaminage des films minces déposés sur substrat. Pour répondre à notre problématique, nous avons ensuite partagé ce rapport en deux grandes parties. La première concerne l’étude du rôle de la plasticité sur le cloquage d’un film mince préalablement délaminé sur une partie du substrat. Dans ce chapitre nous nous appuyerons sur deux simulations modèle qui nous ont permis d’identifier des mécanismes plastiques qui surviennent dans l’interface au cours du cloquage. Nous verrons quelles influences ont ces mécanismes sur la forme d’une ride droite

ainsi que sur le processus de délaminage induit par le flambage du film mince. La dernière partie sera consacrée à l'étude des mécanismes mis en œuvre pour initier le cloquage d'un film mince. Dans ce chapitre, nous nous inspirerons de résultats d'expériences effectuées au laboratoire de Poitiers pour simuler à l'échelle atomique l'émergence d'une marche induite par le passage de dislocations dans l'interface d'un bimatériau. En couplant ces simulations à des calculs analytiques effectués dans le cadre de la théorie élastique de FvK, nous décrirons comment la plasticité peut permettre l'initiation du cloquage.

Chapitre 1

Détails numériques et modèles analytiques

Dans ce travail, nous avons choisi d'étudier le cloquage de films minces métalliques tels que le molybdène (Mo) et le cuivre (Cu) déposés sur un substrat de tungstène (W). Pour mener notre étude, nous avons couplé des simulations atomistiques à des calculs d'élasticité reposant notamment sur le modèle des plaques minces de Föppl et von Kármán. Nous décrivons dans ce premier chapitre les détails des simulations et les modèles analytiques que nous avons utilisés.

1.1 Les simulations atomistiques

1.1.1 Modèles d'interaction entre atomes

Le potentiel EAM (Embedded-Atom Method)

Les simulations atomistiques consistent à décrire numériquement le comportement d'un ensemble d'atomes qui interagissent entre eux. Fondamentalement, ces interactions rendent compte de phénomènes complexes qui sont décrits par la physique quantique. Cependant, les calculs numériques qui s'appuient sur cette approche se révèlent bien souvent hors de portée, en particulier lorsque les systèmes simulés contiennent plusieurs milliers d'atomes. Une alternative efficace consiste alors à utiliser des potentiels semi-empiriques qui peuvent être décrits sous forme analytique. Pour modéliser les interactions atomiques dans les métaux, nous utiliserons des potentiels construits selon la méthode dite EAM (Embedded-Atom Method (EAM)) [70]. Un potentiel EAM décrit l'énergie E_i d'un atome i comme la somme de deux termes :

$$E_i = \frac{1}{2} \sum_j \phi(r_{ij}) + F(\bar{\rho}_i), \quad (1.1)$$

avec

$$\bar{\rho}_i = \sum_j \rho(r_{ij}). \quad (1.2)$$

Le premier terme ϕ représente l'interaction de paire entre les atomes i et j séparés d'une distance r_{ij} qui rend essentiellement compte des interactions électrostatiques. Le second terme $F(\bar{\rho}_i)$ est un terme multi-corps qui correspond à l'énergie d'un atome i placé dans l'environnement électronique de ses voisins décrit par la densité électronique $\bar{\rho}_i$. Celle-ci est la somme des contributions de paire $\rho(r_{ij})$ des atomes j situés à une distance r_{ij} de l'atome i . Plusieurs expressions ont été établies dans la littérature afin de reproduire numériquement les caractéristiques physiques des matériaux réels (structures cristallines, énergie, élasticité, etc.). Dans notre cas, l'expression de ϕ et les valeurs numériques que nous avons employées ont été extraites d'un travail de *Zhou et al.* [71] :

$$\phi(r) = \frac{A \exp\left[-\alpha\left(\frac{r}{r_e} - 1\right)\right]}{1 + \left(\frac{r}{r_e} - \kappa\right)^{20}} - \frac{B \exp\left[-\beta\left(\frac{r}{r_e} - 1\right)\right]}{1 + \left(\frac{r}{r_e} - \lambda\right)^{20}}, \quad (1.3)$$

où r_e est la distance d'équilibre séparant l'atome de son plus proche voisin et A , B , α , β , κ et λ des paramètres ajustables. Dans cette formule, le premier terme est répulsif tandis que le second est attractif. La forme de la densité électronique s'exprime de la même façon que le second terme attractif avec les mêmes valeurs β et λ :

$$\rho(r) = \frac{\rho \exp\left[-\beta\left(\frac{r}{r_e} - 1\right)\right]}{1 + \left(\frac{r}{r_e} - \lambda\right)^{20}}, \quad (1.4)$$

où ρ est un paramètre ajustable.

Pour définir le terme multi-corps $F(\bar{\rho})$, trois fonctions sont utilisées permettant de balayer une large gamme de densité électronique $\bar{\rho}$ sur trois domaines caractéristiques : $\bar{\rho} < \bar{\rho}_n$, $\bar{\rho}_n \leq \bar{\rho} < \bar{\rho}_0$ et $\bar{\rho}_0 \leq \bar{\rho}$ avec $\bar{\rho}_n = 0,85 \bar{\rho}_e$ et $\bar{\rho}_0 = 1,15 \bar{\rho}_e$, où $\bar{\rho}_e$ est la densité électronique à l'équilibre. Ces fonctions s'expriment sous la forme :

$$\sum_{i=0}^3 F_{ni} \left(\frac{\bar{\rho}}{\bar{\rho}_n} - 1\right)^i \quad \text{pour } \bar{\rho} < \bar{\rho}_n,$$

$$\sum_{i=0}^3 F_i \left(\frac{\bar{\rho}}{\bar{\rho}_e} - 1\right)^i \quad \text{pour } \bar{\rho}_n \leq \bar{\rho} < \bar{\rho}_0, \quad (1.5)$$

$$F_e \left[1 - \ln\left(\frac{\bar{\rho}}{\bar{\rho}_e}\right)\right] \left(\frac{\bar{\rho}}{\bar{\rho}_e}\right)^\eta \quad \text{pour } \bar{\rho}_0 \leq \bar{\rho},$$

avec F_{ni} , F_i , F_e et η des paramètres ajustables. Les valeurs numériques de ces derniers

	Mo	Cu	W
r_e	2,728100	2,556162	2,740840
ρ	2,723710	1,554485	3,487340
$\bar{\rho}_e$	29,354065	22,150141	37,234847
α	8,393531	7,669911	8,900114
β	4,476550	4,090619	4,746728
A	0,708787	0,327584	0,882435
B	1,120373	0,468735	1,394592
κ	0,137640	0,431307	0,139209
λ	0,275280	0,86214	0,278417
F_{n0}	-3,692913	-2,176490	-4,946281
F_{n1}	-0,178812	-0,140035	-0,148818
F_{n2}	0,380450	0,285621	0,365057
F_{n3}	-3,133650	-1,750834	-4,432406
F_0	-3,71	-2,19	-4,96
F_1	0	0	0
F_2	0,875874	0,702991	0,661935
F_3	0,776222	0,683705	0,348147
η	0,790879	0,921150	-0,582714
F_e	-3,712093	-2,191675	-4,961306

TABLE 1.1 – Paramètres utilisés dans les potentiels EAM pour les trois matériaux Mo, Cu et W.

sont données dans le tableau (1.1) pour les trois matériaux considérés dans ce travail : le molybdène (Mo), le cuivre (Cu) et le tungstène (W). Il a été vérifié, en calculant les énergies de surface des plans denses γ_{hkl} et les constantes élastiques C_{11} , C_{12} et C_{44} dans le tableau (1.2), que les potentiels choisis décrivaient de façon satisfaisante le comportement élastique et les propriétés de surface des matériaux réels.

Interaction entre atomes différents

Pour simuler l'interaction s'exerçant entre deux atomes différents A et B, nous avons utilisé le modèle de l'alliage de Johnson (1989) [75] qui décrit le potentiel de paire ϕ_{AB} entre les éléments A et B comme une combinaison linéaire des potentiels des corps purs ϕ_{AA} et ϕ_{BB} donnés par la relation (1.3). Johnson s'appuie sur une procédure mathématique que nous ne détaillerons pas ici dans laquelle il montre que l'énergie E_i (voir équation (1.1)) des corps purs A et B reste invariante sous certaines transformations linéaires de $\phi(r)$ et $F(\bar{\rho})$, tandis que l'énergie de l'alliage AB peut changer. L'expression du potentiel de paire s'écrit sous la forme suivante :

$$\phi_{AB} = \frac{1}{2} \left(\frac{\rho_B(r)}{\rho_A(r)} \phi_{AA}(r) + \frac{\rho_A(r)}{\rho_B(r)} \phi_{BB}(r) \right), \quad (1.6)$$

Matériaux	Grandeurs	Références	Résultats EAM
Mo	γ_{110} (J/m ²)	2,25 [72]	2,14
	C_{11} (GPa)	450,02 [73]	455,65
	C_{12} (GPa)	172,92 [73]	166,79
	C_{44} (GPa)	125,03 [73]	113,5
Cu	γ_{111} (J/m ²)	1,36 [72]	1,45
	C_{11} (GPa)	167,7 [74]	180,22
	C_{12} (GPa)	121,9 [74]	117,13
	C_{44} (GPa)	73,7 [74]	70,61
W	γ_{110} (J/m ²)	2,50 [72]	2,57
	C_{11} (GPa)	532,55 [73]	521,29
	C_{12} (GPa)	204,95 [73]	204,29
	C_{44} (GPa)	163,13 [73]	160,70

TABLE 1.2 – Énergies de surface des plans denses γ_{hkl} et constantes élastiques C_{11} , C_{12} et C_{44} des matériaux Mo, Cu et W.

où ρ_A et ρ_B sont les fonctions décrivant les densités électroniques des atomes A et B respectivement.

Si nous considérons un matériau – composé d’atomes de type A – déposé sur un autre matériau – composé d’atomes de type B, alors l’énergie d’adhésion de l’interface Γ_{A-B} dépend de l’intensité du potentiel mixte donné par l’équation (1.6). Il est donc possible de réduire l’énergie d’adhésion d’un bimatériau A-B en multipliant l’équation (1.6) par un facteur ξ compris entre 0 et 1. Afin de rendre compte de cette corrélation, nous avons extrait les énergies d’adhésion Γ_{Mo-W} et Γ_{Cu-W} de systèmes modèles cohérents Mo-W (molybdène sur tungstène) et Cu-W (cuivre sur tungstène) en fonction du paramètre ξ . Les résultats sont présentés dans le tableau (1.3). Ils confirment qu’en diminuant l’intensité du potentiel mixte, nous diminuons l’énergie d’adhésion. Nous utiliserons cette propriété par la suite. Nous reviendrons dans la Section 2.1.2 sur la façon de construire les bimatériaux cohérents et d’extraire l’énergie d’adhésion.

ξ	Γ_{Mo-W}	Γ_{Cu-W}
1	4,73 J.m ⁻²	3,51 J.m ⁻²
0,5	2,48 J.m ⁻²	1,98 J.m ⁻²
0,2	1,13 J.m ⁻²	1,12 J.m ⁻²
0,1	0,68 J.m ⁻²	0,82 J.m ⁻²
0,01	0,29 J.m ⁻²	0,55 J.m ⁻²

TABLE 1.3 – Énergies d’adhésion (à $\pm 0,02$ J.m⁻²) des systèmes modèles cohérents Mo-W et Cu-W en fonction du paramètre ξ .

1.1.2 Minimisation d'énergie et dynamique moléculaire

Pour réaliser les simulations, nous avons utilisé le logiciel LAMMPS [76]. Le comportement physique des systèmes est obtenu de manière classique en minimisant l'énergie potentielle du système pour les situations statiques à l'équilibre, et en appliquant le Principe Fondamental de la Dynamique (PFD) pour décrire l'évolution en fonction du temps des systèmes hors équilibre. Ces procédures sont présentées ici.

Gradient simple et gradient conjugué

Pour rechercher la configuration relaxée d'un système à l'équilibre, nous pouvons dans un premier temps utiliser la méthode du gradient simple (steepest descent). Cette méthode consiste à déterminer la configuration d'énergie minimale la plus proche dans l'espace des configurations d'un système pris dans un état donné. Numériquement, l'énergie totale du système dans cet état est calculée à partir de la forme des potentiels d'interaction qui s'exercent entre les atomes. Une fois cette énergie connue, le code de calcul en déduit son gradient. Le système se réarrange alors de sorte qu'il emprunte dans l'espace des configurations la « direction » selon laquelle l'énergie diminue le plus rapidement. Mathématiquement, cette « direction » correspond à l'opposé du gradient calculé précédemment. La procédure est répétée un certain nombre de fois jusqu'à ce que l'énergie n'évolue plus. Le système se trouve alors dans une configuration d'équilibre stable (ou métastable). En pratique, il faut indiquer au programme de minimisation un « critère d'arrêt » sur la valeur de l'énergie ou de la force maximale s'exerçant entre les atomes en deçà de laquelle le système est considéré comme étant à l'équilibre.

L'une des limitations de la procédure par gradient simple est qu'elle requiert, dans certains cas, un trop grand nombre de pas pour converger numériquement. La méthode du gradient conjugué est alors préférée. Celle-ci s'inspire de celle du gradient simple si ce n'est qu'à chaque itération supplémentaire, la direction suivante empruntée par le système dans l'espace des configurations est définie comme la « direction conjuguée » de la précédente [77]. Les détails mathématiques ne sont pas repris ici. Là aussi, la minimisation est arrêtée lorsque le « critère d'arrêt » est satisfait.

La dynamique moléculaire

Lorsque nous nous intéressons à l'évolution dans le temps de systèmes généralement hors équilibre, il faut réaliser des simulations dites de dynamique moléculaire. Dans ce cas, la procédure consiste à calculer la force $\vec{F}_i = -\vec{\nabla} E_i$ qui s'exerce sur les i atomes du système, pris dans une configuration donnée, à partir de l'expression

de l'énergie donnée par l'équation (1.1). Les positions successives de ces derniers en fonction du temps sont ensuite déterminées à partir du PFD qui s'écrit :

$$\frac{d^2 \vec{r}_i(t)}{dt^2} = \frac{\vec{F}_i(t)}{m_i}, \quad (1.7)$$

où $\vec{r}_i(t)$ est le vecteur position de l'atome i à l'instant t et m_i sa masse.

Pour intégrer cette équation numériquement, il faut utiliser un pas de temps δt fini et petit devant tous les autres temps caractéristiques du système ; généralement $\delta t = 10^{-15}$ s $\ll 1/\nu_{Debye} \approx 10^{-13}$ s qui correspond à la période de vibration du réseau atomique. La méthode d'intégration utilisée dans le code LAMMPS est celle proposée par Gear en 1971 appelée algorithme prédictor-correcteur [78]. Celui-ci se déroule en trois étapes :

- La première étape consiste à déterminer le prédictor. Un développement en série de Taylor (au 5^{ième} ordre) est effectué sur les positions atomiques et leurs dérivées temporelles données à l'instant t de façon à déterminer ces mêmes quantités à l'instant $t + \delta t$.
- Lors de la seconde étape, la force agissant sur chaque atome est calculée via le gradient de son énergie. Le PFD donne alors une accélération différente de celle prédite au cours de la première étape. Cette différence constitue un « signal erreur ».
- La dernière étape consiste à utiliser ce « signal d'erreur » comme une correction sur les valeurs prédites de façon à obtenir les valeurs « correctes » de position et de vitesse des atomes à l'instant $t + \delta t$. Le processus est répété jusqu'à la durée souhaitée.

Dans ces simulations, les atomes acquièrent une certaine vitesse et donc de l'énergie cinétique. Ce phénomène provoque une modification de la température qu'il convient de contrôler lorsque nous désirons réaliser des simulations à température constante. Nous utilisons pour cela des thermostats numériques dont le principe est de réduire ou d'augmenter la vitesse des atomes. Dans LAMMPS par exemple, le thermostat dit de « Nosé-Hoover » permet d'ajouter une force de friction sur chacun d'eux [79, 80]. Cette méthode nécessite en revanche un ajustement judicieux de paramètres numériques *ad hoc*. Pour cette raison, et parce que les effets de la température ne seront pas étudiés par la suite, nous avons utilisé un thermostat plus simple dont le principe est de renormaliser l'énergie cinétique moyenne des atomes

[81]. Dans ce cas, les vitesses sont simplement multipliées par un facteur de type :

$$L = \sqrt{1 + \frac{\delta t}{\tau} \left(\frac{T}{T_0} - 1 \right)}, \quad (1.8)$$

où T est la température instantanée du système, T_0 la température à laquelle nous souhaitons maintenir le cristal, τ le temps mis par le système pour passer de T_0 à T , et δt le pas de temps de l'intégration numérique. Les quelques simulations de dynamique moléculaire que nous présenterons dans ce rapport seront effectuées à 1 Kelvin, une température que nous avons considérée comme étant suffisamment faible pour que ses effets soient négligeables.

1.2 Modèle des plaques minces de Föppl et von Kármán

1.2.1 Équations d'équilibre

Généralement, le comportement élastique d'un objet sollicité mécaniquement se manifeste par une modification de ses dimensions que nous pouvons décrire dans le cadre de l'élasticité linéaire pour les petites déformations. Celles-ci sont alors reliées aux dérivées premières des déplacements [82, 83]. Dans le cas d'objets de plus faible épaisseur cependant (poutre ou plaques minces), le comportement élastique doit également rendre compte d'une modification de la forme du solide, en plus de ses dimensions. Il est alors nécessaire de considérer une dépendance non linéaire entre les sollicitations mécaniques du matériau (contraintes, déformations) et la réponse élastique de ce dernier (changement de forme). C'est dans ce cadre que le phénomène de cloquage doit être décrit.

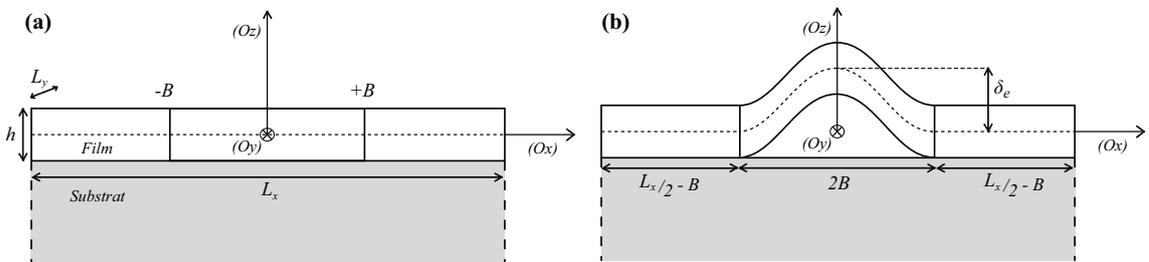


Figure 1.1 – Schéma du système film-substrat (a) en configuration plane et (b) en configuration flambée.

Pour modéliser le comportement élastique du film mince, nous utiliserons le formalisme introduit au début du XX^{ième} siècle par A. Föppl [20] puis T. von Kármán

(FvK) [21]. Celui-ci est décrit en détail dans les ouvrages de L. D. Landau et E. M. Lifschitz [83], B. Audoly et Y. Pomeau [35] ou encore H. L. Langhaar [84]. Des descriptions plus succinctes sont également proposées par L. B. Freund et S. Suresh [11], et J. W. Hutchinson et Z. Suo [26]. Nous n'en rappellerons ici que les principaux résultats appliqués au cas d'un film mince sollicité en compression uniquement suivant (Ox) tel qu'il est décrit sur la figure (1.1).

Initialement, le film d'épaisseur h est supposé décollé du substrat suivant (Ox) sur une longueur $2B$ constante. Le plan médian est défini à l'altitude $z = 0$ au milieu du film supposé infini selon (Oy). Le système étant invariant suivant cet axe, nous ne considérerons par la suite aucun déplacement dans cette direction et les grandeurs caractéristiques seront prises indépendantes de y . Dans ce cas, il est possible de montrer dans le formalisme de FvK que le tenseur des déformations au sein du film mince s'écrit [11] :

$$\varepsilon_{xx}^{rd}(x,z) = e_{xx} - z \frac{\partial^2 w(x)}{\partial x^2}, \quad (1.9)$$

avec

$$e_{xx} = \varepsilon_i + \frac{\partial u(x)}{\partial x} + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial w(x)}{\partial x} \right)^2. \quad (1.10)$$

Dans cette expression, ε_i rend compte de la déformation interne isotrope dans l'état initial plan, et u et w rendent compte respectivement des déplacements suivant (Ox) et (Oz) d'un point du film situé dans le plan médian. Il convient de remarquer, comme il est dit plus haut, que la dépendance entre la déformation donnée par l'équation (1.9) et le déplacement hors plan w est bien non linéaire. C'est d'ailleurs ce déplacement qui sera le paramètre pertinent pour décrire la déflexion du film mince suivant (Oz).

Dans l'hypothèse d'un film mince homogène et isotrope, l'énergie potentielle élastique du film U s'écrit classiquement :

$$U = \frac{\bar{E}_f L_y}{2} \int_{-\frac{h}{2}}^{\frac{h}{2}} \int_{-B}^B \left(\varepsilon_{xx}^{rd}(x,z) \right)^2 dx dz, \quad (1.11)$$

où $\bar{E}_f = E_f / (1 - \nu_f^2)$ est le module élastique en déformation plane avec E_f le module d'Young et ν_f le coefficient de Poisson du film mince. Nous pouvons intégrer

l'expression (1.11) suivant z et obtenir :

$$U = \int_{-B}^B W dx, \quad (1.12)$$

où W est la densité d'énergie linéique :

$$W = \frac{\bar{E}_f h L_y}{2} \left[e_{xx}^2 + \frac{h^2}{12} \left(\frac{\partial^2 w(x)}{\partial x^2} \right)^2 \right]. \quad (1.13)$$

Les équations devant être vérifiées par w et u pour que le système soit à l'équilibre sont déterminées à partir d'une méthode variationnelle qui consiste à annuler au premier ordre la différentielle de l'énergie potentielle du système [85, 86]. Cette procédure conduit aux deux équations d'Euler :

$$\frac{\partial W}{\partial w(x)} - \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{\partial W}{\partial \left(\frac{\partial w(x)}{\partial x} \right)} \right) + \frac{\partial^2}{\partial x^2} \left(\frac{\partial W}{\partial \left(\frac{\partial^2 w(x)}{\partial x^2} \right)} \right) = 0, \quad (1.14)$$

$$\frac{\partial W}{\partial u(x)} - \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{\partial W}{\partial \left(\frac{\partial u(x)}{\partial x} \right)} \right) + \frac{\partial^2}{\partial x^2} \left(\frac{\partial W}{\partial \left(\frac{\partial^2 u(x)}{\partial x^2} \right)} \right) = 0. \quad (1.15)$$

En remplaçant W par son expression donnée par l'équation (1.13) et en remarquant, à partir de la relation (1.10), que :

$$\frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{\partial e_{xx}^2}{\partial \left(\frac{\partial w(x)}{\partial x} \right)} \right) = 2e_{xx} \frac{\partial^2 w(x)}{\partial x^2} + 2 \frac{\partial w(x)}{\partial x} \frac{\partial e_{xx}}{\partial x}, \quad (1.16)$$

les équations (1.14) et (1.15) donnent finalement :

$$\bar{E}_f h L_y \left[-\frac{\partial e_{xx}}{\partial x} \frac{\partial w(x)}{\partial x} - e_{xx} \frac{\partial^2 w(x)}{\partial x^2} + \frac{h^2}{12} \frac{\partial^4 w(x)}{\partial x^4} \right] = 0, \quad (1.17)$$

$$\frac{\partial e_{xx}}{\partial x} = 0. \quad (1.18)$$

La seconde relation montre que la déformation uniaxiale dans le plan médian du film mince e_{xx} est constante. Celle-ci sera prise négative en compression ce qui nous permet de définir le paramètre positif :

$$\alpha^2 = \frac{-12e_{xx}}{h^2}. \quad (1.19)$$

Les équations d'équilibre se réécrivent alors plus simplement :

$$\frac{\partial^4 w(x)}{\partial x^4} + \alpha^2 \frac{\partial^2 w(x)}{\partial x^2} = 0, \quad (1.20)$$

$$\varepsilon_i + \frac{\partial u(x)}{\partial x} + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial w(x)}{\partial x} \right)^2 + \frac{\alpha^2 h^2}{12} = 0. \quad (1.21)$$

Ce sont les équations de FvK qui contrôlent l'équilibre mécanique d'un film mince sollicité uniquement suivant (Ox). Dans le paragraphe suivant, nous allons utiliser ces équations pour déterminer les solutions de w et u qui décrivent une ride droite encadrée aussi appelée colonne d'Euler.

1.2.2 La ride droite encadrée ou colonne d'Euler

La solution générale de l'équation (1.20) est donnée par $w(x) = c_1 \sin[\alpha x] + c_2 \cos[\alpha x] + c_3 x + c_4$ où les constantes c_i sont déterminées à partir des conditions aux limites du système. Dans le cas de la ride droite encadrée, ces conditions sont :

$$u_e(\pm B) = w_e(\pm B) = \left. \frac{\partial w_e(x)}{\partial x} \right|_{x=\pm B} = 0. \quad (1.22)$$

Nous savons de plus que la solution physique doit également satisfaire :

$$w_e(x) \geq 0, \quad (1.23)$$

$$w_e(0) = \delta_e, \quad (1.24)$$

$$\left. \frac{\partial w_e(x)}{\partial x} \right|_{x=0} = 0, \quad (1.25)$$

où δ_e représente la déflexion maximale de la ride droite. Nous montrons alors que le déplacement vertical $w_e(x)$ correspondant à la description d'une ride unique avec $\alpha \neq 0$ est obtenue à partir des conditions ci-dessus lorsque :

$$\alpha^2 = \left(\frac{\pi}{B} \right)^2, \quad (1.26)$$

qui conduit à la solution :

$$w_e(x) = \frac{\delta_e}{2} \left(1 + \cos \left[\frac{\pi x}{B} \right] \right). \quad (1.27)$$

À partir de la relation (1.26) avec $\alpha^2 = \frac{-12e_{xx}}{h^2}$, nous montrons que la déformation e_{xx} au sein de la ride droite est bien constante et vaut :

$$\varepsilon_c = -\frac{\pi^2}{12} \left(\frac{h}{B} \right)^2. \quad (1.28)$$

Cette valeur correspond à la déformation à partir de laquelle une solution physique existe. C'est la déformation critique de flambage d'Euler [26] qui peut d'ailleurs être retrouvée en déterminant la valeur de α à partir de laquelle $w_e(x) \leq 0$. Mathématiquement cette valeur correspond alors à la solution des équations $\frac{\partial^2 w_e(x)}{\partial x^2} \Big|_{x=\pm B} = 0$. L'expression de la déflexion maximale δ_e est obtenue à partir de l'équation (1.21) intégrée entre les bornes fixes $x = -B$ et $x = +B$:

$$\delta_e = \frac{4B}{\pi} \sqrt{\varepsilon_c - \varepsilon_i}. \quad (1.29)$$

L'expression analytique du déplacement plan $u_e(x)$ s'obtient alors à partir de l'équation (1.21) qu'il suffit cette fois d'intégrer simplement en considérant les expressions $w(x)$ et e_{xx} données par les équations (1.27) et (1.28) respectivement :

$$u_e(x) = \frac{\pi \delta_e^2}{32B} \sin \left[\frac{2\pi x}{B} \right]. \quad (1.30)$$

Quantitativement, ces expressions décrivent de façon satisfaisante le comportement d'une ride droite tant que les hypothèses de FvK restent valides : il faut en particulier que le rapport h/B soit très inférieur à 1 et que la flèche δ_e n'excède pas $B/3$ [26].

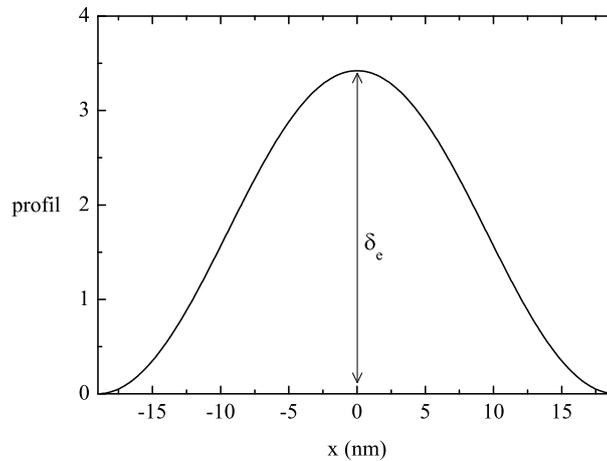


Figure 1.2 – Profil de la ride droite encastree ou colonne d'Euler donné par la fonctionnelle $w_e(x - u_e(x))$.

Le profil de la ride droite encadrée est finalement donné par la fonctionnelle $w_e(x - u_e(x))$ qui a été tracée sur la figure (1.2) en prenant $B = 19$ nm, $\varepsilon_c = -2$ % et $\varepsilon_i = -4$ %. Nous vérifions ainsi que le résultat analytique décrit bien une cloque rectiligne. En utilisant les solutions analytiques, l'expression de l'énergie élastique de la ride droite encadrée U_e donnée par l'équation (1.11) peut alors être calculée explicitement. Nous obtenons [11, 58] :

$$U_e = U_0 - hBL_y\bar{E}_f(\varepsilon_i - \varepsilon_c)^2, \quad (1.31)$$

où $U_0 = hBL_y\bar{E}_f\varepsilon_i^2$ est l'énergie du film mince non flambé et déformé de ε_i et dont les dimensions sont $h \times 2B \times L_y$. Ce résultat n'est bien sûr valide que lorsque le flambage est observé pour $\varepsilon_i \leq \varepsilon_c$. Il apparaît alors que l'énergie du film mince flambé est inférieure à celle du même film en configuration plane ce qui justifie que cette situation soit observée physiquement.

1.3 Délaminage d'une ride droite encadrée

1.3.1 Modèle de Griffith

En 1921, A.A. Griffith proposa un critère énergétique pour expliquer la rupture entre deux interfaces par propagation de fissure [24]. Dans le cas d'une ride droite encadrée, son raisonnement peut se résumer ainsi : pour un état donné du film flambé, si la réduction d'énergie associée à un avancement virtuel infinitésimal de la pointe de fissure est supérieure au travail nécessaire pour créer la surface correspondante, alors il y a extension de la zone délaminée. La première quantité de cette condition est définie par le taux de restitution d'énergie G_e qui s'écrit :

$$G_e = -\frac{1}{L_y} \frac{\partial (U_e + U_{ad})}{\partial(2B)}, \quad (1.32)$$

où U_e et U_{ad} sont respectivement les énergies potentielles de la ride droite et de la partie encore adhérente du film mince. La seconde quantité de la condition précédente est donnée par l'énergie d'adhésion de l'interface considérée Γ ¹. Ainsi, le critère de Griffith veut qu'à l'équilibre $G_e = \Gamma$, et que le délaminage survienne lorsque $G_e > \Gamma$.

Nous avons montré que l'énergie élastique de la ride droite encadrée s'écrivait $U_e = U_0 - hBL_y\bar{E}_f(\varepsilon_i - \varepsilon_c)^2$ avec $U_0 = hBL_y\bar{E}_f\varepsilon_i^2$ en accord avec l'équation (1.31). Pour déterminer son taux de restitution d'énergie, il nous faut également connaître

1. En mécanique de la rupture, Γ est plus généralement l'adhérence du système en traction pur qui peut éventuellement être plus élevée que la valeur thermodynamique du fait d'autres phénomènes dissipatifs.

l'expression de l'énergie U_{ad} dans la partie encore adhérente du film mince dont la longueur suivant (Ox) vaut $L_x - 2B$ (voir figure (1.1)). Celle-ci s'écrit classiquement en fonction du carré de la déformation uniaxiale ε_i :

$$U_{ad} = h(L_x/2 - B)L_y\bar{E}_f\varepsilon_i^2. \quad (1.33)$$

Le taux de restitution d'énergie de la ride droite encastree est alors calculé à partir de l'expression (1.32) qui donne après simplification :

$$G_e = G_0 \left(1 - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_i}\right) \left(1 + 3\frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_i}\right), \quad (1.34)$$

avec $G_0 = h\bar{E}_f\varepsilon_i^2/2$. Cette expression correspond à la formule classique du taux de restitution d'énergie d'une ride droite élastique telle qu'elle est généralement définie dans la littérature [11, 26]. Pour illustrer la façon dont se déroule le délaminage d'une ride droite dans le cas général, nous avons tracé sur la figure (1.3) l'évolution caractéristique du rapport G_e/Γ en fonction de la demi-longueur délaminée B pour différentes valeurs de déformations ε_i en compression croissante.

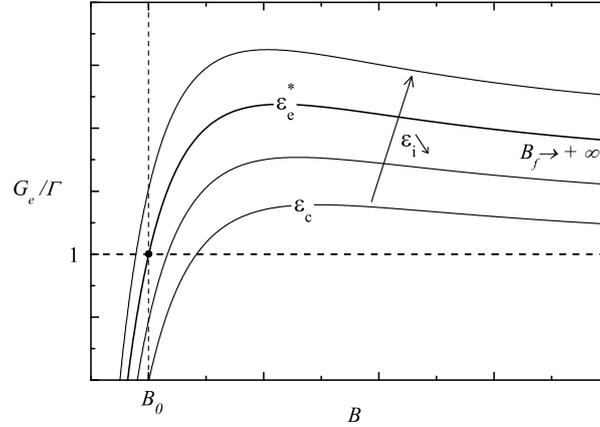


Figure 1.3 – Évolution caractéristique du rapport G_e/Γ en fonction de B .

Lorsque $\varepsilon_i = \varepsilon_c$, la partie décollée du film passe de l'état plan à l'état flambé. La figure (1.3) montre alors qu'il existe un point de la courbe $G_e(\varepsilon_c)/\Gamma$ où le critère de Griffith est atteint pour $G_e(\varepsilon_c)/\Gamma = 1$ mais qui ne correspond pas à la longueur délaminée initiale B_0 . Le taux de restitution G_e s'accroît donc ensuite à mesure que la déformation ε_i diminue, et cela sans que le délaminage ne survienne. Celui-ci est observé lorsque $G_e/\Gamma = 1$ quand la déformation vaut $\varepsilon_i = \varepsilon_c^*$ en $B = B_0$. La zone délaminée B s'accroît alors à déformation constante ε_c^* comme le décrit la courbe

$G_e(\varepsilon_e^*)/\Gamma$ qui augmente tout d'abord avant d'atteindre son maximum, puis décroît en tendant finalement vers la valeur G_0/Γ . Nous nous attendons à ce que le processus de délaminage s'arrête pour une longueur délaminée finale B_f lorsque le rapport $G_e(\varepsilon_e^*)/\Gamma$ est de nouveau égal à 1. Or, dans notre exemple, le rapport asymptotique G_0/Γ est supérieur à 1 ce qui conduit à la situation instable où la zone délaminée s'étend infiniment ($B_f \rightarrow +\infty$). Selon J. W. Hutchinson et Z. Suo, cette exemple est caractéristique de ce qui se produit dans la majorité des cas, le point d'inflexion de la courbe $G_e(\varepsilon_e^*)/\Gamma$ étant très aplati [26]. Cette description est en désaccord avec les observations expérimentales qui rendent compte d'une propagation jusqu'à une configuration stable des bords de la ride. Pour l'expliquer, il faut alors considérer une énergie d'adhésion effective qui dépend du mode de sollicitation mécanique de la pointe de fissure. Cet aspect est caractérisé par ce que nous appelons la mixité modale.

1.3.2 Influence de la mixité modale

Dans le cas où le délaminage est piloté par le flambage d'une ride droite, la pointe de fissure où se localise la décohésion interfaciale subit une sollicitation mixte en traction (mode I) et en cisaillement (mode II) comme il est indiqué sur la figure (1.4). Il existe également un mode III qui caractérise une ouverture en cisaillement transverse qui n'est généralement pas considéré lors de l'étude du cloquage.

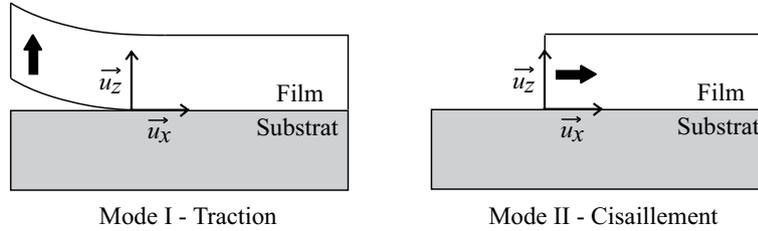


Figure 1.4 – Illustration schématique des modes I en traction et II en cisaillement d'une pointe de fissure.

La mixité modale est alors caractérisée par un angle ψ qui rend compte de la proportion de mode I par rapport au mode II. Dans le repère de la figure (1.4), il est possible par exemple de définir cette quantité à partir des composantes de contrainte en traction $\sigma_{zz}(x,z)$ et en cisaillement $\sigma_{xz}(x,z)$ ressenties en pointe de fissure [26] :

$$\psi = \lim_{x \rightarrow 0^+} \left(\arctan \left[\frac{\sigma_{xz}(x,0)}{\sigma_{zz}(x,0)} \right] \right). \quad (1.35)$$

Nous avons ainsi $\psi = 0^\circ$ en mode I pur et $\psi = \pm 90^\circ$ en mode II pur. Or, depuis une vingtaine d'années, il a été montré dans de très nombreux systèmes [25, 56] que

l'énergie d'adhésion apparente dépend de cette mixité modale et est bien plus élevée que sa valeur thermodynamique lorsque la proportion de mode II augmente, et donc lorsque ψ augmente. Cette dépendance est illustrée sur la figure (1.5) qui présente la courbe phénoménologique modèle déterminée par K. M. Liechti et Y. S. Chai dans la cas d'un bimatériau verre/résine époxyde [25].

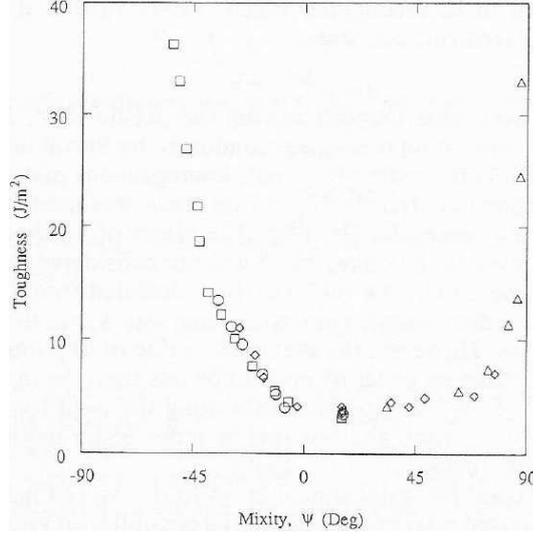


Figure 1.5 – Valeurs expérimentales de l'énergie d'adhésion Γ d'un système verre/résine époxyde en fonction du mode de mixité ψ [25].

Le fait que Γ augmente avec ψ s'expliquerait alors par la survenue de mécanismes dissipatifs favorisés lors de sollicitations en mode II. Ces mécanismes sont vraisemblablement différents d'un système à l'autre et n'ont sans doute pas les mêmes origines physiques. Pour ces raisons, il n'existe à ce jour pas de loi universelle reliant les processus dissipatifs fondamentaux mis en œuvre au cours de la décohésion interfaciale et la dépendance de l'énergie d'adhésion telle qu'elle est observée sur la figure (1.5). Dans les modèles, pour contourner cette difficulté, plusieurs auteurs ont proposé de définir une énergie d'adhésion effective $\Gamma(\psi) = f(\psi)\Gamma$ de sorte que la fonction f rende compte empiriquement de cette dépendance. Celle-ci est souvent définie par l'expression $f(\psi) = 1 + \tan^2[\zeta \psi]$, avec ζ un paramètre à ajuster [26, 27].

Pour décrire le délaminage d'une ride droite dans le formalisme de Griffith, il faut alors comparer le taux de restitution d'énergie élastique G_e à l'énergie d'adhésion effective $\Gamma(\psi)$ qui tient compte des modes de sollicitation mécanique. Comme il a été fait précédemment, nous avons tracé sur la figure (1.6), l'évolution du rapport caractéristique de $G_e/\Gamma(\psi)$ en fonction de B . Nous voyons ici que la courbe tend toujours vers zéro ce qui lève le paradoxe que nous avons identifié lorsque l'influence de la mixité modale n'était pas prise en compte et qu'il était décrit un processus de délaminage se propageant sur une longueur infinie. Dans ce cas, la zone délaminée

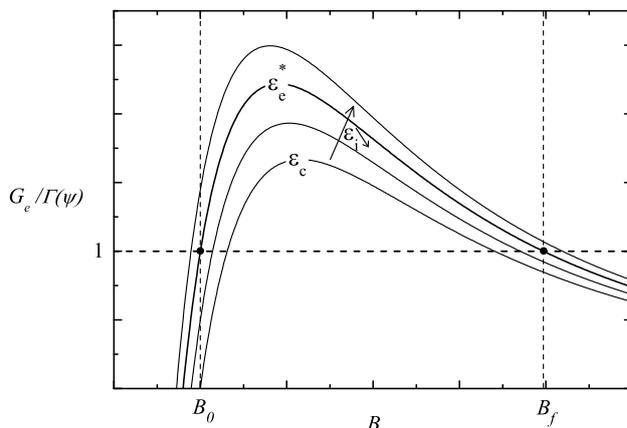


Figure 1.6 – Évolution caractéristique du rapport $G_e/\Gamma(\psi)$ en fonction de B .

se propage de la demi-longueur délaminée initiale B_0 , où le critère de Griffith est atteint pour une déformation ε_e^* , jusqu'à la demi-longueur finale B_f qui est cette fois bien définie. Ce modèle permet d'expliquer les configurations d'équilibre des structures cloquées observées expérimentalement.

Dans ce premier chapitre, nous avons décrit les outils numériques des simulations atomistiques qui nous permettront par la suite d'étudier le phénomène de cloquage aux échelles microscopiques. Nous avons également rappelé les différents modèles continus qui permettent à ce jour de décrire la forme des structures de cloquage et le processus de délaminage à l'échelle mésoscopique. En revanche, comme nous l'avons vu, ces modèles ne rendent pas compte des processus physiques impliqués lors du délaminage ni d'éventuels événements plastiques qui pourraient survenir au sein des matériaux réels. L'objectif des deux prochains chapitres est de tenter de répondre à cette problématique en intégrant les résultats des simulations atomistiques aux modèles analytiques.

Chapitre 2

Couplage flambage, délaminage et plasticité

Dans ce deuxième chapitre, le cloquage et le délaminage d'un film mince déposé sur un substrat rigide sont étudiés à l'aide de simulations atomistiques dans lesquelles le film est initialement pré-délaminé sur une partie du substrat. Pour cela, deux systèmes caractéristiques ont été considérés : l'un présentant une interface cohérente fortement adhérente entre un film mince de molybdène et un substrat de tungstène (Mo-W), et l'autre avec une interface non-cohérente rendue faiblement adhérente contenant des dislocations d'épitaxie dans un système cuivre-tungstène (Cu-W).

2.1 Protocole numérique

2.1.1 Construction des bicristaux

Les bicristaux Mo-W ou Cu-W qui sont étudiés dans cette partie sont présentés sur la figure (2.1) dans le repère orthonormé défini par les vecteurs unitaires \vec{u}_x , \vec{u}_y et \vec{u}_z où l'interface est dans le plan (O,x,y) . Ceux-ci sont construits en accolant l'un à l'autre les deux monocristaux considérés suivant leur plan dense : $\{110\}$ pour Mo et W de structure cubique centrée (cc), et $\{111\}$ pour Cu de structure cubique à faces centrées (cfc). La correspondance entre les directions cristallographiques des bicristaux et les axes définis sur la figure (2.1) est donnée dans le tableau (2.1). Celui-ci présente également les caractéristiques des mailles utilisées pour générer les interfaces et les spécificités de chacun des bicristaux. Dans le système Cu-W, nous avons considéré une interface de type « Nishiyama-Wasserman » pour laquelle les directions $\langle 110 \rangle_{cfc}$ sont parallèles aux directions $\langle 001 \rangle_{cc}$ en accord avec des modèles

et des observations expérimentales antérieurs [87]. Dans le système Mo-W, l'interface est cohérente.

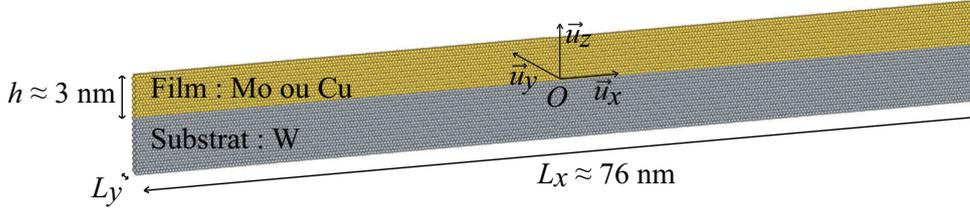


Figure 2.1 – Bicristal modèle utilisé dans les simulations. Le film mince (Mo ou Cu) est en jaune et le substrat (W) en gris.

Pour chaque bicristal, le film a été construit en empilant 15 monocouches atomiques de Mo ou de Cu suivant l'axe (Oz) disposées sur 20 monocouches de W espacées d'environ 0,225 nm. A l'interface, un espace interatomique de 0,2 nm est initialement introduit entre le film et le substrat. Une seule maille est considérée dans la direction (Oy)¹. Les dimensions globales du système L_x et L_y sont finalement données par celles du substrat W non contraint qui est pris comme référence (voir tableau (2.1)). Les déformations résiduelles ε_{xx}^r suivant (Ox) et ε_{yy}^r suivant (Oy) au sein des films minces de Mo et de Cu sont alors définies par :

$$\varepsilon^r = \frac{L_s - L_f}{L_f}, \quad (2.1)$$

où L_s et L_f sont respectivement les longueurs du substrat et du film non déformés, suivant (Ox) et (Oy) (voir tableau (2.1)). Des conditions aux limites périodiques sont considérées suivant (Ox) et (Oy) alors que les surfaces sont libres suivant (Oz).

Chacun des systèmes est relaxé en procédant à une minimisation d'énergie par gradient conjugué (voir Section 1.1.2), réalisée en maintenant fixes les dimensions dans le plan de l'interface et en autorisant le mouvement des atomes dans toutes les directions. Les potentiels employés sont les fonctions EAM décrites dans la Section 1.1.1. Dans le système Cu-W, le potentiel mixte donné par l'équation (1.6) a été multiplié par le facteur 0,1 afin d'abaisser significativement l'adhésion de l'interface. La procédure de minimisation est stoppée lorsque les forces qui s'exercent sur chacun des atomes sont inférieures à 10^{-3} eV.nm⁻¹.

Nous retiendrons donc qu'une fois relaxés, les systèmes Mo-W et Cu-W présentent chacun un film épais d'environ $h \approx 3$ nm et une longueur totale suivant (Ox)

1. Des simulations réalisées avec 5 mailles dans la direction (Oy) ont montré que les simulations réalisées avec une seule maille, comme celles que nous présentons ici, ne génèrent pas d'artefact.

Système	Mo-W		Cu-W	
Interface	$(110)_{cc} // (110)_{cc}$		$(111)_{cfc} // (110)_{cc}$	
Type	Film Mo	Substrat W	Film Cu	Substrat W
(Ox)	$[1\bar{1}1]_{cc}$	$[1\bar{1}1]_{cc}$	$[\bar{1}\bar{1}0]_{cfc}$	$[001]_{cc}$
(Oy)	$[1\bar{1}\bar{2}]_{cc}$	$[1\bar{1}\bar{2}]_{cc}$	$[11\bar{2}]_{cfc}$	$[\bar{1}10]_{cc}$
(Oz)	$[110]_{cc}$	$[110]_{cc}$	$[111]_{cfc}$	$[110]_{cc}$
a_0	0,3147 nm	0,3165 nm	0,3615 nm	0,3165 nm
a_x (nm)	$a_0\sqrt{3}/2 = 0,273$	$a_0\sqrt{3}/2 = 0,274$	$a_0/\sqrt{2} = 0,256$	$a_0 = 0,317$
a_y (nm)	$a_0\sqrt{6} = 0,771$	$a_0\sqrt{6} = 0,775$	$a_0\sqrt{3/2} = 0,443$	$a_0\sqrt{2} = 0,447$
Nb. (Ox)	280	280	300	240
Nb. (Oy)	1	1	1	1
L_x	$280 \times a_x^W = 76,8$ nm		$240 \times a_x^W = 76,0$ nm	
L_y	$1 \times a_y^W = 0,775$ nm		$1 \times a_y^W = 0,447$ nm	
ε_{xx}^r	+ 0,57 %		- 0,94 %	
ε_{yy}^r	+ 0,57 %		+ 1,11 %	
h	3,1 nm		2,9 nm	
B_0	19,2 nm		19,0 nm	
Γ_{f-W}	$\Gamma_{Mo-W} = 4,73$ J.m ⁻²		$\Gamma_{Cu-W} = 0,82$ J.m ⁻²	
γ_{f-W}^{gl}	$\gamma_{Mo-W}^{gl} = 1,4$ J.m ⁻²		$\gamma_{Cu-W}^{gl} = 0,07$ J.m ⁻²	

TABLE 2.1 – Caractéristiques géométriques et physiques des systèmes Mo-W et Cu-W. Le paramètre de maille du matériau dans sa structure cubique élémentaire est a_0 . Les nombres (Nb.) de mailles utilisées pour générer l'interface suivant (Ox) et (Oy) ont pour dimensions a_x et a_y respectivement. Les dimensions des bicristaux suivant ces deux axes sont L_x et L_y . Les déformations résiduelles du film suivant ces axes sont ε_{xx}^r et ε_{yy}^r calculées par rapport aux dimensions de W non déformé. L'épaisseur du film est donnée par h . La demi-longueur pré-délaminée dans la configuration initiale est B_0 . L'énergie d'adhésion de l'interface en situation cohérente s'écrit Γ_{f-W} et la « résistance au glissement rigide » se note γ_{f-W}^{gl} .

qui vaut environ $L_x \approx 76$ nm comme il est résumé dans le tableau (2.1).

2.1.2 Caractéristiques des interfaces

Structures cristallographiques

Après relaxation, si l'interface Mo-W est comme attendu cohérente, celle de Cu-W présente en revanche un réseau de dislocations dites d'épitaxie [6, 88] dont les lignes sont parallèles à l'axe (Oy) . Une façon de caractériser ce réseau de dislocations est de déterminer l'évolution, en fonction de x , du vecteur de « désaccord » \vec{s} (ou « disregistry » [89]) dont les composantes s_x et s_y sont présentées sur la figure (2.2). Celui-ci rend compte du déplacement relatif des atomes de Cu de l'interface par rapport à ces mêmes atomes dans une configuration virtuelle parfaitement cohérente,

c'est-à-dire dépourvue de dislocations. Le vecteur \vec{s} rend alors compte du vecteur de Burgers à la position de la dislocation. Comme le montre la figure (2.2), s_x décrit une ligne droite continue qui peut être interprétée comme le témoignage d'un recouvrement total des composantes coin du vecteur de Burgers. La composante s_y présente quant à elle une ondulation horizontale dont l'amplitude est significativement plus petite que les distances interatomiques. Les composantes vis se recouvrent donc presque totalement laissant néanmoins un désaccord suffisamment mesurable pour que la structure cristallographique de l'interface Cu-W puisse être décrite à travers cette analyse. Nous présentons ainsi une interface constituée d'un réseau de paires de dislocations ayant comme composante vis du vecteur de Burgers $b_y = \pm 0,005$ nm suivant (Oy) (le double de l'amplitude de s_y). En considérant la demi-longueur d'onde de l'ondulation, il est possible de remonter à la distance séparant deux dislocations d'épitaxie consécutives qui vaut alors 0,63 nm.

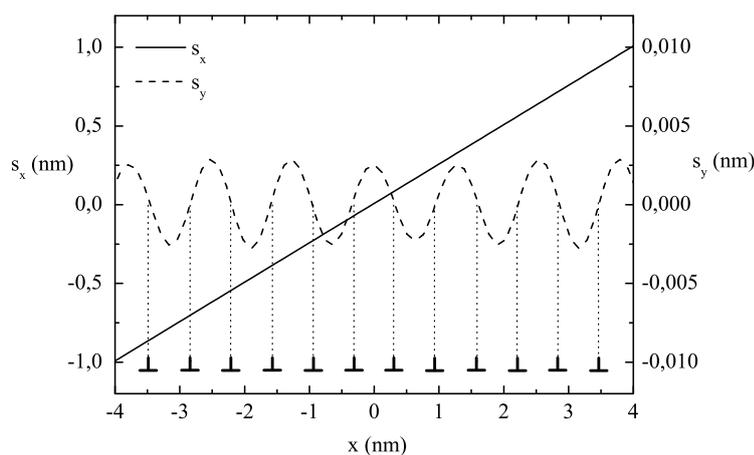


Figure 2.2 – Composantes coin (s_x) et vis (s_y) du vecteur de « désaccord » en fonction de la position x des atomes Cu de l'interface Cu-W, l'origine du repère se trouvant au milieu du système.

Aspects énergétiques

Les énergies d'adhésion de chacun des systèmes Mo-W et Cu-W, notées Γ_{Mo-W} et Γ_{Cu-W} respectivement, ont été calculées en considérant pour chaque cas l'interface cohérente. Nous avons pour cela construit un bicristal modèle pour le cas Cu-W, identique dans l'épaisseur au système présenté jusqu'ici, mais composé uniquement d'une seule maille de chaque monocristal dans le plan de l'interface qui est alors fixée aux dimensions de la maille de W (voir tableau (2.1)). Par définition, l'énergie d'adhésion correspond à la quantité d'énergie par unité de surface qu'il faut fournir pour rompre une interface et créer une surface libre de chacun des monocristaux.

Elle se calcule à partir de la relation de Dupré [72, 90] :

$$\Gamma_{f-W} = \gamma_f + \gamma_W - \gamma_{f-W}, \quad (2.2)$$

où $f = Mo$ ou Cu , avec γ_f leurs énergies de surface déterminées à partir du potentiel EAM dans le tableau (1.2) et γ_{f-W} les énergies d'interface des systèmes Mo-W ou Cu-W. Cette dernière rend compte de l'excès d'énergie des monocouches atomiques de l'interface par rapport à celles se trouvant au milieu des cristaux massifs. Numériquement, les valeurs obtenues sont $\gamma_{Mo-W} = 0,00 \pm 0,02 \text{ J.m}^{-2}$ et $\gamma_{Cu-W} = 3,20 \pm 0,02 \text{ J.m}^{-2}$ qui conduisent aux énergies d'adhésion $\Gamma_{Mo-W} = 4,73 \text{ J.m}^{-2}$ et $\Gamma_{Cu-W} = 0,82 \text{ J.m}^{-2}$ présentées dans le tableau (2.1). La valeur nulle de γ_{Mo-W} indique que les interfaces Mo-W, Mo-Mo et W-W sont énergétiquement aussi favorables les unes que les autres.

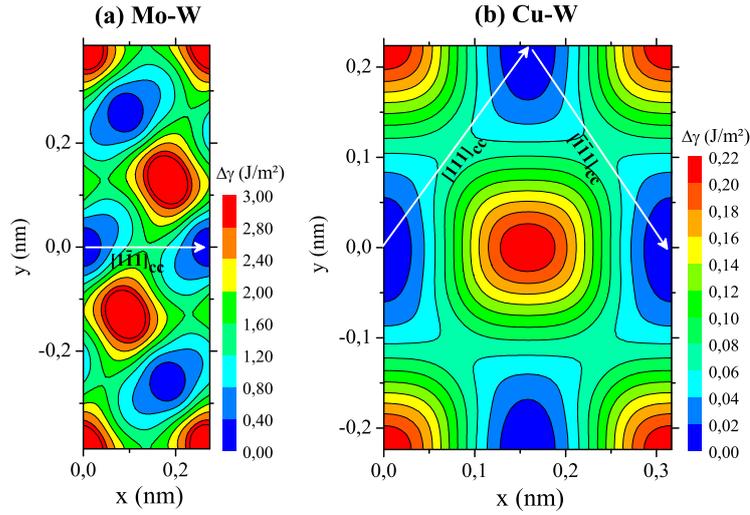


Figure 2.3 – Courbes $\Delta\gamma$ -surface des systèmes (a) Mo-W et (b) Cu-W dans le repère et les directions cristallographiques précisés dans le tableau (2.1). Les flèches blanches sont dirigées dans des directions de type $\langle 111 \rangle_{cc}$.

Nous avons également calculé les gamma-surfaces ($\Delta\gamma$ -surfaces) des bicristaux cohérents qui sont présentées sur la figure (2.3). Pour ce faire, la variation de l'énergie des systèmes a été extraite au cours du déplacement du film (Mo ou Cu) sur le substrat (W) suivant (Ox) et (Oy), les relaxations atomiques n'étant autorisées que suivant (Oz). Une $\Delta\gamma$ -surface permet de caractériser, en terme de barrière d'énergie, la « résistance au glissement rigide » d'une interface en fonction de ses directions

crystallographiques. Elle donne ainsi une indication sur la facilité qu’a le film de glisser sur son substrat suivant les directions considérées.

Dans le système Mo-W où $\Gamma_{Mo-W} = 4,73 \text{ J.m}^{-2}$, la figure (2.3.a) montre que pour glisser suivant (Ox) correspondant à la direction cristallographique $[1\bar{1}1]_{cc}$, les atomes doivent se déplacer le long d’un chemin d’énergie minimum (CEM) de type $\langle 111 \rangle_{cc}$ qui présente une barrière d’énergie $\gamma_{Mo-W}^{gl} = 1,4 \text{ J.m}^{-2}$. Dans le système Cu-W où $\Gamma_{Cu-W} = 0,82 \text{ J.m}^{-2}$, la figure (2.3.b) montre que pour glisser suivant (Ox) correspondant à la direction cristallographique $[001]_{cc}$, les atomes doivent se déplacer le long de CEM de type $\langle 111 \rangle_{cc}$ qui présentent une barrière d’énergie $\gamma_{Cu-W}^{gl} = 0,07 \text{ J.m}^{-2}$. Ces valeurs sont également reportées dans le tableau (2.1). L’interface Mo-W présente donc une « résistance au glissement rigide » qui est bien plus élevée que celle de l’interface Cu-W. Il existe donc une corrélation entre la valeur de l’énergie d’adhésion et la valeur de la barrière d’énergie du CEM ou « résistance au glissement rigide ».

En résumé, nous pouvons retenir que l’interface Mo-W est cohérente et se caractérise par une forte énergie d’adhésion corrélée à une « résistance au glissement rigide » élevée. L’interface Cu-W qui présente initialement des dislocations d’épitaixie se caractérise quant à elle par une énergie d’adhésion bien plus faible corrélée à une « résistance au glissement rigide » également plus faible que dans le premier système.

2.1.3 Déformation et cloquage

Une fois l’interface relaxée, une ride droite a été créée en provoquant le flambage du film mince. Pour cela, une zone initialement délaminée a été introduite en coupant numériquement les interactions entre les atomes du film (Mo ou Cu) et ceux du substrat W situés en $x \in [-L_x/4, L_x/4]$. Ceux-ci se trouvent respectivement dans les régions 1 (rouge) et 2 (noir) sur la figure (2.4). La longueur initiale correspondante $2B_0$ de cette zone délaminée est donc égale à $L_x/2 \approx 38 \text{ nm}$ le long de (Ox) (voir B_0 dans le tableau (2.1)). Les atomes du film de la région 3 (jaune) interagissent quant à eux toujours avec ceux de la région 1 (rouge), et aussi avec les atomes W des régions 2 (noir) et 4 (gris). Il faut noter que le système a été construit de façon symétrique par rapport au plan (O,y,z) de sorte que l’environnement atomique des fronts de la zone délaminée placés en $x = -B_0$ et $x = +B_0$ soient identiques.

Pour créer la ride droite, la déformation du bicristal suivant l’axe (Ox) a progressivement été augmentée par incréments $\delta\varepsilon_{xx} = -0,025 \%$ (voir figure (2.4.b)). Après chacun de ces incréments de déformation, une minimisation d’énergie par gradient conjugué est réalisée. Cette opération est stoppée lorsque la force qui s’exerce sur

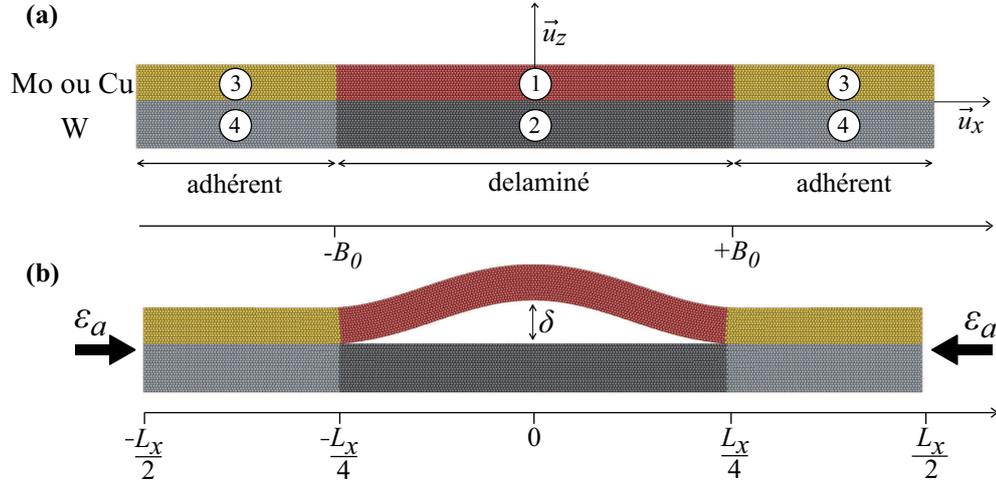


Figure 2.4 – Vues de profil du bicristal simulé (a) avant cloquage et (b) après cloquage.

chaque atome est inférieure à 10^{-3} eV.nm $^{-1}$. À chaque pas i , la déformation appliquée ε_a vaut donc $i\delta\varepsilon_{xx}$. Dans les simulations, la déformation uniaxiale du film mince ε_i est finalement donnée par :

$$\varepsilon_i = \varepsilon_{xx}^r + \varepsilon_a (1 + \varepsilon_{xx}^r) \approx \varepsilon_{xx}^r + \varepsilon_a. \quad (2.3)$$

Dans le cas du système Mo-W, les simulations ont été réalisées en comprimant le bicristal jusqu'à $\varepsilon_i = -5,36$ %, déformation à partir de laquelle le film s'est rompu. Cet aspect ne sera pas traité dans ce manuscrit. Pour le système Cu-W, les simulations ont été conduites jusqu'à $\varepsilon_i = -6$ %. Pour éviter le flambage de l'ensemble du système, les atomes de W situés sur la surface libre inférieure du substrat n'ont pas été autorisés à se déplacer suivant (Oz). Nous considérons ainsi un substrat semi-infini dans la direction verticale.

2.2 Observations

2.2.1 Dislocations en pied de ride droite : système Mo-W

Dans cette partie, nous nous intéressons au système Mo-W. Sur la figure (2.5.a), l'évolution de la déflexion maximale de la ride droite ou flèche δ (voir figure (2.4.b)) a été tracée en fonction de la déformation ε_i du film suivant (Ox). La déformation critique à partir de laquelle le flambage est observé est donnée par $\varepsilon_c = -2,23$ %. La courbe témoigne du fait que plus la compression est forte et plus la ride s'élève. En outre, deux « sauts » S_1 et S_2 survenant à $\varepsilon_i = -4,28$ % puis $-4,98$ % sont observés. Pour expliquer ces « sauts », il faut étudier le comportement des atomes du film

mince situés au niveau des fronts de décohérence de la région délaminée, aussi appelés pointes de fissure par analogie avec la physique de la rupture. Sur la figure (2.6), trois clichés du front gauche sont présentés pour différentes valeurs de déformation ε_i avant et après chaque « saut » S_1 et S_2 . Seul ce côté sera ensuite étudié, les configurations atomiques étant identiques du côté droit. Nous remarquons alors que chacun de ces deux événements est corrélé au glissement soudain de plans atomiques verticaux du film de Mo qui passent de la partie adhérente à la partie flambée du système.

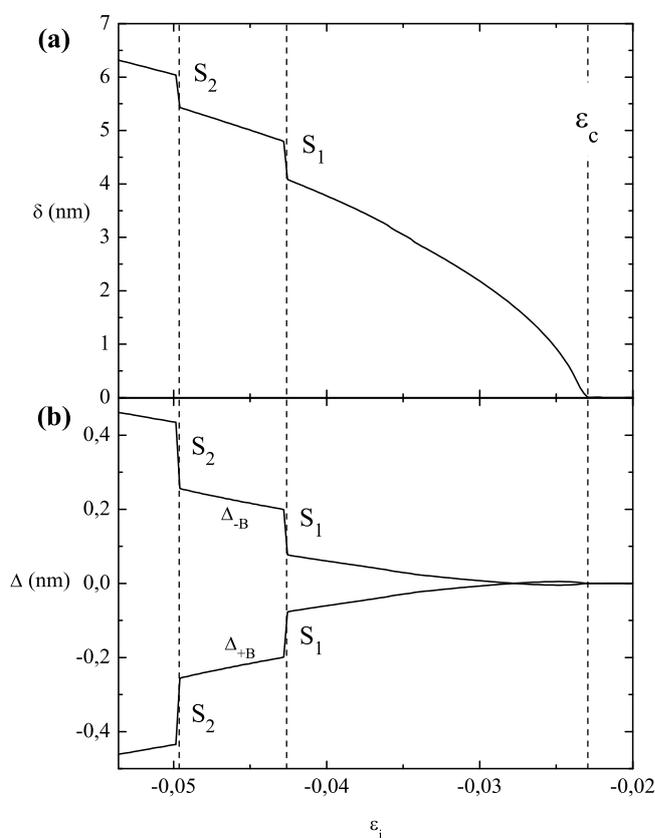


Figure 2.5 – Évolution (a) de la flèche δ et (b) des glissements Δ_{-B} et Δ_{+B} extraits au cours des simulations Mo-W en fonction de la déformation du film mince ε_i .

Pour caractériser ce mécanisme de glissement, les déplacements algébriques des atomes du film Δ_{-B} et Δ_{+B} mesurés dans le plan médian suivant (Ox) et situés à la base de la ride en $x = -B$ et $x = +B$ ont été mesurés au cours du cloquage par rapport à la position fixe des pointes de fissure respectives (voir figure (2.6)). L'évolution de ces grandeurs est reportée sur la figure (2.5.b). Nous voyons alors qu'aucun déplacement n'est observé avant cloquage. Ensuite, à mesure que la déformation en compression s'accroît, les déplacements augmentent en valeur absolue

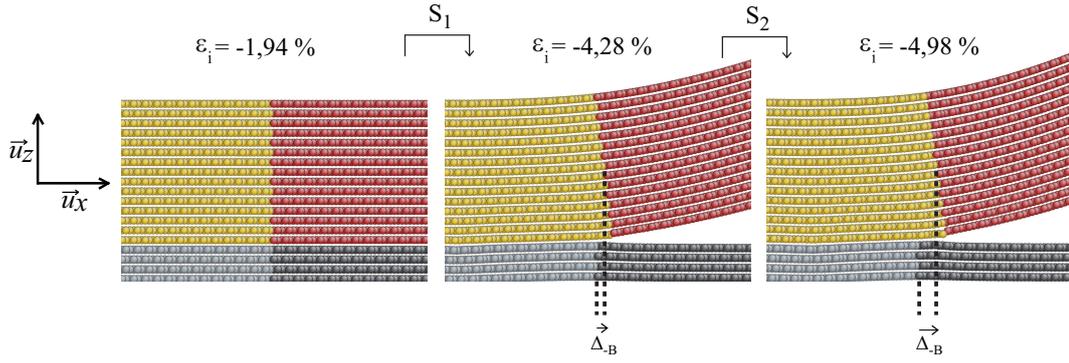


Figure 2.6 – Vues de profil du front de décohésion situé à gauche du système Mo-W avant et après les « sauts » S_1 et S_2 où le glissement Δ_{-B} est mesuré dans le plan médian du film mince.

de façon symétrique ($\Delta_{-B} = -\Delta_{+B}$) et se révèlent être toujours dirigés de la partie adhérente vers la zone cloquée ($\Delta_{-B} > 0$ et $\Delta_{+B} < 0$). Les courbes montrent, comme c'est le cas lors de la mesure de la déflexion maximale, deux « sauts » qui surviennent aux mêmes déformations $\varepsilon_i = -4,28\%$ et $-4,98\%$. Il existe donc une corrélation entre l'évolution de la déflexion maximale et le mécanisme de glissement.

Sur la figure (2.7), nous avons reporté les vues de profil de la partie adhérente gauche du système Mo-W où apparaissent seulement les atomes de Mo ou de W dont l'environnement n'est pas de structure cubique centrée [91]. Cette visualisation révèle les deux surfaces libres de Mo et de W ainsi que la présence de dislocations dans l'interface Mo-W qui sont introduites après chacun des « sauts » S_1 et S_2 . Nous montrons ainsi que le mécanisme de glissement caractérisé précédemment est associé à l'introduction de dislocations dans l'interface film-substrat. Pour caractériser ces dislocations, nous avons réalisé au cours du cloquage, une analyse de « désaccord » (voir Section 2.1.1) afin de déterminer leur vecteur de Burgers ainsi que leur position par rapport à la pointe de fissure gauche du système. L'évolution du vecteur de « désaccord » \vec{s} en fonction de x a été reportée sur la figure (2.7) en correspondance des vues de profil.

Au cours du cloquage et avant l'événement S_1 , la figure (2.7.a) montre que l'interface est toujours cohérente : les atomes de cette interface sont dans le même environnement cubique centré que les atomes des matériaux massifs (pas de coloration) et le vecteur de « désaccord » est nul. Lorsque la déformation en compression atteint $\varepsilon_i = -4,28\%$, la figure (2.7.b) montre qu'une dislocation est nucléée, ce qui correspond à l'événement S_1 . L'analyse de « désaccord » nous indique que cette dislocation 1 est une dislocation coin ($s_y = 0$) de vecteur de Burgers $\vec{b} = \frac{1}{2} [1\bar{1}1]$ ($b = a_x^{Mo} = a_x^W = 0,27$ nm). À mesure que la compression augmente, la dislocation 1 occupe ensuite des positions d'équilibre par rapport à la pointe de fissure variant de $3,4 \pm 0,25$ nm à $4,4 \pm 0,25$ nm jusqu'à l'événement S_2 à $\varepsilon_i = -4,98\%$. À cet instant, la figure (2.7.c)

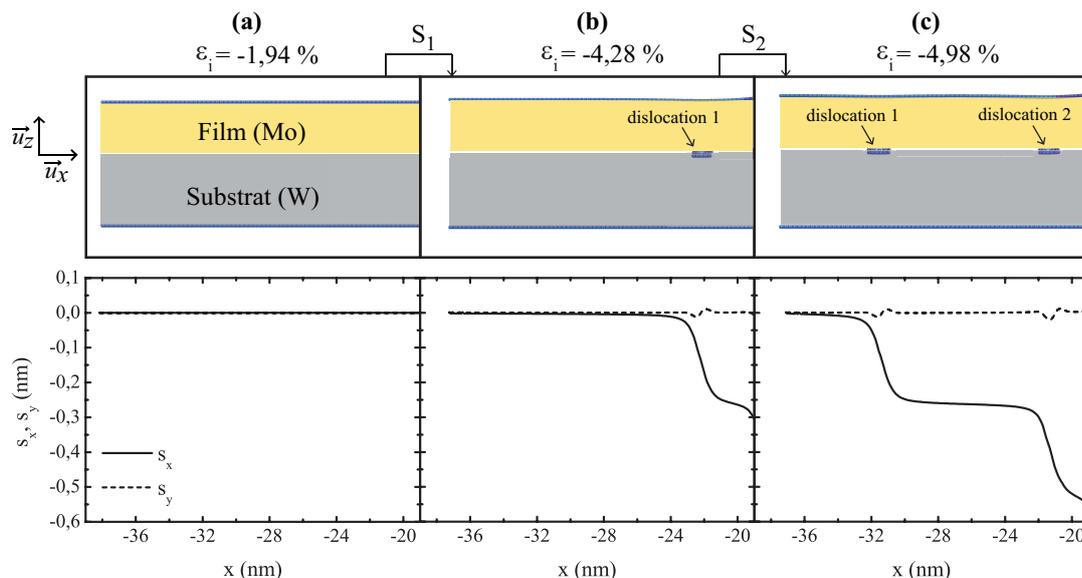


Figure 2.7 – (haut) Vues de profil de la partie adhérente gauche du système Mo-W pour trois déformations différentes (a) $\varepsilon_i = -1,94\%$, (b) $\varepsilon_i = -4,28\%$ et (c) $\varepsilon_i = -4,98\%$ avant et après chacun des « sauts » S_1 et S_2 . (bas) Composantes coin s_x et vis s_y du vecteur de « désaccord » correspondant aux vues de profil en fonction de la position x .

montre qu'une autre dislocation 2 de même vecteur de Burgers est nucléée et reste à environ 2,8 nm de la pointe de fissure jusqu'à la fin de la simulation où la rupture du film survient ($\varepsilon_i = -5,36\%$). La dislocation 1 est durant cet intervalle repoussée par la suivante et se positionne entre celle-ci et le bord périodique gauche du bicristal.

2.2.2 Glissement et délaminage : système Cu-W

Comme il a été fait pour le système Mo-W, la flèche δ du bicristal Cu-W ainsi que les déplacements Δ_{-B} et Δ_{+B} ont été extraits de la simulation et tracés sur les figures (2.8.a) et (2.8.b). Le flambage survient pour une déformation critique située autour de $\varepsilon_c = -2\%$. Dans ce système, le mécanisme de glissement déjà identifié dans la simulation Mo-W (voir figure (2.6)) est également observé, les atomes situés en pied de ride droite passant de la partie adhérente à la partie flambée du film mince. Dans ce cas cependant, les déplacements varient continûment avec la déformation comme le montre la figure (2.8.b).

Sur la figure (2.9), nous avons reporté la partie adhérente gauche du système, dans le plan de l'interface située à la base de la ride, où apparaissent seulement les monocouches atomiques des monocristaux qui constituent l'interface. Les atomes de Cu et de W de la partie adhérente ($x < -19$ nm) sont respectivement en jaune et gris, et ceux de la zone délaminée ($x > -19$ nm) sont en rouge et noir. Sur cette

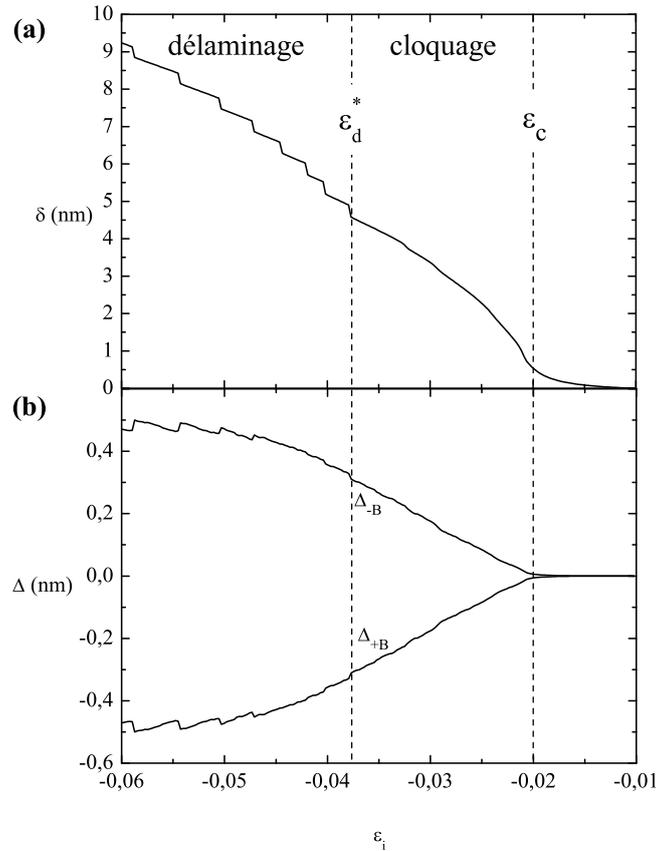


Figure 2.8 – Évolution (a) de la flèche δ et (b) des glissements Δ_{-B} et Δ_{+B} extraits au cours de la simulation Cu-W en fonction de la déformation du film mince ε_i .

même figure, nous montrons, en correspondance des vues de dessus, l'évolution du vecteur de « désaccord » extrait durant la simulation en fonction de x . Celui-ci permet de caractériser le vecteur de Burgers ainsi que la position des dislocations d'épitaxie au cours du cloquage, ces dernières étant numérotées à partir de la pointe de fissure.

Entre l'état initial plan, sans ride droite et sans glissement (voir figure (2.9.a)), et l'état du système à $\varepsilon_i = -3,76$ %, où la ride droite s'est formée et du glissement est mesuré (voir figure (2.9.b)), nous remarquons que quatre dislocations d'épitaxie ont quitté la partie adhérente et sont passées dans la zone cloquée. Nous montrons ainsi, comme c'est le cas dans le système Mo-W, que le mécanisme de glissement est associé au déplacement de dislocations dans le plan de l'interface. Cette fois cependant, ce sont les dislocations initialement présentes dans le bicristal qui sont expulsées de la partie adhérente. En pied de ride droite, ce phénomène donne lieu à un réarrangement des atomes conduisant à une diminution de la densité de dislocations et à une interface qui tend vers une configuration cohérente notamment au

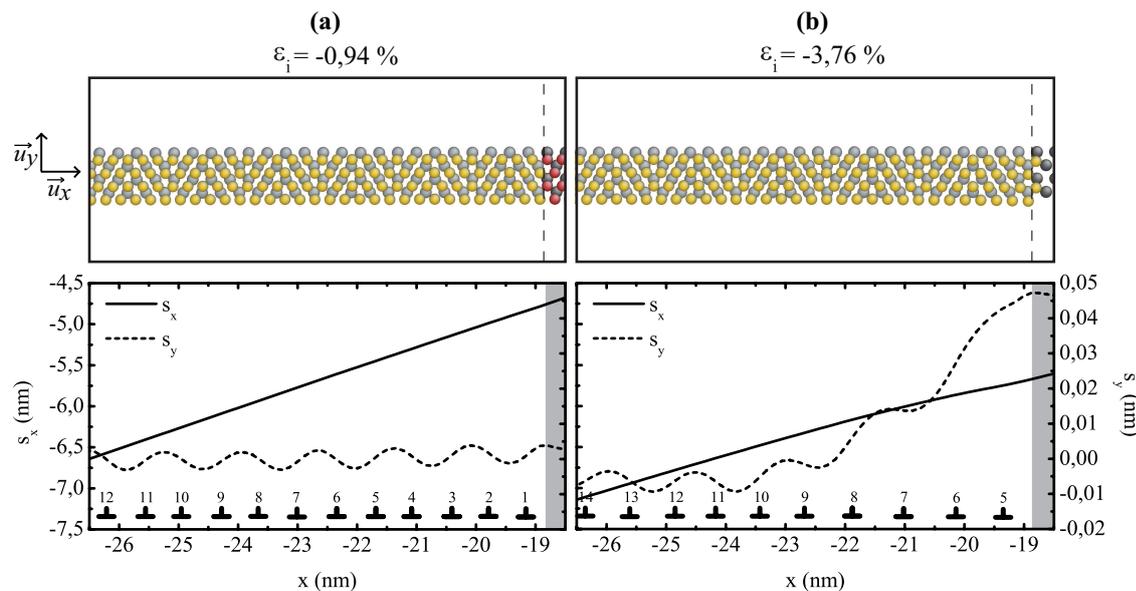


Figure 2.9 – (haut) Vues de dessus de la partie adhérente gauche du système, située à la base de la ride, montrant les monocouches atomiques de Cu en jaune (ou rouge en zone délaminée) et de W en gris (ou noir en zone délaminée) constituant l'interface (a) dans son état initial à $\varepsilon_i = -0,94\%$ et (b) à $\varepsilon_i = -3,76\%$. (bas) Composantes coin s_x (à lire sur l'axe de gauche) et vis s_y (à lire sur l'axe de droite) du vecteur de « désaccord » correspondant aux vues de dessus en fonction de x . La zone grisée correspond à la partie délaminée.

niveau même de la pointe de fissure ($x \approx -19$ nm) : les atomes de Cu se positionnent alors entre ceux de W et le vecteur de « désaccord » tend à être constant. Cette interface présente une résistance au glissement très faible caractérisée par la barrière d'énergie $\gamma_{Cu-W}^{gl} = 0,07$ J.m⁻² qui est corrélée à une énergie d'adhésion également faible $\Gamma_{Cu-W} = 0,82$ J.m⁻² en situation cohérente (voir tableau (2.1)). Nous expliquons ainsi pourquoi le processus d'expulsion des dislocations d'épitaxie a lieu sans friction et donne à voir un mécanisme de glissement qui varie de façon continue avec la déformation du film mince. Le phénomène est d'autant plus favorable que le glissement ne s'effectue pas de façon « rigide » et met vraisemblablement en jeu des barrières d'énergie plus faibles que la valeur γ_{Cu-W}^{gl} . L'évolution de la flèche est sans doute affectée par le glissement comme il semble que ce soit le cas dans le système Mo-W, mais c'est un autre phénomène qui permet de rendre compte des discontinuités observées sur la courbe de la figure (2.8.a) : le délaminage du film de son substrat.

En effet, contrairement au cas du système Mo-W, la faible énergie d'adhésion de l'interface Cu-W ainsi que sa propension au glissement facile semble permettre l'accroissement de la zone délaminée durant le flambage. Pour caractériser ce processus, la demi-longueur délaminée B suivant (Ox) a été tracée en fonction de ε_i au cours

du flambage sur la figure (2.10) qui présente également le bicristal Cu-W une fois le délaminage observé. Dans l'état initial, cette demi-longueur délaminée est égale à $B_0 = 19$ nm. À mesure que la déformation en compression croît, cette longueur diminue légèrement, comme l'ensemble du bicristal suivant (Ox), jusqu'à environ 18 nm à $\varepsilon_i = \varepsilon_d^* = -3,78$ %. À partir de cette déformation critique, le délaminage survient. La zone décollée se propage alors par à-coups pour atteindre finalement la valeur $B = 26,3$ nm à $\varepsilon_i = -6$ % en fin de simulation. Ici, toutes les configurations extraites sont à l'équilibre du fait de la procédure numérique employée (voir Section 2.1.3); la progression et l'arrêt du délaminage s'effectuent donc de façon stable en concomitance avec le mécanisme de glissement. D'autres simulations du système Cu-W, réalisées en augmentant sa longueur suivant (Ox) et en conservant la demi-longueur délaminée initiale $B_0 = 19$ nm, ont conduit à des configurations semblables montrant que les bords périodiques n'ont ici pas d'influence sur l'arrêt de la propagation.

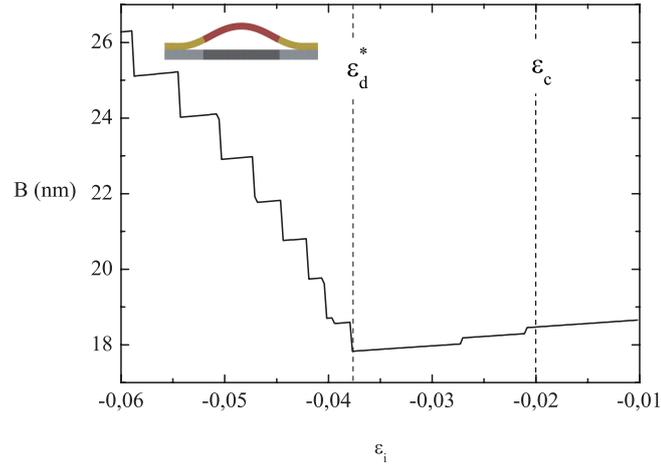


Figure 2.10 – Évolution de la demi-longueur délaminée B extraite au cours de la simulation Cu-W en fonction de la déformation du film mince ε_i .

Les simulations atomistiques nous ont ainsi permis d'observer : (i) le flambage d'un film mince d'épaisseur nanométrique initialement pré-délaminé du substrat, (ii) un mécanisme de glissement dans le plan de l'interface affectant les atomes situés en pied de ride droite qui passent de la partie adhérente à la partie flambée du film mince, glissement qui s'explique par le déplacement de dislocations dans le plan de l'interface et qui semble également affecter la forme de la ride droite, (iii) enfin, dans le cas d'une interface faiblement adhérente, le délaminage du film de son substrat qui survient de façon concomitante avec le mécanisme de glissement et qui rend compte d'une propagation jusqu'à une configuration stable des bords de la ride droite. Le glissement varie dans ce cas de façon continue avec la déformation.

Si le flambage et le délaminage sont généralement décrits à l'échelle mésoscopique (voir Sections 1.2 et 1.3), les processus plastiques qui sont observés dans les simulations (glissement, dislocations) doivent en revanche être décrits à l'échelle atomique. Dans la suite de ce rapport, nous allons caractériser et relier ces différents aspects dans le cadre de la mécanique des milieux continus.

2.3 Interprétation dans le formalisme de Föppl et von Kármán

2.3.1 Modèle de la ride droite avec glissement

La description mésoscopique du flambage d'une ride droite repose sur le modèle des plaques minces de Föppl et von Kármán (FvK) qui a été rappelé dans la Section 1.2. Nous reprenons ici ce modèle en tenant compte du mécanisme de glissement observé en pied de structure. Nous considérons pour cela un film d'épaisseur h délaminé sur une longueur $2B$ suivant (Ox) comme il est schématisé sur la figure (2.11).

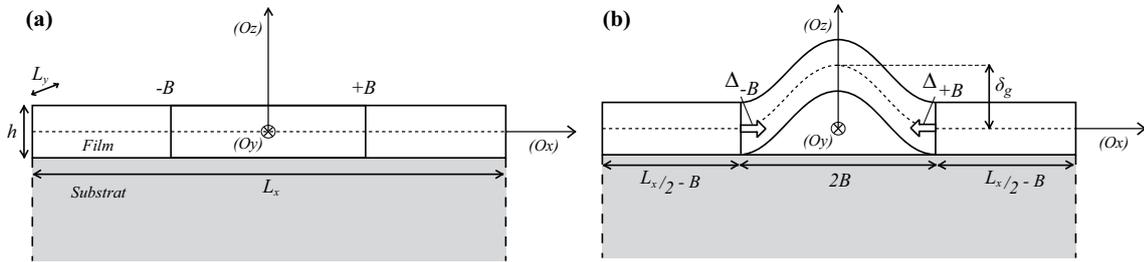


Figure 2.11 – Schéma du système film-substrat (a) en configuration plane et (b) en configuration flambée lorsque le mécanisme de glissement est pris en compte.

Les équations qui contrôlent l'équilibre mécanique du système sont les équations de FvK (1.20) et (1.21) :

$$\frac{\partial^4 w(x)}{\partial x^4} + \alpha^2 \frac{\partial^2 w(x)}{\partial x^2} = 0, \quad (2.4)$$

$$\varepsilon_i + \frac{\partial u(x)}{\partial x} + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial w(x)}{\partial x} \right)^2 + \frac{\alpha^2 h^2}{12} = 0, \quad (2.5)$$

où

$$\alpha^2 = \frac{-12e_{xx}}{h^2}, \quad (2.6)$$

avec e_{xx} la déformation suivant (Ox) dans le plan médian du film mince, négative

en compression et constante suivant x . La déformation interne isotrope dans l'état initial plan est ε_i . Les déplacements suivant (Ox) et (Oz) d'un point du film situé dans le plan médian sont nommés u et w respectivement. La solution générale de l'équation (2.4) est donnée par $w(x) = c_1 \sin[\alpha x] + c_2 \cos[\alpha x] + c_3 x + c_4$ où les constantes c_i sont déterminées à partir des conditions aux limites du système. C'est à ce stade qu'il est possible de rendre compte du glissement observé dans les simulations. Il suffit pour cela de considérer les conditions aux limites suivantes :

$$u_g(\pm B) = \mp \Delta, \quad (2.7)$$

$$w_g(\pm B) = \left. \frac{\partial w_g(x)}{\partial x} \right|_{x=\pm B} = 0, \quad (2.8)$$

où $\Delta = \frac{\Delta_{-B} - \Delta_{+B}}{2}$ est une valeur positive qui rend compte du glissement des atomes du film situés en pointe de fissure dans le plan médian (voir figure (2.11)).

La procédure de résolution des équations de FvK est identique à celle qui est présentée dans la Section 1.2 lors de la description de la ride droite encastrée aussi appelée colonne d'Euler. Elle ne sera donc pas reprise ici. Lorsque la ride droite n'est plus encastrée et que l'on considère le mécanisme de glissement, les équations (2.4) à (2.8) conduisent alors aux solutions :

$$w_g(x) = \frac{\delta_g}{2} \left(1 + \cos \left[\frac{\pi x}{B} \right] \right), \quad (2.9)$$

$$u_g(x) = \frac{\pi \delta_g^2}{32B} \sin \left[\frac{2\pi x}{B} \right] - \frac{\Delta}{B} x, \quad (2.10)$$

$$\delta_g = \frac{4B}{\pi} \sqrt{\varepsilon_c - \varepsilon_i + \frac{\Delta}{B}}, \quad (2.11)$$

avec, comme dans le cas de la colonne d'Euler, la déformation critique de flambage :

$$\varepsilon_c = -\frac{\pi^2}{12} \left(\frac{h}{B} \right)^2. \quad (2.12)$$

Lorsqu'il n'y a pas de glissement ($\Delta = 0$), les expressions (2.9) à (2.11) se réduisent aux solutions classiques :

$$w_e(x) = \frac{\delta_e}{2} \left(1 + \cos \left[\frac{\pi x}{B} \right] \right), \quad (2.13)$$

$$u_e(x) = \frac{\pi \delta_e^2}{32B} \sin \left[\frac{2\pi x}{B} \right], \quad (2.14)$$

$$\delta_e = \frac{4B}{\pi} \sqrt{\varepsilon_c - \varepsilon_i}. \quad (2.15)$$

Quantitativement, ces expressions sont valides tant que $h/B \ll 1$ et que les flèches δ_g ou δ_e restent approximativement inférieures à $B/3$, en accord avec les hypothèses du modèle de FvK lui-même [26]. Les profils des rides donnés par les solutions $w_g(x - u_g(x))$ (avec glissement) et $w_e(x - u_e(x))$ (sans glissement - Euler) ont été comparés sur la figure (2.12) en prenant $B = 19$ nm, $\varepsilon_c = -2$ ‰, $\varepsilon_i = -4$ ‰ et $\Delta = 3$ nm dans les équations (2.9) à (2.15). Il est ainsi clairement démontré que le mécanisme de glissement ($\Delta > 0$) a pour effet d'accroître la déflexion maximale du film mince.

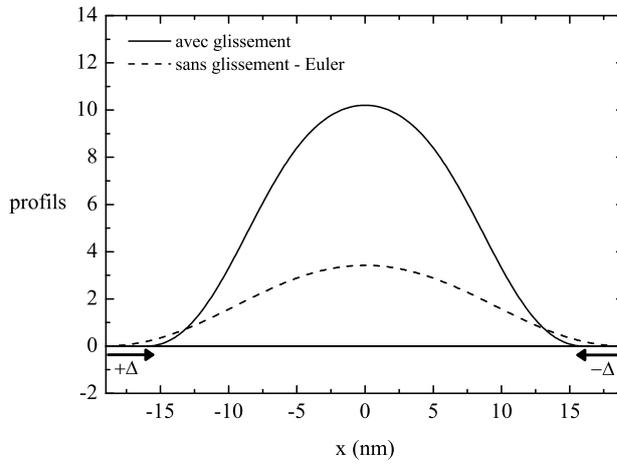


Figure 2.12 – Comparaison des profils d'une ride droite avec et sans glissement donnés par $w_g(x - u_g(x))$ et $w_e(x - u_e(x))$ respectivement.

L'énergie élastique de la ride droite est donnée par l'équation (1.11) qui s'écrit ici :

$$U_g = \frac{\bar{E}_f L_y}{2} \int_{-\frac{h}{2}}^{\frac{h}{2}} \int_{-B}^B \left[\varepsilon_c - z \frac{\partial^2 w_g(x)}{\partial x^2} \right]^2 dx dz. \quad (2.16)$$

Cette énergie peut être calculée explicitement à l'aide des solutions analytiques (2.9) à (2.12). Soit U_0 l'énergie potentielle d'une plaque mince non flambée de déformation ε_i dont les dimensions sont $h \times 2B \times L_y$ définie par :

$$U_0 = hBL_y \bar{E}_f \varepsilon_i^2, \quad (2.17)$$

il vient que l'énergie de la ride droite en présence de glissement peut finalement s'écrire :

$$U_g = U_0 - hBL_y \bar{E}_f (\varepsilon_i - \varepsilon_c)^2 - 2h\Delta L_y \bar{E}_f \varepsilon_c. \quad (2.18)$$

Cette expression n'est bien sûr valable que pour $\varepsilon_i \leq \varepsilon_c$. Lorsque $\Delta = 0$, l'énergie de

la ride droite revient à celle déjà établie dans le formalisme classique de la colonne d'Euler décrite dans la Section 1.2. Lorsque $\Delta > 0$, l'énergie du film flambé apparaît plus élevée que dans la situation classique où $\Delta = 0$. Il semble donc que cette situation soit énergétiquement moins favorable. Nous verrons alors qu'il faudra considérer la variation d'énergie dans la partie encore adhérente du film mince pour expliquer qu'une telle situation puisse se produire. Cet aspect sera abordé lors de l'étude du délaminage du film de son substrat. Vérifions pour l'instant que le mécanisme de glissement observé dans les simulations a bien pour effet d'accroître la déflexion maximale du film mince.

2.3.2 Déflexion maximale

Sur la figure (2.13), la valeur de la flèche δ extraite des simulations Mo-W et Cu-W a été reportée en fonction de ε_i et comparée à la flèche théorique δ_g qui tient compte de la longueur délaminée B et du glissement Δ extraits des simulations (voir équation (2.11)). Nous avons également reporté sur cette figure l'évolution de la flèche théorique δ_e ne tenant pas compte du glissement (voir équation (2.15)) ainsi que les déformations critiques de flambage d'Euler (voir équation (2.12)) égales à $\varepsilon_c = -2,23 \%$ pour le système Mo-W et $\varepsilon_c = -1,96 \%$ pour le système Cu-W. Ces déformations correspondent bien au moment où la déflexion devient non nulle, c'est-à-dire au moment où le flambage survient dans les simulations atomistiques. Comme le prévoit le modèle de FvK, le phénomène de glissement ne modifie donc pas la déformation critique de flambage d'Euler et reste bien valide à l'échelle de nos simulations atomistiques. De plus, la flèche théorique δ_g , qui tient compte du mécanisme de glissement, décrit de manière satisfaisante celle extraite des simulations. En particulier, les « sauts » S_1 et S_2 observés dans le système Mo-W sont quantitativement bien expliqués à leurs positions respectives et le glissement continu identifié dans le système Cu-W provoque de la même façon une augmentation de la déflexion maximale alors que le délaminage n'est pas encore observé. Cela démontre que le passage de dislocations dans l'interface film-substrat est bien à l'origine de la modification de la forme de la ride au cours du flambage. L'écart restant peut s'expliquer par les hypothèses du modèle de FvK lui-même (voir Section 2.3.1) qui impliquent notamment $h/B \ll 1$ et $\delta < B/3$ [26]. Les calculs dans notre cas conduisent à des valeurs qui se rapprochent de ces limites.

Nous avons donc montré à partir du modèle de FvK que les processus d'émission ou d'expulsion de dislocations en pied de ride droite pouvaient être pris en compte dans une description élastique continue à partir de la grandeur moyenne décrivant le glissement du film mince Δ . Nous avons ainsi identifié un premier couplage entre un

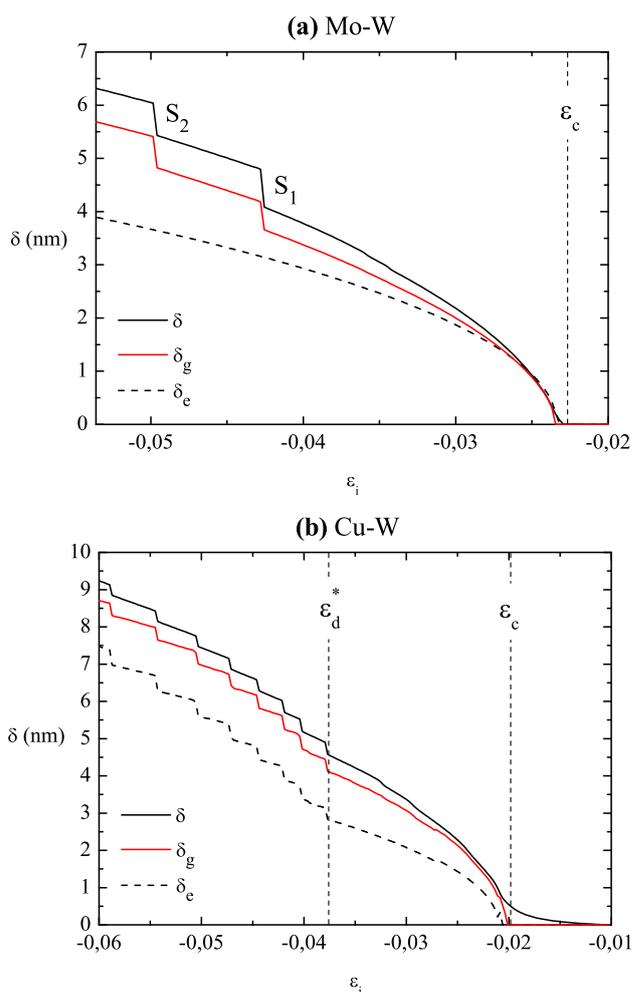


Figure 2.13 – Comparaison entre la flèche extraite des simulations δ (noir) et celle issue du modèle de FvK avec glissement δ_g (rouge) et sans glissement δ_e (pointillés), pour chaque système (a) Mo-W et (b) Cu-W.

mécanisme plastique survenant dans l'interface à l'échelle atomique et la morphologie d'une ride droite qui reste décrite à l'échelle mésoscopique. Dans le système Cu-W faiblement adhérent, le glissement varie de façon continue avec la déformation du film mince et est mesuré dès la survenue du flambage. Dans le système Mo-W en revanche, le mécanisme de glissement a lieu de façon discontinue corrélé à l'introduction soudaine de dislocations dans la partie adhérente du bicristal. Il existe dans ce cas une déformation critique à partir de laquelle le glissement survient, plus importante que la déformation critique d'Euler, qui reste un paramètre non exprimé dans le modèle continu de FvK.

La déformation critique de glissement ϵ_i^* est par définition la déformation à partir de laquelle une première dislocation est introduite ou expulsée à la base de la ride droite. Déterminer théoriquement une telle valeur passe donc par l'étude du com-

portement d’une dislocation dans l’interface film-substrat. Vraisemblablement, cette déformation dépend aussi bien de la géométrie de la ride droite que des caractéristiques physiques de l’interface : cristallographie, préexistence ou non de dislocations d’épitaxie, barrières d’énergie, etc. À notre connaissance, mener une étude théorique qui tienne compte de tous ces aspects n’est pas accessible, en particulier lorsqu’un réseau de dislocations d’épitaxie est préexistant comme c’est le cas dans le système Cu-W. Pour cette raison, nous avons choisi de caractériser théoriquement ε_i^* dans le cas simple d’une interface cohérente qui correspond au système Mo-W. Nous considérerons alors, comme le suggèrent les résultats de la simulation Cu-W, que cette déformation est nulle lorsque les valeurs d’énergie d’adhésion et de « résistance au glissement rigide » sont faibles. Dans le cas contraire, nous supposerons que les résultats qui seront obtenus à partir de l’étude du système cohérent Mo-W pourront être qualitativement généralisés à d’autres interfaces non cohérentes. Cette étude est exposée dans la Section suivante. Nous reviendrons sur le système Cu-W faiblement adhérent et le processus de délaminage ensuite.

2.4 Nucléation d’une dislocation à la base d’une ride droite

Nous cherchons ici à établir de façon analytique la variation d’énergie associée à l’introduction, dans l’interface cohérente du système Mo-W, d’une dislocation coin (d) de vecteur de Burgers \vec{b} telle que $b = 0,27$ nm (voir figure (2.7)). Nous définirons alors la déformation critique de glissement ε_i^* comme la déformation à partir de laquelle nucléer la dislocation devient énergétiquement favorable. Pour ce faire, nous allons nous appuyer sur la théorie élastique des dislocations qui repose sur le formalisme de l’élasticité linéaire [92, 93]. Nous avons pour cette raison considéré le matériau multicouche décrit sur la figure (2.14) qui présente la partie adhérente gauche du film mince d’épaisseur h comme étant pris en sandwich entre deux matériaux substrat infinis suivant (Oz) [94]. Une dislocation coin (d) est ensuite introduite dans l’interface. L’origine du repère est alors placée au niveau de la pointe de fissure gauche, de sorte que la position $x < 0$ de la dislocation rende compte de sa distance par rapport à cette pointe, l’interface se situant en $z = 0$.

Comme le montre la figure (2.14), notre description implique deux approximations : la surface libre supérieure du film mince en $z = h$ est décrite comme une autre interface, la partie droite de la structure en $x > 0$ étant négligée. Il existe plusieurs études dans lesquelles les effets de la surface libre supérieure (vue ici comme une autre interface) sont pris en compte [95, 96]. Nous avons cependant jugé pour des

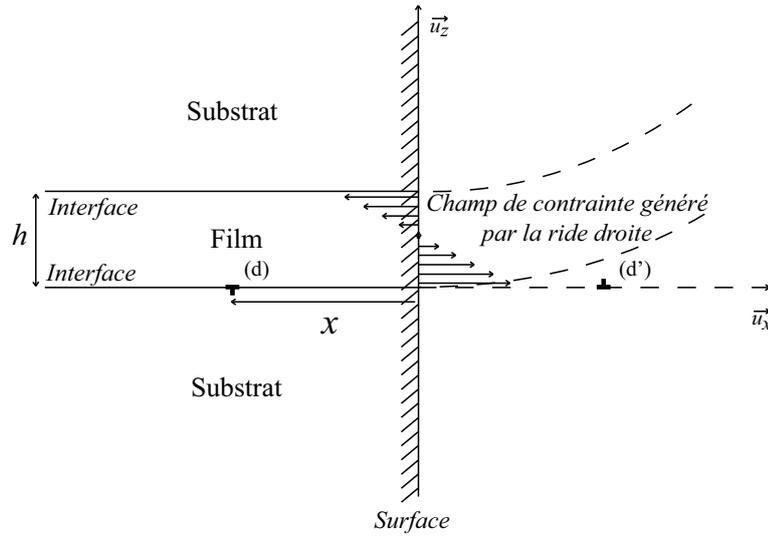


Figure 2.14 – Schéma simplifié de la partie adhérente gauche du système Mo-W. Une dislocation de vecteur de Burgers $-b\vec{u}_x$ est introduite dans le plan de l'interface à $x < 0$ de la surface verticale.

raisons de simplicité, qu'il n'était pas nécessaire de considérer ces effets dans notre approche analytique pour déterminer la déformation critique de glissement ε_i^* . Le modèle nous permettra donc simplement de caractériser quantitativement ε_i^* ainsi que les positions d'équilibre de la dislocation nucléée dans l'environnement proche de la pointe de fissure en $x > -h$. En revanche, il ne nous permettra pas de décrire les positions de la dislocation autrement que qualitativement lorsque $x < -h$ et que les effets de la surface libre supérieure du film mince deviennent prépondérants.

2.4.1 Variation d'énergie

La variation d'énergie recherchée correspond au travail par unité de longueur $\Delta W(x)$ qui doit être fourni pour que la dislocation aille de la pointe de fissure en $x = 0$ à une position quelconque $x < 0$. Ce travail est défini dans le cadre de la théorie élastique des dislocations et se calcule en intégrant, sur le parcours de la dislocation, la force par unité de longueur F_{gl} agissant dans son plan de glissement $(O; x, y, z)$ [93] :

$$F_{gl} = \left((\vec{b} \cdot \vec{\sigma}) \wedge \vec{\xi} \right) \cdot \vec{u}_x. \quad (2.19)$$

Dans cette expression, $\vec{\sigma}$ est le tenseur décrivant le champ de contraintes dans lequel se trouve la dislocation. Cette dernière a pour ligne de glissement $\vec{\xi} = -\vec{u}_y$ et comme vecteur de Burgers $\vec{b} = -b\vec{u}_x$ dans le repère de la figure (2.14) ; la convention veut en effet que le produit vectoriel $\vec{\xi} \wedge \vec{b}$ pointe dans la direction du cristal qui présente un plan atomique vertical supplémentaire, c'est-à-dire ici vers le substrat de tungstène suivant $-\vec{u}_z$ [93]. La force agissant sur la dislocation se réduit alors

simplement à $F_{gl} = -b\sigma_{xz}(x,0)$ où $\sigma_{xz}(x,0)$ est la composante de cisaillement du champ de contrainte exprimée dans le plan de l'interface en $z = 0$ qui rend compte de l'environnement dans lequel la dislocation évolue (voir figure (2.14)). Il faut alors tenir compte des composantes de contrainte générées par la ride droite (σ_{xz}^{grd})², par les interfaces cohérentes en $z = 0$ et $z = h$ (σ_{xz}^{ep}) et par la surface libre verticale en $x = 0$ (σ_{xz}^{im}) qui conduisent à l'expression du travail :

$$\Delta W(x) = b \int_0^x [\sigma_{xz}^{grd}(x',0) + \sigma_{xz}^{ep}(x',0) + \sigma_{xz}^{im}(x',0)] dx'. \quad (2.20)$$

Il nous faut donc déterminer ces différentes composantes σ_{xz}^{grd} , σ_{xz}^{ep} et σ_{xz}^{im} en $z = 0$.

Champ de contrainte généré par la ride droite

Pour déterminer le champ de contrainte généré par la ride droite dans la partie adhérente, il sera supposé que ses effets peuvent être décrits par une distribution de lignes de force sur la surface verticale en $x = 0$. Nous nous sommes appuyés pour cela sur le champ de déformation de la ride droite $\varepsilon_{xx}^{rd}(x,z)$ donné par l'équation (1.9) exprimé dans le repère de la figure (2.14). En sollicitation uniaxiale, celui-ci est directement proportionnel au champ de contrainte via le module élastique \bar{E}_f de sorte que $\sigma_{xx}^{rd}(x,z) = \bar{E}_f \varepsilon_{xx}^{rd}(x,z)$. En $x = 0$, la ride rejoint la partie adhérente du film mince de déformation supposée constante sur l'épaisseur et donnée par $\varepsilon_{xx}^{ad} = \varepsilon_i$. La contrainte dans cette partie s'écrit donc $\sigma_{xx}^{ad} = \bar{E}_f \varepsilon_{xx}^{ad}$. En cet endroit, la résultante vaut alors $\sigma_{xx}^{FvK}(0,z) = \sigma_{xx}^{rd}(0,z) - \sigma_{xx}^{ad}$ qui s'écrit dans le repère de la figure (2.14) sous la forme explicite :

$$\sigma_{xx}^{FvK}(0,z) = \bar{E}_f \left[\varepsilon_c - \varepsilon_i + \left(\frac{h}{2} - z \right) \frac{\delta_g \pi^2}{2B^2} \right]. \quad (2.21)$$

Si une unique ligne de force $\vec{P} = P\vec{u}_x$ est appliquée au point de coordonnées (0,0), alors le champ de contrainte dans le demi cristal $x < 0$ s'écrit en coordonnées cartésiennes [82] :

$$\sigma_{xx}^P(x,z) = -\frac{2P}{\pi} \frac{x^3}{(x^2 + z^2)^2}, \quad (2.22)$$

$$\sigma_{zz}^P(x,z) = -\frac{2P}{\pi} \frac{xz^2}{(x^2 + z^2)^2}, \quad (2.23)$$

2. La notation *grd* correspond à l'expression « généré par la ride droite ». Cette notation permet de distinguer le champ de contrainte (ou de déformation) dû à la ride dans la partie adhérente du bicristal, au champ présent au sein de la ride droite elle-même dont la nomenclature reste *rd*.

$$\sigma_{xz}^P(x,z) = -\frac{2P}{\pi} \frac{zx^2}{(x^2+z^2)^2}, \quad (2.24)$$

où P agit comme une force par unité de longueur ($N.m^{-1}$). Une densité de force

f est alors introduite de sorte que $f(z) = \sigma_{xx}^{FvK}(0,z)/P$. Le tenseur des contraintes

$\bar{\sigma}^{grad}$ générées par la ride droite dans la partie adhérente du système s'écrit donc :

$$\bar{\sigma}^{grad} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx}^{grad}(x,z) & \sigma_{xz}^{grad}(x,z) \\ \sigma_{xz}^{grad}(x,z) & \sigma_{zz}^{grad}(x,z) \end{pmatrix}, \quad (2.25)$$

où les composantes $\sigma_{ij}^{grad}(x,z)$ sont calculées à partir du produit de convolution des

expressions (2.22) à (2.24) avec $f(z)$, pris entre $z = 0$ et $z = h$:

$$\sigma_{ij}^{grad}(x,z) = \int_0^h f(z') \times \sigma_{ij}^P(x,z-z') dz'. \quad (2.26)$$

Nous obtenons après calculs :

$$\begin{aligned} \sigma_{xx}^{grad}(x,z) = & -\frac{\bar{E}_f}{\pi} (\varepsilon_{grad} + \varepsilon_c - \varepsilon_i) \left(\arctan \left[\frac{h-z}{x} \right] + \arctan \left[\frac{z}{x} \right] \right) \\ & -\frac{\bar{E}_f}{\pi} (\varepsilon_{grad} + \varepsilon_c - \varepsilon_i) \left(\frac{x(h-z)}{x^2 + (h-z)^2} + \frac{xz}{x^2 + z^2} \right) \\ & +\frac{\bar{E}_f}{\pi} \varepsilon_{grad} \left(\frac{2x(h-z)}{x^2 + (h-z)^2} \right) \\ & +\frac{\bar{E}_f}{\pi} \varepsilon_{grad} \left(\frac{2z}{h} \right) \left(\arctan \left[\frac{h-z}{x} \right] + \arctan \left[\frac{z}{x} \right] \right), \end{aligned} \quad (2.27)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{zz}^{grad}(x,z) = & -\frac{\bar{E}_f}{\pi} (\varepsilon_{grad} + \varepsilon_c - \varepsilon_i) \left(\arctan \left[\frac{h-z}{x} \right] + \arctan \left[\frac{z}{x} \right] \right) \\ & +\frac{\bar{E}_f}{\pi} (\varepsilon_{grad} + \varepsilon_c - \varepsilon_i) \left(\frac{x(h-z)}{x^2 + (h-z)^2} + \frac{xz}{x^2 + z^2} \right) \\ & -\frac{\bar{E}_f}{\pi} \varepsilon_{grad} \left(\frac{2x(h-z)}{x^2 + (h-z)^2} \right) \\ & +\frac{\bar{E}_f}{\pi} \varepsilon_{grad} \left(\frac{2z}{h} \right) \left(\arctan \left[\frac{h-z}{x} \right] + \arctan \left[\frac{z}{x} \right] \right) \\ & +\frac{\bar{E}_f}{\pi} \varepsilon_{grad} \left(\frac{2x}{h} \right) \ln \left[\frac{x^2 + (h-z)^2}{x^2 + z^2} \right], \end{aligned} \quad (2.28)$$

et

$$\begin{aligned}
 \sigma_{xz}^{grad}(x,z) = & -\frac{\bar{E}_f}{\pi} (\varepsilon_{grad} + \varepsilon_c - \varepsilon_i) \left(\frac{x^2}{x^2 + (h-z)^2} - \frac{x^2}{x^2 + z^2} \right) \\
 & + \frac{\bar{E}_f}{\pi} \varepsilon_{grad} \left(\frac{2x^2}{x^2 + (h-z)^2} \right) \\
 & + \frac{\bar{E}_f}{\pi} \varepsilon_{grad} \left(\frac{2x}{h} \right) \left(\arctan \left[\frac{z-h}{x} \right] - \arctan \left[\frac{z}{x} \right] \right), \quad (2.29)
 \end{aligned}$$

où le paramètre sans dimension ε_{grad} rend compte de la géométrie de la ride droite en présence du glissement :

$$\varepsilon_{grad} = \frac{h\pi^2\delta_g}{4B^2} = \frac{h\pi}{B} \sqrt{\varepsilon_c - \varepsilon_i + \frac{\Delta}{B}}. \quad (2.30)$$

Les champs de contraintes $\sigma_{ij}^{grad}(x,z)$ données par les équations (2.27) à (2.29) ont été représentés sur la figure (2.15) dans le demi-cristal $x < 0$ défini sur la figure (2.14). Pour cela, nous avons utilisé les paramètres de la simulation du système Mo-W au moment où la première dislocation (d) est observée (voir Section 2.2.1) : $\varepsilon_i = -4,28\%$, $\varepsilon_c = -2,23\%$, $\Delta = 0,2$ nm, $h = 3,1$ nm et $B = 19$ nm. Le module élastique \bar{E}_f a été déterminé numériquement à partir d’un essai de déformation modèle du film Mo dans la direction (Ox) de type $\langle 111 \rangle_{cc}$. La valeur obtenue vaut $\bar{E}_f = 349$ GPa.

La figure (2.15.a) montre qu’en pied de ride droite, le film mince est comprimé suivant (Ox) dans son demi-espace supérieur ($z \in [h/2, h]$) alors qu’il est en tension dans son demi-espace inférieur ($z \in [0, h/2]$). Cette représentation témoigne également de la présence du plan neutre de déformation constante dans le plan médian du film mince en accord avec le modèle de FvK. La figure (2.15.b) révèle qu’en pied de structure, le demi-espace supérieur du film mince est comprimé suivant (Oz) alors qu’il est en traction dans le demi-espace inférieur. Dans le plan de l’interface en $z = 0$, cette contrainte de traction donne lieu à un écartement des plans atomiques de l’interface qui peut d’ailleurs être observé sur la figure (2.6). Plus loin dans l’interface en $z = 0$, nous rencontrons de nouveau une zone en compression suivant (Oz) qui témoigne de la flexion du film mince en pied de structure. La figure (2.15.c) montre quant à elle que le cisaillement est négatif sur une grande partie de l’épaisseur du film mince en pied de ride droite excepté au niveau des interfaces située en $z = 0$ et $z = h$ où le cisaillement est d’abord positif en $x = 0$ puis devient négatif à mesure que nous nous éloignons de la surface verticale. Cette situation est intéressante car elle révèle un changement de signe de la contrainte de cisaillement

dans le plan de l'interface en $z = 0$ où se situe la dislocation (d).

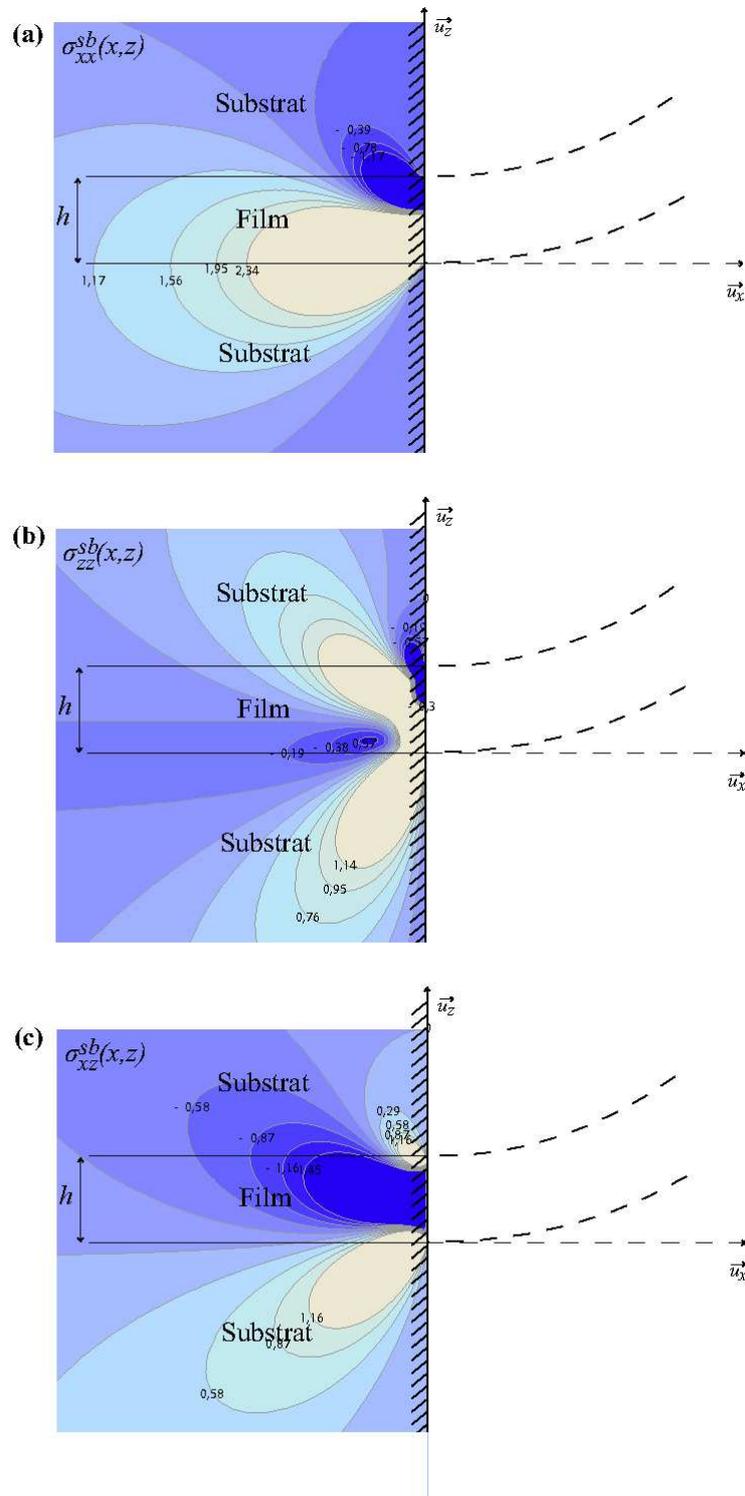


Figure 2.15 – Composantes du champ de contrainte généré par la ride droite (a) $\sigma_{xx}^{grd}(x,z)$, (b) $\sigma_{zz}^{grd}(x,z)$ et (c) $\sigma_{xz}^{grd}(x,z)$ en GPa (voir les valeurs sur les courbes de contour) dans le demi-cristal exposé sur la figure (2.14) en $x < 0$ calculés avec $\varepsilon_i = -4,28 \%$, $\varepsilon_c = -2,23 \%$, $\Delta = 0,2$ nm, $h = 3,1$ nm, $B = 19$ nm et $\bar{E}_f = 349$ GPa.

La contrainte de cisaillement dans le plan de l’interface en $z = 0$ s’écrit d’après l’équation (2.29) :

$$\begin{aligned} \sigma_{xz}^{grad}(x,0) &= \frac{\bar{E}_f}{\pi} (\varepsilon_c - \varepsilon_i + \varepsilon_{grad}) \left(\frac{h^2}{x^2 + h^2} \right) + \frac{\bar{E}_f}{\pi} \varepsilon_{grad} \left(\frac{2x^2}{x^2 + h^2} \right) \\ &- \frac{\bar{E}_f}{\pi} \varepsilon_{grad} \left(\frac{2x}{h} \arctan \left[\frac{h}{x} \right] \right). \end{aligned} \quad (2.31)$$

La dislocation subit ainsi une force $F_{gl} = -b\sigma_{xz}(x,0)$ qui la repousse de la pointe de fissure lorsqu’elle se trouve à proximité de la ride droite et qui l’attire lorsqu’elle s’en éloigne. En ne prenant en compte que le champ de contrainte généré par la ride droite, nous montrons ainsi qu’il existe une position d’équilibre stable pour la dislocation (d). Pour analyser complètement son comportement, il est cependant nécessaire de considérer d’autres effets physiques.

Les autres champs de contrainte

La dislocation (d) se trouve également dans le champ de contrainte de l’interface elle-même qui résulte du désaccord paramétrique entre le film (Mo) et le substrat (W). La déformation qui rend compte de cette accommodation est la déformation dite d’épitaxie $\varepsilon_{ep} = 0,57 \%$ donnée par ε_{xx}^r dans le tableau (2.1). La démarche analytique qui conduit à ce champ est expliquée en détail par J. Grilhé et N. Junqua [94] dans la situation décrite sur la figure (2.14). Elle ne sera pas rappelée ici. Le champ de contrainte est alors déterminé en considérant que la différence entre les modules élastiques du film mince et du substrat peut être négligée. Cette hypothèse sera admise par la suite étant données les propriétés élastiques proches du Mo et du W décrites dans le tableau (1.2). La composante de cisaillement de ce champ exprimé dans l’interface en $z = 0$ s’écrit alors [94] :

$$\sigma_{xz}^{ep}(x,0) = -\frac{\bar{E}_f \varepsilon_{ep}}{\pi} \left(\frac{h^2}{x^2 + h^2} \right). \quad (2.32)$$

Une dislocation au sein d’un matériau est elle-même la source d’un champ de contrainte qui peut être décrit dans le cadre de l’élasticité linéaire. Lorsqu’une dislocation est introduite à proximité d’une surface libre telle que celle qui est représentée en $x = 0$ sur la figure (2.14), ce champ doit être tel que la surface est en équilibre mécanique [93]. Pour satisfaire cette condition, il faut alors considérer le champ d’une dislocation image de vecteur de Burgers opposé (d’) symétrique de (d) par rapport à la surface verticale comme il est indiqué sur la figure (2.14). En toute rigueur, dans le cas d’une dislocation coin, le champ image total contient un terme supplémentaire

qui s'ajoute au champ de contrainte de la dislocation (d') ; il est cependant possible de montrer que ce terme ne travaille pas dans le plan de l'interface. La composante de cisaillement du champ image s'exprime alors en $z = 0$ [93] :

$$\sigma_{xz}^{im}(x,0) = \frac{\bar{E}_f b}{8\pi x}. \quad (2.33)$$

Il peut être intéressant de remarquer que l'expression de cette contrainte image est la même que celle établie par J. R. Rice et R. Thomson à proximité d'une pointe de fissure dans le cas où, comme il est considéré ici, la ligne de la dislocation est parallèle au front de fissure et son plan de glissement est confondu avec celui de la fissure [97].

Variation d'énergie normalisée

Le travail par unité de longueur $\Delta W(x)$ de la dislocation peut à présent être déterminé en considérant l'expression (2.20). Il faut simplement noter que la description continue de l'élasticité diverge en des points de singularité comme c'est le cas ici sur la surface verticale. Pour y remédier, un rayon de coupure x_0 en deçà duquel l'élasticité n'est plus valide est introduit. Usuellement, ce paramètre est pris de l'ordre du vecteur de Burgers b de la dislocation elle-même [93, 98]. Le travail $\Delta W(x)$ s'écrit alors :

$$\Delta W(x) = b \int_{-b}^x [\sigma_{xz}^{grad}(x',0) + \sigma_{xz}^{ep}(x',0) + \sigma_{xz}^{im}(x',0)] dx'. \quad (2.34)$$

Celui-ci peut s'exprimer sous la forme réduite $\Delta \bar{W}(\bar{x}) = \frac{\pi}{\bar{E}_f b^2} \Delta W(\bar{x})$ qui donne finalement :

$$\begin{aligned} \Delta \bar{W}(\bar{x}) &= \left(\frac{\bar{b} + \bar{x}}{\bar{b}} \right) \varepsilon_{grad} - \frac{(\varepsilon_c - \varepsilon_i - \varepsilon_{ep} + \bar{b}^2 \varepsilon_{grad})}{\bar{b}} \arctan \left[\frac{1}{\bar{b}} \right] \\ &- \frac{(\varepsilon_c - \varepsilon_i - \varepsilon_{ep} + \bar{x}^2 \varepsilon_{grad})}{\bar{b}} \arctan \left[\frac{1}{\bar{x}} \right] + \frac{1}{8} \ln \left(\left| \frac{\bar{x}}{\bar{b}} \right| \right), \end{aligned} \quad (2.35)$$

avec la position réduite $\bar{x} = x/h$ et le vecteur de Burgers réduit $\bar{b} = b/h$.

Dans la simulation Mo-W, le glissement Δ mesuré dans le plan médian du film mince est corrélé au déplacement élémentaire de la dislocation qui, lui, est mesuré dans le plan de l'interface et vaut le vecteur de Burgers $b = 0,27$ nm (voir figure (2.6)). Pour cette raison de géométrie, nous prendrons par la suite $\Delta \approx b/2$. Il est alors possible de montrer que l'expression du travail réduit donné par l'équation (2.35) ne dépend simplement que de 4 paramètres qui sont la déformation d'épitaxie $\varepsilon_{ep} = 0,57$ %, la longueur délaminée réduite $\bar{B} = B/h = 6,12$ (avec $B = 19,0$ nm

et $h = 3,10$ nm), le vecteur de Burgers réduit $\bar{b} = b/h = 0,087$ (avec $b = 0,27$ nm) et la déformation du film mince ε_i .

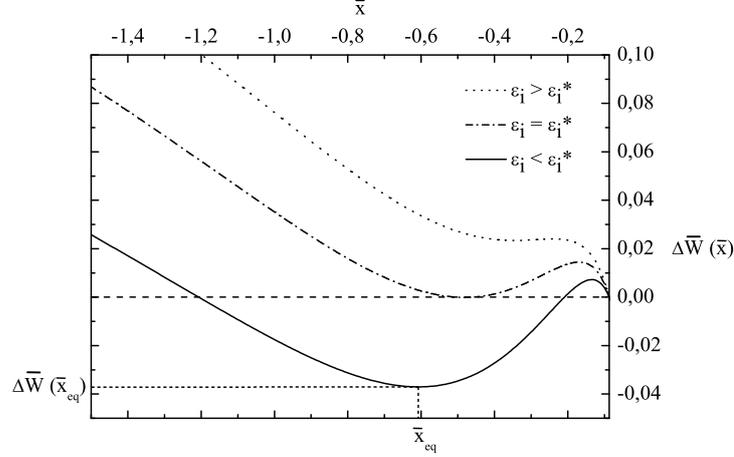


Figure 2.16 – Variation du travail réduit $\Delta\bar{W}(\bar{x})$ en fonction de \bar{x} , avec $\varepsilon_{ep} = 0,57$ %, $\bar{b} = 0,087$ et $\bar{B} = 6,12$ pour plusieurs valeurs de déformation ε_i .

Le travail réduit $\Delta\bar{W}(\bar{x})$ a été tracé en fonction de \bar{x} sur la figure (2.16) en utilisant les paramètres de la simulation Mo-W calculés ci-dessus, et ce pour différentes valeurs de déformation ε_i . Il existe ainsi une valeur critique ε_i^* définie par $\Delta\bar{W}(\bar{x}_{eq}) = 0$ à partir de laquelle une position d'équilibre énergétiquement favorable est obtenue en $\bar{x} = \bar{x}_{eq}$. Cette courbe présente également une barrière d'énergie qui doit être franchie pour permettre la nucléation de la dislocation. Cependant, comme il peut être observé sur la figure (2.15.b), la structure flambée donne lieu à un effet de traction verticale qui écarte les plans Mo et W de l'interface situés en pied de ride droite. Cet effet non linéaire n'est pas considéré dans le calcul de la variation d'énergie. Or d'autres travaux ont montré que la traction a pour conséquence de faciliter très significativement le cisaillement et donc la nucléation d'une dislocation dans un tel environnement [99, 100]. Il est possible à partir des simulations atomistiques de quantifier cet effet et de l'introduire dans le modèle continu; nous avons cependant souhaité conserver dans cette partie une approche purement analytique en supposant, d'après ce qui vient d'être dit, que la barrière d'énergie peut être négligée. Nous considérerons donc que la dislocation (d) est nucléée à ε_i^* dès qu'une position d'équilibre énergétiquement favorable est trouvée.

Nous allons par la suite étudier l'évolution du travail réduit $\Delta\bar{W}(\bar{x})$ en fonction de la déformation ε_i afin de caractériser la déformation critique de glissement ε_i^* à partir de laquelle la dislocation est introduite. Les paramètres pertinents qui vont contrôler le processus sont l'épaisseur du film via la grandeur $\bar{b} = b/h$ et sa déformation ε_i .

2.4.2 Déformation critique de glissement

Afin de rendre compte de l'influence de $\bar{b} = b/h$ et ε_i , trois autres simulations du système Mo-W ont été réalisées en maintenant fixes les grandeurs $\varepsilon_{ep} = 0,57\%$ et $\bar{B} = B/h = 6,12$. Pour cela, différentes épaisseurs de film ont été considérées : $h = 4,0; 6,3$ et $12,6$ nm dans des bicristaux de longueur $L_x = 98,7; 153,5$ et $307,0$ nm délaminés sur $2B = 49; 77$ et 154 nm respectivement. Les résultats de ces simulations sont qualitativement identiques à ceux du système Mo-W décrit dans la Section 2.2.1 ; le cloquage est observé à partir de la déformation critique $\varepsilon_c = -2,23\%$ (voir équation (2.12)), et une dislocation coin (d) est introduite dans la partie adhérente à partir d'une certaine déformation critique ε_i^* pour occuper ensuite des positions d'équilibre x_{eq} (exprimées sous la forme réduite $\bar{x}_{eq} = x_{eq}/h$). Ces dernières grandeurs ont été reportées sur la figure (2.17) en fonction de ε_i . Nous remarquons, en revanche, qu'elles diffèrent quantitativement d'un système à l'autre où $\bar{b} = b/h = 0,087; 0,068; 0,044$ et $0,022$. Une incertitude constante de $\pm 0,25$ nm a été prise en compte sur les positions qui tient compte de l'imprécision sur la localisation exacte de la pointe de fissure et celle des dislocations elles-mêmes du fait du léger étalement de leur cœur (voir figure (2.7)). Sur cette figure (2.17), nous avons également reporté les positions d'équilibre réduites \bar{x}_{eq} et les déformations critiques ε_i^* prédites par le modèle analytique et correspondant à $\Delta\bar{W}(\bar{x}_{eq}) = 0$. Ces grandeurs ont également été tracées en fonction de ε_i dans les différents cas $\bar{b} = b/h = 0,087; 0,068; 0,044$ et $0,022$.

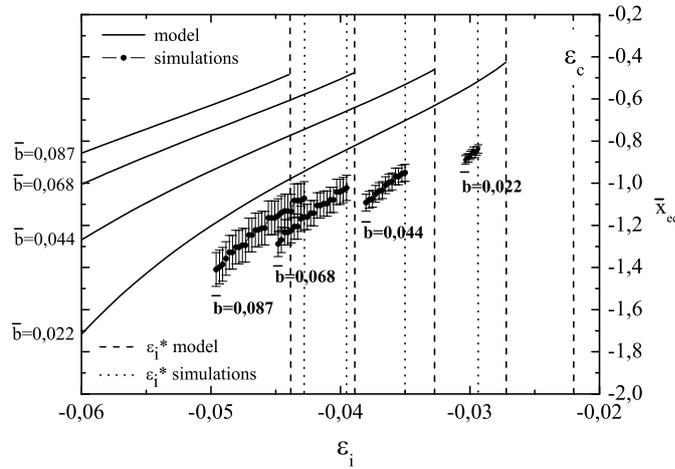


Figure 2.17 – Positions d'équilibre réduites \bar{x}_{eq} et déformations critiques de glissement ε_i^* données par le modèle et extraites des simulations en fonction de ε_i , avec $\varepsilon_{ep} = 0,57\%$ and $\bar{B} = 6,12$.

Les positions d’équilibre données par le modèle analytique se révèlent assez différentes de celles obtenues dans les simulations. Ces différences résultent probablement des approximations du modèle qui, rappelons-le, reste performant tant que $x > -h$, soit ici tant que $x_{eq} > -1$, du fait de la non prise en compte de la surface libre horizontale vue ici comme une autre interface. Cela semble être corroboré par le fait que, pour une valeur de vecteur de Burgers b donnée, plus l’épaisseur du film h augmente (ou $\bar{b} = b/h$ diminue), moins l’effet de la surface libre est important, et plus la valeur des positions d’équilibre extraites des simulations se rapprochent des valeurs prédites par le modèle. Qualitativement, nous obtenons bien une position d’équilibre à une distance de la pointe de fissure qui est de l’ordre de l’épaisseur du film mince, c’est-à-dire $\bar{x}_{eq} \approx 1$, comme il est effectivement observé dans les simulations des systèmes Mo-W. En outre, le modèle se révèle performant pour décrire les valeurs de déformations critiques ε_i^* qui sont en accord avec celles données par les simulations à $\pm 0,25$ % près (erreur absolue en % sur ε_i).

Nous avons finalement résumé la situation dans un diagramme de stabilité (\bar{b}, ε_i) qui est présenté sur la figure (2.18). Celui-ci montre les différentes configurations d’équilibre du bicristal prédites par le modèle lorsque $\varepsilon_{ep} = 0,57$ % et $\bar{B} = B/h = 6,12$. Les valeurs de déformation critique ε_i^* extraites des 4 simulations sont également reportées sur cette figure. Trois domaines sont ainsi identifiés. Lorsque la déformation est petite, le film reste dans son état initial plan sans dislocations interfaciales. Le flambage survient ensuite pour $\varepsilon_i^* < \varepsilon_i < \varepsilon_c$ alors que la partie encore adhérente du système reste vierge de toute dislocation. Lorsque $\varepsilon_i < \varepsilon_i^*$, une première dislocation est nucléée en pied de ride droite conduisant au mécanisme de glissement caractérisé précédemment.

Une des conclusions importantes de ce diagramme est que l’introduction de la dislocation apparaît d’autant plus favorable que le film est épais. Nous pouvons raisonnablement supposer que ce fait peut être étendu à des systèmes présentant des interfaces non cohérentes. Ainsi, notre travail suggère que le mécanisme de glissement corrélé à l’introduction ou l’expulsion de dislocations interfaciales joue vraisemblablement un rôle dans des systèmes cristallins de taille mésoscopique. Il apparaît de plus qu’une ride droite pourrait être une source originale de dislocations d’épitaxie qui permettent d’accommoder les déformations de l’interface film-substrat [101], et dont l’origine est encore discutée aujourd’hui [102, 103].

Nous venons ici de caractériser la déformation critique à partir de laquelle survient le mécanisme de glissement par l’introduction soudaine d’une première dislocation dans le cas particulier d’une interface très adhérente et initialement cohérente. Le glissement, qui est de l’ordre du vecteur de Burgers $\Delta \approx b/2$, peut alors être intégré

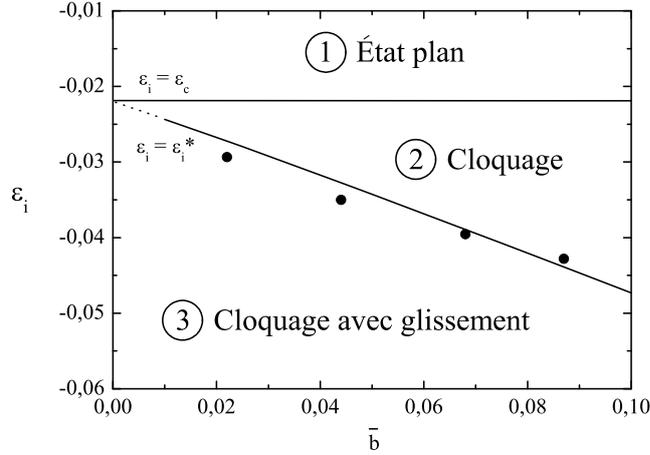


Figure 2.18 – Diagramme de stabilité (\bar{b}, ε_i) du système, avec $\varepsilon_{ep} = 0,57 \%$ et $\bar{B} = 6,12$. Les points noirs correspondent aux valeurs des déformations critiques ε_i^* extraites des quatre simulations Mo-W.

dans le formalisme de FvK pour décrire la forme de la ride droite comme il a été fait précédemment. Si le couplage entre le flambage et ce type d'événements plastiques est à présent bien caractérisé, il reste à expliquer ce qu'il advient dans les situations où le délaminage est également observé. Pour traiter cette question, nous allons nous appuyer sur les résultats de la simulation Cu-W faiblement adhérente détaillés dans la Section 2.2.2 afin d'étudier les effets du glissement sur le délaminage du film de son substrat.

2.5 Délaminage film-substrat

2.5.1 Taux de restitution d'énergie

Comme il est rappelé dans la Section 1.3, le délaminage film-substrat est décrit par le modèle de Griffith [24] qui consiste à comparer le taux de restitution d'énergie de la ride droite (ici avec glissement) à l'énergie d'adhésion du système. L'évolution phénoménologique de l'énergie d'adhésion avec la mixité modale ne sera pas considérée dans notre analyse. Nous reviendrons sur ce point plus loin. Le taux de restitution d'énergie de la ride droite G_g s'écrit alors :

$$G_g = -\frac{1}{L_y} \frac{\partial (U_g + U_{ad})}{\partial (2B)}, \quad (2.36)$$

où U_g et U_{ad} sont respectivement les énergies potentielles de la ride droite et de la partie encore adhérente du film mince lorsque le glissement est pris en compte.

Nous avons vu qu'en pied de cloque, l'interface Cu-W est en configuration cohérente (voir figure (2.9)). Par conséquent, nous considérerons que l'énergie d'adhésion vaut $\Gamma_{Cu-W} = 0,82 \text{ J.m}^{-2}$ (voir tableau (2.1)). En accord avec le modèle de Griffith, nous devons avoir $G_g = \Gamma_{Cu-W}$ à l'équilibre et observer le délaminage lorsque $G_g > \Gamma_{Cu-W}$.

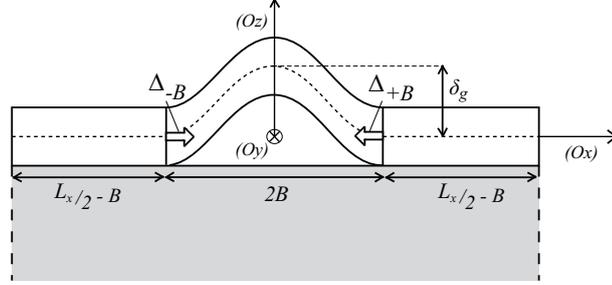


Figure 2.19 – Schéma du bicristal de longueur L_x suivant (Ox) composé du film monocristallin d'épaisseur h déformé sur $2B$. La flèche qui s'écrit δ_g tient compte des déplacements symétriques Δ localisés en $x = \pm B$ caractérisant le glissement.

En présence de glissement, l'expression de l'énergie de la ride droite est donnée par la relation (2.18) sous la forme $U_g = U_0 - hBL_y\bar{E}_f(\varepsilon_i - \varepsilon_c)^2 - 2h\Delta L_y\bar{E}_f\varepsilon_c$ avec $U_0 = hBL_y\bar{E}_f\varepsilon_i^2$. La longueur de la partie adhérente du film mince suivant (Ox) correspond à $L_x - 2B$ (voir figure (2.19)). L'énergie élastique U_{ad} de cette partie s'écrit alors comme une fonction quadratique de sa déformation uniaxiale ε_{xx}^{ad} :

$$U_{ad} = \frac{\bar{E}_f L_y}{2} \int_{-\frac{h}{2}}^{\frac{h}{2}} \int_0^{L_x-2B} (\varepsilon_{xx}^{ad})^2 dx dz. \quad (2.37)$$

Du fait du mécanisme de glissement, ε_{xx}^{ad} rend compte de la déformation initiale de la partie adhérente du film $\varepsilon_i < 0$ décomprimée d'une quantité $\varepsilon_{xx}^{relax} = \Delta/L_{relax}$ qui se répartit sur une longueur caractéristique de relaxation L_{relax} . En situation de faible résistance au glissement, L_{relax} se révèle plus grande que la distance moyenne qui sépare d'éventuels obstacles microstructuraux tels que des marches interfaciales, des joints de grain voire d'autres structures déformées [104]. Ceux-ci sont supposés éviter que la relaxation ne s'étende sur une longueur infinie. La grandeur L_{relax} rend alors compte de la distance moyenne qui sépare la ride de ces obstacles. Nous considérerons ici que $L_{relax} = L_x/2 - B$ avec L_x la taille caractéristique d'un grain monocristallin qui représente ici la longueur du cristal simulé (voir figure (2.19)). La déformation dans la partie adhérente s'écrit donc :

$$\varepsilon_{xx}^{ad} = \varepsilon_i + \varepsilon_{xx}^{relax} = \varepsilon_i + \frac{\Delta}{L_{relax}} = \varepsilon_i + \frac{\Delta}{L_x/2 - B}, \quad (2.38)$$

de sorte que finalement :

$$U_{ad} = h(L_x/2 - B) L_y \bar{E}_f \left(\varepsilon_i + \frac{\Delta}{L_x/2 - B} \right)^2. \quad (2.39)$$

Le taux de restitution d'énergie d'une ride droite en présence de glissement s'exprime alors à partir de l'expression (2.36) :

$$G_g = G_0 \left(1 - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_i} \right) \left(1 + 3 \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_i} \right) - \frac{G_0}{\varepsilon_i^2} \left[4\varepsilon_c \left(\frac{\Delta}{B} \right) + \left(\frac{\Delta}{L_x/2 - B} \right)^2 \right], \quad (2.40)$$

avec $G_0 = h\bar{E}_f\varepsilon_i^2/2$. Nous remarquons que ce terme dépend du glissement Δ , et que si $\Delta = 0$, alors G_g revient à l'expression classique du taux de restitution d'énergie d'une ride droite donnée dans la Section 1.3 :

$$G_e = G_0 \left(1 - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_i} \right) \left(1 + 3 \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_i} \right). \quad (2.41)$$

Dans la simulation du système Cu-W, le délaminage est observé du fait de la faible énergie d'adhésion $\Gamma_{Cu-W} = 0,82 \text{ J.m}^{-2}$. Dans ce cas, nous avons également montré que la «résistance au glissement rigide » est faible $\gamma_{Cu-W}^{gl} = 0,07 \text{ J.m}^{-2}$ ce qui justifie par ailleurs que le glissement ait lieu dès que le flambage survient et que celui-ci varie ensuite de façon continue avec la déformation, sans friction. Aussi, nous ferons l'hypothèse que si le glissement et le délaminage sont observés tous les deux, alors il est vraisemblable que le premier ne se produise qu'en évoluant continûment avec la déformation, sans dissiper d'autre énergie que celle que nous avons déjà considérée. Tout ce qui sera présenté par la suite repose sur cette hypothèse importante où nous corrélons le processus de délaminage au fait que le glissement se produise sans friction. Nous considérerons donc que la déformation uniaxiale dans la partie adhérente ε_{xx}^{ad} donnée par l'équation (2.38) est égale à la déformation uniaxiale dans la ride droite. Or il a été montré dans la Section 2.3.1 que cette dernière est précisément la déformation critique d'Euler ε_c donnée par l'équation (2.12) si bien que $\varepsilon_i + \Delta/(L_x/2 - B) = \varepsilon_c$. Nous obtenons alors :

$$\Delta = \left(\frac{L_x}{2} - B \right) (\varepsilon_c - \varepsilon_i). \quad (2.42)$$

Dans ce cas, le glissement varie bien de façon continue avec la déformation du film mince (les autres grandeurs étant constantes). En substituant cette expression dans

l'équation (2.40), le taux de restitution d'énergie s'écrit finalement :

$$G_g = 2G_0 \left(\frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_i} \right) \left(1 - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_i} \right) \frac{L_x}{B}. \quad (2.43)$$

2.5.2 Configurations d'équilibre

Afin de caractériser l'influence du glissement sur le processus de délaminage, nous avons comparé, en fonction de la demi-longueur délaminée B , l'évolution du rapport G_e/Γ_{Cu-W} (voir équation (2.41)) qui décrit la situation purement élastique sans glissement avec l'évolution du rapport G_g/Γ_{Cu-W} (voir équation (2.43)) qui décrit la situation où le glissement est pris en compte. Nous avons pour cela considéré plusieurs déformations ε_i et les paramètres de la simulation du système Cu-W où $h = 2,9$ nm, $B_0 = 19,0$ nm, $L_x = 76$ nm et $\Gamma_{Cu-W} = 0,82$ J.m⁻². Le module élastique $\bar{E}_f = 190,6$ GPa a quant à lui été déterminé lors d'un essai de déformation modèle du film mince suivant l'axe (Ox) de type $\langle 110 \rangle_{cfc}$.

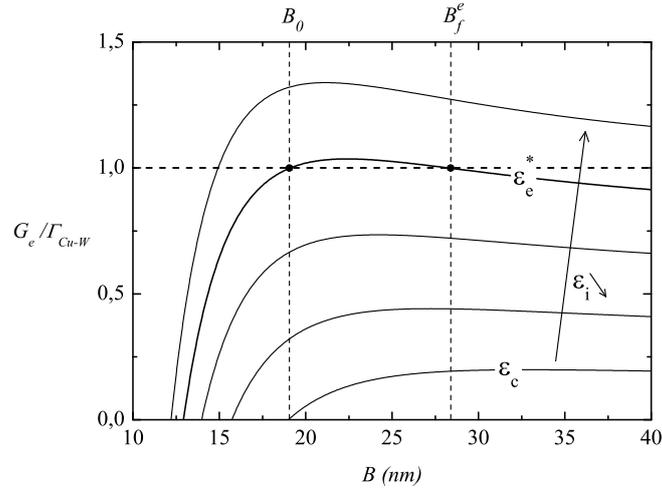


Figure 2.20 – Évolution du rapport G_e/Γ_{Cu-W} en fonction de B pour différentes valeurs de déformations ε_i en compression croissante. Les courbes sont obtenues à partir des données de la simulation du système Cu-W : $h = 2,9$ nm, $B_0 = 19,0$ nm, $\Gamma_{Cu-W} = 0,82$ J.m⁻² et $\bar{E}_f = 190,6$ GPa.

Considérons pour commencer la situation élastique sans glissement décrite sur la figure (2.20). À $\varepsilon_i = \varepsilon_c$, la partie délaminée du film passe de l'état plan à l'état flambé. À $B = B_0$ constant, le taux de restitution G_e s'accroît ensuite à mesure que la déformation ε_i diminue, et cela sans que le délaminage ne survienne. Celui-ci est observé au critère de Griffith à $G_e/\Gamma_{Cu-W} = 1$ quand la déformation vaut $\varepsilon_i = \varepsilon_e^*$ pour $B = B_0$. La zone délaminée B s'accroît alors à déformation constante ε_e^* comme le décrit la courbe $G_e(\varepsilon_e^*)/\Gamma_{Cu-W}$ qui augmente tout d'abord avant d'atteindre son

maximum, puis décroît en tendant finalement vers la valeur G_0/Γ_{Cu-W} lorsque $B \rightarrow +\infty$. Le délaminage s'arrête alors en $B = B_f^e$ quand le rapport $G_e(\varepsilon_e^*)/\Gamma_{Cu-W}$ est de nouveau égal à 1. Il est ensuite possible de décrire des demi-longueurs délaminées croissantes à mesure que la compression croît. Nous voyons cependant sur cet exemple que cette longueur peut diverger rapidement avec la déformation. Il est possible de montrer en particulier, comme il a déjà été fait dans la Section 1.3, que lorsque $G_0 \geq \Gamma_{Cu-W}$, cela conduit à une configuration instable dans laquelle les bords de la ride se propagent infiniment. Il faut alors tenir compte de l'influence de la mixité modale sur l'énergie d'adhésion pour justifier que les structures observées expérimentalement soient stables [26].

Qualitativement, ce modèle peut permettre de décrire les résultats de nos simulations. Quantitativement en revanche, la valeur de déformation critique de délaminage trouvée est d'environ $\varepsilon_e^* = -4,75\%$ ce qui est plus élevée que la valeur extraite de la simulation qui vaut $\varepsilon_d^* = -3,78\%$. De plus, le modèle élastique décrit une expansion de la zone délaminée bien plus importante que celle qui est observée dans la simulation au moment où le délaminage survient ; environ 10 nm ici contre à peine 1 nm dans la simulation. Voyons à présent ce qu'il en est lorsque le glissement est pris en compte.

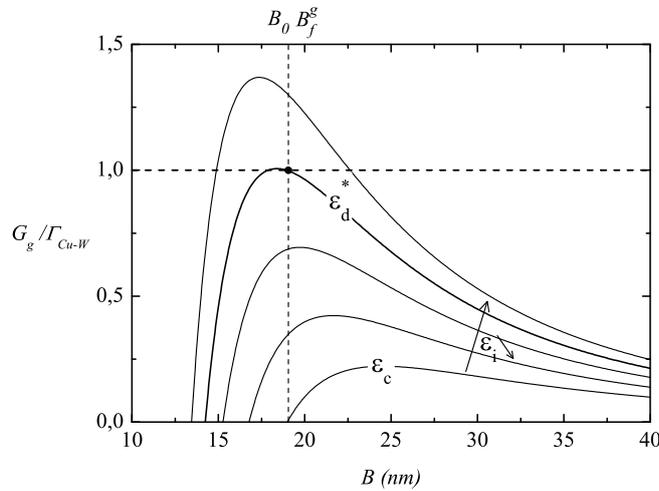


Figure 2.21 – Évolution du rapport G_e/Γ_{Cu-W} en fonction de B pour différentes valeurs de déformations ε_i en compression croissante. Les courbes sont obtenues à partir des données de la simulation du système Cu-W : $h = 2,9$ nm, $B_0 = 19,0$ nm, $L_x = 76$ nm, $\Gamma_{Cu-W} = 0,82$ J.m⁻² et $\bar{E}_f = 190,6$ GPa.

En tenant compte du glissement, nous obtenons la situation décrite sur la figure (2.21). Celle-ci reprend l'analyse qui a été faite précédemment en montrant l'évolution, pour différentes valeurs de déformations ε_i , du rapport G_g/Γ_{Cu-W} en fonction de B calculé à partir des données du système Cu-W. Comme précédemment,

G_g/Γ_{Cu-W} croît tant que la ride se forme lorsque $\varepsilon_i < \varepsilon_c$ et l'extension de la zone délaminée survient dès que $G_g/\Gamma_{Cu-W} = 1$ pour $\varepsilon_i = \varepsilon_d^*$ en $B = B_0$. Analytiquement, l'expression (2.43) donne d'ailleurs :

$$\varepsilon_d^* = \varepsilon_c + \frac{B\Gamma_{Cu-W}}{hL_x\bar{E}_f\varepsilon_c}. \quad (2.44)$$

Le calcul conduit alors à la valeur $\varepsilon_d^* = -3,84 \%$ qui se trouve être en très bon accord avec la valeur extraite de la simulation $\varepsilon_d^* = -3,78 \%$. Sur la figure (2.21), l'intersection entre la courbe $G_g(\varepsilon_d^*)/\Gamma_{Cu-W}$ et la valeur 1 ne se produit qu'après son point d'inflexion. Dans ce cas, le délaminage ne se manifeste pas par une ouverture brusque où B_0 passe soudainement à B_f^g , la zone pré-délaminée s'accroît simplement ensuite de façon continue à mesure que la compression augmente. En considérant des longueurs de système L_x plus grandes dans d'autres simulations, nous avons pu vérifier que lorsque l'égalité $G_g(\varepsilon_d^*)/\Gamma_{Cu-W} = 1$ était satisfaite avant le point d'inflexion, cela conduisait bien à une expansion soudaine de la zone délaminée pour une déformation constante ε_d^* . Nous avons de même pu observer que l'extension de la ride jusqu'à une longueur B_f^g était d'autant plus importante que L_x était grand du fait d'une quantité d'énergie plus importante à libérer. Dans tous les cas, l'évolution générale de G_g/Γ_{Cu-W} en fonction de B tend toujours vers zéro comme le montre la figure (2.21). En présence de glissement et contrairement au cas purement élastique, il semble donc exclu que la propagation des bords de la ride droite soit instable. Des configurations d'équilibre pour lesquelles l'extension de la zone délaminée croît continûment sont alors trouvées quelque soient les valeurs que prend par la suite la déformation ε_i . Il n'est ainsi pas nécessaire d'introduire une dépendance de l'énergie d'adhésion avec la mixité modale lorsqu'un mécanisme de glissement est attendu et qu'il s'effectue sans friction.

Pour vérifier que le délaminage est bien décrit par ce modèle, nous avons tracé sur la figure (2.22) l'évolution du rapport G_g/Γ_{Cu-W} en fonction de B calculé cette fois avec les grandeurs directement extraites des simulations. Nous confirmons alors que les configurations de la ride droite observées dans la simulation sont bien à l'équilibre ($G_g/\Gamma_{Cu-W} \approx 1$) et donc en accord avec le modèle de Griffith qui tient compte du mécanisme de glissement. Nous remarquons en revanche que le délaminage ne s'effectue pas de façon continue comme le prévoit le modèle mais par à-coups qui maintiennent cependant le rapport G_g/Γ_{Cu-W} autour de la valeur 1. Cet effet peut être attribué à un mécanisme dit de « piégeage de réseau » (ou « lattice trapping ») qui est dû à la nature atomique discrète de l'interface Cu-W [105, 106].

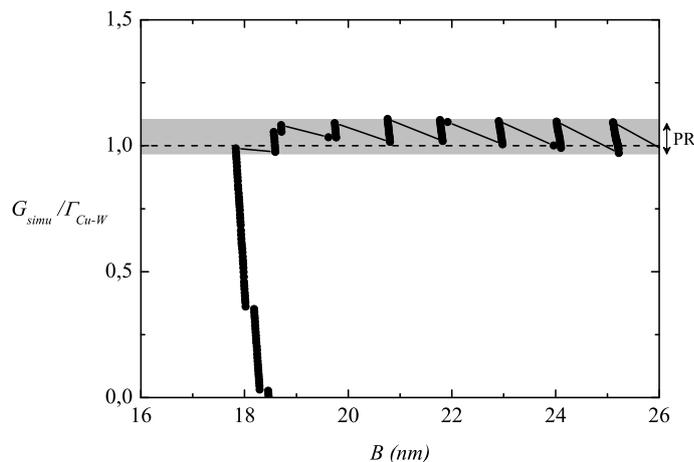


Figure 2.22 – Évolution du rapport G_g/Γ_{Cu-W} en fonction de B calculé à partir des grandeurs directement extraites de la simulation. L'intervalle en gris correspondrait à l'amplitude sur laquelle l'énergie d'adhésion est modulée du fait du mécanisme de piégeage de réseau (PR); phénomène qui expliquerait la nature discontinue du délaminage.

À cette échelle en effet, au cours du délaminage, les ruptures séquentielles des liaisons atomiques constituant l'interface vont mettre en jeu des termes énergétiques supplémentaires qui ne sont pas pris en compte dans le modèle continu de Griffith. L'énergie d'adhésion est alors modulée, via ces termes d'énergie, sur un intervalle qui reste cependant peu étendu (voir zone grise sur la figure (2.22)). Le délaminage peut donc s'opérer pour une valeur qui est légèrement supérieure à la valeur thermodynamique Γ_{Cu-W} , expliquant ainsi que le phénomène apparaisse discontinu.

Les résultats de la simulation Cu-W ont finalement été repris et comparés aux prévisions théoriques exposées précédemment. La longueur B se retrouve ainsi à partir du modèle de Griffith qui tient compte du glissement où $G_g(B) = \Gamma_{Cu-W}$ d'après l'expression (2.43). La figure (2.23.c) montre que la valeur théorique prédite par ce modèle reproduit correctement le résultat issu de la simulation. En tenant compte de cette évolution théorique de B , nous pouvons ensuite déterminer le glissement théorique à partir de l'expression $\Delta = (L_x/2 - B)(\varepsilon_c - \varepsilon_i)$ qui est donnée par l'équation (2.42). La figure (2.23.b) montre que là aussi, la valeur prédite par le modèle correspond à la valeur de la grandeur directement extraite de la simulation. Finalement, sur la figure (2.23.a), la flèche δ extraite de la simulation est comparée à l'expression $\delta_g = (4B/\pi)\sqrt{\varepsilon_c - \varepsilon_i + \Delta/B}$ donnée par l'équation (2.11) qui tient compte de l'évolution du glissement Δ théorique et de la longueur délaminée B théorique.

Nous confirmons ainsi dans cette partie que l'évolution de la flèche extraite de la simulation Cu-W dépend du mécanisme de glissement localisé en pied de ride droite

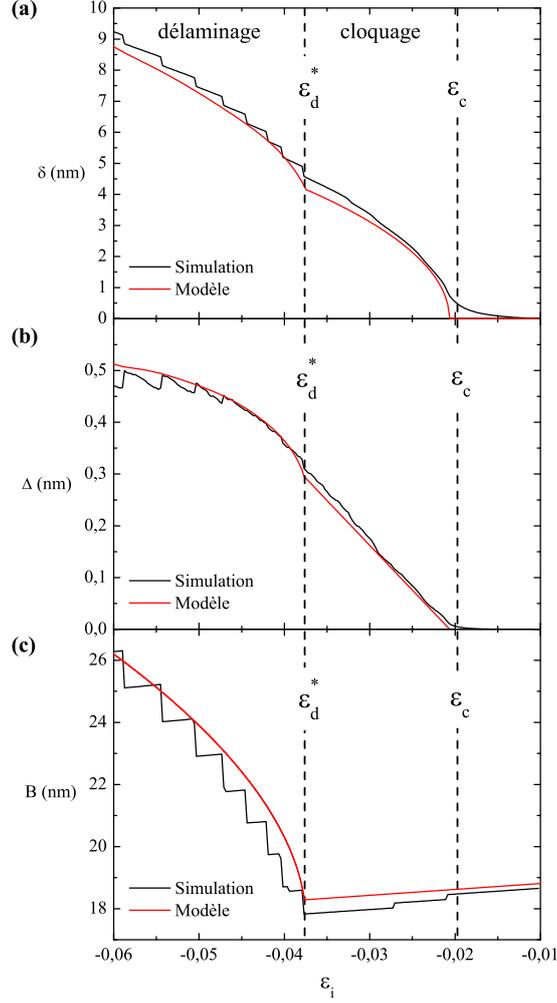


Figure 2.23 – (a) Déflexion maximale δ de la ride droite, (b) déplacement moyen Δ et (c) demi-longueur délaminée B du système Cu-W en fonction de la déformation ε_i . Les courbes théoriques de ces grandeurs tirées des équations (2.11), (2.42) et (2.43) ont également été représentées (en rouge). Les paramètres utilisés sont $h = 2,9$ nm, $B_0 = 19,0$ nm, $L_x = 76$ nm, $\Gamma_{Cu-W} = 0,82$ J.m⁻² et $\bar{E}_f = 190,6$ GPa

et peut être décrit dans le formalisme mésoscopique de FvK de manière satisfaisante. En outre, la déformation critique de flambage donnée par l'équation (2.12) conduit à $\varepsilon_c = (-\pi^2/12)(h/B)^2 = -1,96$ % (avec $B = (1 + \varepsilon_a) B_0$) qui est en très bon accord avec le résultat de la simulation (voir figure (2.23.a)). Pour décrire ce flambage, il faut alors tenir compte de l'évolution du glissement Δ et de la demi-longueur délaminée B en fonction de la déformation ε_i . Or, nous venons de démontrer que lorsque le glissement s'effectue sans friction, ces deux grandeurs peuvent être retrouvées théoriquement à partir des caractéristiques géométriques et physiques du système. Le glissement est alors bien décrit par l'expression $\Delta = (L_x/2 - B)(\varepsilon_c - \varepsilon_i)$ tout comme la demi-longueur délaminée B peut être retrouvée à partir d'une analyse

de Griffith (voir figures (2.23.b) et (2.23.c)), le « piégeage de réseau » expliquant les discontinuités observées dans la simulation. Nous retrouvons notamment par la simulation la déformation critique donnée par l'équation (2.44) à partir de laquelle le délaminage survient, $\varepsilon_d^* = \varepsilon_c + (B_0 \Gamma_{Cu-W}) / (h L_x \bar{E}_f \varepsilon_c) = -3,84 \%$. Dans ce cas, le couplage entre le flambage et le délaminage, qui peuvent être décrits dans un formalisme continu (FvK, Griffith), et les processus survenant à l'échelle atomique (glissement, dislocations) est globalement caractérisé.

2.5.3 Discussion

Avant de clore ce chapitre, nous nous proposons de discuter de manière générale du lien qui peut être fait entre le mécanisme de glissement et la mixité modale caractérisée par l'angle ψ . Nous considérons ici le cas d'une ride droite où le glissement s'effectue sans friction et où l'extension et l'arrêt du délaminage sont conditionnés par des obstacles microstructuraux tels que des joints de grain, des marches voire d'autres rides droites, qui permettent de fixer la longueur L_x . L'énergie d'adhésion du système est ici notée Γ .

Comme il est rappelé dans la Section 1.3, ψ rend compte de la proportion de mode II (cisaillement) par rapport au mode I (traction) lors de l'ouverture d'une fissure sollicitée mécaniquement. Or il est montré expérimentalement que l'énergie d'adhésion apparente d'une interface Γ augmente généralement lorsque la proportion de mode II croît par rapport au mode I [25] (voir figure (1.5) dans la Section 1.3). Phénoménologiquement, il est possible de rendre compte de ce phénomène en faisant dépendre l'énergie d'adhésion avec la mixité modale de sorte que $\Gamma(\psi) = f(\psi)\Gamma$ où f est une fonction empirique qui vaut 1 en mode I et tend vers l'infini en mode II ; par exemple $f(\psi) = 1 + \tan^2[\zeta \psi]$ avec ζ un paramètre à ajuster. Lors d'une analyse de Griffith, il faut alors considérer le taux de restitution d'énergie calculé dans le cas purement élastique G_e donné par l'équation (2.41). À l'équilibre, le critère de Griffith s'écrit donc $G_e = f(\psi)\Gamma$ et il est supposé que la fonction $f(\psi)$ rend compte de mécanismes dissipatifs qui sont ainsi quantifiés de façon phénoménologique. Cette approche permet d'expliquer dans le cas général les configurations d'équilibre d'une ride droite induisant un processus de délaminage.

Or, comme nous l'avons montré précédemment en considérant un mécanisme de glissement sans friction localisé en pied de ride droite, il n'est pas nécessaire d'introduire une dépendance de l'énergie d'adhésion avec la mixité modale pour décrire le processus de délaminage. Il suffit simplement d'introduire le glissement $\Delta = (L_x/2 - B)(\varepsilon_c - \varepsilon_i)$ dans le calcul du taux de restitution d'énergie G_g donné par l'équation (2.43) et d'appliquer le critère de Griffith dans sa forme la plus simple

$G_g = \Gamma$. Si nous supposons à présent que le mécanisme de glissement rend compte de la dépendance de l'énergie d'adhésion avec la mixité modale lorsque nous considérons le taux de restitution d'énergie purement élastique G_e , alors nous obtenons par identification $f(\psi) = G_e/G_g$ conduisant d'après les relations (2.41) et (2.43) à :

$$f(\psi) = \frac{B}{2L_x} \left(\frac{\varepsilon_i}{\varepsilon_c} + 3 \right). \quad (2.45)$$

Comme il est indiqué précédemment, pour que la fonction $f(\psi)$ rende compte d'une augmentation effective de l'énergie d'adhésion avec le cisaillement, il faut que sa valeur soit supérieure à 1. D'après la formule (2.45), cette condition dépend essentiellement des rapports B/L_x et $\varepsilon_i/\varepsilon_c$. Dans le cas d'une ride droite, J. W. Hutchinson et Z. Suo [26] ont montré en particulier que $f(\psi)$ augmente avec la compression $|\varepsilon_i|$. Pour que la condition $f(\psi) \geq 1$ soit satisfaite, il faut alors :

$$|\varepsilon_i| \geq \left(\frac{2L_x}{B} - 3 \right) |\varepsilon_c|. \quad (2.46)$$

Si nous considérons le cas des simulations où $L_x = 4B$, la fonction $f(\psi)$ est supérieure à 1 lorsque la déformation ε_i atteint $5\varepsilon_c$. Dès lors, il est envisageable que le glissement continu Δ tel qu'il est donné par l'équation (2.42) rende compte en partie de l'augmentation de l'énergie d'adhésion apparente avec la mixité modale dans certaines situations expérimentales. Le phénomène de glissement n'est en revanche pas suffisant pour expliquer ces observations lorsque $|\varepsilon_i| \leq 5|\varepsilon_c|$ voire lorsque L_x est grand par rapport à B . Dans cette situation au contraire, le glissement donne à voir une énergie d'adhésion apparente plus faible que sa valeur thermodynamique favorisant alors le processus de délaminage.

Cette situation n'en est pas moins intéressante. Nous montrons en effet ici que le glissement promeut le délaminage lorsque l'inégalité (2.46) n'est pas satisfaite. Il faut en particulier que la déformation critique à partir de laquelle survient ce délaminage $|\varepsilon_d^*|$ donnée par l'équation (2.44) reste inférieure à $(2L_x/B - 3) |\varepsilon_c|$. Nous obtenons alors une nouvelle condition qui relie la géométrie aux paramètres intrinsèques du bimatériau considéré :

$$\frac{\Gamma}{\bar{E}_f} \leq \frac{L_x}{B} \left(\frac{L_x}{B} - 4 \right) 2h\varepsilon_c^2. \quad (2.47)$$

Dans le cas de la simulation Cu-W discutée précédemment ($\Gamma_{Cu-W}/\bar{E}_f = 0,0043$ nm, $h = 2,9$ nm, $L_x/B = 4$ et $\varepsilon_c = -1,96$ %), cette inégalité est satisfaite ce qui confirme que le glissement a favorisé la survenue du délaminage. Pour un film d'épaisseur h suffisamment faible, le glissement retardera au contraire le phénomène d'autant plus significativement que Γ/\bar{E}_f est grand et/ou que L_x/B est petit. Ce

fait a été confirmé lors de la simulation d'un système Cu-W équivalente à celle que nous avons présentée auparavant où ont simplement été modifiés les rapports $\Gamma_{Cu-W}/\bar{E}_f = 0,0054$ nm et $L_x/B = 0,2$.

Rappelons enfin que l'analyse proposée ici repose sur le fait que le glissement peut être décrit comme variant de façon continue avec la déformation du film mince alors qu'aucun autre mécanisme de dissipation d'énergie n'est considéré. Au cours de ce travail de thèse, aucune des simulations que nous avons été amenées à réaliser n'a mis cette hypothèse en défaut. Il n'est cependant pas exclu que de telles situations puissent se présenter (notamment en présence de friction, lorsque le délaminage est observé avec des « résistances au glissement rigide » non négligeables). Il conviendra donc d'être prudent quant aux conclusions formulées dans ce manuscrit en gardant à l'esprit qu'il est possible que d'autres phénomènes puissent dissiper l'énergie lors du délaminage [107, 108].

2.6 Conclusion

Dans ce chapitre, deux bicristaux modèles ont été considérés pour étudier le couplage entre le flambage, le délaminage et la plasticité : le système Mo-W, et le système Cu-W. Dans les deux cas, un mécanisme de glissement affectant les atomes du film situés en pied de ride droite a été observé ; ceux-ci passant de la partie adhérente à la partie flambée du film mince. Ce glissement s'explique par le passage de dislocations dans le plan interfacial.

Dans le système Mo-W, ces dislocations sont introduites de façon discontinue dans une interface très adhérente. La déformation critique à partir de laquelle la première dislocation est observée a d'ailleurs pu être déterminée dans le cadre de l'élasticité linéaire. Le modèle prévoit que plus le film est épais, et plus le glissement survient à faible compression une fois le cloquage observé. Dans l'autre système Cu-W, ce sont les dislocations d'épitaxie préexistantes de l'interface initiale qui sont expulsées de manière continue du fait de l'absence de friction, corrélée aux faibles valeurs d'énergie d'adhésion et de « résistance au glissement rigide » du système. Dans les deux cas, il est montré, à partir du formalisme de Föppl-von Kármán, que le glissement influence la forme de la ride droite en accroissant sa déflexion maximale.

Pour expliquer l'extension de la zone initialement pré-délaminée dans le cas du système Cu-W, une analyse de Griffith a pu être réalisée en prenant en compte le mécanisme de glissement s'effectuant sans friction. Les résultats théoriques corroborent ceux des simulations et expliquent notamment que le délaminage puisse se propager de façon stable sans qu'il soit nécessaire d'introduire une dépendance de

l'énergie d'adhésion avec la mixité modale. Il est vraisemblable que notre modèle puisse s'appliquer à d'autres systèmes où le délaminage est observé, étant donné que la potentialité que ce délaminage se produise semble précisément être reliée au fait même que le glissement s'effectue sans friction (une faible énergie d'adhésion implique généralement une faible « résistance au glissement rigide »).

Chapitre 3

Cloquage induit par la plasticité du substrat

Dans ce troisième chapitre, nous nous intéressons à la question de la nucléation des structures de cloquage à l'aide de simulations atomistiques afin d'identifier les processus plastiques mis en jeu à l'échelle atomique pouvant initier le phénomène. Afin de mener cette étude, nous avons considéré un système modèle constitué d'un film mince de molybdène (Mo) déposé sur un substrat de tungstène (W). Contrairement à ce qui a été fait jusqu'à présent, aucune zone pré-délaminée n'est introduite dans l'interface initiale, l'idée étant précisément d'expliquer comment une telle zone est susceptible de se former.

3.1 Des faits expérimentaux

Comme il est rappelé dans l'introduction générale, il existe un certain nombre d'hypothèses pour expliquer la formation d'une zone délaminée au dessus de laquelle le flambage d'un film mince peut ensuite être observé. Dans le cas particulier des substrats cristallins, il semble que l'origine du processus puisse s'expliquer par l'émergence de marches dans l'interface film-substrat comme en témoignent des résultats expérimentaux obtenus au sein du laboratoire par F. Foucher et C. Coupeau. Des films minces de Ni (nickel) épais de 20 nm ont été déposés par des techniques de pulvérisation sur la surface (001) d'un substrat cristallin de fluorure de lithium (LiF). La contrainte résiduelle au sein du film a été estimée à partir d'une méthode de courbure autour de 4 GPa en compression. L'échantillon a ensuite été déformé à température ambiante jusqu'à 2 % de déformation plastique en appliquant une compression uniaxiale le long de la direction cristallographique [100]. Le système de glissement primaire activé dans le LiF est de type $\{110\} < 110 >$. Il est tel que

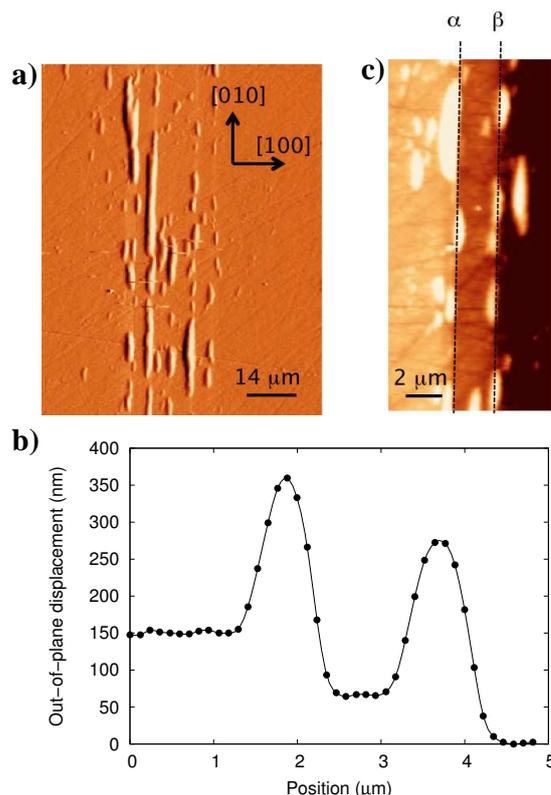


Figure 3.1 – Observations AFM d’un film mince Ni épais de 20 nm déposé sur un substrat cristallin LiF après déformation. (a) Structures de cloquage alignées le long de marches. (b) Mesures de la déflexion du film montrant deux rides droites au dessus de marches. (c) Naissance de rides au niveau des parties supérieure et inférieure de deux marches α et β . (Remerciement à F. Foucher)

les lignes de glissement se forment le long de la direction $[010]$ perpendiculaire à l’axe de compression. Il résulte de l’émergence des dislocations dans l’interface film-substrat la formation de marches dont la hauteur est de l’ordre de quelques dizaines de nanomètres.

Les surfaces des échantillons comprimés ont ensuite été caractérisées par microscopie à force atomique (AFM). Les observations montrent que le cloquage du film mince survient préférentiellement juste à l’aplomb des marches comme le montre la figure (3.1.a). Les structures cloquées se sont ensuite propagées suivant la direction $[010]$ sur une distance allant de quelques centaines de nanomètres à plusieurs micromètres, conduisant à la formation de rides droites. Les profils caractéristiques de deux rides sont reportés sur la figure (3.1.b); leur hauteur δ ainsi que leur demi-longueur B ont été estimées à environ 200 nm et 600 nm respectivement. Les bords de chaque structure cloquée ne se situent pas à la même altitude ce qui témoigne d’une dénivellation attribuée à l’émergence de dislocations dans l’interface, dont le nombre est estimé à 350 dans ce cas.

Deux des marches induites par l’émergence des dislocations ont été schématisées

par des lignes en pointillés α et β sur la figure (3.1.c). Nous observons ainsi que les cloques rectilignes s’étendent perpendiculairement aux marches et cela de façon non symétrique ; soit d’un côté, soit de l’autre (ligne α), ou bien des deux côtés à la fois (ligne β). Il semble ainsi que le délaminage et le flambage du film mince puissent être causés par la formation de marches à l’interface film-substrat. Ce chapitre a pour but de vérifier cette hypothèse en caractérisant notamment les mécanismes mis en œuvre lors de l’initiation du délaminage. Pour ce faire, nous avons réalisé des simulations atomistiques qui nous ont permis de former une marche interfaciale induite par le passage de dislocations au sein du substrat.

3.2 Simulation du cloquage induit par la formation d’une marche

Pour former une marche à partir des simulations atomistiques, nous avons procédé de la façon suivante. Un bimatériau modèle Mo-W a été construit à partir d’un cristal de molybdène (Mo) et un autre de tungstène (W), tous deux cubiques centrés (cc) présentant des orientations cristallographiques identiques dans le plan de l’interface. Plusieurs dislocations de vecteur de Burgers de type $\frac{1}{2}\langle 111 \rangle_{cc}$ ont ensuite été successivement introduites dans un plan de glissement de type $\{110\}_{cc}$. Pour mettre en mouvement chacune de ces dislocations, nous avons appliqué une contrainte uniaxiale sur l’ensemble du bicristal de sorte qu’il apparaisse une contrainte résolue non nulle dans le plan de glissement. Chacune des dislocations mises en mouvement a ainsi atteint l’interface film-substrat dans laquelle elle est restée piégée. Les dislocations considérées présentent un caractère non-vis qui permet la formation d’une marche dont la hauteur dépend finalement du nombre de dislocations envoyées ainsi que de l’angle entre le plan de glissement et l’interface.

L’avantage de cette procédure est qu’elle permet de contrôler de façon simple la formation d’une marche dans l’interface tout en étant suffisamment proche de ce qui se passe dans les expériences. Il est donc important de souligner ici que nous n’avons pas cherché à caractériser en détail les mécanismes de plasticité du tungstène dont l’étude est hors du cadre de ce travail. Le substrat a d’ailleurs été maintenu dans un état de compression suffisamment faible par rapport à celui du film afin qu’aucun autre événement plastique ne vienne entraver l’analyse des mécanismes mis en jeu lors de l’initiation du délaminage.

3.2.1 Construction du bicristal

Le bicristal Mo-W que nous avons considéré dans ce chapitre est présenté sur la figure (3.2). Dans le repère orthonormé défini par les vecteurs unitaires \vec{u}_x , \vec{u}_y et \vec{u}_z , l'interface est dans le plan (O,x,y) . Ce système est équivalent à celui présenté dans le chapitre précédent. Ses caractéristiques géométriques et physiques sont précisées dans le tableau (3.1).

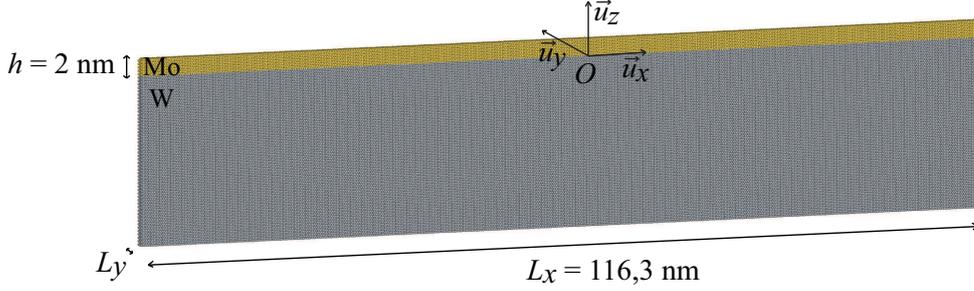


Figure 3.2 – Bicristal modèle utilisé dans la simulation. Le film mince (Mo) est en jaune et le substrat (W) en gris.

Expérimentalement, l'origine du cloquage est généralement attribuée à l'accumulation de fortes contraintes internes au sein du film mince. Pour nous placer dans cette situation, le film Mo a été initialement pris dans un état de compression significatif suivant (Ox) alors que le substrat W a été maintenu dans un état non déformé afin d'éviter la survenue des événements plastiques non contrôlés. La déformation initiale du film mince suivant (Ox) se calcule ainsi en prenant le substrat comme référence (voir tableau (3.1)) :

$$\varepsilon_{xx}^r = \frac{150 \times a_x^W - 158 \times a_x^{Mo}}{158 \times a_x^{Mo}} = -4,52\%. \quad (3.1)$$

Dans la direction (Oy) , l'interface est cohérente et la déformation résiduelle vaut $\varepsilon_{yy}^r = 0,57\%$ en accord avec les paramètres cristallographiques des matériaux présentés dans le tableau (3.1).

Le système a été relaxé par gradient conjugué (voir paragraphe 1.1.2) en maintenant fixes les dimensions de l'interface et en autorisant le déplacement des atomes dans toutes les directions. Des conditions aux limites périodiques ont été considérées suivant (Ox) et (Oy) . Pour simuler les interactions entre atomes, nous avons utilisé les potentiels EAM décrits dans la Section 1.1.1 en choisissant un potentiel mixte qui donne une énergie d'adhésion faible de $0,29 \text{ J.m}^{-2}$ en situation cohérente qui permet notamment le piégeage des dislocations dans l'interface film-substrat [109, 110]. La minimisation est stoppée lorsque les forces qui s'exercent sur chaque

Système	Mo-W	
Interface	$(110)_{cc} // (110)_{cc}$	
Type	Film Mo	Substrat W
(Ox)	$[1\bar{1}\bar{2}]$	$[1\bar{1}\bar{2}]$
(Oy)	$[\bar{1}\bar{1}1]$	$[\bar{1}\bar{1}1]$
(Oz)	$[110]$	$[110]$
a_0	0,315 nm	0,317 nm
a_x	$a_0\sqrt{6} = 0,771$ nm	$a_0\sqrt{6} = 0,775$ nm
a_y	$a_0\sqrt{3}/2 = 0,273$ nm	$a_0\sqrt{3}/2 = 0,274$ nm
a_z	$a_0\sqrt{2} = 0,445$ nm	$a_0\sqrt{2} = 0,448$ nm
Nb. (Ox)	158	150
Nb. (Oy)	5	5
Nb. (Oz)	5	50
L_x	$150 \times a_x^W = 116,3$ nm	
L_y	$5 \times a_y^W = 1,371$ nm	
h	2,0 nm	
ε_{xx}^r	- 4,52 %	
ε_{yy}^r	+ 0,57 %	
Γ_{Mo-W}	0,29 J.m ⁻²	

TABLE 3.1 – Caractéristiques géométriques et physiques du système Mo-W. Le paramètre de maille du matériau dans sa structure cubique élémentaire est a_0 . Les nombres (Nb.) de mailles utilisées pour générer l'interface suivant (Ox) et (Oy) , et l'épaisseur du bicristal suivant (Oz) ont pour dimensions a_x , a_y et a_z respectivement. Les dimensions de l'interface sont L_x et L_y . L'épaisseur du film est donnée par h . Les déformations résiduelles du film suivant (Ox) et (Oy) sont notées ε_{xx}^r et ε_{yy}^r et ont été calculées par rapport aux dimensions de W non déformé. L'énergie d'adhésion de l'interface en situation cohérente s'écrit Γ_{Mo-W} .

atome est inférieure à 10^{-3} eV.nm⁻¹. Le système présente un substrat suffisamment épais pour permettre ensuite l'introduction des dislocations. En résumé, le film de molybdène est initialement comprimé de $\varepsilon_{xx}^r = -4,52$ %, il a pour épaisseur $h = 2,0$ nm et comme longueur $L_x = 116,3$ nm.

3.2.2 Formation d'une marche dans l'interface

La marche est créée dans l'interface Mo-W suite à l'introduction de dislocations dans le substrat de W. Le processus est réalisé en deux étapes :

- Une dislocation de vecteur de Burgers $\vec{b} = \frac{1}{2} [111]$ est introduite à mi-hauteur du substrat dans un plan $(\bar{1}01)_{cc}$ faisant un angle de 60° avec le plan interfacial comme le montre la figure (3.3.a). Pour cela, nous avons employé une procédure

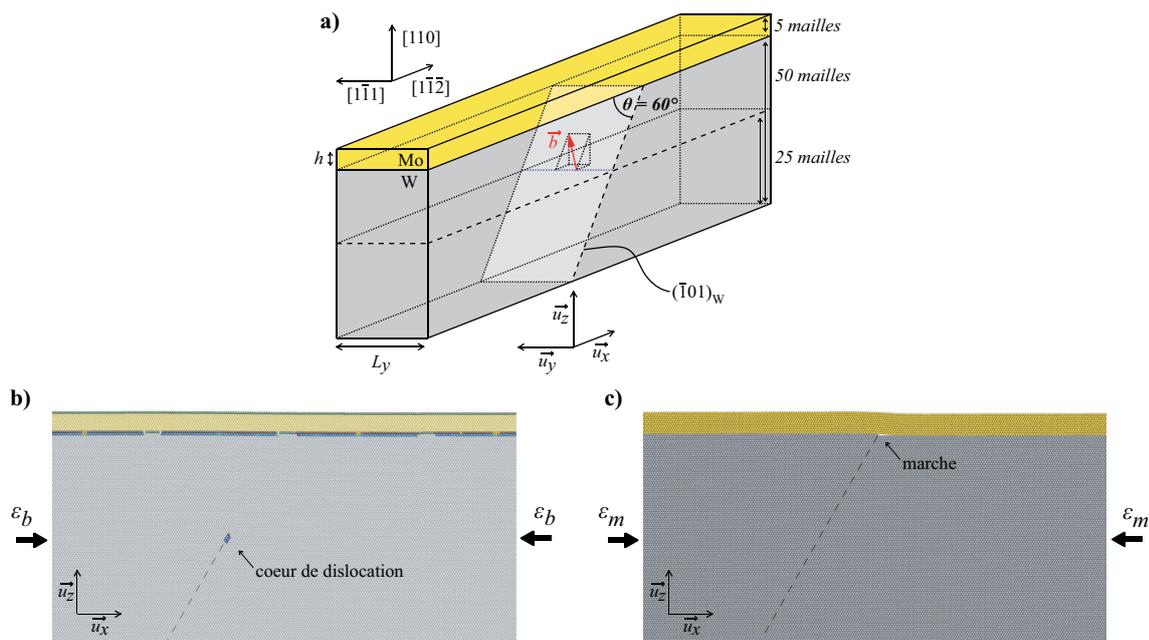


Figure 3.3 – (a) Schéma présentant les caractéristiques géométriques des dislocations introduites dont le vecteur de Burgers est indiqué en rouge. (b) Partie centrale du bicristal où le cœur de la première dislocation est repéré par les atomes colorés qui ne se trouvent pas dans un environnement cubique centré [91]. L'application de la déformation ε_b permet de maintenir la dislocation au milieu du substrat (voir texte). (c) La dislocation est déplacée suite à l'application d'une déformation ε_m sur l'ensemble du système. Celle-ci reste finalement piégée dans l'interface en formant une marche dont la hauteur correspond à celle d'une monocouche atomique de W.

de type Volterra [111] qui consiste à couper le substrat suivant le plan de glissement considéré depuis la face libre inférieure jusqu'à la position souhaitée du cœur de la dislocation. Les deux parties résultantes ont ensuite été déplacées l'une par rapport à l'autre de la valeur du vecteur de Burgers $\vec{b} = b_x \vec{u}_x + b_y \vec{u}_y + b_z \vec{u}_z$. Le système a par la suite été comprimé d'une quantité $\varepsilon_b = -\frac{b_x}{L_x}$ suivant (Ox) qui correspond à la variation de dimension du bicristal entièrement cisailé par le passage de la dislocation. Pour relaxer le cœur de la dislocation, une procédure de minimisation par gradient conjugué a finalement été réalisée. Une fois la relaxation terminée, la dislocation reste piégée au milieu du substrat comme le montre la figure (3.3.b) et il a été vérifié que son champ de déplacement était similaire au champ théorique décrit par J. P. Hirth et J. Lothe [93].

- Le bicristal est ensuite déformé suivant (Ox) d'une quantité ε_m (inférieure à 2 %). Dans le plan de glissement, il apparaît une contrainte résolue non nulle qui permet à la dislocation de se déplacer de son lieu d'origine à l'interface. L'énergie d'adhésion de celle-ci est alors suffisamment faible pour que la dislocation y reste piégée, comme en témoigne la figure (3.3.c). Des systèmes iden-

tiques testés avec la même procédure nous ont permis par ailleurs de montrer que les dislocations traversent l'interface lorsque l'énergie d'adhésion dépasse environ $0,5 \text{ J.m}^{-2}$ en situation cohérente.

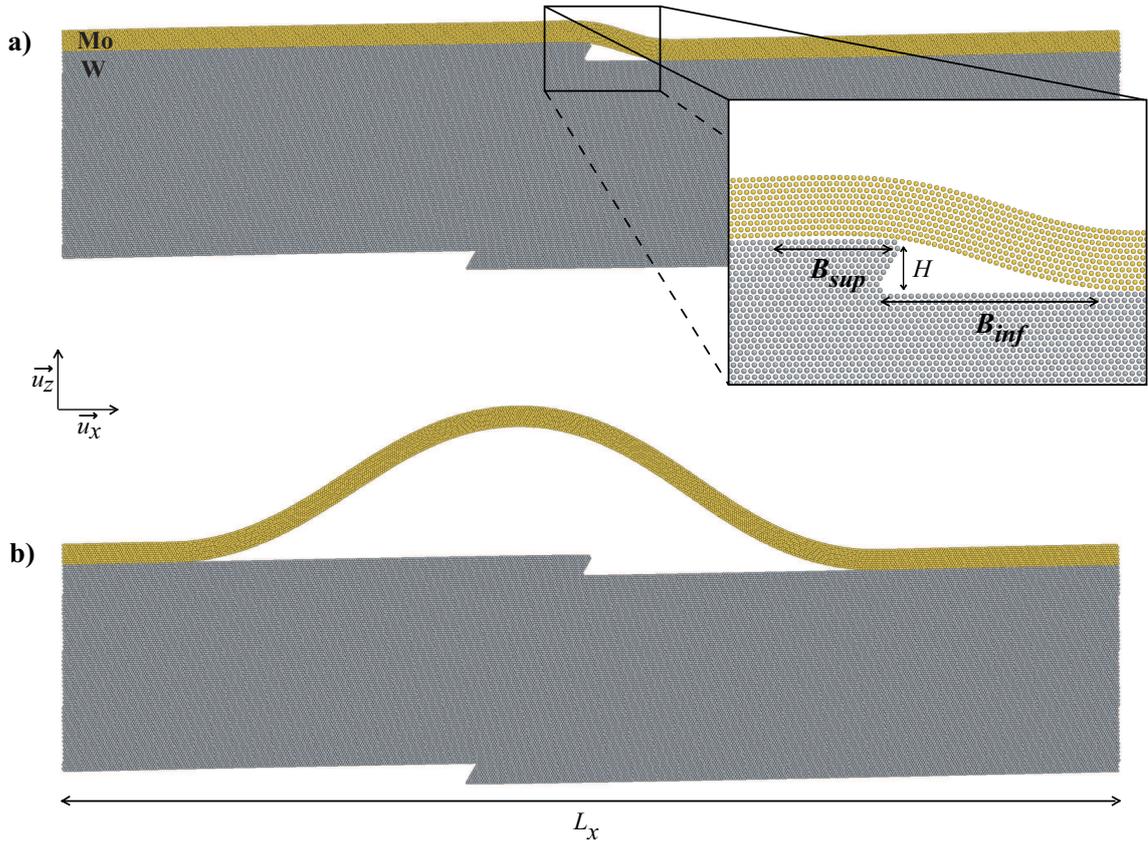


Figure 3.4 – Délaminage et flambage induit par l'émergence d'une marche dans le système Mo-W. (a) Décohésion interfaciale sur la partie supérieure gauche (B_{sup}) et la partie inférieure droite (B_{inf}) de la marche. (b) Flambage du film mince après formation de la marche.

En répétant ces deux opérations N fois, N dislocations sont introduites dans le même plan de glissement ce qui conduit à l'émergence d'une marche dont la hauteur vaut finalement $H = N \times b_z$ (voir figure (3.4.a) où $N = 9$ dislocations). Avant chaque nouvelle introduction de dislocation, la déformation ε_m ayant permis de déplacer la précédente a été ôtée alors que la déformation ε_b qui a permis de la maintenir au milieu du substrat a été conservée. La déformation au sein du film mince ε_i suivant (Ox) évolue donc au cours de la simulation. Aussi, après le passage de la $N^{i\text{ème}}$ dislocation et en ne conservant que les termes de premier ordre, nous montrons que ε_i peut s'écrire :

$$\varepsilon_i \approx \varepsilon_{xx}^r + N\varepsilon_b + \varepsilon_m. \quad (3.2)$$

L'accumulation des dislocations dans l'interface a pour conséquence la formation d'une marche de hauteur H croissante qui conduit à la décohésion du film de son substrat. À partir d'une certaine hauteur de marche et de déformation ε_i dans le film mince, le flambage est finalement observé comme le montre la figure (3.4.b). La simulation a été arrêtée une fois cette configuration obtenue.

3.2.3 Du délaminage au flambage

La configuration d'équilibre du bicristal après la formation de la marche est présentée sur la figure (3.4.a). Nous observons en premier lieu que le délaminage du film survient sur le côté inférieur droit de la marche. La longueur suivant (Ox) correspondant à cette zone délaminée est appelée B_{inf} . Celle-ci grandit à mesure que la hauteur de marche H croît en suivant une évolution de type $B_{inf} \propto \sqrt{H}$. Cette variation, reportée sur la figure (3.5), est similaire à celle qui serait trouvée dans le cas plus simple où le film serait assimilé à un bras de levier qui serait encastré d'un côté alors qu'un déplacement vertical serait imposé de l'autre [11]. Pour extraire cette grandeur, nous avons considéré qu'une région était délaminée lorsque les monocouches de Mo et de W qui constituaient l'interface s'écartaient de plus de 0,04 nm par rapport à leur configuration initiale.

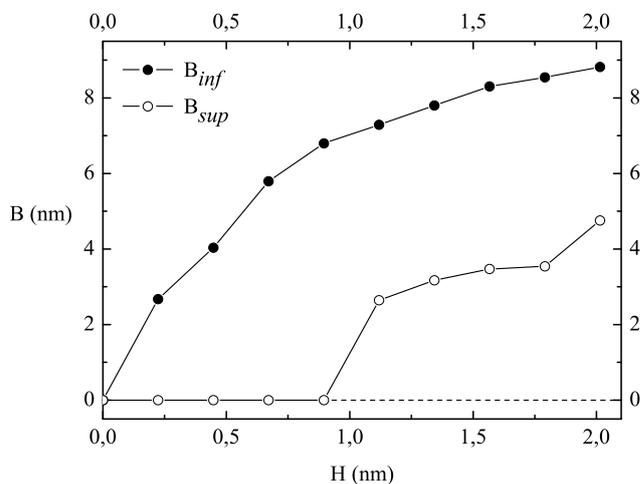


Figure 3.5 – Longueurs délaminées B_{inf} et B_{sup} extraites de la simulation et présentées en fonction de la hauteur de marche H .

À mesure que H augmente, nous constatons ensuite que l'interface se délamine sur le côté supérieur gauche de la marche (voir l'encart de la figure (3.4.a)). La longueur correspondante appelée B_{sup} a elle aussi été tracée en fonction de H sur la figure (3.5) et a été extraite avec le même critère de délaminage que celui utilisé

pour B_{inf} . Si celui-ci permet d'extraire la valeur de B_{inf} avec une faible incertitude, il introduit en revanche une certaine marge d'erreur sur la valeur de B_{sup} du fait de la très faible déflexion du film mince en cet endroit du système. Il peut être estimé malgré cette limitation que B_{sup} reste toujours inférieure à B_{inf} . L'ouverture sur la partie supérieure suivant B_{sup} s'expliquerait alors par la présence d'un moment de flexion au sein du film qui serait induit par la partie inférieure du film mince déjà délaminé sur B_{inf} .

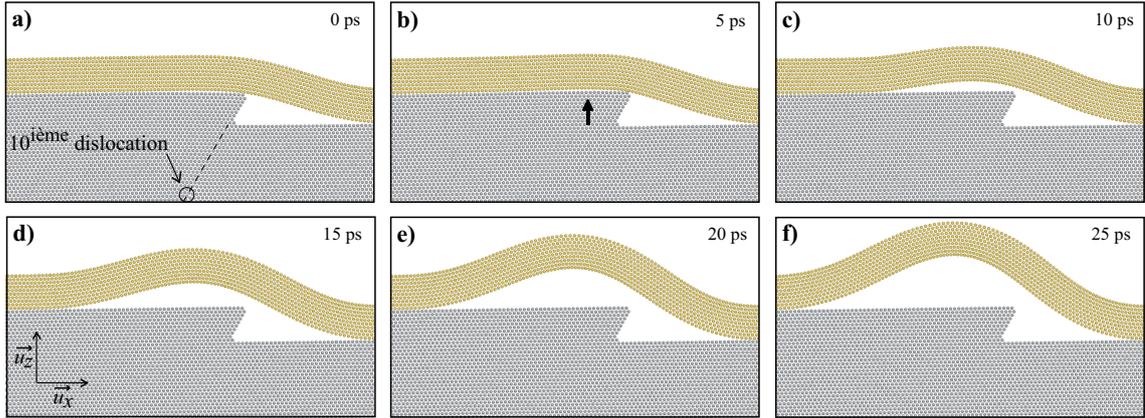


Figure 3.6 – Évolution cinématique du bicristal Mo-W au moment de l'initiation du flambage. (a) La 10^{ième} dislocation introduite se déplace dans son plan de glissement en direction de l'interface. (b) La dislocation atteint l'interface et fait grandir la marche d'une monocouche atomique ce qui provoque le flambage du film initié au niveau de la partie supérieure gauche du système (flèche noire). (c-d) Évolution du film au cours du cloquage.

Finalement, lorsque H atteint la valeur de 2,24 nm (correspondant à $N = 10$ dislocations), le flambage est observé pour une déformation au sein du film qui vaut $\varepsilon_i = -6,42\%$ (voir figure 3.4.b). Pour caractériser la transition entre l'état du film reposé et son état flambé, nous avons réalisé une simulation de dynamique moléculaire à 1 Kelvin (voir Section 1.1.2) en partant de la configuration d'équilibre présentée sur la figure (3.4.a) et en comprimant le système suivant (Ox) à la vitesse de déformation $\dot{\varepsilon} = 10^{-7} s^{-1}$. L'évolution dynamique du système est donnée par les différents clichés extraits de la simulations et présentés sur la figure (3.6). Elle montre que le cloquage est initié au niveau de la partie supérieure gauche de la marche où la longueur B_{sup} a été mesurée. La façon dont est initié le processus de délaminage sur la marche permettrait ainsi d'expliquer la dissymétrie de la structure cloquée vis-à-vis de la marche telle qu'elle est observée sur la figure (3.4.b).

3.2.4 Caractérisation d'un mécanisme de glissement

Sur la figure (3.7), le profil du système juste avant l'observation du flambage montre que l'émergence de la marche induit un déplacement latéral $\Delta_m = H/\tan\theta$

qui concerne le côté gauche du bicristal. Ce déplacement a pour effet d'accroître la compression dans la partie délaminée du film mince d'une quantité qui dépend ainsi de la géométrie de la marche et donc des systèmes de glissement activés au sein du substrat. Ce phénomène a déjà été considéré par Foucher *et al.* dans des travaux antérieurs pour expliquer la localisation préférentielle des structures de cloquage au dessus de marches [59].

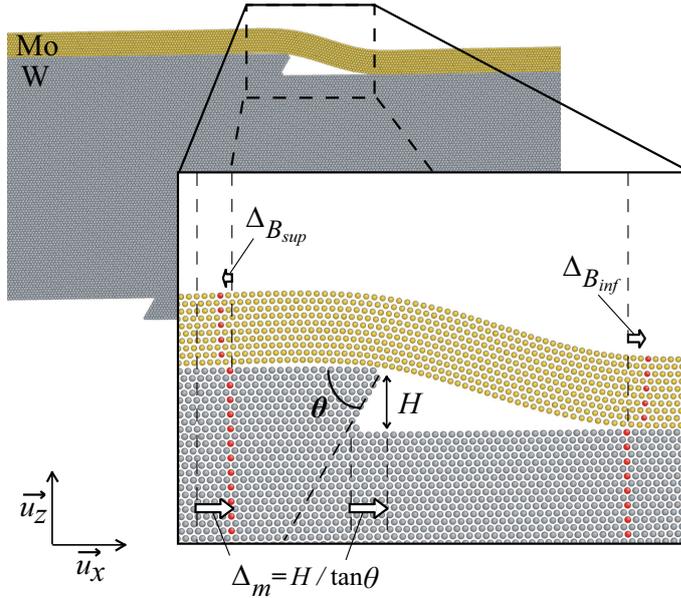


Figure 3.7 – Configuration d'équilibre du système Mo-W juste avant le flambage. La grandeur Δ_m rend compte du déplacement géométrique suivant (Ox) dû à la marche. Les grandeurs $\Delta_{B_{sup}}$ et $\Delta_{B_{inf}}$ sont les déplacements additionnels dus au mécanisme de glissement qui affectent les atomes du film situés respectivement en $x = -B_{sup}$ et $x = B_{inf}$.

Dans la simulation cependant, nous observons qu'un mécanisme de glissement supplémentaire, qui concerne les atomes situés aux bords de la structure délaminée, survient également. Une illustration de ce phénomène est proposée sur la figure (3.7) où une rangée verticale d'atomes, alignés dans leur configuration initiale, a été colorée en rouge. Ce mécanisme de glissement s'apparente au processus de relaxation qui a été décrit dans le chapitre précédent (voir Section 2.2.1). Il réduit la compression dans la partie délaminée du film mince qui est induite par l'émergence de la marche. En prenant les atomes du substrat comme référence, nous définissons alors la grandeur $\Delta_{gliss} = \Delta_{B_{sup}} - \Delta_{B_{inf}}$ comme contribution supplémentaire de glissement sur le déplacement latéral Δ_m , avec $\Delta_{B_{sup}}$ et $\Delta_{B_{inf}}$ qui correspondent aux déplacements des atomes du film mince mesurés dans le plan médian respectivement en $x = -B_{sup}$ et $x = B_{inf}$ (voir figure (3.7)).

Entre la configuration plane sans marche, et la situation où celle-ci s'est formée, le déplacement latéral en pied de structure s'exprime donc comme la somme du

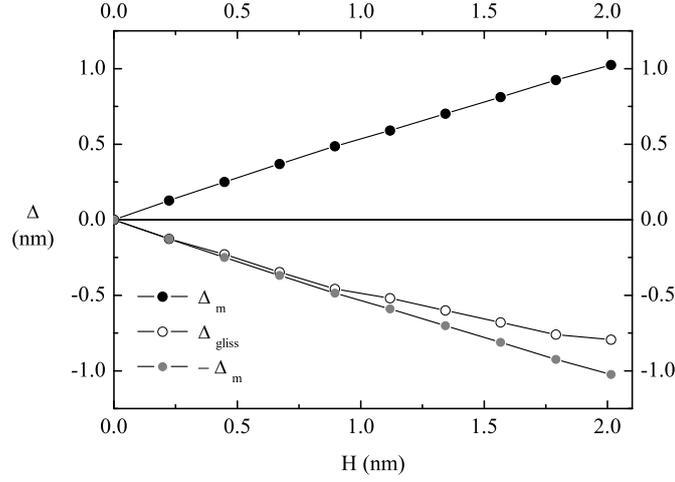


Figure 3.8 – Déplacement $\Delta_m = H/\tan\theta$ et glissement total $\Delta_{gliss} = \Delta_{B_{sup}} - \Delta_{B_{inf}}$ en fonction de la hauteur de marche H . La courbe $-\Delta_m$ montre que $\Delta_{gliss} \approx -\Delta_m$ signifiant que la compression due à l’émergence de la marche est presque entièrement compensée par le glissement dans la simulation.

déplacement géométrique dû à la marche Δ_m et du glissement traduisant la décompression de la partie délaminée du film mince Δ_{gliss} . Ces deux grandeurs algébriques extraites de la simulation ont été reportées sur la figure (3.8) en fonction de la hauteur de la marche H . Nous nous attendons à ce que Δ_{gliss} soit compris entre 0 (cas encasté) et $-\Delta_m$ qui correspond à la situation où la compression due à l’émergence de la marche est complètement compensée par le glissement (cas compensé). Comme le montre la figure (3.8), les résultats extraits de la simulation révèlent que $\Delta_{gliss} \approx -\Delta_m$ signifiant que nous nous trouvons dans une situation très proche du cas compensé. Pour étudier la survenue du cloquage, les déplacements latéraux $\Delta_m + \Delta_{B_{sup}}$ en $x = -B_{sup}$ et $\Delta_{B_{inf}}$ en $x = B_{inf}$ doivent donc être considérés en pied de structure délaminée.

Dans le paragraphe suivant, nous allons étudier la stabilité du système dans le cadre de la physique des milieux continus afin de caractériser l’influence sur l’initiation du cloquage des mécanismes qui viennent d’être identifiés dans la simulation : le délaminage se produisant sur la partie haute de la marche et le phénomène de glissement.

3.3 Cloquage du film mince après délaminage et glissement

3.3.1 Modélisation

Le formalisme de Föppl-von Kármán (FvK) déjà exposé dans la Section 1.2 est utilisé pour modéliser le film mince reposant sur la marche en configuration non flambée [83]. Le système considéré est décrit sur la figure (3.9). Un film d'épaisseur h , d'abord en configuration plane, est déposé sur un substrat infiniment rigide. Avant la survenue du flambage, l'interface est supposée délaminée le long de l'axe (Ox) sur $x \in [-B_{sup}, B_{inf}]$. Une marche de hauteur H est ensuite introduite en $x = 0$ sous le film comprimé de déformation $\varepsilon_i < 0$. L'angle entre le plan incliné de la marche et l'interface est défini par θ . Une fois la marche introduite, les déplacements élastiques du film mince par rapport à la configuration plane sont donnés par u et w respectivement suivant (Ox) et (Oz). Nous considérerons dans cette partie qu'il n'y a pas de déplacements suivant (Oy).

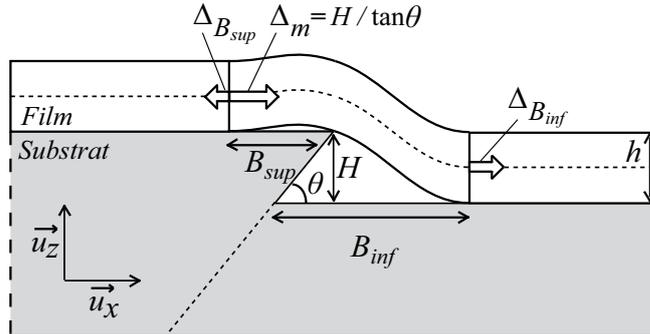


Figure 3.9 – Schéma du système modélisé dans le formalisme de FvK présentant le film d'épaisseur h reposé sur la marche de hauteur H avant flambage.

Dans la Section 1.2, les équations d'équilibre de FvK étaient déterminées à partir d'une méthode variationnelle consistant à annuler au premier ordre la différentielle de l'énergie du film mince qui s'écrit :

$$U = \frac{\bar{E}_f h L_y}{2} \int_{-B_{sup}}^{B_{inf}} \left[e_{xx}^2 + \frac{h^2}{12} \left(\frac{\partial^2 w(x)}{\partial x^2} \right)^2 \right] dx, \quad (3.3)$$

où $\bar{E}_f = E_f / (1 - \nu_f^2)$ est le module d'Young du film mince en déformation plane, avec E_f et ν_f son module d'Young et son coefficient de Poisson respectivement. La grandeur e_{xx} est la déformation suivant (Ox) dans le plan médian du film mince reliée aux déplacements u et w par l'équation (1.10). Dans cette partie, il est également

nécessaire de rendre compte de l'énergie de relaxation élastique U_m due à la présence de la marche en $x = 0$. Nous considérons pour cela une ligne de force F en $x = 0$ de sorte que la contribution due à son travail s'écrive :

$$U_m = -L_y F \int_{-B_{sup}}^{B_{inf}} \delta(x) w(x) dx, \quad (3.4)$$

où $\delta(x)$ est la distribution de Dirac. L'intensité de la force F est pour l'instant laissée libre mais celle-ci sera déterminée plus tard en considérant que le déplacement hors plan en $x = 0$ vaut la hauteur de la marche : $w(0) = H$. L'énergie totale est alors donnée par une expression intégrale de type :

$$U_{tot} = \int_{-B_{sup}}^{B_{inf}} W dx, \quad (3.5)$$

dans laquelle la densité d'énergie linéique W s'écrit :

$$W = \frac{\bar{E}_f h L_y}{2} \left[e_{xx}^2 + \frac{h^2}{12} \left(\frac{\partial^2 w(x)}{\partial x^2} \right)^2 \right] - L_y F \delta(x) w(x). \quad (3.6)$$

En remplaçant cette expression de W dans les équations d'Euler (1.14) et (1.15), nous obtenons par un raisonnement analogue à celui présenté dans la Section 1.2 les équations d'équilibre de FvK qui contrôlent l'équilibre mécanique du film mince en présence d'une ligne de force F en $x = 0$:

$$\frac{\partial^4 w(x)}{\partial x^4} + \alpha^2 \frac{\partial^2 w(x)}{\partial x^2} = \frac{12F\delta(x)}{\bar{E}_f h^3}, \quad (3.7)$$

$$\varepsilon_i + \frac{\partial u(x)}{\partial x} + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial w(x)}{\partial x} \right)^2 + \frac{\alpha^2 h^2}{12} = 0, \quad (3.8)$$

avec

$$\alpha^2 = \frac{-12e_{xx}}{h^2}. \quad (3.9)$$

Ces équations sont résolues en considérant la dénivellation H et le déplacement plan induit par l'émergence de la marche $\Delta_m = H/\tan\theta$ en $x = -B_{sup}$ ainsi que les composantes de glissement $\Delta_{B_{sup}}$ en $x = -B_{sup}$ et $\Delta_{B_{inf}}$ en $x = B_{inf}$ dans les conditions aux limites :

$$u(-B_{sup}) = \frac{H}{\tan\theta} + \Delta_{B_{sup}}, \quad (3.10)$$

$$u(B_{inf}) = \Delta_{B_{inf}}, \quad (3.11)$$

$$w(-B_{sup}) = H, \quad (3.12)$$

$$w(B_{inf}) = 0, \quad (3.13)$$

$$\left. \frac{\partial w(x)}{\partial x} \right|_{x=-B_{sup}} = \left. \frac{\partial w(x)}{\partial x} \right|_{x=B_{inf}} = 0, \quad (3.14)$$

et

$$\begin{aligned} w(x) &\geq H && \text{pour } x \in [-B_{sup}, 0], \\ w(x) &\geq 0 && \text{pour } x \in]0, B_{inf}]. \end{aligned} \quad (3.15)$$

En considérant B_{inf} comme grandeur pertinente pour décrire le cloquage, nous définissons deux nouveaux paramètres sans dimensions qui sont $\beta = \alpha B_{inf} > 0$ et $\chi = B_{inf}/B_{sup}$. L'intégration de l'équation (3.8) entre $x = -B_{sup}$ et $x = B_{inf}$ conduit alors à une équation qui relie le paramètre β (lié à la déformation e_{xx} via α selon l'équation (3.9)) à la géométrie du système :

$$\frac{1}{2} \int_{-\chi/B_{inf}}^{B_{inf}} \left(\frac{\partial w(x)}{\partial x} \right)^2 dx + B_{inf} \left(1 + \frac{1}{\chi} \right) \left(\varepsilon_i + \frac{h^2 \beta^2}{12 B_{inf}^2} \right) - \frac{H}{\tan \theta} - \Delta_{gliss} = 0. \quad (3.16)$$

Nous remarquons ainsi d'après l'expression (3.16) que la solution élastique dépend de la grandeur $\Delta_{gliss} = \Delta_{B_{sup}} - \Delta_{B_{inf}}$ qui décrit le mécanisme de glissement observé dans la simulation. En résolvant le système d'équations (3.7 - 3.16) à l'aide du logiciel *Mathematica*, nous obtenons la solution du déplacement hors plan :

$$w(x) = w_0(x) + \frac{F}{E_f h^3} g(x), \quad (3.17)$$

où

$$w_0(x) = H \chi \frac{(B_{inf} - x) \beta \cos \left[\frac{\beta(1+\chi)}{2\chi} \right] - B_{inf} \left(\sin \left[\frac{1}{2} \beta \left(1 - \frac{2x}{B_{inf}} - \frac{1}{\chi} \right) \right] + \sin \left[\frac{\beta(1+\chi)}{2\chi} \right] \right)}{B_{inf} \beta (1 + \chi) \cos \left[\frac{\beta(1+\chi)}{2\chi} \right] - 2 B_{inf} \chi \sin \left[\frac{\beta(1+\chi)}{2\chi} \right]}. \quad (3.18)$$

Cette solution est assez lourde puisque la fonction g est définie par :

$$g(x) = \begin{cases} g_{sup}(x) & \text{pour } x \in [-\chi/B_{inf}, 0] \\ g_{inf}(x) & \text{pour } x \in]0, B_{inf}] \\ 0 & \text{pour } x < -\chi/B_{inf} \text{ et } x > B_{inf} \end{cases}$$

avec g_{sup} et g_{inf} telles que :

$$g_{sup}(x) = -3B_{inf}^3 \frac{\chi}{\beta^3} \csc \left[\frac{\beta(1+\chi)}{2\chi} \right] \frac{A_{sup}(x)}{D_{sup}(x)}, \quad (3.19)$$

$$g_{inf}(x) = -3 \frac{B_{inf}^2}{\beta^3} \csc \left[\frac{\beta(1+\chi)}{2\chi} \right] \frac{A_{inf}(x)}{D_{inf}(x)}, \quad (3.20)$$

et

$$\begin{aligned} A_{sup}(x) &= \frac{2(-B_{inf} + x)\beta \cos[\beta]}{B_{inf}} - \frac{2\beta \left(x + \frac{B_{inf}}{\chi}\right) \cos\left[\frac{\beta}{\chi}\right]}{B_{inf}} \\ &+ \frac{\beta}{B_{inf}\chi} \left(-2B_{inf}\chi \cos\left[\beta - \frac{x\beta}{B_{inf}}\right] + 2(B_{inf} + (B_{inf} + x)\chi) \cos\left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi}\right)\right] \right. \\ &+ B_{inf} \cos\left[\beta \left(-1 + \frac{x}{B_{inf}} + \frac{1}{\chi}\right)\right] + B_{inf}\chi \cos\left[\beta \left(-1 + \frac{x}{B_{inf}} + \frac{1}{\chi}\right)\right] \\ &- 2B_{inf} \cos\left[\beta \left(\frac{x}{B_{inf}} + \frac{1}{\chi}\right)\right] + B_{inf}(1 + \chi) \cos\left[\beta \left(1 + \frac{x}{B_{inf}} + \frac{1}{\chi}\right)\right] \\ &\left. + 2B_{inf}\beta \sin\left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi}\right)\right] + 2x\beta\chi \sin\left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi}\right)\right] \right) \\ &+ 2 \left(-\frac{x\beta}{B_{inf}} + \sin[\beta] + \sin\left[\frac{x\beta}{B_{inf}}\right] + \sin\left[\beta - \frac{x\beta}{B_{inf}}\right] - \sin\left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi}\right)\right] \right. \\ &\left. + \sin\left[\beta \left(\frac{x}{B_{inf}} + \frac{1}{\chi}\right)\right] - \sin\left[\beta \left(1 + \frac{x}{B_{inf}} + \frac{1}{\chi}\right)\right] + \sin\left[\frac{\beta}{\chi}\right] \right), \quad (3.21) \end{aligned}$$

$$D_{sup}(x) = \beta(1 + \chi) \cos\left[\frac{\beta(1+\chi)}{2\chi}\right] - 2\chi \sin\left[\frac{\beta(1+\chi)}{2\chi}\right], \quad (3.22)$$

$$\begin{aligned} A_{inf}(x) &= 2x\beta\chi - 2B_{inf}\beta\chi \cos[\beta] + 2x\beta\chi \cos[\beta] - 2B_{inf}\beta\chi \cos\left[\beta - \frac{x\beta}{B_{inf}}\right] \\ &+ 2B_{inf}\beta \cos\left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi}\right)\right] + 2B_{inf}\beta\chi \cos\left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi}\right)\right] \\ &- 2x\beta\chi \cos\left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi}\right)\right] + B_{inf}\beta \cos\left[\beta \left(1 - \frac{x}{B_{inf}} + \frac{1}{\chi}\right)\right] \\ &+ B_{inf}\beta\chi \cos\left[\beta \left(1 - \frac{x}{B_{inf}} + \frac{1}{\chi}\right)\right] + B_{inf}\beta \cos\left[\beta \left(-1 + \frac{x}{B_{inf}} + \frac{1}{\chi}\right)\right] \\ &+ B_{inf}\beta\chi \cos\left[\beta \left(-1 + \frac{x}{B_{inf}} + \frac{1}{\chi}\right)\right] - 2B_{inf}\beta \cos\left[\beta \left(\frac{x}{B_{inf}} + \frac{1}{\chi}\right)\right] \\ &- 2\beta(B_{inf} + x\chi) \cos\left[\frac{\beta}{\chi}\right] + 2B_{inf}\chi \sin[\beta] - 2B_{inf}\chi \sin\left[\frac{x\beta}{B_{inf}}\right] \\ &+ 2B_{inf}\chi \sin\left[\beta - \frac{x\beta}{B_{inf}}\right] + 2B_{inf}\beta^2 \sin\left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi}\right)\right] \\ &- 2x\beta^2 \sin\left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi}\right)\right] - 2B_{inf}\chi \sin\left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi}\right)\right] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & - 2B_{inf}\chi \sin \left[\beta \left(1 - \frac{x}{B_{inf}} + \frac{1}{\chi} \right) \right] + 2B_{inf}\chi \sin \left[\beta \left(\frac{x}{B_{inf}} + \frac{1}{\chi} \right) \right] \\
 & + 2B_{inf}\chi \sin \left[\frac{\beta}{\chi} \right], \tag{3.23}
 \end{aligned}$$

$$D_{inf}(x) = D_{sup}(x). \tag{3.24}$$

La force F est alors fixée par la condition $w(0) = H$ qui est satisfaite pour :

$$F = \frac{\bar{E}_f H h^3 \chi \beta^3 K}{6B_{inf}^3 L}, \tag{3.25}$$

avec

$$K = 1 + \cos[\beta] - \left(\cos \left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi} \right) \right] + \cos \left[\frac{\beta}{\chi} \right] \right) - \frac{\beta}{\chi} \sin \left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi} \right) \right] \tag{3.26}$$

$$\begin{aligned}
 L & = -4\beta\chi \cos[\beta] + \beta(1 + \chi) \cos \left[\beta \left(\frac{1}{\chi} - 1 \right) \right] + 3\beta \cos \left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi} \right) \right] \\
 & + 3\beta\chi \cos \left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi} \right) \right] - 4\beta \cos \left[\frac{\beta}{\chi} \right] + 4\chi \sin[\beta] \\
 & + 2\beta^2 \sin \left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi} \right) \right] - 4\chi \sin \left[\beta \left(1 + \frac{1}{\chi} \right) \right] + 4\chi \sin \left[\frac{\beta}{\chi} \right]. \tag{3.27}
 \end{aligned}$$

La fonction u décrivant le déplacement plan est quant à elle déterminée en intégrant l'équation (3.8) qui donne :

$$u(x) = (\varepsilon_{xx} - \varepsilon_i) x - \frac{1}{2} \int \left(\frac{\partial w(x)}{\partial x} \right)^2 dx + u_0, \tag{3.28}$$

où u_0 est une constante qui dépend des conditions aux limites $u(-B_{sup}) = \frac{H}{\tan \theta} + \Delta_{B_{sup}}$ et $u(B_{inf}) = \Delta_{B_{inf}}$. Une solution analytique peut ainsi être trouvée à partir de l'équation (3.17) qui tient compte de $\Delta_{B_{sup}}$ et de $\Delta_{B_{inf}}$. L'écriture de celle-ci est assez fastidieuse et n'a donc pas été reprise dans ce rapport.

En introduisant l'expression de F donnée par l'équation (3.25) dans l'équation (3.17), l'expression générale du déplacement verticale w est finalement donnée par une fonction qui ne dépend que des paramètres géométriques du système c'est-à-dire H , B_{inf} et $\chi = B_{inf}/B_{sup}$. La grandeur β (liée à la déformation e_{xx} via α) est quant à elle fixée par les autres grandeurs géométriques et est déterminée numériquement à partir de l'équation (3.16). Un raisonnement équivalent peut être conduit pour u . Finalement, le profil théorique de la partie délaminée du film mince donné par la fonctionnelle $w(x - u(x))$ a été reporté sur la figure (3.10) en fonction de la position x et comparé au profil extrait de la simulation (voir figure (3.4.a)). Les paramètres

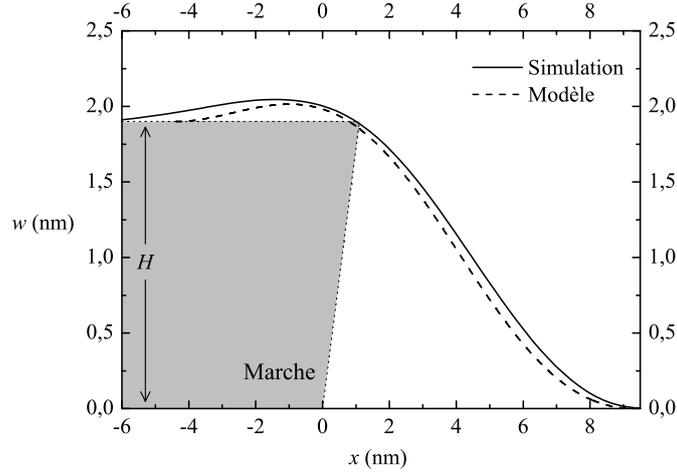


Figure 3.10 – Profil de la partie délaminée du film mince reposant sur la marche (simulation et modèle). Les paramètres utilisés pour tracer la courbe théoriques sont $H = 1,90$ nm ; $B_{inf} = 8,82$ nm ; $\chi = 1,70$; $\Delta_{B_{sup}} = -0,27$ nm ; $\Delta_{B_{inf}} = 0,52$ nm et $h = 2,0$ nm ($\beta = 3,93$).

utilisés sont ceux de la simulation réalisée : $H = 1,90$ nm ; $B_{inf} = 8,82$ nm ; $\chi = 1,70$; $\Delta_{B_{sup}} = -0,27$ nm ; $\Delta_{B_{inf}} = 0,52$ nm et $h = 2,0$ nm ($\beta = 3,93$). Il existe un écart entre les deux courbes qui peut provenir en partie du critère utilisé pour estimer les longueurs délaminées B_{sup} et B_{inf} de la simulation qui semble sous-estimer les valeurs qui satisferaient les conditions données par les équations (3.14). Malgré cette limitation, le profil du film mince est décrit de manière satisfaisante par la solution théorique qui rend bien compte de sa très faible déflexion au niveau de la partie supérieure gauche du système.

3.3.2 Déformation critique de flambage

Nous allons utiliser le résultat établi précédemment pour déterminer la déformation critique ε_c^m à partir de laquelle le flambage du film mince reposant sur la marche doit survenir. Il suffit pour cela de déterminer la valeur critique β_c (liée à la déformation critique ε_c^m via α) à partir de laquelle le film s'enfonce dans le substrat (voir figure (3.11)). Cette solution étant physiquement impossible, le film devient alors instable et est supposé flamber. Mathématiquement, la valeur β_c recherchée est telle que pour un même point $x \in [-B_{sup}, B_{inf}]$, les conditions suivantes soient satisfaites :

$$\left. \frac{\partial w(x)}{\partial x} \right|_x = 0 \text{ et } \left. \frac{\partial^2 w(x)}{\partial x^2} \right|_x = 0. \quad (3.29)$$

En accord avec les résultats des simulations, seules les situations où $\chi \geq 1$ (soit

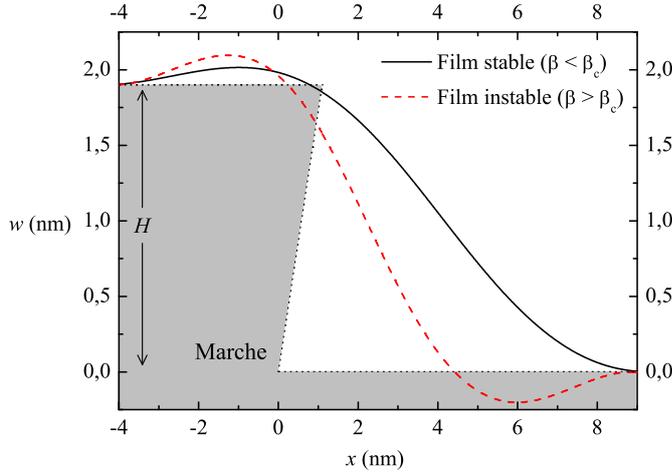


Figure 3.11 – Lorsque $\beta < \beta_c$, le profil théorique de la partie délaminiée du film mince reposant sur la marche rend compte d’une situation stable. La situation devient instable lorsque $\beta > \beta_c$. La grandeur β_c constitue la grandeur critique à partir de laquelle le cloquage est attendu.

$B_{sup} \leq B_{inf}$) ont été considérées pour rechercher β_c . Plusieurs solutions ont ainsi pu être trouvées parmi lesquelles, seule la valeur la plus petite a ensuite été considérée, celle-ci correspondant à la solution élastique d’énergie minimum [26]. Dans ce cas, comme le montre la figure (3.11), la valeur critique β_c est obtenue en résolvant les équations (3.29) en $x = B_{inf}$. Nous trouvons ainsi que cette valeur dépend simplement du paramètre $\chi \geq 1$ et peut être décrit numériquement par la formule simple :

$$\beta_c(\chi) = 2\pi - \frac{11,31}{1 + 3,69\chi}. \quad (3.30)$$

Lorsque $B_{sup} = 0$ (ou $\chi = +\infty$), nous voyons que $\beta_c = 2\pi$ qui correspond à la condition critique de flambage déjà obtenue par Foucher *et al.* dans ce cas particulier [59]. Il est alors possible de relier la grandeur critique β_c à la géométrie du système en résolvant analytiquement l’équation (3.16) qui conduit à l’expression de la déformation critique en présence d’une marche (négative en compression) :

$$\varepsilon_c^m = -\frac{\pi^2}{3} \left(\frac{h}{B_{inf}} \right)^2 - \frac{3}{4} \left(\frac{H}{B_{inf}} \right)^2 + \frac{1}{B_{inf}} \left(\frac{H}{\tan \theta} + \Delta_{gliss} \right). \quad (3.31)$$

Dans le cas général où $B_{sup} \neq 0$, nous montrons de façon similaire à partir des relations (3.16) et (3.30) que l’expression de la déformation critique de flambage

$\varepsilon_c^m(\chi)$ peut s'exprimer sous la forme :

$$\varepsilon_c^m(\chi) = C_1(\chi) \left(\frac{h}{B_{inf}} \right)^2 + C_2(\chi) \left(\frac{H}{B_{inf}} \right)^2 + \frac{\chi}{1 + \chi} \left(\frac{1}{B_{inf}} \right) \left(\frac{H}{\tan \theta} + \Delta_{gliss} \right), \quad (3.32)$$

où les paramètres $C_1 < 0$ et $C_2 < 0$ dépendent simplement de $\chi = B_{inf}/B_{sup}$. Nous obtenons ainsi une expression qui rend compte des mécanismes de délaminage (à travers χ) et de glissement (à travers Δ_{gliss}) qui ont été identifiés dans la simulation. Comme nous l'avons vu précédemment, les paramètres χ et Δ_{gliss} sont physiquement bornés par les valeurs limites $1 \leq \chi < +\infty$ et $-H/\tan \theta < \Delta_{gliss} \leq 0$. Ces quatre valeurs limites conduisent aux quatre configurations schématisées sur la figure (3.12). Nous pouvons donc caractériser l'ensemble des conditions de cloquage d'un film mince reposant sur une marche en étudiant simplement ces quatre cas limites. Cette analyse est conduite dans la partie suivante où nous comparons les conditions de flambage de la situation en présence d'une marche à la situation plane sans aucun défaut.

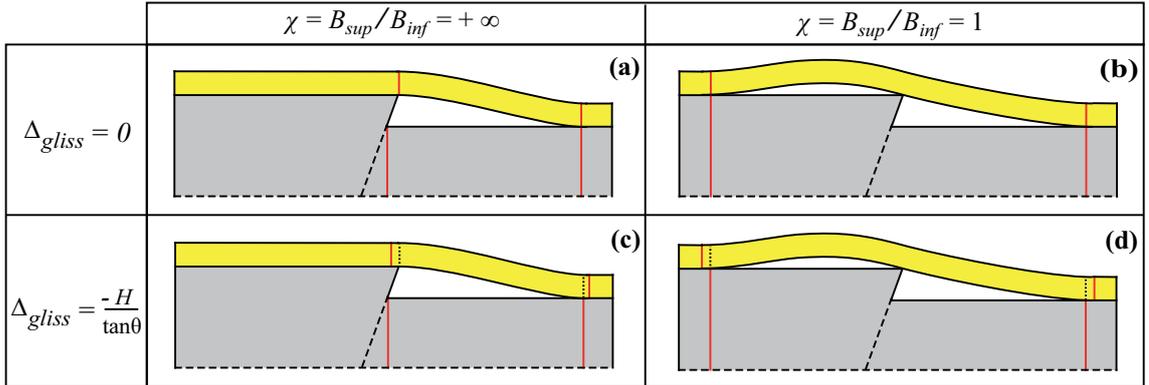


Figure 3.12 – Configurations avant flambage du film mince reposant sur la marche dans les quatre cas limites : (a) délaminage supérieur nul et glissements nuls, (b) délaminage supérieur maximal et glissements nuls, (c) délaminage supérieur nul et glissements maximaux, (d) délaminage supérieur maximal et glissements maximaux.

3.3.3 Rôle de la marche sur la nucléation du cloquage

En situation plane, le film mince est supposé être délaminé sur une longueur initiale B_{inf} impliquant que le flambage survienne à la déformation critique d'Euler donnée par l'équation (1.28) qui s'écrit ici :

$$\varepsilon_c = -\frac{\pi^2}{3} \left(\frac{h}{B_{inf}} \right)^2. \quad (3.33)$$

Si une marche est à présent introduite dans l'interface, provoquant notamment la décohésion interfaciale localisée sur sa partie haute, alors la déformation critique de cloquage est $\varepsilon_c^m(\chi)$ telle qu'elle est donnée par l'équation (3.32). Nous considérerons dans cette étude que si $\varepsilon_c^m(\chi)/\varepsilon_c \leq 1$, alors le flambage est favorisé par la marche alors que si $\varepsilon_c^m(\chi)/\varepsilon_c > 1$, le flambage est au contraire défavorisé par cette dernière. Sur le diagramme de la figure (3.13), nous avons représenté l'évolution du rapport $\varepsilon_c^m(\chi)/\varepsilon_c$ en fonction de la hauteur de la marche H normalisée par l'épaisseur du film mince h , et cela pour différentes valeurs de χ et Δ_{gliss} . La région dans laquelle le flambage est favorisé par la marche est colorée en vert, alors que la région correspondant à la situation opposée est en rouge. Étudions à présent, à l'aide de ce diagramme, l'évolution du rapport $\varepsilon_c^m(\chi)/\varepsilon_c$ associé aux différents cas limites (a), (b), (c) et (d) de la figure (3.12).

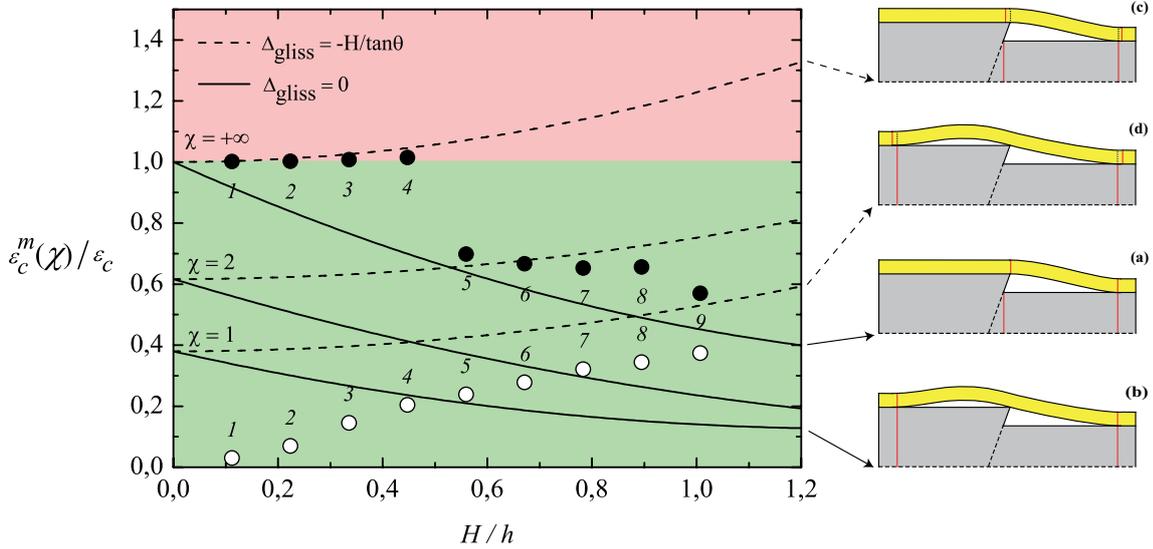


Figure 3.13 – Évolution de $\varepsilon_c^m(\chi)/\varepsilon_c$ en fonction de H/h dans le cas des glissements nuls ($\Delta_{gliss} = 0$), en traits pleins, puis dans le cas des glissements compensés ($\Delta_{gliss} = -H/\tan\theta$), en traits en pointillés. Les courbes sont données pour trois valeurs de χ comprises entre ses valeurs limites : $+\infty$ et 1. Les configurations (a), (b), (c) et (d) du système associées aux courbes décrivant les cas limites (voir figure (3.12)) sont également rappelées sur cette figure. Le flambage est favorisé par la marche dans la région verte et défavorisé dans la région rouge. Les disques blancs rendent compte de l'évolution de la déformation du film mince extraite de la simulation. Les disques noirs rendent compte de la « déformation critique de flambage attendu » dans la simulation (voir texte).

Cas des glissements nuls

Commençons par étudier la situation où $\Delta_{gliss} = 0$ avec χ variant entre ses valeurs limites $+\infty$ et 1 (voir figures 3.12.a et 3.12.b). Dans ce cas, le rapport entre $\varepsilon_c^m(\chi)$ et ε_c s'écrit :

$$\frac{\varepsilon_c^m(\chi)}{\varepsilon_c} = -\frac{3}{\pi^2} \left[C_1(\chi) + C_2(\chi) \left(\frac{H}{h} \right)^2 + \frac{\chi}{1+\chi} \left(\frac{B_{inf}}{h \tan \theta} \right) \left(\frac{H}{h} \right) \right]. \quad (3.34)$$

Sur le diagramme de la figure (3.13), nous avons représenté, par des courbes en traits pleins, l'évolution de ce rapport en fonction de H/h avec $h = 2,00$ nm, $B_{inf} = 8,82$ nm et $\theta = 60^\circ$.

Nous constatons que ces courbes se situent toutes dans la région verte. Dans le cas des glissements nuls, le cloquage est donc toujours favorisé par la marche quelles que soient les valeurs que prend par ailleurs la grandeur χ . Nous retrouvons ici les résultats de Foucher *et al.* [59] qui s'intéressaient d'ailleurs uniquement à la situation où $\chi = +\infty$ ($B_{sup} = 0$). Dans ce cas, c'est la compression supplémentaire induite par l'émergence en partie latérale de la marche qui permet de justifier du phénomène. La localisation préférentielle des structures de cloquage au dessus de marches s'explique alors par le fait que les systèmes de glissement des dislocations restent généralement inférieurs à $\theta = 60^\circ$. Nous montrons ici que ces conclusions peuvent être étendues aux situations où $1 < \chi < +\infty$ ($B_{sup} \neq 0$) pour lesquelles le cloquage apparaît d'autant plus favorable. Nous constatons en effet que $\varepsilon_c^m(\chi)/\varepsilon_c$ diminue avec χ lorsque $\Delta_{gliss} = 0$ (voir traits pleins sur la figure (3.13)).

Cas des glissements compensés

Dans la simulation, nous avons identifié un mécanisme de glissement additionnel Δ_{gliss} qui compense presque entièrement le déplacement géométrique dû à l'émergence de la marche $\Delta_m = H/\tan\theta$ (voir figure 3.12.c et 3.12.d)). Dans ce cas, nous calculons le rapport :

$$\frac{\varepsilon_c^m(\chi)}{\varepsilon_c} = -\frac{3}{\pi^2} \left[C_1(\chi) + C_2(\chi) \left(\frac{H}{h} \right)^2 \right]. \quad (3.35)$$

Sur le diagramme de la figure (3.13), l'évolution de ce rapport est donnée par les traits en pointillés pour χ variant entre ses valeurs limites $+\infty$ et 1.

Nous voyons cette fois que le glissement désavantage la survenue du flambage et que le rapport $\varepsilon_c^m(\chi)/\varepsilon_c$ augmente d'ailleurs avec H/h . Le cloquage initié par l'émergence d'une marche ne peut dans ce cas être favorisé que si $\chi < +\infty$ de telle manière que $\varepsilon_c^m(\chi)/\varepsilon_c < 1$ pour des valeurs raisonnables de H/h . Nous pouvons, par exemple, nous inspirer des résultats de la simulation qui montrent que $\chi = B_{sup}/B_{inf}$ est environ égal à 2 (voir figure (3.5)). Dans ce cas, la déformation critique donnée par l'équation (3.32) s'écrit :

$$\varepsilon_c^m(2) = -2,03 \left(\frac{h}{B_{inf}} \right)^2 - 0,45 \left(\frac{H}{B_{inf}} \right)^2, \quad (3.36)$$

et nous montrons alors que la condition $\varepsilon_c^m(2)/\varepsilon_c \leq 1$ implique $H/h \leq 1,7$. Dans les

situations expérimentales cette inégalité est vraisemblablement toujours satisfaite. Ainsi, même si le mécanisme de glissement intervient, le fait que le délaminage se produise également sur la partie supérieure de la marche permet de justifier que sa présence soit généralement toujours favorable au cloquage.

Cas de la simulation

Dans le but d’interpréter les résultats de la simulation à partir du modèle, nous avons reporté dans le diagramme de la figure (3.13) deux séries de points qui rendent compte des déformations caractéristiques du système simulé : la déformation du film mince ε_i (disques blancs) et la « déformation critique de flambage attendu » ε_c^m (disques noirs). Comme son nom l’indique, cette dernière grandeur rend compte de la déformation critique théorique qui doit être atteinte par le film mince pour que celui-ci flambe au dessus d’une marche. Celle-ci a été calculée à partir de l’équation (3.32) et des paramètres B_{inf} , B_{sup} et Δ_{gliss} directement extraits de la simulation (voir figures (3.5) et (3.8)). Il faut noter de plus que, dans ce diagramme, toutes les déformations sont normalisées par la déformation critique d’Euler ε_c donnée par l’équation (3.33) qui a été calculée à partir de la longueur délaminée B_{inf} également extraite de la simulation. Ces déformations $\varepsilon_i/\varepsilon_c$ (disques blancs) et $\varepsilon_c^m/\varepsilon_c$ (disques noirs) sont finalement tracées en fonction de la hauteur de la marche H normalisée par l’épaisseur du film mince $h = 2,00$ nm. Nous avons donc 9 points par série (numérotés de 1 à 9) correspondant aux 9 dislocations qui ont cisailé le substrat avant que le cloquage soit observé.

De la 1^{ère} à la 4^{ème} dislocation, la « déformation critique de flambage attendu » (disques noirs) suit la courbe correspondant à $\chi = +\infty$ ($B_{sup} = 0$) et $\Delta_{gliss} = -H/\tan\theta$ en accord avec les résultats de la simulation (voir figures (3.5) et (3.8)). À partir de la 5^{ème} dislocation, la partie supérieure de la marche se délamine sur une longueur B_{sup} conduisant à une diminution de χ et entraînant la chute soudaine de la « déformation critique de flambage attendu » (disques noirs). C’est à partir de cet événement que le cloquage est favorisé par la marche par rapport à la situation plane (région verte). Dans la simulation cependant, la déformation du film mince (disques blancs) n’a pas atteint la « déformation critique de flambage attendu » et n’est donc pas suffisante pour que le flambage du film soit observé. De la 5^{ème} à la 9^{ème} dislocation, la « déformation critique de flambage attendu » (disques noirs) diminue sans suivre une courbe de valeur de χ constante tandis que la déformation du film mince (disques blancs) augmente progressivement. Finalement, le flambage du film survient suite à l’introduction de la 10^{ème} dislocation lorsque la

déformation du film atteint la déformation critique et que le critère $\varepsilon_i > \varepsilon_c^m$ apparaît être satisfait. Le modèle théorique semble ainsi cohérent avec les résultats des simulations.

Notre étude permet ainsi de justifier que les structures de cloquage se localisent préférentiellement au dessus de défauts interfaciaux tels que des marches, même en présence d’un mécanisme de relaxation par glissement. Elle permet en outre d’expliquer la survenue du cloquage dans la simulation. Nous montrons en particulier que cela est davantage dû au délaminage se produisant sur la partie supérieure de la marche qu’à l’effet compressif de cette dernière sur le film mince lorsqu’elle émerge du substrat.

3.4 Influence de la marche sur l’extension de la cloque

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés à la configuration d’équilibre du film mince une fois le cloquage survenu. L’idée est de caractériser comme il a été fait dans le chapitre 2 le couplage entre le flambage et le délaminage afin notamment de rendre compte de l’influence de la marche sur le processus.

3.4.1 Observations

Dans la simulation, une fois le flambage observé, le délaminage de la ride droite progresse jusqu’à une configuration d’équilibre où la longueur délaminée totale $B_{sup} + B_{inf}$ est supérieure à celle observée au moment de l’initiation du processus (voir figures (3.4.a) et (3.4.b)). De plus, il est trouvé dans cette situation que les atomes du film situés en pied de ride subissent un mécanisme de glissement similaire à ce qui a été observé dans le système Cu-W de la Section 2.2.1 où les atomes passent de la partie encore adhérente à la partie flambée du système comme le montre la figure (3.14). Nous travaillerons ici dans le repère de cette figure où la longueur délaminée vaut $2B = B_{sup} + B_{inf}$. L’origine est alors définie en $x = 0$ telle que la structure flambée soit symétrique entre $x = -B$ et $x = +B$, la marche se trouvant en $x = B - B_{inf}$.

Entre la situation plane et la situation flambée, le glissement moyen des atomes situés en pied de structure est défini par la grandeur $\Delta = (\Delta_m^* + \Delta_{-B} - \Delta_{+B})/2$ où Δ_{-B} et Δ_{+B} sont les déplacements suivant (Ox) des atomes du film mesurés respectivement en $x = -B$ et $x = +B$, et où Δ_m^* est le déplacement géométrique dû

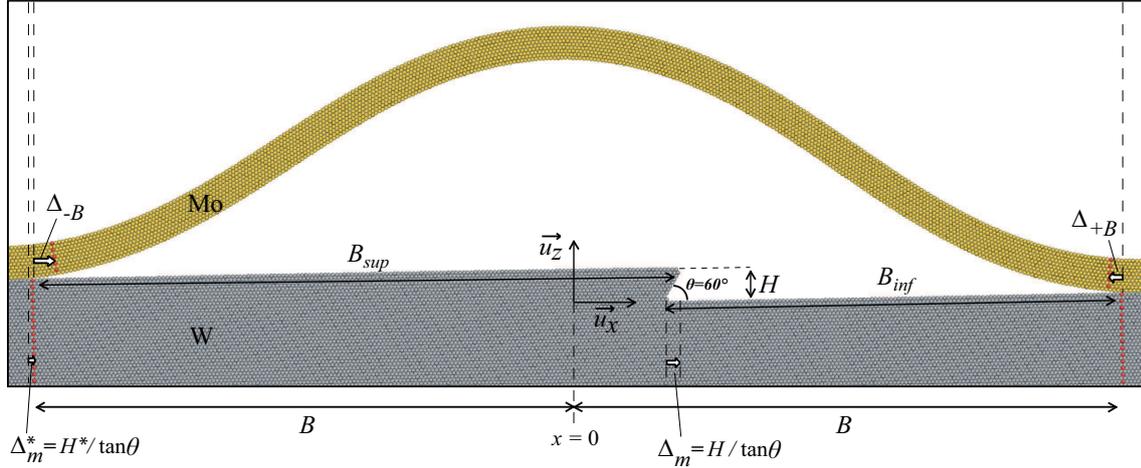


Figure 3.14 – Bicristal Mo-W dans sa configuration flambée à l'équilibre. Le repère est défini ici de sorte que la ride droite se trouve entre $x = -B$ et $x = +B$. Les atomes colorés en rouge sont alignés dans la configuration initiale plane. Ils rendent compte des déplacements des atomes en pied de ride Δ_{-B} et Δ_{+B} une fois le flambage effectué.

à l'émergence de la marche mesurée en $x = -B$ (voir figure (3.14)). Cette grandeur moyenne Δ est l'analogue de la contribution $\Delta_m + \Delta_{gliss}$ qui était mesurée avant flambage. Elle rend compte ici du mécanisme de relaxation par glissement après flambage tel qu'il a déjà été observé dans le chapitre 2 lors de l'étude du système Cu-W (voir Section 2.2.1).

Il faut également noter que, dans la simulation, le système est périodique suivant (Ox) . La différence d'altitude effective entre les bords de la ride H^* est donc plus faible que la hauteur réelle de la marche H . Géométriquement, nous montrons ainsi que $H^* = \left(1 - \frac{2B}{L_x}\right) H$. Cette remarque conduit également à un déplacement géométrique effectif dû à la marche que nous écrirons $\Delta_m^* = H^* / \tan\theta$. Nous conserverons par la suite ces notations effectives afin de comparer les résultats théoriques à ceux des simulations. Notez que ces corrections sont négligeables lorsque B est petit devant L_x ce qui justifie que cet effet n'ait pas été considéré lors de l'étude de la nucléation du processus de cloquage exposée dans les paragraphes précédents.

Les grandeurs extraites de la simulation sont ainsi (voir figure (3.14)) : $B = 37,23$ nm ; $H = 2,24$ nm ; $\Delta_{-B} = 1,34$ nm et $\Delta_{+B} = -0,69$ nm. Ces grandeurs conduisent aux valeurs effectives $H^* = 0,78$ nm et $\Delta_m^* = 0,45$ nm (avec $\theta = 60^\circ$) qui donnent un déplacement moyen des atomes en pied de ride droite de $\Delta = 1,24$ nm. Dans cette configuration flambée, la longueur du système, l'épaisseur du film et sa déformation uniaxiale sont $L_x = 113,97$ nm ; $h = 2,00$ nm et $\varepsilon_i = -6,42$ % respectivement.

Dans la partie qui suit, nous allons reprendre l'analyse déjà exposée dans le Chapitre 2 afin d'interpréter les résultats des simulations dans le formalisme de Föppl-von Kármán (FvK). Nous commencerons par déterminer le profil théorique

de la ride droite localisée sur une marche avant d’utiliser cette description pour étudier le processus de délaminage à l’aide du modèle de Griffith.

3.4.2 Profil d’une ride droite localisée sur une marche

Pour déterminer le déplacement hors plan w_m de la ride droite en configuration flambée sur la marche, il suffit de résoudre les équations (3.7 - 3.15) dans le cas où $F = 0$ alors que la dénivellation H^* est conservée. Dans ce cas, les équations de FvK obtenues sont en fait identiques à celles utilisées dans les chapitres 1 et 2. Seules les conditions aux limites sur le déplacement latéral u_m doivent être modifiées pour tenir compte du glissement moyen $\Delta = (\frac{H^*}{\tan\theta} + \Delta_{-B} - \Delta_{+B})/2$ tel qu’il est décrit sur la figure (3.14) :

$$u_m(-B) = \frac{H^*}{\tan\theta} + \Delta_{-B}, \quad (3.37)$$

$$u_m(+B) = \Delta_{+B}, \quad (3.38)$$

$$w_m(-B) = H, \quad (3.39)$$

$$w_m(B) = 0, \quad (3.40)$$

$$\left. \frac{\partial w_m(x)}{\partial x} \right|_{x=\pm B} = 0. \quad (3.41)$$

Ces calculs ont déjà été effectués par Foucher *et al.* dans le cas particulier où $\Delta_{-B} = \Delta_{+B} = 0$ [59]. Ils sont similaires à ceux décrits dans la Section 1.2 et ne seront donc pas détaillés dans cette partie.

La solution analytique du déplacement hors plan du film mince w_m en configuration flambée est obtenue pour une déformation e_{xx} constante au sein de la structure qui vaut la déformation critique d’Euler $\varepsilon_c = (-\pi^2/12)(h/B)^2$ avec ici $2B = B_{sup} + B_{inf}$. Ce résultat est identique à celui obtenu lors de la détermination de la déflexion d’une ride droite en l’absence de marche, que ce soit d’ailleurs avec ou sans glissement. La solution pour le déplacement hors plan est alors donnée par [59] :

$$w_m(x) = \frac{H^*}{2} \left(\frac{1}{\pi} \sin \left[\frac{\pi x}{B} \right] + \frac{x}{B} + 1 \right) + \frac{\delta_m}{2} \left(1 + \cos \left[\frac{\pi x}{B} \right] \right), \quad (3.42)$$

où δ_m représente la déflexion du film en $x = 0$ réduite de $H^*/2$ dans le repère de la figure (3.14). Cette grandeur peut être déterminée via l’intégration de l’équation (3.8) entre $x = -B$ et $x = +B$ qui donne :

$$\delta_m = h \sqrt{\frac{4}{3} \left(\frac{\varepsilon_i}{\varepsilon_c} - 1 \right) - \frac{3H^{*2}}{\pi^2 h^2} + \frac{16B\Delta}{\pi^2 h^2}}, \quad (3.43)$$

où ε_i est la déformation du film mince pris dans sa configuration plane (négative en compression). La fonction u_m décrivant le déplacement plan de la ride droite en présence de la marche est déterminée en intégrant l'équation (3.8) et en tenant compte des conditions aux limites $u_m(-B) = \frac{H^*}{\tan \theta} + \Delta_{-B}$ et $u_m(+B) = \Delta_{+B}$. Cette fonction s'écrit :

$$\begin{aligned}
 u_m(x) = & \frac{1}{2} \left(\frac{3H^*\delta_m}{8B} + \Delta_{-B} + \Delta_{+B} + \frac{H^*}{\tan \theta} \right) + x(\varepsilon_i - \varepsilon_c) \\
 & - \frac{1}{32B^2\pi} \left[2\pi \left(3H^{*2} + \pi^2\delta_m^2 \right) x - 2BH^*\pi\delta_m \left(4 \cos \left[\frac{\pi x}{B} \right] + \cos \left[\frac{2\pi x}{B} \right] \right) \right. \\
 & \left. + 8BH^{*2} \sin \left[\frac{\pi x}{B} \right] + B(H^* - \pi\delta_m)(H^* + \pi\delta_m) \sin \left[\frac{2\pi x}{B} \right] \right]. \quad (3.44)
 \end{aligned}$$

Sur la figure (3.15), le profil théorique de la ride droite située au dessus de la marche donnée par $w_m(x - u_m(x))$ a été comparé au profil extrait de la simulation correspondant à la configuration présentée sur la figure (3.14). Les grandeurs utilisées pour la courbe modèle sont : $B = 37,23$ nm ; $h = 2,00$ nm ; $\Delta_{-B} = 1,34$ nm ; $\Delta_{+B} = -0,69$ nm ; $H^* = 0,78$ nm ; $\Delta_m^* = 0,45$ nm et $\varepsilon_i = -6,42$ %.

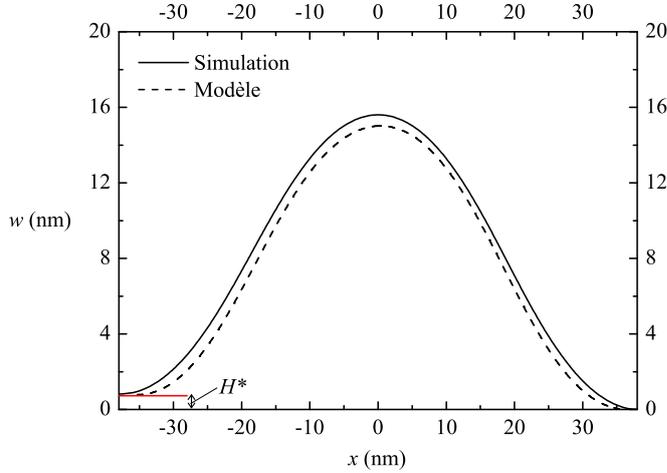


Figure 3.15 – Profil de la ride droite sur la marche (Simulation et Modèle). Les grandeurs utilisées pour tracer la courbe théorique sont : $B = 37,23$ nm ; $h = 2,00$ nm ; $\Delta_{-B} = 1,34$ nm ; $\Delta_{+B} = -0,69$ nm ; $H^* = 0,78$ nm ; $\Delta_m^* = 0,45$ nm et $\varepsilon_i = -6,42$ %.

Comme le montre la figure (3.15), le modèle décrit le profil du film mince flambé sur la marche de manière assez satisfaisante. En particulier, la solution analytique conduit à une valeur de déflexion maximale¹ w_{max} qui vaut 15,01 nm et qui se trouve

1. Il convient de préciser que le déplacement vertical d'une ride droite cloquant sur une marche calculé en $x = 0$ ne correspond pas exactement à sa déflexion maximale w_{max} du fait de la dissymétrie de la structure cloquée. Il est cependant possible de confondre les deux grandeurs lorsque H^* est petit devant δ_m comme c'est le cas ici [59].

être en bon accord avec la valeur extraite de la simulation donnée par 15,6 nm. L’essentiel de l’écart restant entre les deux courbes s’expliquerait par les remarques suivantes. Dans le modèle, les déplacements Δ_{-B} et Δ_{+B} pris en compte en pied de ride droite sont considérés comme s’effectuant à altitude constante (en restant au niveau du substrat) ce qui n’est pas tout à fait le cas dans la simulation (voir figure (3.14)). De plus, il est possible que la demi-longueur délaminée B extraite de la simulation soit sous estimée par rapport à la valeur qui satisfèrait les équations (3.41).

Nous pouvons à présent calculer l’énergie potentielle élastique de la ride droite flambant sur la marche U_g^m à partir des déplacements théoriques établis précédemment. L’expression de cette énergie donnée par l’équation (2.16) est également valable en présence d’une marche puisque la déformation au sein de la structure est toujours égale à la déformation critique d’Euler ε_c . Elle s’écrit ici :

$$U_g^m = \frac{\bar{E}_f L_y}{2} \int_{-\frac{h}{2}}^{\frac{h}{2}} \int_{-B}^B \left[\varepsilon_c - z \frac{\partial^2 w_m(x)}{\partial x^2} \right]^2 dx dz. \quad (3.45)$$

En posant $U_0 = hBL_y \bar{E}_f \varepsilon_i^2$, le calcul conduit à l’expression suivante :

$$U_g^m = U_0 - hBL_y \bar{E}_f (\varepsilon_i - \varepsilon_c)^2 - 2h\Delta L_y \bar{E}_f \varepsilon_c - 3hBL_y \bar{E}_f \left(\frac{H^*}{h\pi} \right)^2 \varepsilon_c^2, \quad (3.46)$$

où U_g^m correspond à l’énergie potentielle élastique d’une ride droite en présence du glissement Δ , avec une dénivellation entre les bords égale à H^* . Elle se compose de quatre termes qui contiennent chacun les effets physiques en présence : le premier rend compte de la compression du film mince (stretching energy), le second rend compte de la contribution à la flexion (bending energy), le troisième intègre l’effet des glissements latéraux en pied de ride et le quatrième intègre l’effet de la marche.

Comme dans le chapitre précédent, nous montrons ici qu’il est possible de décrire le processus de flambage d’un film mince situé sur une marche dans le formalisme continu de FvK en considérant des phénomènes microscopiques tels que l’émergence d’une marche et le processus de glissement qui sont observés dans les simulations atomistiques. Nous allons à présent utiliser ce résultat pour expliquer le processus de délaminage dans le cadre d’une analyse de Griffith.

3.4.3 Délaminage et configuration d'équilibre

Dans le formalisme de Griffith, l'expression du taux de restitution d'énergie G_g^m se calcule à partir de l'expression (1.32) qui s'écrit ici :

$$G_g^m = -\frac{1}{L_y} \frac{\partial (U_g^m + U_{ad})}{\partial (2B)}, \quad (3.47)$$

où U_{ad} est l'énergie potentielle élastique de la partie encore adhérente du système. Rappelons qu'à l'équilibre G_g^m est égale à l'énergie d'adhésion de l'interface $\Gamma_{Mo-W} = 0,29 \text{ J.m}^{-2}$ et que l'accroissement de la zone délaminée peut être observé lorsque $G_g^m > \Gamma_{Mo-W}$.

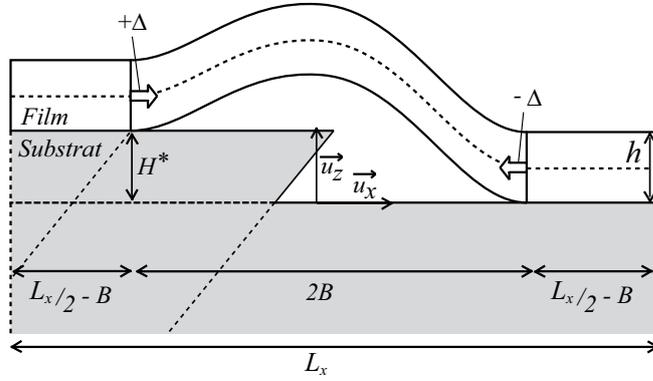


Figure 3.16 – Schéma du système modélisé dans le formalisme de FvK présentant le film d'épaisseur h reposé sur la marche de hauteur H^* après flambage.

Comme dans le cas du délaminage du bicristal Cu-W décrit dans la Section 2.5, nous allons supposer que la déformation au sein de la partie adhérente s'écrit $\varepsilon_{xx}^{ad} = \varepsilon_i + \frac{\Delta}{L_x/2 - B}$ en considérant que, de part et d'autre de la ride, le film se décomprime d'une quantité positive Δ qui affecte toute la partie adhérente de longueur $L_x/2 - B$ comme le montre le schéma de la figure (3.16). L'expression de l'énergie dans cette partie est donc toujours donnée par l'équation (2.39) :

$$U_{ad} = h (L_x/2 - B) L_y \bar{E}_f \left(\varepsilon_i + \frac{\Delta}{L_x/2 - B} \right)^2. \quad (3.48)$$

Il est également montré dans la Section 2.5 que, du fait de l'absence de friction au cours du glissement, la déformation au sein de la partie adhérente est égale à la déformation au sein de la ride droite qui vaut ε_c même en présence d'une marche. Le glissement Δ est alors défini par l'expression (2.42) :

$$\Delta = \left(\frac{L_x}{2} - B \right) (\varepsilon_c - \varepsilon_i). \quad (3.49)$$

Nous vérifions facilement que cette relation est toujours valable. En effet, l’expression (3.49) conduit à une valeur théorique de $\Delta = 1,22$ nm avec les valeurs $L_x = 113,97$ nm ; $B = 37,23$ nm ; $\varepsilon_i = -6,42$ % et $h = 2,00$ nm. La valeur extraite directement de la simulation vaut $\Delta = 1,24$ nm qui est bien identique à la valeur attendue, aux incertitudes près. Le taux de restitution d’énergie G_g^m calculé à partir des expressions (3.46) à (3.49) conduit dans ce cas à :

$$G_g^m = 2G_0 \left(\frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_i} \right) \left(1 - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_i} \right) \frac{L_x}{B} - G_0 \left(\frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_i} \right)^2 \left(\frac{3H^*}{\pi h} \right)^2, \quad (3.50)$$

où $G_0 = h\bar{E}_f\varepsilon_i^2/2$. Cette expression s’exprime encore en fonction de l’expression du taux de restitution d’énergie G_g déterminée sans marche et donné par l’équation (2.43) :

$$G_g^m = G_g - G_0 \left(\frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_i} \right)^2 \left(\frac{3H^*}{\pi h} \right)^2. \quad (3.51)$$

Plusieurs remarques peuvent à présent être formulées. Tout d’abord, l’expression (3.51) dépend de la longueur du film mince L_x . L’hypothèse avancée dans le chapitre précédent est que cette grandeur rend compte de la distance séparant des défauts microstructuraux dans les système réels qui évitent que le processus de glissement relaxe une zone infinie de part et d’autre de la ride droite. Il était alors considéré que L_x représentait la taille d’un grain d’un polycristal. En présence d’une marche comme c’est le cas ici, du fait de la périodicité du système suivant l’axe (Ox), cette grandeur est aussi la distance qui sépare ces marches les unes des autres qui dépend elle même de l’écart moyen entre les plans de glissement des dislocations. Il serait donc possible de relier cette grandeur à la densité de dislocations du substrat ce qui permettrait d’expliquer les mécanismes d’endommagement par cloquage dans le cadre d’une description globale de la plasticité du support dans un bimatérial.

Dans l’expression (3.51), nous nous apercevons également que le processus de délaminage va dépendre de la hauteur de la marche H^* . En calculant :

$$\frac{G_g^m}{G_g} = 1 - \frac{\frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_i} \left(\frac{3H^*}{\pi h} \right)^2}{2 \left(1 - \frac{\varepsilon_c}{\varepsilon_i} \right) \frac{L_x}{B}} < 1, \quad (3.52)$$

on s’aperçoit que l’effet de la marche est d’abaisser le taux de restitution d’énergie par rapport à la situation sans marche. L’ouverture de la zone délaminée située sous la ride est donc moins étendue en présence d’une marche, celle-ci se produisant au critère de Griffith lorsque G_g^m atteint l’énergie d’adhésion $\Gamma_{Mo-W} = 0,29$ J.m⁻². Cet effet est d’autant plus marqué que H^*/h et $\varepsilon_c/\varepsilon_i$ sont grands et que L_x/B est petit. En utilisant les valeurs de la simulation ($L_x = 113,97$ nm ; $h = 2,00$ nm ; $B = 37,23$

nm; $H^* = 0,78$ nm et $\varepsilon_i = -6,42$ %), nous obtenons $H^*/h = 0,39$; $\varepsilon_c/\varepsilon_i = 0,037$ et $L_x/B = 3,06$ conduisant à $G_g^m/G_g = 1 - 0,00087 \approx 1$. En admettant que cette situation soit suffisamment représentative, l'effet de la marche serait donc négligeable pour décrire le délaminage du film du substrat une fois le flambage survenu.

En accord avec le critère de Griffith, le film à l'équilibre en configuration flambée présente une longueur délaminée $2B$ telle que $G_g^m(B) = \Gamma_{Mo-W} = 0,29$ J.m⁻². La valeur de B peut donc être retrouvée en utilisant la relation (3.51) avec les grandeurs extraites de la simulation. Il faut alors connaître $\bar{E}_f = 375$ GPa qui est déterminé via un essai de déformation modèle du film Mo suivant (Ox) de type $\langle 112 \rangle_{cc}$. La résolution numérique conduit à $B = 39,18$ nm qui est proche de la valeur extraite de la simulation donnée par $B = 37,23$ nm. Comme dans le chapitre précédent, il n'est ainsi pas nécessaire de tenir compte de l'influence de la mixité modale pour expliquer l'arrêt du délaminage et décrire ce que nous observons dans les simulations [26]. Il est important de remarquer ici que seule cette grandeur totale $B = (B_{sup} + B_{inf})/2$ peut être déterminée. La position de la marche, et donc des valeurs de B_{sup} et B_{inf} prises séparément, restent des inconnues qui dépendent notamment des conditions de formation de la zone délaminée initiale.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons réalisé des simulations atomistiques en nous inspirant de situations expérimentales qui montrent que le cloquage peut être initié au niveau de marches situées à l'interface entre deux matériaux cristallins. Au cours de l'émergence de cette marche et avant que le flambage ne survienne, il est d'abord observé que la décohésion du film de son substrat se produit à la fois sur la partie inférieure de la marche mais également sur sa partie supérieure. Un mécanisme de glissement localisé en pied de structure délaminée est également identifié qui permet de compenser la compression induite au sein du film au cours du processus. Le flambage est ensuite observé en s'initiant sur la partie haute de la marche. La longueur délaminée s'accroît alors significativement et conduit à une ride droite présentant au final une dissymétrie vis-à-vis du défaut d'interface.

Les mécanismes de délaminage et de glissement ont été pris en compte dans le formalisme de Föppl-von Kármán (FvK) pour décrire le profil élastique du film mince reposant sur la marche en configuration non flambée. Une nouvelle valeur de déformation critique de flambage a également été déterminée dans ce cadre, qui tient compte des processus de décohésion qui ont précédé le flambage. Il est ainsi possible d'expliquer la survenue du cloquage au cours de la simulation atomistique comme

étant essentiellement due au mécanisme de délaminage localisé sur la partie haute de la marche. Expérimentalement, cette description permet en outre de justifier que les cloques se localisent préférentiellement au dessus de défauts interfaciaux tels que des marches.

En s’inspirant des résultats établis dans les chapitres précédents et en établissant le profil analytique de la ride droite dans sa configuration flambée, nous avons également caractérisé, à partir d’une analyse de Griffith, le processus de délaminage induit par le cloquage pour décrire la configuration d’équilibre du film mince après flambage. Les résultats permettent notamment d’expliquer sa forme à l’équilibre une fois le processus effectué. Les calculs reposant sur le formalisme de FvK couplés aux résultats des simulations atomistiques permettent ainsi de caractériser une des voies possibles de l’initiation du phénomène de cloquage à partir de la plasticité, en accord avec des résultats expérimentaux.

Conclusion et Perspectives

Dans ce travail, des simulations atomistiques couplées à des calculs reposant sur le formalisme continu de Föppl-von Kármán (FvK) nous ont permis d'étudier et d'identifier des mécanismes de plasticité survenant au cours du cloquage de films minces. Il a notamment été montré qu'une fois la ride droite formée, ces mécanismes induisent un changement de forme de la structure ainsi qu'une modification de l'interface dans la partie encore adhérente du système. Nous avons également trouvé qu'il était possible de décrire le délaminage piloté par flambage sans qu'il soit nécessaire de prendre en compte les effets de la mixité modale sur l'énergie d'adhésion. Les simulations nous ont aussi permis de révéler les mécanismes physiques qui sont mis en jeu lors de la nucléation du phénomène à partir d'une marche d'interface. En intégrant ces observations dans le modèle de FvK, nous montrons que la plasticité peut permettre d'initier la décohésion et le flambage du film d'une façon qui semble compatible avec des résultats expérimentaux.

Une des suites possibles de cette étude pourrait être l'investigation des mécanismes de plasticité survenant au sein du film mince lui-même. Dans certaines simulations en effet, il a été observé des processus plus complexes menant notamment à la rupture du film en pied de ride ou à son sommet comme l'illustrent les figures (9.a) et (9.c). Ces événements mettent vraisemblablement en jeu des mécanismes plastiques couplés qui pourraient être caractérisés à partir des processus plus simples que nous avons déjà identifiés. Ces résultats pourraient par ailleurs apporter des explications supplémentaires aux études expérimentales et théoriques menées ces dernières années dans lesquelles des configurations similaires de structures cloquées ont été observées (voir figures (9.b) et (9.d)) [60, 61].

Du point de vue des simulations numériques, il serait également intéressant de pouvoir étudier les structures de cloquage aux plus grandes échelles afin de rendre compte notamment de la plasticité dans des systèmes plus réalistes. Il s'agirait en outre de pouvoir décrire les mécanismes d'interaction entre les différentes structures de cloquage en tenant compte des phénomènes qui surviennent aux échelles microscopiques. Mener ce type d'études à l'aide des simulations atomistiques se révèle

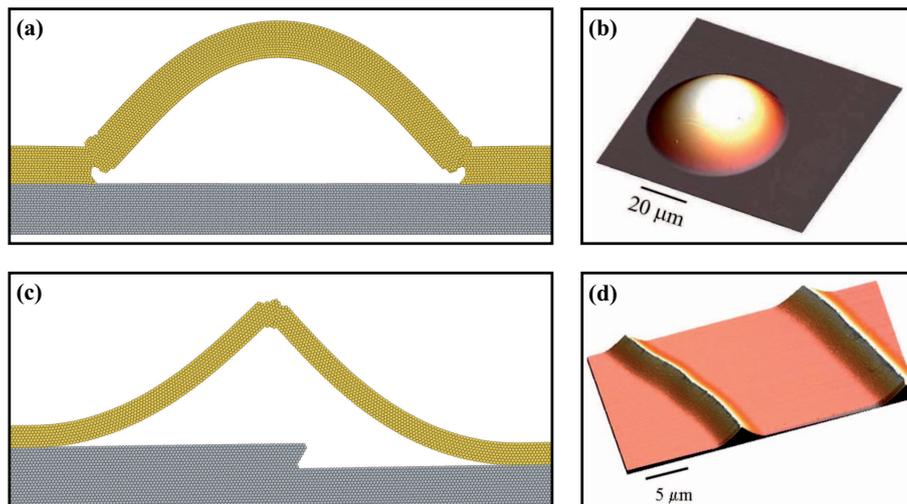


Figure 9 – (a) Simulation atomistique révélant de la plasticité en pied d’une ride droite à l’équilibre dans un système Mo-W (jaune-gris). (b) Vue AFM d’une cloque circulaire dont la base est pliée plastiquement dans un système Au-Si [60]. (c) Simulation atomistique révélant de la plasticité au sommet d’une ride droite à l’équilibre au dessus d’une marche interfaciale dans un système Mo-W (jaune-gris). (d) Vue AFM de rides droites dont le sommet a craqué dans un système Y_2O_3 -GaAs [61].

cependant difficile du fait de la puissance de calcul qu’il serait alors nécessaire. Une alternative pourrait être d’employer des méthodes de simulations par éléments finis. L’idée dans ce cas, serait d’intégrer, dans ces simulations, les mécanismes élémentaires que nous avons mis en évidence à l’échelle atomique. En effet, ce type de simulations déjà menées par le passé reposent généralement sur une approche phénoménologique du délaminage (modèle de zone cohésive, dépendance de l’énergie d’adhésion avec la mixité modale, etc.). Il s’agirait, en tenant compte des mécanismes que nous avons caractérisés, d’obtenir des évolutions de cloque similaires à celles qui sont décrites de manière performante par ces loi empiriques.

Une autre voie possible serait d’employer des méthodes de simulations en champ de phase. Dans ce formalisme, il est possible de rendre compte de phénomènes physiques très divers comme la plasticité ou la diffusion aux interfaces dans un cadre théorique qui est numériquement bien souvent plus rapide à traiter, comparé aux simulations atomistiques que nous avons réalisées. L’idée serait alors d’étudier à une échelle plus grande le couplage entre le flambage d’un film, la fissuration dans l’interface et les processus plastiques à partir d’une approche numérique dans laquelle les pré-supposés sur les événement physiques attendus restent limités. Des travaux préliminaires menés en collaboration avec Alphonse Finel, Yann Le Bouar et Benoît Appolaire du Laboratoire d’Etude des Microstructure de l’ONERA ont déjà débutés sur cette approche et pourraient donner suite au présent travail de thèse.

Pour étudier le couplage entre le flambage, le délaminage et la plasticité, des

études expérimentales sont également en cours au laboratoire de Poitiers. Très récemment en effet, un microscope à force atomiques sous vide a été installé dans le cadre du projet Nanoplast qui permet entre autre d'effectuer des observations in situ d'un échantillon soumis à un essai de compression. La résolution de l'appareil permettrait en effet d'identifier des mécanismes de plasticité aux échelles microscopiques. Les résultats obtenus aux cours de ce travail de thèse pourraient alors être confrontés aux systèmes réels. Nous pourrions par exemple observer, si elle devait se produire, la surestimation de la déflexion maximale d'une ride droite que nous avons associée à un mécanisme de glissement dans l'interface film-substrat. Il n'est d'ailleurs pas exclu que dans les systèmes très adhérents, la nucléation de dislocations d'épitaxie en pied de structures puisse se manifester par une variation brusque de la déflexion maximale lorsque l'épaisseur du film ne fait que quelques nanomètres. Ceci pourrait être directement confirmé (ou infirmé) par l'observation directe de ce phénomène. Nous pourrions également décrire la progression du délaminage des structures observées et vérifier que celui-ci puisse s'expliquer par la répartition de défauts microstructuraux dans les systèmes faiblement adhérents. Enfin, il serait également possible d'observer précisément la nucléation d'une structure de cloquage au dessus d'une marche ce qui permettrait de vérifier que le scénario que nous avons exposé dans le chapitre 3 est cohérent. Il s'agirait en particulier de valider ou non le fait que les structures nucléées présentent une disymétrie vis-à-vis du défaut cristallin en se délaminant préférentiellement sur la partie haute de la marche.

Bibliographie

- [1] CHEN X., HUTCHINSON J. W., HE M. Y., AND EVANS A. G. *On the propagation and coalescence of delamination cracks in compressed coatings : with application to thermal barrier systems.* Acta Materialia **51**(7), 2017–2030 (2003).
- [2] DRORY M. D., THOULESS M. D., AND EVANS A. G. *On the decohesion of residually stressed thin films.* Acta Metallurgica **36**(8), 2019–2028 (1988).
- [3] GIRAULT B., VILLAIN P., LE BOURHIS E., GOUDEAU P., AND RENAULT P. O. *X-ray diffraction analysis of the structure and residual stresses of W/Cu multilayers.* Surface and Coatings Technology **201**(7), 4372–4376 (2006).
- [4] JUNQUA N. AND GRILHÉ J. *Surface instabilities and dislocation formation during crystal growth.* Materials Science and Engineering A **173**(1-2), 29 (1993).
- [5] YANG F. *Stress-induced surface instability of an elastic layer.* Mechanics of Materials **38**(1–2), 111–118 (2006).
- [6] FRANK F. C. AND VAN DER MERWE J. H. *One-Dimensional dislocations. II. misfitting monolayers and oriented overgrowth.* Proceedings of the Royal Society of London. Series A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences **198**(1053), 216–225 (1949).
- [7] TRAMPERT A. AND PLOOG K. H. *Heteroepitaxy of large-misfit systems : Role of coincidence lattice.* Crystal Research and Technology **35**(6-7), 793–806 (2000).
- [8] ZHAO M.-H., FU R., LU D., AND ZHANG T.-Y. *Critical thickness for cracking of Pb(Zr_{0.53}Ti_{0.47})O₃ thin films deposited on Pt/Ti/Si(100) substrates.* Acta Materialia **50**(17), 4241–4254 (2002).
- [9] CORDILL M. J., FISCHER F. D., RAMMERSTORFER F. G., AND DEHM G. *Adhesion energies of Cr thin films on polyimide determined from buckling : Experiment and model.* Acta Materialia **58**(16), 5520–5531 (2010).
- [10] GIOIA G., ORTIZ M., HUTCHINSON J. W., AND WU T. Y. *Delamination of Compressed Thin Films.* Elsevier (1997).

- [11] FREUND L. B. AND SURESH S. *Thin film materials : Stress, Defects Formation and Surface Evolution*. Cambridge University Press, Cambridge edition (2003).
- [12] COUPEAU C., NAUD J. F., CLEYMAND F., GOUDEAU P., AND GRILHÉ J. *Atomic force microscopy of in situ deformed nickel thin films*. Thin Solid Films **353**(1-2), 194–200 (1999).
- [13] COUPEAU C. *From thin film and coating buckling structures to mechanical properties*. Materials Science and Engineering A **483-484**, 617–619 (2008).
- [14] MOON M.-W., LEE K.-R., OH K. H., AND HUTCHINSON J. W. *Buckle delamination on patterned substrates*. Acta Materialia **52**(10), 3151–3159 (2004).
- [15] FAULHABER S., MERCER C., MOON M.-W., HUTCHINSON J. W., AND EVANS A.G. *Buckling delamination in compressed multilayers on curved substrates with accompanying ridge cracks*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids **54**(5), 1004–1028 (2006).
- [16] COLIN J., COUPEAU C., DURINCK J., AND GRILHÉ J. *Buckling patterns of gold thin films on silicon substrates : Formation of superimposed blisters*. Europhysics Letters **86**(5), 54002 (2009).
- [17] KUZNETSOV A. S., GLEESON M. A., AND BIJKERK F. *Hydrogen-induced blistering mechanisms in thin film coatings*. Journal of Physics : Condensed Matter **24**(5), 052203 (2012).
- [18] MATUDA N., BABA S., AND KINBARA A. *Internal stress, young's modulus and adhesion energy of carbon films on glass substrates*. Thin Solid Films **81**(4), 301–305 (1981).
- [19] ABDALLAH A. A., KOZODAEV D., BOUTEN P. C. P., DEN TOONDER J. M. J., SCHUBERT U. S., AND DE WITH G. *Buckle morphology of compressed inorganic thin layers on a polymer substrate*. Thin Solid Films **503**(1–2), 167–176 (2006).
- [20] FÖPPL A. *Vorlesungen über technische mechanik*. **5** (1907).
- [21] KÁRMÁN T.V. *Festigkeitsprobleme in maschinenbau*. Dans : *Encyclopadie der mathematischen wissenschaften*. **IV/4**, 311–385 (1910).
- [22] CHAI H., BABCOCK C. D., AND KNAUSS W. G. *One dimensional modelling of failure in laminated plates by delamination buckling*. International Journal of Solids and Structures **17**(11), 1069–1083 (1981).
- [23] WAN-LEE Y. *Axisymmetric buckling and growth of a circular delamination in a compressed laminate*. International Journal of Solids and Structures **21**(5), 503–514 (1985).

-
- [24] GRIFFITH A. A. *The phenomena of rupture and flow in solids*. Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A **221**(582-593), 163–198 (1921).
- [25] LIECHTI K. M. AND CHAI Y. S. *Asymmetric shielding in interfacial fracture under in-plane shear*. Journal of Applied Mechanics **59**(2), 295–304 (1992).
- [26] HUTCHINSON J. W. AND SUO Z. *Mixed mode cracking in layered materials*. Advanced in applied mechanics **29**, 63–191 (1991).
- [27] FAOU J.-Y., PARRY G., GRACHEV S., AND BARTHEL E. *How does adhesion induce the formation of telephone cord buckles?* Physical Review Letters **108**(11), 116102 (2012).
- [28] HU M. S. AND EVANS A. G. *The cracking and decohesion of thin films on ductile substrates*. Acta Metallurgica **37**(3), 917–925 (1989).
- [29] COTTERELL B. AND CHEN Z. *Buckling and cracking of thin films on compliant substrates under compression*. International Journal of Fracture **104**(2), 169–179 (2000).
- [30] TVERGAARD V. AND HUTCHINSON J. W. *The influence of plasticity on mixed mode interface toughness*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids **41**(6), 1119–1135 (1993).
- [31] VOLINSKY A. A., MOODY N. R., AND GERBERICH W. W. *Interfacial toughness measurements for thin films on substrates*. Acta Materialia **50**(3), 441–466 (2002).
- [32] BOUBEKER B., TALEA M., GOUDEAU P., COUPEAU C., AND GRILHÉ J. *On the young's modulus of 304 l stainless steel thin films*. Materials Characterization **45**(1), 33–37 (2000).
- [33] AUDOLY B. *Stability of straight delamination blisters*. Physical Review Letters **83**(20), 4124–4127 (1999).
- [34] COLIN J., CLEYMAND F., COUPEAU C., AND GRILHÉ J. *Worm-like delamination patterns of thin stainless steel films on polycarbonate substrates*. Philosophical Magazine A **80**(11), 2559–2565 (2000).
- [35] AUDOLY B. AND POMEAU Y. *Elasticity and Geometry : From hair curls to the non-linear response of shells*. Oxford University Press edition (2010).
- [36] GEORGE M., COUPEAU C., COLIN J., CLEYMAND F., AND GRILHÉ J. *Delamination of metal thin films on polymer substrates : From straight-sided blisters to varicose structures*. Philosophical Magazine A **82**(3), 633–641 (2002).
- [37] CLEYMAND F., COUPEAU C., AND GRILHÉ J. *Atomic force microscopy investigation of buckling patterns of nickel thin films on polycarbonate substrates*. Philosophical Magazine Letters **82**(9), 477–482 (2002).

- [38] PARRY G., CIMETIÈRE A., COUPEAU C., COLIN J., AND GRILHÉ J. *Stability diagram of unilateral buckling patterns of strip-delaminated films*. Physical Review E **74**(6), 066601 (2006).
- [39] CROSBY K. M. AND BRADLEY R. M. *Pattern formation during delamination and buckling of thin films*. Physical Review E **59**(3), R2542–R2545 (1999).
- [40] JAGLA E. A. *Modeling the buckling and delamination of thin films*. Physical Review B **75**(8), 085405 (2007).
- [41] MOLDOVAN D. AND GOLUBOVIC L. *Buckling dynamics of compressed thin sheets (Membranes)*. Physical Review Letters **82**(14), 2884–2887 (1999).
- [42] SCHROLL R. D., ADDA-BEDIA M., CERDA E., HUANG J., MENON N., RUSSELL T. P., TOGA K. B., VELLA D., AND DAVIDOVITCH B. *Capillary deformations of bendable films*. Physical Review Letters (2013).
- [43] PUNDT A. AND PEKARSKI P. *Buckling of thin niobium-films on polycarbonate substrates upon hydrogen loading*. Scripta Materialia **48**(4), 419–423 (2003).
- [44] HUTCHINSON J. W. *Delamination of compressed films on curved substrates*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids **49**(9), 1847–1864 (2001).
- [45] CHEN Z., COTTERELL B., AND WANG W. *The fracture of brittle thin films on compliant substrates in flexible displays*. Engineering Fracture Mechanics **69**(5), 597–603 (2002).
- [46] MEI H., LANDIS C. M., AND HUANG R. *Concomitant wrinkling and buckle-delamination of elastic thin films on compliant substrates*. Mechanics of Materials **43**(11), 627–642 (2011).
- [47] LU T. Q., ZHANG W. X., AND WANG T. J. *The surface effect on the strain energy release rate of buckling delamination in thin film-substrate systems*. International Journal of Engineering Science **49**(9), 967–975 (2011).
- [48] LI Y., FANG B., ZHANG J., AND SONG J. *Surface effects on the wrinkles in a stiff thin film bonded to a compliant substrate*. Thin Solid Films **520**(6), 2077–2079 (2011).
- [49] PARRY G. *Thèse : Flambage unilatéral d’un film mince en compression biaxiale. États post-critiques, transitions, influence de la compliance du substrat*. (2005).
- [50] PARRY G., COUPEAU C., COLIN J., CIMETIÈRE A., AND GRILHÉ J. *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).
- [51] PARRY G., COLIN J., COUPEAU C., FOUCHER F., CIMETIÈRE A., AND GRILHÉ J. *Snapthrough occurring in the postbuckling of thin films*. Applied Physics Letters **86**(8), 081905–3 (2005).

-
- [52] PARRY G., COLIN J., COUPEAU C., FOUCHER F., CIMETIÈRE A., AND GRILHÉ J. *Effect of substrate compliance on the global unilateral post-buckling of coatings : AFM observations and finite element calculations*. Acta Materialia **53**(2), 441–447 (2005).
- [53] DION E. *Thèse : Effet de la pression sur le phénomène de cloquage des films minces*. (2011).
- [54] DION E., GRILHÉ J., COLIN J., AND COUPEAU C. *Buckling of stressed and pressurized thin films on substrates*. Journal of Applied Mechanics **77**(4), 041012 (2010).
- [55] COUPEAU C., GRILHÉ J., DION E., DANTAS DE MORAIS L., AND COLIN J. *Evidence of vacuum between buckled films and their substrates*. Thin Solid Films **518**(18), 5233–5236 (2010).
- [56] CORDILL M. J., MOODY N. R., AND BAHR D. F. *The effects of plasticity on adhesion of hard films on ductile interlayers*. Acta Materialia **53**(9), 2555–2562 (2005).
- [57] COUPEAU C., GOUDEAU P., BELLIARD L., GEORGE M., TAMURA N., CLEYMAND F., COLIN J., PERRIN B., AND GRILHÉ J. *Evidence of plastic damage in thin films around buckling structures*. Proceedings of the 31st International Conference on Metallurgical Coatings and Thin Films **469–470**(0), 221–226 (2004).
- [58] FOUCHER F. *Thèse : Influence du substrat sur le phénomène de cloquage de matériaux revêtus*. (2007).
- [59] FOUCHER F., COUPEAU C., COLIN J., CIMETIÈRE A., AND GRILHÉ J. *How does crystalline substrate plasticity modify thin film buckling?* Physical Review Letters **97**(9), 096101 (2006).
- [60] COLIN J., COUPEAU C., AND GRILHÉ J. *Plastic folding of buckling structures*. Physical Review Letters **99**(4), 046101 (2007).
- [61] COLIN J., COUPEAU C., DURINCK J., AND GRILHÉ J. *Buckling and cracking of Y2O3 thin films at grain boundaries*. Physical Review B **78**(15), 153411 (2008).
- [62] DURINCK J., COUPEAU C., COLIN J., AND GRILHÉ J. *Molecular dynamics simulations of buckling-induced plasticity*. Applied Physics Letters **93**(22), 221904 (2008).
- [63] DURINCK J., COUPEAU C., COLIN J., AND GRILHÉ J. *A stress relaxation mechanism through buckling-induced dislocations in thin films*. Journal of Applied Physics **108**(2), 026104 (2010).
- [64] MOON M. W., JENSEN H. M., HUTCHINSON J. W., OH K. H., AND EVANS A. G. *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).
- [65] ABDALLAH A. A., BOUTEN P. C. P., DEN TOONDER J. M. J., AND DE WITH G. *Buckle initiation and delamination of patterned ITO layers on a polymer substrate*. Surface and Coatings Technology **205**(8-9), 3103–3111 (2011).
- [66] EVANS A. G., HE M. Y., AND HUTCHINSON J. W. *Effect of interface undulations on the thermal fatigue of thin films and scales on metal substrates*. Acta Materialia **45**(9), 3543–3554 (1997).
- [67] MUMM D. R. AND EVANS A. G. *On the role of imperfections in the failure of a thermal barrier coating made by electron beam deposition*. Acta Materialia **48**(8), 1815–1827 (2000).
- [68] STORAKERS B. AND NILSSON K.-F. *Imperfection sensitivity at delamination buckling and growth*. International Journal of Solids and Structures **30**(8), 1057–1074 (1993).
- [69] HUTCHINSON J. W., HE M. Y., AND EVANS A. G. *The influence of imperfections on the nucleation and propagation of buckling driven delaminations*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids **48**(4), 709–734 (2000).
- [70] DAW M. S. AND BASKES M. I. *Embedded-atom method : Derivation and application to impurities, surfaces, and other defects in metals*. Physical Review B **29**(12), 6443 (1984).
- [71] ZHOU X. W., WADLEY H. N. G., JOHNSON R. A., LARSON D. J., TABAT N., CEREZO A., PETFORD-LONG A. K., SMITH G. D. W., CLIFTON P. H., MARTENS R. L., AND KELLY T. F. *Atomic scale structure of sputtered metal multilayers*. Acta Materialia **49**(19), 4005–4015 (2001).
- [72] ANDRIEU S. AND MÜLLER P. *Les surfaces solides : concepts et méthodes*. EDP Sciences CNRS edition (2005).
- [73] FEATHERSTON F. H. AND NEIGHBOURS J. R. *Elastic constants of tantalum, tungsten, and molybdenum*. Physical Review **130**, 1324–1333 (1963).
- [74] OGI H., SHIMOIKE G., TAKASHIMA K., AND HIRAO M. *Measurement of elastic-stiffness tensor of an anisotropic thin film by electromagnetic acoustic resonance*. Ultrasonics **40**, 333–336 (2002).
- [75] JOHNSON R. A. *Alloy models with the embedded-atom method*. Physical Review B **39**(17), 12554 (1989).
- [76] PLIMPTON S. J. *Fast parallel algorithms for short-range molecular dynamics*. Journal of Computational Physics (117), 1–19 (1995).

-
- [77] VETTERLING W. T. AND FLANNERY B. P. *Chapter 10, Section 6 : Conjugate Gradient Methods in Multidimensions. Dans : Numerical Recipes in C - The Art of Scientific Computing.* Cambridge University Press, 2nd edition (1992).
- [78] GEAR C. W. *Numerical Initial Value Problems in Ordinary Differential Equations.* Prentice-Hall Inc., Englewood Cliffs N. J. (1971).
- [79] NOSÉ S. *A unified formulation of the constant temperature molecular dynamics methods.* The Journal of Chemical Physics **81**(1), 511–519 (1984).
- [80] HOOVER W. G. *Canonical dynamics : Equilibrium phase-space distributions.* Physical Review A **31**(3), 1695–1697 (1985).
- [81] BERENDSEN H. J. C., POSTMA J. P. M., VAN GUNSTEREN W. F., DINOLA A., AND HAAK J. R. *Molecular dynamics with coupling to an external bath.* The Journal of Chemical Physics **81**(8), 3684–3690 (1984).
- [82] TIMOSHENKO S. P. AND GOODIER J. N. *Theory of Elasticity.* Mac-graw-hill international edition (1951).
- [83] LANDAU L. D. AND LIFSHITZ E. M. *Theory of Elasticity.* Course of theoretical physics. Pergamon edition (1959).
- [84] LANGHAAR H. L. *Energy methods in applied mechanics.* Wiley (1962).
- [85] EULER L. *Institutiones calculi differentialis.* (1755).
- [86] FÉMÉNIAS J.-L. *Introduction au calcul variationnel en physique.* Ellipses edition (2012).
- [87] VAN DER MERWE J. H. AND BRAUN M. W. H. *Epitaxy at 111fcc/110bcc metal interfaces.* Applications of Surface Science **22-23**, 545–555 (1985).
- [88] MATTHEWS J. W. AND BLAKESLEE A. E. *Defects in epitaxial multilayers : I. misfit dislocations.* Journal of Crystal Growth **27**(0), 118–125 (1974).
- [89] DEMKOWICZ M. J., WANG J., HOAGLAND R. G., AND HIRTH J. *Chapter 83 : Interfaces between dissimilar crystalline solids. Dans : A Tribute to F. R. N. Nabarro.* **14**, 141–205 (2008).
- [90] DUPRÉ A. *Théorie mécanique de la chaleur.* Gauthier-Villard edition (1869).
- [91] LI J. *AtomEye : an efficient atomistic configuration viewer.* Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering **11**(2), 173 (2003).
- [92] FRIEDEL J. *Dislocations.* Oxford, Pergamon Press edition (1964).
- [93] HIRTH J. P. AND LOTHE J. *Theory of dislocations.* John Wiley and Sons, 2nd edition (1982).
- [94] GRILHÉ J. AND JUNQUA N. *Stress calculations in thin films and multilayers using distributions of infinitesimal dislocations.* MRS Proceedings **239**, 527 (1992).

- [95] JOHNSON H. T. AND FREUND L. B. *Mechanics of coherent and dislocated island morphologies in strained epitaxial material systems*. Journal of Applied Physics **81**, 6081–6090 (1997).
- [96] YU H.-H., HE M. Y., AND HUTCHINSON J. W. *Edge effects in thin film delamination*. Acta Materialia **49**, 93–107 (2001).
- [97] RICE J. R. AND THOMSON R. *Ductile versus brittle behaviour of crystals*. Philosophical Magazine **29**(1), 73–97 (1974).
- [98] DE WIT R. *The continuum theory of stationary dislocations*. Dans : *Solids State Physics*. Volume **10**, 249–292 (1960).
- [99] SUN Y., BELTZ G. E., AND RICE J. R. *Estimates from atomic models of tension-shear coupling in dislocation nucleation from a crack tip*. Materials Science and Engineering : A **170**(1–2), 67–85 (1993).
- [100] BROCHARD S., BEAUCHAMP P., AND GRILHÉ J. *Stress concentration near a surface step and shear localization*. Physical Review B **61**, 8707–8713 (2000).
- [101] BRAUN A., BRIGGS K. M., AND BÖNI P. *Analytical solution to matthews’ and blakeslee’s critical dislocation formation thickness of epitaxially grown thin films*. Journal of Crystal Growth **241**(1–2), 231–234 (2002).
- [102] CANTU P., WU F., WALTEREIT P., KELLER S., ROMANOV A. E., DENBAARS S. P., AND SPECK J. S. *Role of inclined threading dislocations in stress relaxation in mismatched layers*. Journal of Applied Physics **97**(10), 103534 (2005).
- [103] GODET J., BROCHARD S., PIZZAGALLI L., BEAUCHAMP P., AND SOLER J. M. *Dislocation formation from a surface step in semiconductors : An ab initio study*. Physical Review B **73**(9), 092105 (2006).
- [104] ALACA B. E., SAIF M. T. A., AND SEHITOGLU H. *On the interface debond at the edge of a thin film on a thick substrate*. Acta Materialia **50**(5), 1197–1209 (2002).
- [105] THOMSON R., HSIEH C., AND RANA V. *Lattice trapping of fracture cracks*. Journal of Applied Physics **42**(8), 3154–3160 (1971).
- [106] LAWN B. R. *Atomic aspects of fracture*. Dans : *Fracture of brittle solids*. Cambridge Solid State Science Series. Cambridge University Press, 2nd revised edition (1993).
- [107] RICE J. R. *Mathematical analysis in the mechanics of fracture*. pages 191–311 (1968).
- [108] MIANNAY D. P. *Mécanique de la rupture*. Société Française de Métallurgie et de Matériaux, les éditions de physique edition (1995).

- [109] WANG J., HOAGLAND R. G., LIU X. Y., AND MISRA A. *Atomistic modeling of the interaction of glide dislocations with "weak" interfaces*. Acta Materialia **56**(19), 5685–5693 (2008).
- [110] WANG J., HOAGLAND R. G., LIU X. Y., AND MISRA A. *The influence of interface shear strength on the glide dislocation-interface interactions*. Acta Materialia **59**(8), 3164–3173 (2011).
- [111] VOLTERRA V. *Sur l'équilibre des corps élastiques multiplement connexes*. Gauthier-Villard edition (1907).

Résumé

Ce travail de thèse a pour objet l'étude de l'influence de la plasticité sur le délaminage et le flambage de films minces déposés sur substrats. Il repose sur une approche mixte combinant des simulations atomistiques et des calculs analytiques basés sur la théorie des plaques minces de Föppl-von Kármán (FvK). Les simulations ont permis de caractériser, au cours de la formation d'une ride droite, un mécanisme de glissement localisé dans l'interface en pied de cloque entraînant une augmentation de la déflexion maximale de la ride. Ce mécanisme de glissement est également présent lorsque le délaminage piloté par le flambage du film mince est lui aussi observé. En intégrant dans le modèle élastique de FvK, la forme de la ride droite ainsi que le processus de délaminage ont ensuite été caractérisés. Le bon accord trouvé entre les simulations atomistiques et le modèle explique notamment le délaminage des cloques sans introduire de dépendance entre l'énergie d'adhésion et la mixité modale. L'initiation du cloquage à partir d'une marche d'interface créée par des dislocations venant du substrat a également été étudiée. Les simulations révèlent qu'avant flambage, le film se décolle à la fois sur le haut et sur le bas de la marche. Un mécanisme de glissement est là aussi identifié. Une déformation critique de flambage qui tient compte de ces phénomènes a été déterminée en modélisant le film mince sur la marche dans le formalisme de FvK. Les résultats des simulations couplés au modèle élastique expliquent, comme il est par ailleurs observé expérimentalement, pourquoi les cloques se forment préférentiellement au-dessus de défauts tels que des marches.

Mots clés : Cloquage, Délaminage, Plasticité, Films minces, Défauts d'interface, Simulations atomistiques, Elasticité.

Abstract

The purpose of this thesis is to study the influence of plasticity on the delamination and buckling of thin films deposited on substrates. By combining atomistic simulations and analytic calculations performed in the framework of continuum mechanics, the microscopic processes consisting in the sliding of atoms located at the base of the blister has been characterized during the formation of a straight-sided blister. This sliding effect has been found to increase the maximum deflection of the buckling structure. It also modifies the delamination process of the interface. Taking into account this sliding into the Föppl-von Kármán theory of thin plates (FvK), the shape of the straight-sided blister and the delamination process have been characterized. The consistency between the atomistic simulations and the model explains how the buckling-driven delamination proceeds without introducing any dependence between the adhesion energy and the mode of mixity. The initiation of the buckling from a dislocation-induced interface step has also been investigated. The simulations show that, before buckling, the film delaminates on both sides of the step and a sliding mechanism is also observed. A critical buckling strain which accounts for these phenomena has been analytically determined in the FvK framework. The simulation results and the elastic model explain, as it has also been experimentally observed, why blistering preferentially occurs above step-like defects.

Keywords : Buckling, Delamination, Plasticity, Thin films, Interfacial defects, Atomistic simulations, Elasticity.