

Étude statistique de la fissuration des revêtements et modélisation du comportement mécanique de films déposés sur des substrats Inox 316L

FRANÇOISE HUGOT^{1,a} ET ÉRIC ABGRALL¹

Université de Limoges, ENSIL, 87068 Limoges, France

Reçu le 8 février 2006, accepté le 29 mars 2007

Résumé – L’essai de multifissuration consiste à étudier le réseau de fissures formé dans un revêtement. Le dispositif de flexion 4 points est retenu. Le nombre et la position des fissures sont relevés par microscopie optique en fonction de la déformation. Un traitement statique prenant en compte le caractère aléatoire de la rupture fragile et l’ordonnement du réseau de fissures sous l’effet de la relaxation de contrainte permet de déterminer deux paramètres fondamentaux : la densité de probabilité de rupture (DPR) qui mesure la fragilité apparente et la taille de la zone relaxée (TZR) dont la valeur renseigne sur la qualité de l’interface entre le revêtement et le substrat pour donner une indication sur l’adhérence. La partie expérimentale concerne plus particulièrement l’étude de films d’alumine (Al_2O_3) déposés par RMPECVD (Remote Microwave Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition) sur un substrat d’acier inoxydable (316L). Des corrélations entre paramètres de dépôt, préparation de surface et caractéristiques des films sont dégagées. La modélisation de l’essai à l’aide du code Abaqus[®] permet de visualiser la répartition des contraintes et de mettre en évidence l’influence de la présence de fissures.

Mots clés : Multifissuration / flexion 4 points / propriétés mécaniques / modélisation Abaqus

Abstract – Mechanical behaviour of crack coating film Al_2O_3 . The multicracking test consists in studying the cracks network appearing in a film. A four point bending test has been chosen. The number and the position of cracks network versus the strain are recorded by optical microscopy. A statistical treatment taking into account the random character of the determination of two fundamental: rupture probability density (DPR) related to the brittleness and relaxed zone size (TZR) linked to the quality of the interface between the film and the substrate which can give indications on the adhesion. The experimental part is devoted to the study of alumina (Al_2O_3) films deposited by RMPECVD (Remote Microwave Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition) on stainless steel (316L). Correlations have been established between the deposition parameters, surface preparation and mechanical properties. The modelling of this test using the Abaqus[®] code allows to visualise the stress distribution and to show the effect of the presence of cracks.

Key words: Multicracking / four point bending test / mechanical properties / Abaqus modelling

1 Introduction

Les substrats revêtus sont très fréquemment utilisés dans diverses applications industrielles pour améliorer les propriétés de surface telles que la résistance à l’usure, à la corrosion, ... Le matériau est constitué d’un support sur lequel est déposé un revêtement mince et fragile. Sous l’action d’une sollicitation extérieure qui peut être

de type mécanique ou thermique, des fissures apparaissent uniquement dans le dépôt. L’aspect du réseau de fissures dépend de plusieurs facteurs tels que :

- des conditions expérimentales d’élaboration des dépôts,
- du mode de sollicitation extérieure,
- du comportement mécanique du dépôt et du substrat.

L’essai unidirectionnel de flexion quatre points [1] est le plus approprié pour visualiser la multifissuration : il permet de caractériser la fragilité et l’adhérence du

^a Auteur pour correspondance :
hugot@lrbb3.pierroton.inra.fr

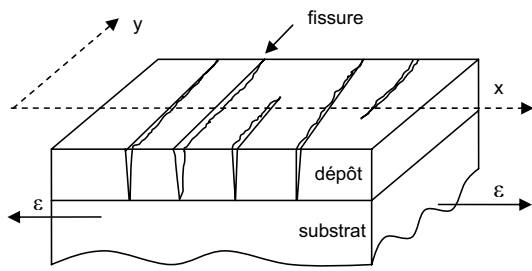


Fig. 1. Multifissuration unidirectionnelle d'un revêtement.

revêtement sur le support. L'échantillon à géométrie plane est constitué d'une lame ayant un comportement ductile (support) et d'un revêtement (dépôt) mince et fragile. Dans ce cas, la différence de fragilité induit la réponse suivante : les défauts les plus sévères amorcent des fissures qui se propagent dans le matériau fragile. Les fissures ainsi créées, sont stoppées au contact du matériau ductile. Lorsque la sollicitation extérieure croît, le phénomène de multifissuration est observé avec l'apparition d'une multitude de fissures dans le matériau le plus fragile (Fig. 1).

Le revêtement SiO₂ déposé sur un substrat d'acier inoxydable 316L est étudié expérimentalement. L'essai de multifissuration montre que les propriétés mécaniques des matériaux (substrat, dépôt) ainsi que la relaxation des contraintes influent sur le nombre et la position des fissures et rend compte de l'aspect statistique du réseau de fissures [2].

Les potentialités du code ABAQUS sont utilisées pour simuler le comportement avant et après fissuration du revêtement soumis à une sollicitation en flexion quatre points ou en traction uniaxiale. Les modèles permettent de tirer des résultats très intéressants sur le transfert de charge entre le dépôt et le substrat.

2 Essai en flexion 4 points

L'essai en flexion quatre points est représentatif du comportement mécanique de l'échantillon car la distribution des contraintes normales avant dégradation est uniforme le long de l'axe longitudinal et garantit une rupture gouvernée par le défaut le plus critique. Ainsi, les défauts étant répartis de manière aléatoire, les premières fissures observées sont parallèles et perpendiculaires à la direction de sollicitation : elles traversent l'épaisseur du dépôt et apparaissent à des positions aléatoires.

Ce phénomène se traduit par une redistribution de la contrainte dans la zone x_1x_2 et $x'_1x'_2$ correspondant à la taille de la zone relaxée (Fig. 2).

La contrainte normale est nulle au niveau de la fissure en x_1 puis suit une progression parabolique pour atteindre la valeur maximale au centre du pavé $x_2x'_1$ [3].

La contrainte normale dans chaque pavé augmente avec la déformation appliquée. Les défauts de petites tailles sont alors susceptibles d'amorcer des fissures qui se propagent dans le revêtement. Mais l'apparition de nouvelles fissures autour de la zone relaxée est peu probable. La position d'amorçage n'est plus aléatoire et le réseau de

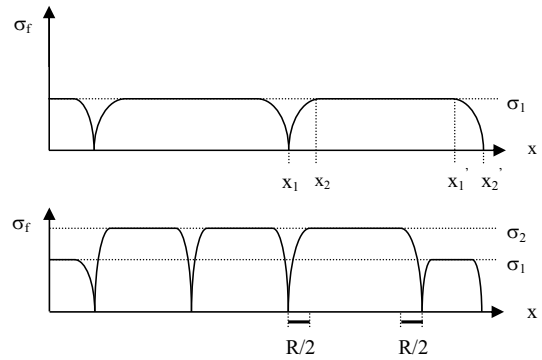


Fig. 2. Distribution de la contrainte dans un dépôt fissuré.

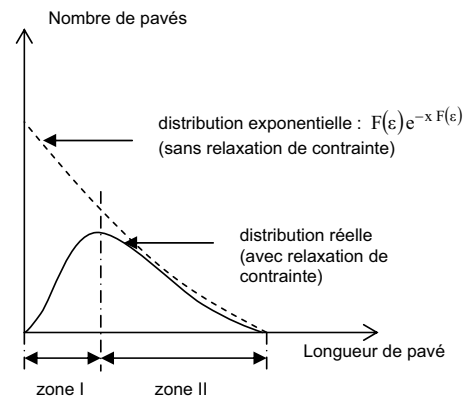


Fig. 3. Distribution des pavés pour une déformation uniaxiale ϵ .

fissures s'ordonne progressivement à chaque déformation supplémentaire imposée.

L'augmentation de la sollicitation extérieure se traduit donc par une densité de fissures croissantes, une réduction de la taille des pavés et une importante relaxation de contrainte. On atteint alors un seuil au-delà duquel aucune fissure supplémentaire n'est créée.

3 Densité de probabilité de rupture (DPR)

L'essai de multifissuration confirme que la sévérité d'un défaut sous l'action d'une déformation extérieure est à l'origine de l'amorçage puis de la propagation brutale d'une fissure dans le revêtement. Mais la redistribution de contraintes autour de la fissure limite l'apparition de nouvelles fissures au voisinage de la zone relaxée. Par conséquent, le nombre de pavés de petites tailles est faible.

En revanche, dans le cas où il n'y a pas de relaxation de contrainte, la contrainte reste uniforme dans le revêtement et la formation de fissures dépend uniquement du caractère aléatoire des défauts. La distribution du nombre de pavés décroît de manière exponentielle en fonction de la taille des pavés (Fig. 3).

La rupture fragile avec relaxation de contrainte d'un revêtement conduit à étudier la notion de probabilité de rupture c'est-à-dire la probabilité de formation d'une fissure lorsque la déformation a atteint ϵ [4]. Considérons un

élément de dépôt de longueur infinitésimale dx et écrivons la probabilité de rupture $P(\varepsilon, X)$ pour qu'un pavé de longueur X ne résiste pas à une sollicitation extérieure :

$$P(\varepsilon, X) = 1 - e^{-\int_0^X F(\varepsilon) dx}$$

où $F(\varepsilon)$ est la densité de probabilité de rupture (DPR) pour une déformation ε . La DPR traduit la fragilité du revêtement dans les conditions expérimentales données.

La DPR est liée à la taille et la position des défauts, à la relaxation des contraintes et à la géométrie de l'échantillon. Pour ces raisons, ce paramètre n'est pas une grandeur intrinsèque du matériau.

Les moments de distribution permettent de décrire une distribution attachée à une variable v . Le moment m_k d'ordre k s'écrit :

$$m_k = \int_{-\infty}^{+\infty} v^k p(v) dv$$

où $p(v)$ est la densité de probabilité de rupture pour une variable v .

Ce moment peut s'exprimer aussi de la manière suivante :

$$m_k = \lim_{Q \rightarrow \infty} \frac{1}{Q} \sum_{i=1}^Q v_i^k$$

où Q est le nombre d'observations et v_i est la valeur de la $i^{\text{ème}}$ observation.

Dans le cas de l'essai de multifissuration, le nombre d'observations est limité à la quantité $N-1$ de pavés (N est le nombre de fissures). Le moment correspondant à la distribution des pavés dans le revêtement peut être approché par :

$$m_k = \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^{N-1} x_i^k$$

où x_i est la $i^{\text{ème}}$ distance entre deux fissures voisines.

Le moment d'ordre 1 correspond à l'espérance de compter, au cours de la multifissuration du revêtement, la valeur x . C'est donc la distance x_{moy} entre deux fissures qui s'écrit :

$$m_1 = \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^{N-1} x_i = x_{\text{moy}}$$

Ce moment est égal à l'inverse de la densité de fissures, soit D^{-1} .

Pour le cas particulier où le matériau est parfaitement homogène, les fissures sont ordonnées et le moment d'ordre 1 s'identifie à la distance interfissure x .

Le moment d'ordre 2 correspond à l'écart moyen quadratique : $m_2 = \frac{1}{N-1} \sum_{i=1}^{N-1} x_i^2$.

La variance qui est la moyenne des carrés des écarts à la valeur moyenne x_{moy} s'exprime par $v = m_2 - m_1^2$.

Quand la formation de fissures n'entraîne aucune relaxation de contrainte, la distribution des distances interfissures est égale à $F(\varepsilon)e^{-x F(\varepsilon)}$. Le moment d'ordre k s'écrit $m_k' = \frac{k!}{F(\varepsilon)^k}$.

Sachant que le moment d'ordre 1 est égal à $m_1' = \frac{1}{F(\varepsilon)}$, la DPR dans la zone II (Fig. 3) peut être estimée par la densité de fissures D (avec $D = m_1^{-1}$) pour toute sollicitation.

D'autre part, la distribution des pavés dans la zone II peut être approchée par $F(\varepsilon)e^{-x F(\varepsilon)} - d_{\text{zoneI}}$ où d_{zoneI} est la distribution dans la zone I.

Les moments d'ordre 1 et 2 s'écrivent :

$$m_1'' = \frac{1}{F(\varepsilon)} + d_{\text{zoneI}} \quad \text{et} \quad m_2'' = \frac{1}{F(\varepsilon)^2} + \frac{2d_{\text{zoneI}}}{F(\varepsilon)} + d_{\text{zoneI}}^2$$

En éliminant d_{zoneI} entre les deux équations précédentes et en s'identifiant aux moments de la distribution réelle, la DRP est égale à $F(\varepsilon) = \frac{1}{\sqrt{m_2 - m_1^2}} = \frac{1}{\sqrt{v}}$ dans la zone II.

4 Taille de la zone relaxée (TZR)

La taille de la zone relaxée R ou TZR correspond à la zone où la formation de fissures s'accompagne d'une redistribution de contrainte et traduit le transfert de charge du substrat au dépôt. La TZR dépend des propriétés mécaniques du substrat et du dépôt et en particulier avec la taille des pavés :

- pour les pavés de faibles tailles, il y a interaction entre les deux zones relaxées. La contrainte de rupture n'est jamais atteinte,
- pour les pavés de grandes tailles, la TZR est explicitée en écrivant l'équilibre des forces en projection longitudinale pour l'élément de dépôt correspondant à la zone de relaxation de contrainte. Il vient :

$$R = 2 \frac{\sigma_f h_d}{\tau_{\text{int}}}$$

où σ_f est la contrainte de flexion au milieu du pavé, h_d est l'épaisseur du dépôt et τ_{int} la contrainte de cisaillement à l'interface dépôt/substrat.

5 Taille de la zone d'exclusion (TZE)

La taille de la zone d'exclusion $r(\varepsilon_s, X)$ ou TZE d'un pavé de taille X pour une déformation ε est basée sur la notion de probabilité liée à la sévérité des défauts.

En identifiant, la probabilité de rupture du pavé pour le cas réel et la probabilité de rupture lorsque celle-ci est nulle dans la zone d'exclusion et prend une valeur uniforme en dehors de la TZE ou en l'absence de fissure, la taille de la zone d'exclusion TZE s'écrit alors : $r(\varepsilon_s, X) = \int_0^X 1 - \frac{F(\varepsilon)}{F(\varepsilon_s)} dx$.

Tableau 1. Propriétés mécaniques de l’alumine et de l’incox.

	Al ₂ O ₃	Incox 316L
E	360 GPa	192 GPa
ν	0,25	0,3
$R_{0.2\%}$		275 MPa
R_m		580 MPa

où E est le module d’Young, ν le coefficient de Poisson, $R_{0.2\%}$ la limite d’élasticité à 0,2% et R_m la résistance maximale.

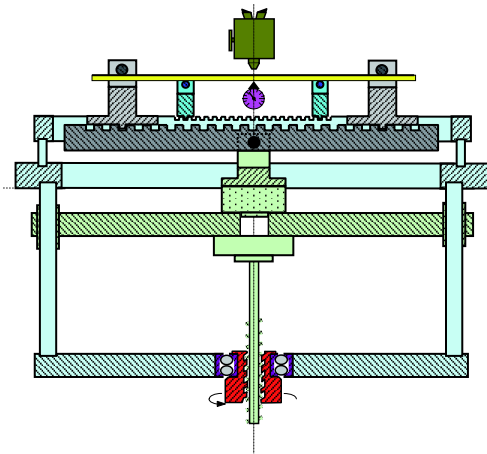


Fig. 4. Dispositif de flexion 4 points.

6 Matériaux

Les échantillons sont composés d’un revêtement d’alumine de 2 μm déposé sur une lame en acier inoxydable 316L dont les dimensions sont $90 \times 5 \times 1,5 \text{ mm}^3$. La technique P.E.C.V.D. (Plasma Enhanced Chemical Vapour Deposition) [5] micro-onde en mode post-décharge est utilisée.

Le comportement de la structure est élasto-plastique avec une modélisation bi-linéaire de la courbe d’écrouissage (Tab. 1).

7 Dispositif expérimental et résultats

Le dispositif expérimental (Fig. 4) conçu et réalisé à l’E.N.S.I.L. [6, 7], comprend essentiellement :

- Un microscope optique et sa caméra pour faciliter la détection des fissures et déterminer leur position. Pour observer l’échantillon, le microscope optique modulaire est équipé d’objectifs de grossissements $\times 20$ et $\times 40$ et d’une caméra connectée à un moniteur qui permet une visée plus précise des fissures sur l’échantillon.
- Un dispositif de flexion quatre points
- Un système d’acquisition de la force, de la flèche et des fissures par micro-ordinateur. Le traitement automatique des données permet d’accéder aux graphiques et aux résultats au cours de l’essai : nombre de pavés en fonction de la taille et de la déformation, déformée de

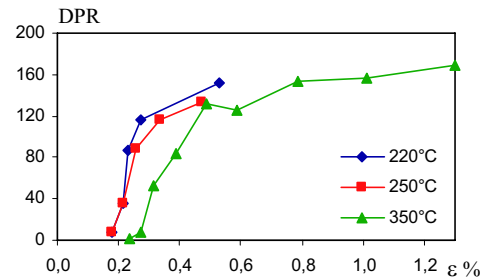


Fig. 5. Densité de probabilité de fissures en fonction de la température.

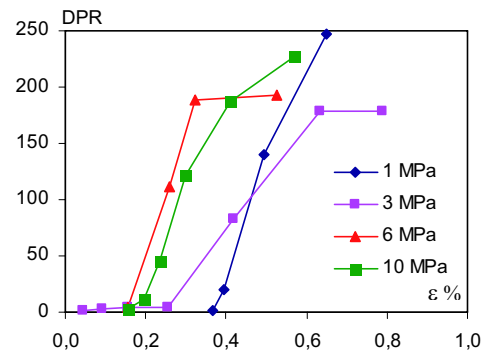


Fig. 6. Densité de probabilité de fissures en fonction de la pression.

l’échantillon, loi de comportement, densité de fissures et DPR.

Les échantillons sont préalablement chanfreinés pour supprimer le risque d’initiation de fissures à partir des bords en procédant du haut vers le bas c’est-à-dire du dépôt vers le substrat pour éviter de décoller le revêtement.

Deux empreintes réalisées par indentation Vickers servent de repères au cours de l’essai.

L’essai de multifissuration consiste à relever la position et le nombre de fissures le long de l’axe longitudinal pour chaque incrément de déformation jusqu’à saturation ou écaillage du revêtement.

Une étude paramétrique en température et en pression est réalisée.

Il ressort assez nettement de ces essais que la température idéale pour la réalisation de dépôts de qualité est 350 °C, en accord avec les travaux de H. Hidalgo [8]. L’adhérence est excellente et la fragilité est faible (Fig. 5).

La fragilité du dépôt est d’autant plus faible que la pression est faible (Fig. 6) : la fissuration apparaît pour une valeur de déformation de 0,3 % pour un échantillon réalisé à 1 MPa. Pour l’ensemble des essais, il n’a pas été possible d’atteindre l’écaillage malgré une forte densité de fissures.

8 Description des modèles et résultats

Le code ABAQUS® permet de modéliser un échantillon soumis à une sollicitation en flexion quatre

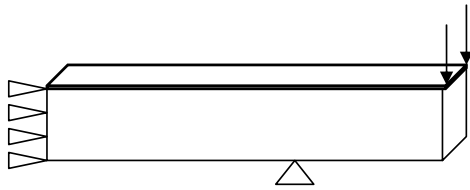


Fig. 7. Conditions limites.

points. Le modèle est réalisé en trois dimensions sur une cellule de base parallélépipédique. Compte tenu de la symétrie de la géométrie de l'échantillon et du type de chargement, nous pouvons mailler la moitié de la structure en imposant des conditions limites sur le plan de symétrie : les nœuds situés sur le plan ne doivent pas subir de déplacement axial.

Le dépôt est modélisé en utilisant des éléments coques auxquels est affectée une épaisseur. Le comportement du revêtement étant élastique, la contrainte normale est uniforme et constante. Cette approximation est une première approche pour prendre en compte l'effet du dépôt sur le substrat.

L'interface dépôt/substrat est considérée comme parfaite.

Les conditions imposées par les appuis extérieurs sont introduits en imposant un déplacement nul suivant l'axe 2. Le chargement est appliqué à l'extrémité de la cellule (Fig. 7).

Les équations permettant de résoudre ce problème mécanique sont les suivantes :

- Loi de comportement : $\Sigma = \lambda EI_3 + 2\mu E$

avec Σ : tenseur des contraintes

λ, μ : constantes élastiques

E : module d'Young

I_3 : matrice unitaire

E : tenseur des déformations.

- Équations d'équilibre (équation de Lamé) :

$$(\lambda + 2\mu) \text{grad div } \mathbf{u} + F = 0$$

avec \mathbf{u} : vecteur déplacement

F : forces extérieures.

Nous avons fait varier l'épaisseur du revêtement de 0,002 mm et 1 mm. La figure 8 représente la répartition de la contrainte normale dans l'épaisseur du dépôt :

- pour 0,002 mm, il apparaît un léger décalage de la ligne neutre. Les valeurs minimales et maximales de la contrainte sont respectivement -419 MPa et 411 MPa.
- pour 1 mm, la répartition des contraintes n'est plus symétrique. Les contraintes varient linéairement de -213 MPa à 64 MPa.

Ces résultats laissent apparaître une légère modification de la position de la ligne neutre pour un film de 0,002 mm.

D'autre part, la théorie de la multifissuration s'appuie sur le principe suivant : l'apparition d'une fissure

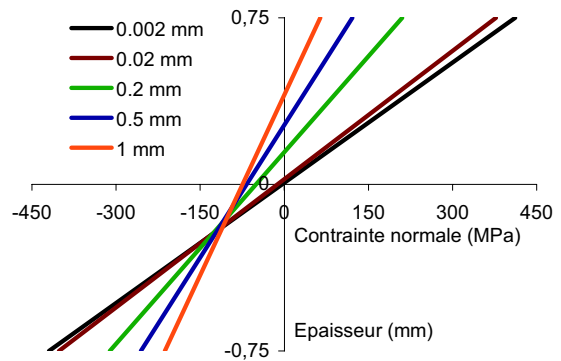


Fig. 8. Répartition de la contrainte normale dans l'épaisseur du substrat pour différentes épaisseurs de dépôt.

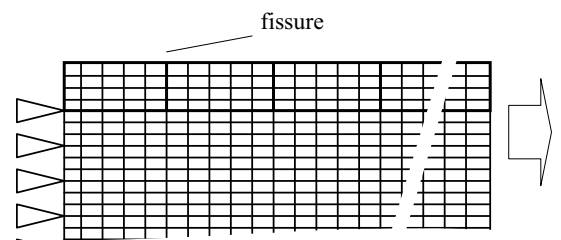


Fig. 9. Maillage de la structure fissurée et conditions limites.

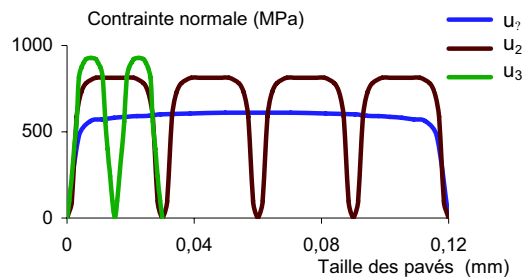


Fig. 10. Répartition de la contrainte normale dans un dépôt fissuré ($u_3 > u_2 > u_1$).

entraîne la création d'une zone dite « zone relaxée » où l'amplitude de la contrainte chute. Cette zone joue un rôle primordial au cours de l'essai puisque l'apparition de nouvelles fissures, la densité de fissure et l'écaillage en dépendent. Pour rendre l'étude possible, nous posons l'hypothèse que toutes les zones relaxées ont la même taille. Afin de quantifier la répartition des contraintes dans le revêtement au cours d'un chargement en présence de fissures, le modèle est réalisé en deux dimensions sur une demi-éprouvette. Des éléments isoparamétriques ont été utilisés, ce qui limite la nécessité d'un découpage très fin. Les conditions limites sont les suivantes : le déplacement est imposé à l'extrémité de la structure, les nœuds situés sur le demi-axe vertical du substrat ne doivent pas subir de déplacements horizontaux. Le contact revêtement/substrat est parfait (Fig. 9).

Pour un matériau fragile massif, il y a rupture lorsque la contrainte critique est atteinte. En revanche dans le cas des substrats revêtus la propagation de la fissure formée

dans le dépôt est stoppée à l'interface car la ténacité du substrat est très élevée devant celle du dépôt. Ainsi, les nœuds représentant les fissures sont libres dans le revêtement [9].

Les résultats reportés sur la figure 10 confirment la relaxation des contraintes qui réduit la probabilité d'apparition d'une nouvelle rupture pour les pavés de taille faible. En effet, nous avons constaté expérimentalement qu'il existe une taille de pavé minimale pour laquelle il y a écaillage à l'interface revêtement/substrat.

9 Conclusion

L'essai unidirectionnel de flexion quatre points a permis de caractériser des échantillons élaborés suivant les mêmes conditions expérimentales. Les résultats de cette étude basée sur l'analyse statistique du réseau de fissures formé dans le revêtement fragile sur un substrat ductile se traduisent en termes de densité de fissures et de densité de probabilité de rupture qui caractérisent la fragilité du revêtement. Cette grandeur n'est pas une valeur intrinsèque au matériau mais pour des conditions d'essais identiques, elle permet de classer les pièces revêtues entre elles.

Étant donné la géométrie des substrats revêtus, les propriétés des matériaux en présence et la nature des sollicitations, les modèles de la fissuration du revêtement donnent des résultats très intéressants. Il est possible de simuler plusieurs fissures pour obtenir la répartition des contraintes qui est conforme à l'expérimentation.

Il serait effectivement intéressant de prévoir des modèles intégrant la qualité de contact entre le revêtement et le substrat, par exemple, en introduisant une valeur de contrainte critique de décohésion pour laquelle le contact serait rompu, pour aborder les problèmes de délaminage interfacial [10]. La prise en compte de la forte courbure de l'échantillon au cours de l'essai ne doit pas être oubliée.

Références

- [1] A. Mezin, L'essai de multifissuration pour caractériser la fragilité et l'adhérence des revêtements, *Acta Metall. Mat.* 43 (1995) 3151–3157
- [2] A. Mezin, N. Pacia, M. Nivoit, B. Weber, Étude statistique de la fissuration des revêtements : application au cas de revêtements de molybdène, *Thin Solid Films* 172 (1989) 284–294
- [3] A. Mezin, J.P. Chambard, M. Nivoit, J. Lepage, Relaxation des contraintes dans un dépôt fissuré, *Thin Solid Films* 185 (1988) 57–69
- [4] B. Sajid, Multifissuration unidirectionnelle des revêtements à caractère fragile : simulation numérique et étude d'échantillons industriels, Thèse de l'Institut Polytechnique de Lorraine, 2000
- [5] C. Tixier, C. Regnier, J. Desmaison, D. Merle, J.F. Goujard, Ceramic films and coating, *British Ceramic Proceedings* 54 (1995) 75–86
- [6] C. Le Niniven, Développement d'un dispositif de flexion 4 points destiné à caractériser la fragilité et l'adhérence de revêtements à caractère fragile. Application aux dépôts de SiO₂ sur substrat de TA6V élaborés par la technique P.E.C.V.D. micro-onde en mode post décharge, Mémoire du diplôme d'ingénieur du Conservatoire National des Arts et Métiers, Limoges, 1998
- [7] C.S. Richard, G. Béranger, J.F. Flavenot, J. Lu, T. Grégoire, Four point bending tests of thermally produced WC-Co coatings, *Surf. Coat. Techno.* 78 (1996) 284–294
- [8] H. Hidalgo, P. Tristan, A. Denoirjan, J. Desmaison, Microwave plasma (CVD) of aluminium oxide films: influence of deposition parameter on the characteristics, *J. Phys. IV* 11 (2001) 723–730
- [9] F. Hugot, M. Boivin, Modélisation par éléments finis du mécanisme de rupture d'une fibre dans un matériau composite à matrice métallique avec prise en compte des contraintes internes thermiques, *Eur. J. Mech. Eng.* 37 (1992) 183–190
- [10] A. Mezin, B. Sajid, Unidirectional multiple cracking of coatings described through random sequential placement of rods on a line, *Thin Solid Films* 358 (2000) 46–55