

# Cloques de délaminage



Figure 1: (a) Compression d'un film mince rigide collé sur un substrat mou (doigts de P.Reis, MIT, 2009). (b) Circuit électronique flexible (d'après Kim *et al.* Science, 2008).

De nombreux procédés industriels mettent en œuvre des dépôts de films minces sur des substrats. En général cela se fait à haute température. Le retour à la température ambiante est parfois problématique car les deux matériaux n'ont généralement pas les mêmes coefficients de dilatation. Le film mince est soit étiré et peut craquer, soit comprimé et produire des cloques. Il en est de même pour un autocollant qui se dilate sous la chaleur du soleil. Nous illustrons ici un régime particulier où le film mince est relativement rigide et le substrat mou. C'est une situation typique que l'on retrouve dans le domaine en pleine effervescence des circuits électroniques flexibles (livres électroniques, capteurs médicaux posés sur le corps...).

## 1 Cloques glissantes

Dans un premier temps considérons des lamelles de polymère comprimées et en contact avec une surface lubrifiée par de l'eau savonneuse (qui mouille le polymère). La compression  $\Delta L$  est imposée. Dans une situation classique sans collage, nous observerions le phénomène de flambage décrit par Euler (en 1744). L'extension de la cloque serait la longueur de la languette. L'adhésion due au liquide conduit à une cloque moins étendue (figure 2).

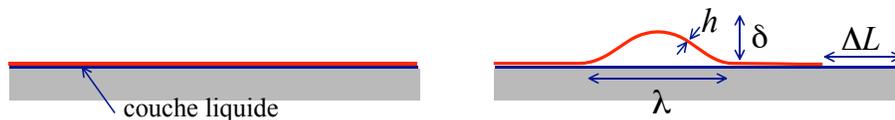


Figure 2: Compression d'une feuille élastique collée par capillarité sur une surface.

### 1.1 Lois d'échelle

Comment estimer  $\Delta L$ ? Notons  $\Delta\gamma$  l'énergie de fracture qu'il faut payer par unité de surface pour décoller les deux surfaces. Dans le cas du collage par un liquide mouillant,  $\Delta\gamma$  vaut

$2\gamma_{LV}$ , car décoller les deux matériaux conduit à deux nouvelles interfaces liquide/air. Dans l'hypothèse de cloques de faible amplitude, l'énergie d'adhésion par unité de largeur s'écrit donc:

$$E_{adh} \sim \Delta\gamma\lambda.$$

Créer la cloque coûte également une certaine énergie élastique de flexion qui varie comme le carré de la courbure:

$$E_{flex} \sim Eh^3\lambda/R^2,$$

où  $R$  est le rayon de courbure typique de la cloque,  $E$  le module de Young de la languette et  $h$  l'épaisseur de la languette.

L'équilibre entre adhésion et flexion (critère de Griffith) se traduit donc par:

$$R \sim \sqrt{\frac{Eh^3}{\Delta\gamma}} = L_{EC} \quad (1)$$

Nous appellerons cette longueur typique, longueur *élastocapillaire* puisqu'elle compare élasticité et capillarité (ou collage de manière générale).

Considérons finalement un peu de géométrie. Dans la limite de cloques de faible amplitude,  $1/R \sim \delta/\lambda^2$ . Pythagore nous indique enfin:  $\Delta L \sim \delta^2/\lambda$ . Ceci nous permet ainsi de prédire:

$$\lambda \sim L_{EC}^{2/3}\Delta L^{1/3} \quad (2)$$

*Réaliser quelques expériences préliminaires en vue de valider (ou non) la loi d'échelle. La mesure directe de  $\lambda$  semble-t-elle fiable?*

## 1.2 Résolution de la forme

Peut-on aller plus loin dans la description des cloques? Il faut pour cela résoudre l'équation d'une tige (*elastica* d'Euler) avec les bonnes conditions au limites. L'équilibre des forces et de couples sur une tige s'écrit:

$$\frac{d\mathbf{M}}{ds} + \mathbf{t} \times \mathbf{F} = \mathbf{0}, \quad (3)$$

où  $\mathbf{M}$  et  $\mathbf{F}$  sont respectivement la force et le couple appliqués au point de coordonnées  $s$  et de tangente  $t$ . Nous considérerons le cas d'une tige inextensible, ce qui se traduit par  $d\mathbf{F}/ds = \mathbf{0}$ . Dans la limite d'une réponse élastique du matériau, le couple est lié à la courbure locale de la tige:

$$\mathbf{M} = B\kappa\mathbf{e}_z = B\frac{d\theta}{ds}\mathbf{e}_z, \quad (4)$$

$B$  étant la rigidité en flexion. Par unité de largeur,  $B$  s'écrit  $Eh^3/12(1-\nu^2)$  pour une plaque ( $\nu$  est le coefficient de Poisson, proche de 0.5 en général).

L'équilibre des couple se traduit finalement par:

$$B\frac{d^2\theta}{ds^2} - F_x \sin \theta + F_y \cos \theta = 0. \quad (5)$$

La force appliquée pour créer une cloque étant selon  $x$ , la composante  $F_y$  est nulle. Le cas général peut être résolu numériquement, mais nous pouvons commencer par le cas simplifié des faibles déformations ( $\theta \ll 1, \sin \theta \simeq \theta, s \simeq x$ ).

Nous nous retrouvons à résoudre:

$$B \frac{d^2\theta}{dx^2} = F\theta, \quad \theta = \frac{dy}{dx}$$

( $F < 0$ ), avec comme conditions aux limites  $\theta = y = 0$  en  $x = 0$  et  $x = \lambda$ .

La solution a ainsi la forme:

$$y = \frac{\delta}{2} \left( 1 - \cos \left( \frac{2\pi}{\lambda} x \right) \right), \quad (6)$$

la force  $F$  devant vérifier  $F = -B(2\pi/\lambda)^2$ .

À partir de clichés photographiques (bien contrastés et pourvus d'une référence pouvant servir d'échelle), comparer les formes obtenues expérimentalement à cette forme théorique. L'accord est-il satisfaisant? On utilisera ImageJ pour récupérer le contour: passage de l'image couleur en échelle de gris avec Image/Type/8-bit, seuillage avec Image/Adjust/Threshold..., puis sauvegarde du profil en allant sur Analyse/Tools/Save XY coordinates. Le plus simple pour ajuster le profil est d'utiliser Igor Pro: ouverture du profil avec Data/Load Waves/Load general text, puis ajustement avec Analysis/Curve fitting.

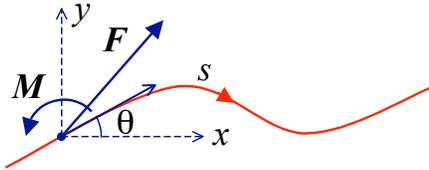


Figure 3: Déformation d'une tige flexible.

Une fois la forme calculée, reste à déterminer les deux constantes d'intégration  $\delta$  et  $\lambda$  en fonction des paramètres physiques et de la compression  $\Delta L$ . Nous pouvons utiliser le même argument géométrique développé dans la loi d'échelle:

$$\Delta L = \int_0^\lambda [1 + (dy/dx)^2]^{1/2} dx - \lambda = \frac{\pi^2}{4} \frac{\delta^2}{\lambda}.$$

Reste à calculer l'énergie de courbure:

$$E_{flex} = \frac{1}{2} \int_0^\lambda B\theta^2 dx = \pi^4 B \frac{\delta^2}{\lambda^3} = 4\pi^2 B \frac{\Delta L}{\lambda^2}.$$

L'équilibre se traduit par  $dE_{flex}/dx = -\Delta\gamma$ , ce qui nous donne finalement le préfacteur de la loi d'échelle:

$$\lambda = 2(\pi L_{EC})^{2/3} \Delta L^{1/3} \quad \text{avec} \quad L_{EC} = \sqrt{\frac{B}{\Delta\gamma}}. \quad (7)$$

On peut finalement vérifier dans quelle mesure la linéarisation du problème et l'approche en lois d'échelle sont valables. Pour cela, nous pouvons intégrer numériquement l'équation d'Euler 5 pour différentes valeurs de  $F_x$ , ce qui nous donne des cloques plus ou moins ventrues. La figure 1.2 représente la largeur  $\lambda$  en fonction de  $\Delta L$ : La solution linéarisée n'est donc valable que pour des petites compressions (typiquement pour  $\Delta L/L_{EC} < 0.4$ ). Au delà il faudrait prendre en compte la solution non linéarisée. Afin de vérifier quantitativement nos résultats, il reste encore à déterminer  $L_{EC}$ .

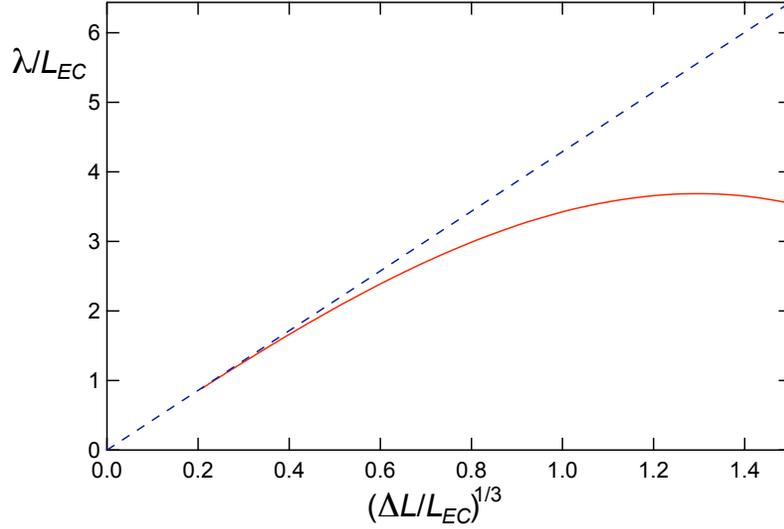


Figure 4: Largeur de la cloque en fonction de la compression. Pointillés : solution linéarisée de l'équation d'Euler. Ligne continue : résolution numérique.

#### *Mesure de $L_{EC}$ : méthode de la raquette*

Comment mesurer la longueur élastocapillaire? Le plus simple est de coller une languette mouillée sur elle même de manière à former une raquette. Toutes les raquettes obtenues de cette manière ont la même forme. Par contre leur taille dépend à nouveau d'un équilibre entre élasticité et capillarité. La forme se calcule numériquement à partir de l'équation d'Euler (eq. 5), avec cette fois ci,  $F_x = 0$ . Comme dans le cas des cloques, les dimensions de la raquette sont telles que la somme  $E_{adh} + E_{flex}$  est maximale. On montre alors que la largeur  $d$  de la raquette est donnée par:

$$d = 1.26L_{EC}. \quad (8)$$

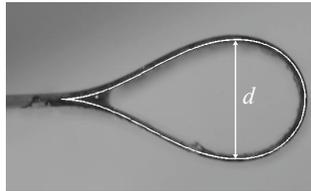


Figure 5: Méthode de la raquette (trait blanc continu: forme calculée théoriquement).

*La prédiction sur la taille des cloques est-elle en accord quantitatif avec sa prédiction théorique? Des expériences réalisées sur des languettes de différentes épaisseurs se superposent-elles sur la même courbe maîtresse si on adimensionne  $\lambda$  et  $\Delta L$  par  $L_{EC}$ ? Si l'équipement est disponible, on pourra effectuer une mesure indépendante de la tension de surface (groupe "tensions") et du module de Young (groupe "scotch") et vérifier si ces mesures sont en accord avec l'estimation de  $L_{EC}$ .*

## 2 Cloques multiples sur un substrat mou

Dans le cas du délaminage, un troisième ingrédient physique entre en jeu: la compression du substrat. Pour observer des cloques avec le montage expérimental proposé, pré-étirer l'élastomère coloré (sans trop forcer), déposer une bandelette de film de polymère (propre) dessus puis relâcher progressivement l'élastomère. Des cloques apparaissent successivement lors de cette compression (si on prend comme référence l'état étiré de l'élastomère, le relâcher revient à la comprimer). L'idée est de déterminer ce qui fixe la taille des cloques, leur nombre, et dans quelles conditions elles apparaissent.

### 2.1 Taille des cloques

Le problème est similaire au cas précédent, le déplacement bout à bout du film de polymère  $\Delta L$  est cependant divisé en  $N$  cloques (que l'on supposera identiques). L'argument précédent nous conduit dans ce cas à:

$$\lambda = 2(\pi L_{EC})^{2/3} \left( \frac{\Delta L}{N} \right)^{1/3} \quad (9)$$

*Cette prédiction est-elle en bon accord avec vos observations expérimentales? En déduire une estimation de l'énergie d'adhésion  $\Delta\gamma$  entre la feuille et le substrat.*

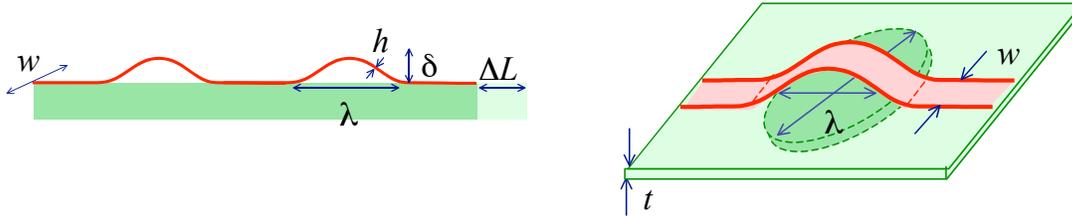


Figure 6: Cloques sur un substrat mou. On s'intéresse ici au cas limite où la taille des cloques est grande devant l'épaisseur du substrat et la largeur de la languette ( $\lambda \gg t, w$ ).

### 2.2 Seuil d'apparition

La loi précédente nous indique la taille des cloques si on connaît leur nombre, mais ne nous dit rien sur leur condition d'apparition. Le déplacement  $\Delta L$  n'est même pas directement fixé par l'opérateur qui n'agit que sur la compression de l'élastomère...

Essayons cependant d'interpréter notre expérience. Tout comme dans le cas précédent, étendre une cloque libère de l'énergie élastique (à  $\Delta L$  donné, une petite cloque est plus courbée qu'une grosse et emmagasine plus d'énergie), mais coûte de l'énergie d'adhésion. Dans le cas présent, étendre une cloque contribue à augmenter la compression du substrat (on prend l'état étiré comme référence). Une énergie de compression vient donc s'ajouter au problème. Celle-ci est donnée par:

$$E_{comp} \sim N E_S \epsilon^2 V,$$

où  $E_S$  est le module de Young du substrat (que l'on pourra mesurer avec l'aide du groupe "scotch", si l'équipement est disponible),  $\epsilon$  le taux de compression du substrat ( $\epsilon = \Delta L / N\lambda$ ) et  $V$  le volume sur lequel se fait la déformation.

Estimer  $V$  dans un cas général n'est pas aisé et demanderait un calcul numérique un peu lourd. Nous nous limiterons au cas limite  $\lambda \gg t, w$ , où  $w$  est la largeur de la languette et  $t$  l'épaisseur du substrat. L'extension de la zone étendue est dans ce cas d'ordre  $\lambda$  sur la longueur de la cloque, également d'ordre  $\lambda$  sur la largeur et d'ordre de l'épaisseur  $t$  du substrat. L'énergie de compression s'écrit ainsi:

$$E_{comp} = \beta N E_S \epsilon^2 \lambda^2 t = \beta E_S \frac{\Delta L^2}{N},$$

où  $\beta$  est une constante numérique.

Comme dans le cas des cloques simples, le système va s'arranger à minimiser son énergie totale:

$$E_T = \beta E_S \frac{\Delta L^2}{N} + 4\pi^2 B \frac{\Delta L}{L \lambda^2} w + N \Delta \gamma \lambda w.$$

Une première dérivation par rapport à  $\lambda$  à  $N$  fixé redonne la relation 9. Une seconde dérivation par rapport à  $N$  (après réinjection de la valeur optimale de  $\lambda$ ) nous donne la valeur optimale de  $\Delta L$  correspondant à  $N$  cloques:

$$\frac{\Delta L_C}{N} \sim \left( \frac{B \Delta \gamma^2 w^3}{t^3 E_S^3} \right)^{1/5}.$$

Si  $N$  pouvait varier continûment, chaque valeur de  $\Delta L_C$  serait une valeur optimale (à laquelle  $N$  serait ajustée). La nature discrète de  $N$  impose donc des sauts et de valeurs de  $\Delta L$  non optimales entre ces sauts et des valeurs interdites (pour  $N < 1$ ). En utilisant la relation 9, nous obtenons la taille de cloque critique:

$$\lambda_C \sim \left( \frac{B^2 w}{E_S t \Delta \gamma} \right)^{1/5}. \quad (10)$$

*Cette relation est-elle en accord avec vos mesures expérimentales? Que se passe-t-il lorsque l'on fait marche arrière, la formation des cloques est-elle réversible?*