

ADHÉSION ET ADHÉRENCE DANS LES ASSEMBLAGES MÉTAL/CÉRAMIQUE

Le but de ce chapitre est de faire une synthèse concernant l'adhésion et l'adhérence et de voir quels paramètres entrent en jeu dans la tenue des différentes interfaces métal/céramique réalisées (métal/ Al_2O_3 et métal/SiC) dans notre étude.

Nous commençons le chapitre par des considérations très générales et nous verrons quelles difficultés se posent pour définir « adhésion » et « adhérence ». Nous choisissons de différencier le phénomène microscopique du phénomène macroscopique. Dans les deux cas nous, essayons d'énumérer les différents facteurs influençant la tenue des interfaces métal/céramique.

Enfin, nous nous intéressons plus particulièrement au comportement mécanique à l'interface et à l'influence des sollicitations extérieures sur la rupture des assemblages métal/céramique.

II.1. DEFINITION DE L'ADHÉSION ET DE L'ADHÉRENCE

Tout d'abord posons les questions : qu'est ce que l'adhésion ? qu'est ce que l'adhérence ?

En raison du grand champ couvert par le mot « adhésion », il n'existe pas de critère physique permettant de définir de façon universelle l'adhésion. De nombreuses propriétés peuvent intervenir dans le phénomène d'adhésion et le rendent difficile à interpréter : relation d'orientation, ségrégation, chimie des surfaces mises en présence, déformation élastique ou plastique, mais aussi présence d'impuretés venant de l'environnement. Pour être précis en parlant de l'adhésion, il est bon de différencier le phénomène macroscopique du phénomène microscopique. Deux définitions précises sont données dans [45].

✓ *Point de vue physicochimique microscopique : « Adhésion »*

L'adhésion correspond à la formation d'une interface entre deux corps suffisamment proches pour qu'il existe des forces interatomiques ou intermoléculaires entre eux (cf. chapitre I, § I.2.3).

L'adhésion microscopique prend donc en compte les liaisons atomiques ou moléculaires présentes dans le système où le phénomène macroscopique est constaté. C'est une propriété intrinsèque commune aux deux matériaux mis en présence. On utilise parfois le terme « adhésion thermodynamique » [43,45,46].

Toute surface ou interface est associée à l'apparition d'un excès d'énergie libre appelée énergie de surface ou d'interface selon les cas. Une liaison entre le métal et la céramique, est alors donnée par le travail d'adhésion (W_{ad}), qui s'exprime par l'équation de Dupré :

$$W_{ad} = \gamma_c + \gamma_m - \gamma_{m/c} \quad \text{II.1}$$

γ_c : Énergie de surface libre de la céramique,

γ_m : Énergie de surface libre du métal,

$\gamma_{m/c}$: Énergie de l'interface métal-céramique.

D'après la relation II.1, le travail d'adhésion sera d'autant plus grand et l'interface d'autant plus forte que l'énergie d'interface $\gamma_{m/c}$ sera faible et que les énergies de surface du métal et de la céramique seront grandes.

✓ *Point de vue macroscopique : « Adhérence »*

On dit que deux corps solides adhèrent macroscopiquement quand [47]:

- il existe entre eux une interface qui persiste si le système est sollicité dans n'importe quelle direction,

- le tenseur des contraintes appliqué aux deux corps est continu à la traversée de l'interface et reste continu lors d'une sollicitation.

L'adhérence correspond donc à un phénomène comportant aussi des aspects mécaniques. Elle dépend de la géométrie des corps en présence, de leur histoire et des contraintes appliquées (direction, intensité, durée de la charge) [45], et d'une façon générale de tous les phénomènes dissipatifs d'énergie [1].

II.2. ASPECT DE L'ADHÉSION LIQUIDE/SOLIDE

II.2.1. Critère énergétiques et mouillabilité (approche thermodynamique)

La plupart des mesures de travail d'adhésion sont effectuées à partir d'un système métal liquide/céramique à partir de la notion de mouillabilité. La mouillabilité correspond en fait à la variation d'énergie libre produite lors de la rupture du contact d'un solide et d'un liquide sur une unité de surface. Lorsqu'un solide est en contact avec un liquide, l'énergie libre du système diminue de cette quantité par unité de surface.

Dans le cas des liaisons métal/céramique, l'énergie interfaciale métal(liquide)/céramique (solide) est habituellement caractérisée par l'angle de contact θ liquide/solide formé à la ligne triple du système composé du métal liquide (γ_m), de la céramique solide (γ_c) et de l'interface solide/liquide ($\gamma_{m/c}$) (Figure II.1). Deux configurations peuvent apparaître :

- un mouillage partiel caractérisé par un angle de contact compris entre 0 et 180°. Le liquide tend à prendre la forme d'une calotte sphérique. Si l'angle de contact est supérieur à 90° le liquide est dit non-mouillant, dans le cas contraire il est dit mouillant,
- un mouillage parfait, caractérisé par un angle de contact nul, conduit à la formation d'un film liquide recouvrant le solide. Dans le cas des systèmes de type métal liquide/céramique, le mouillage parfait reste un cas exceptionnel [48,49,50].

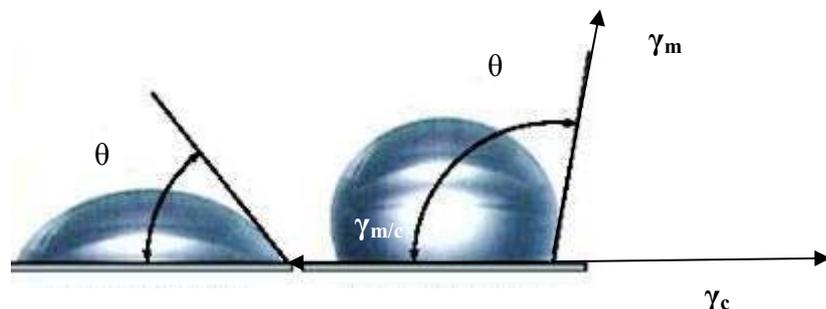


Figure II.1: Définition de l'angle de contact θ .

Il y a formation de l'interface si $\gamma_{m/c} < \gamma_m + \gamma_c$. La plupart des mesures de travail d'adhésion correspondent à une configuration métal liquide/céramique solide et sont effectuées par la méthode de la goutte posée en utilisant la relation de Young-Dupré :

$$W_{ad} = \gamma_m (1 + \cos\theta) = \gamma_c + \gamma_m - \gamma_{m/c} \quad \text{II.2}$$

θ étant l'angle de contact liquide/solide.

Généralement, les angles de mouillage entre une céramique solide et un métal liquide sont supérieurs à 90° (Tableau II.1), ce qui conduit à des travaux d'adhésion (W_{ad}) de l'ordre de 500 mJ/m^2 . Bien que ces énergies soient faibles, elles ne sont pas interprétables uniquement en termes de force de van der Waals (W_{vdw}).

Métal	Céramique	Température (°C)	Atmosphère	Angle de contact (degré)	Travail d'adhésion (mJ/m^2)
Ni	Al_2O_3	1500	He	140.7	340
Fe	Al_2O_3	1550	He	128.7	540
Cu	Y_2O_3	1550	Ar	128	450

Tableau II.1 : Angles de contact et travail d'adhésion pour certains métaux et oxydes céramiques [51].

Mc Donald et Eberhart [52], Naidich [48] et Châtain et al. [49,50] ont fait intervenir des interactions de types chimiques (W_{ch}) à l'interface entre le métal et la céramique pour le calcul du travail d'adhésion. Celui-ci s'écrit alors :

$$W_{ad} = W_{vdw} + W_{ch} \quad \text{II.3}$$

En se basant sur la polarisabilité des anions (ions oxygènes dans l'oxyde) et sur l'arrangement électronique des surfaces des oxydes De Weyl, Mc Donald et Eberhart [52] ont supposé qu'il existe à l'interface entre les plans (0001) du saphir et les métaux, pour les couples métal/saphir, des interactions chimiques entre les cations métalliques M^+ qui occupent des sites normalement occupés par les cations aluminium (Al^{+3}) de l'alumine, et les anions oxygène O^{2-} ($M \text{ O}^{2-}$). Cette interaction chimique est proportionnelle à l'enthalpie libre de formation ΔG_f^0 de l'oxyde du métal (M) selon la relation [48] :

$$W_{ad} = W_{vdw} - a \Delta G_f^0 \quad \text{II.4}$$

Où a est une constante.

L'énergie d'adhésion est donc d'autant plus élevée que l'enthalpie libre de l'oxyde du métal est fortement négative (oxyde thermodynamiquement très stable).

Citons aussi le modèle plus sophistiqué et plus rigoureux de *Chatain et al.* [49] qui proposent une expression plus complexe basée sur des hypothèses très bien vérifiées :

- expérimentalement, l'énergie d'adhésion dépend peu de la température ce qui veut dire qu'elle est liée à des énergies de liaison et non à des enthalpies libres [49],
- prise en compte d'interactions métal-ion oxygène ($\text{Me}^-\text{O}_2^{2-}$) et métal-cation de l'oxyde (Me^-Al) dans le cas de l'oxyde alumine (Al_2O_3) [49].

Dans le cas des liaisons métal/céramique, et au cours du processus de la formation de la liaison à l'interface, le nuage électronique du composé métallique repousse les charges négatives des ions oxygène prédominant à la surface de la céramique. Ceci engendre généralement des angles de mouillage élevés entre les métaux liquides et les oxydes, ce qui est caractéristique d'une mauvaise mouillabilité et donc d'un travail d'adhésion très faible. Le mouillage des surfaces est alors insuffisant pour permettre l'établissement d'une bonne liaison mécanique entre le métal et la céramique oxyde. Ceci impose de réaliser des traitements de surface de la céramique (métallisation) ou d'utiliser des alliages contenant des éléments réactifs avec la céramique. C'est aussi la raison pour laquelle les techniques de liaison à l'état solide, comme la thermocompression que nous utiliserons, sont basées sur la création de grandes surfaces de contact en évitant la fusion du métal permettant ainsi un contact en contournant le problème du mouillage.

Notons que les mesures directes d'énergie d'adhésion à l'état solide sont peu nombreuses ; elles sont délicates à mettre en œuvre. Les mesures sont effectuées à partir de la mesure de l'énergie interfaciale $\gamma_{m/c}$, qui peut être déterminée à l'équilibre, par les angles de contact (Ω et Φ) (Equation II.5) obtenus aux joints de grains de la céramique respectivement en l'absence et en présence de métal liquide sur des gouttes de métaux solidifiées (Figure II.2). Le travail d'adhésion relevé ne correspond pas forcément au travail théorique calculé avec la relation II.2. L'une des méthodes employées est la mesure de la contrainte nécessaire au décollement de la goutte solidifiée sur le substrat céramique [53,28,54]. *Nicholas et al.* [55] ont proposé une relation entre la contrainte normale à la rupture σ , l'angle de mouillage, et la force tangentielle F appliquée pour décoller la goutte. Ceci rejoint en fait, comme nous le verrons plus loin, la notion d'adhérence.

$$\gamma_{mc} = \gamma_{cv} \frac{\cos\left(\frac{\Omega}{2}\right)}{\cos\left(\frac{\Phi}{2}\right)} \quad \text{II.5}$$

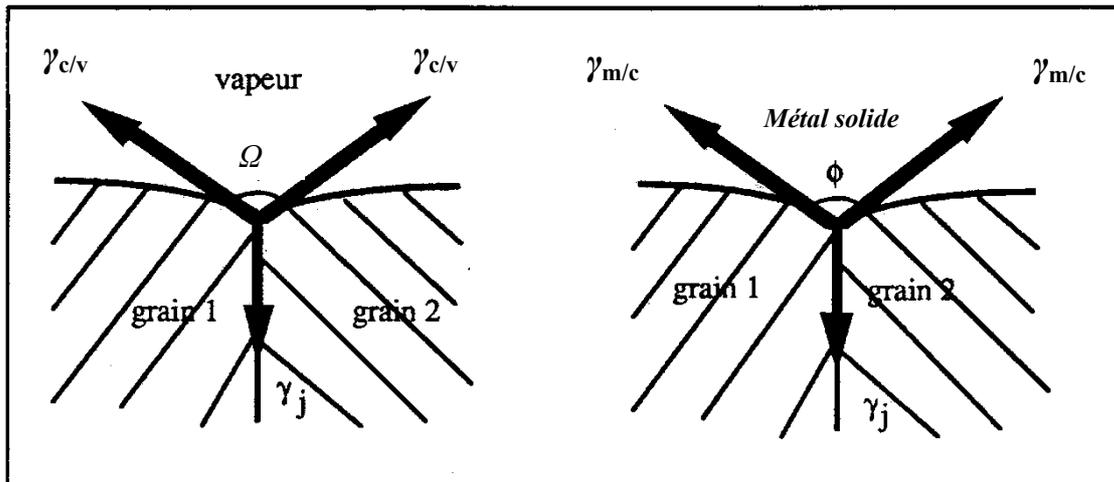


Figure II.2: Schéma de principe des mesures d'énergies d'interface à l'état solide. $\gamma_{m/c}$ énergie interfaciale métal-céramique, $\gamma_{c/v}$ énergie interfaciale céramique-vapeur.

II.2.2. Adhésion : approche physique

Les propriétés physiques de l'interface, basées sur la théorie électronique des solides sont beaucoup moins utilisées que la mouillabilité pour décrire l'adhésion. Néanmoins, de plus en plus d'auteurs voient dans cette théorie une bonne explication aux phénomènes d'accrochage à l'interface. Pour *Stoneham et al.* [56], la plus importante des caractéristiques d'une interface entre un oxyde et un métal réside dans le brusque changement de la constante diélectrique entre ces deux matériaux. *Derjaguin et al.* [57] ont comparé le système métal/céramique à un condensateur plan dont les plaques sont constituées par la double couche électrique formée lorsque deux matériaux de nature différente sont en contact. Il a défini un potentiel de décharge qui est attribué à la rupture à l'interface.

Si l'on considère le modèle le plus simple, qui est celui des clusters, l'interface alumine/métal est assimilée à un cluster formé par $(AlO_6)^{9-}$ et un atome métallique. Les calculs effectués sur cette base ont établi que les premières interactions métal/oxyde prennent en compte les orbitales (d) du métal et les orbitales (p) de l'oxygène, pour créer les orbitales liantes et anti-liantes. Pour le cas du Ni et du Fe, les états anti-liants sont moins occupés ce qui favoriserait la liaison ; alors que dans le cas du Cu et de l'Ag, les états liants et anti-liants sont occupés de façon identique ; il n'y a donc pas de liaison au sens des orbitales. Le modèle révèle également l'existence d'un transfert de charges de valence qui se traduit par une contribution à la liaison ionique. Cette contribution augmente avec la noblesse du métal [58]. Le problème a été aussi traité à partir de calculs de dynamique moléculaire qui montrent l'apparition d'états MIGS (Metal Induced Gap States) dans la bande interdite [59].

Le tableau II.2 donne une comparaison entre W_{ad} (L/S) et W_{ad} (S/S) pour différents métaux avec Al_2O_3 . On notera qu'en tout état de cause, le travail d'adhésion est généralement inférieur à 1 J/m^2 [20].

<i>L/S</i>						
<i>Métal</i>	<i>Température (K)</i>	<i>Atmosphère</i>	<i>Angle de contact θ°</i>		<i>Travail d'adhésion $J/m^2 (S/L)$</i>	<i>Références</i>
Ag	1373	Ar-H ₂	130		0.323	[60]
Au	1373	He	140		0.265	[60]
Cu	1423	Vide secondaire	128		0.490	[60]
Ni	1773	He	141		0.340	[61]
Al	1150	Vide secondaire	82		0.950	[61]
Pb	1173	Ar-H ₂	120		0.735	[61]

<i>S/S</i>						
<i>Métal</i>	<i>Température (K)</i>	<i>Atmosphère</i>	<i>$\gamma_m (J/m^2)$</i>	<i>$\gamma_i (J/m^2)$</i>	<i>Travail d'adhésion $J/m^2 (S/S)$</i>	<i>Références</i>
Ag	708	H ₂	1.040	1.630	0.435	[62]
Au	1273	Air	1.260	1.725	0.530	[62]
Cu	1123	H ₂	1.390	1.925	0.475	[62]
Ni	1273	He	1.790	2.140	0.645	[63]
Pt	1173	Air	2.100	1.050	0.800	[64]

Tableau II.2: Comparaison entre les énergies d'adhésion liquide/solide et solide/solide pour différents couples métal/alumine.

II.3. FACTEURS INFLUANT LE TRAVAIL D'ADHÉSION

II.3.1. Orientation cristallographique

Lors de la liaison métal/céramique, le gain d'énergie nécessaire pour obtenir une bonne liaison dépend de l'énergie superficielle des matériaux et d'éventuelles réactions chimiques interfaciales. Or, expérimentalement l'énergie superficielle γ des matériaux cristallins varie suivant l'orientation cristallographique. Ainsi, pour un métal CFC nous avons $\gamma(111) > \gamma(100) > \gamma(110)$ [65].

D'un point de vue purement énergétique, la liaison doit donc mieux s'effectuer entre la céramique et la face (110) du métal. Expérimentalement, d'un point de vue, cette fois-ci, purement cristallographique, la face (111) hexagonale du métal CFC convient mieux pour une liaison avec la face (0001) de l'alumine [65].

Des calculs théoriques [66,67] réalisés pour les interfaces SiC/Al pour différentes orientations ont mis en évidence dans chacun des cas un travail d'adhésion moins important pour la face C (c'est-à-dire celle qui se termine par un atome de carbone) que pour la face Si comme le montrent les valeurs présentées dans le tableau II.3.

	$(111)_{Al} (0001)_{SiC}$ $[110]_{Al} [2110]_{SiC}$	$(100)_{Al} (0001)_{SiC}$ $[110]_{Al} [2110]_{SiC}$
Face C	$W_{ad} = 0.73 \text{ J/m}^2$	$W_{ad} = 1.11 \text{ J/m}^2$
Face Si	$W_{ad} = 1.18 \text{ J/m}^2$	$W_{ad} = 1.26 \text{ J/m}^2$

Tableau II.3 : Travaux d'adhésion calculés pour des interfaces SiC/Al [67].

Suivant l'orientation cristallographique du métal sur SiC, la différence varie de 0.15 à 0.4 J/m². Rado [68] a étudié l'influence de la polarité de SiC sur son mouillage par plusieurs métaux (Ni, Cu...). Il a montré que la face C est moins bien mouillée par le métal que la face Si (l'angle de contact est de 5° à 10° supérieur dans le cas d'une face carbone). Le travail d'adhésion est donc plus important pour la face Si. La différence entre les deux faces est faible mais significative de l'ordre de $\Delta W_{ad} = 0.1 \text{ J/m}^2$. Sur le système Al₂O₃/Ni différents auteurs ont mis en évidence des relations d'orientation entre le nickel et l'alumine [51,69,70]:

(111) Ni // (0001) Al₂O₃

{111} Ni // {113} Al₂O₃ avec [110] Ni // [1211] Al₂O₃

{111} Ni // {113} Al₂O₃ avec [110] Ni // [1211] Al₂O₃

Ces relations d'orientation ne sont pas cependant les seules que l'interface peut prendre.

II.3.2. Présence d'impuretés

La présence d'impuretés dans les joints de grains peut soit fragiliser, soit au contraire consolider une interface [71]. Ce phénomène de ségrégation qui met en jeu des monocouches ou des fractions de monocouches d'impuretés aux interfaces est très complexe. Si la ségrégation diminue l'énergie d'interface, il y a consolidation. La fragilisation peut intervenir par des transferts de charges qui affaiblissent les liaisons électroniques.

Hong *et al.* [66] ont étudié l'influence de la présence d'impureté sur l'adhésion des interfaces MgO/Al et MgO/Ag, en dopant les substrats de MgO par C ou Si. Dans la plupart des cas, une diminution du travail d'adhésion est observée. Cette diminution varie entre 9 % et 61 %. A l'inverse, on peut citer le cas d'une interface métal/céramique Au/MgO, où une consolidation est obtenue par l'interposition d'atomes de Fe à l'interface. Ceux-ci assurent la liaison O-Fe et la liaison métallique.

Plusieurs auteurs ont étudié l'adhésion du cuivre sur l'alumine [49,50]. Li Jiang Guo [72] a étudié la mouillabilité de l'alumine mono et polycristalline par le cuivre pur ou du cuivre contenant des éléments d'additions (Sn, Al, Si). Le choix de ces éléments d'additions est basé d'une part sur leur non réactivité avec l'alumine et d'autre part sur leur adsorption à l'interface. Il a montré que l'addition au cuivre, pour le couple Cu/Al₂O₃, d'une fraction molaire d'aluminium ($X_{Al} > 30 \%$ at) ou de silicium ($X_{Si} > 20 \%$ at) améliore considérablement le mouillage et minimise l'énergie interfaciale γ_i . L'addition de 10 % d'étain (Sn) à ces alliages pour des fractions molaires (X_{Al} , X_{Si}) faibles, diminue l'angle de contact θ sous l'effet d'adsorption de l'aluminium et de

silicium en surface du cuivre liquide et à l'interface, activé par les énergies d'attraction (Cu-Sn) et de répulsion entre (Sn- Al) et (Sn-Si).

II.3.3. Réactions chimiques

Dans le cas d'une réaction chimique, l'interaction entre métal et céramique à l'interface se fait par l'intermédiaire d'un transfert de masse. Une réaction chimique se produit ou non selon les propriétés thermodynamiques de l'interface et les conditions de réaction comme la température, la pression, l'atmosphère. Cette réaction se caractérise le plus souvent par l'apparition de produits de réaction à l'interface qui peuvent modifier du tout au tout les propriétés de la zone interfaciale métal/céramique. De nombreux facteurs peuvent influencer la tenue mécanique de l'interface. Cette dernière dépend des propriétés mécaniques du produit formé ainsi que de son épaisseur [50,73].

Des résultats expérimentaux montrent que l'épaisseur de la phase formée joue un rôle important. Elle est bénéfique pour l'interface si son épaisseur ne dépasse pas $0.1 \mu\text{m}$; au-delà de $1 \mu\text{m}$ elle peut avoir des effets désastreux. D'une façon générale, étant donnée la diversité des matériaux pouvant se former à l'interface (solution solide, amorphe, phase cristalline en relation d'orientation ou non...), les effets d'une zone de réaction sur l'adhésion ne sont pas encore bien connus [73].

II.3.4. Application au système Ni/Al₂O₃

L'oxygène dissout dans les métaux liquides est tensioactif ce qui engendre que l'angle de contact entre une céramique et un métal liquide est abaissé substantiellement quand la concentration en oxygène dans le liquide croît. Il en est de même pour le métal à l'état solide [3].

Ritter et al. [28] montrent que la résistance maximale au cisaillement de la liaison Ni/Al₂O₃ est obtenue sous vide. L'auteur attribue l'augmentation de la résistance dans l'argon impur à la présence plus importante d'oxygène que dans l'argon pur. Par contre, il a été montré que l'angle de contact est peu dépendant du plan cristallographique ou de l'atmosphère de travail. Les tableaux II.4 et II.5 montrent cette faible dépendance [20,28,74,3].

Température (K)	Atmosphère	Plan de surface de l'alumine	Θ (°)
1823	Ar + H ₂	0112	108
1773	Vide secondaire	0001	110
1773	Vide S, Ar, H ₂	1012	109
1773	Vide secondaire	1012	108
1730	He	quelconque	112

Tableau II.4 : Influence de l'orientation cristallographique de l'alumine sur l'angle de contact du Nickel [3,20,28].

Impuretés ppm	Atmosphère	Θ (°)	γ_{LV} J/m ²
91	Vide	108.1	1.667
10	Vide	111.3	1.664
91	Argon impur	110.3	1.777
10	Argon impur	110.8	1.779
91	Argon pur	109.1	1.768
10	Argon pur	107.1	1.650
91	Hydrogène pur	109.1	1.768
10	Hydrogène pur	109.0	1.835

Tableau II.5 : Influence de l'atmosphère sur l'angle de contact du nickel sur l'alumine [74].

L'angle de contact qui s'établit entre le nickel et l'alumine en l'absence d'une concentration suffisante en oxygène est de l'ordre de 110°. L'oxygène paraît donc comme le seul paramètre susceptible de faire varier dans une forte proportion l'angle de contact du nickel liquide sur l'alumine et donc de faire varier le travail d'adhésion.

Il a été montré d'une façon quasi certaine dans la liaison Ni/Al₂O₃ l'existence d'une liaison chimique autre que l'interaction de van der Waals. *Johnson et al.* [75] ont montré qu'une liaison directe métal sur oxyde était possible et qu'elle était ionocovalente. La liaison chimique covalente est attribuée à la liaison qui s'établit entre les atomes du métal et les anions oxygène de la surface de l'alumine. En revanche, la contribution de la composante ionique de la liaison est proportionnelle à la différence d'électronégativité de l'orbitale (d) du métal et de l'orbitale (p) de l'oxygène. Mais l'alumine et le nickel peuvent aussi réagir pour donner un composé défini de type spinelle NiAl₂O₄ au-dessus de 1000 °C. Le diagramme NiO/Al₂O₃ est donné par la figure II.3.

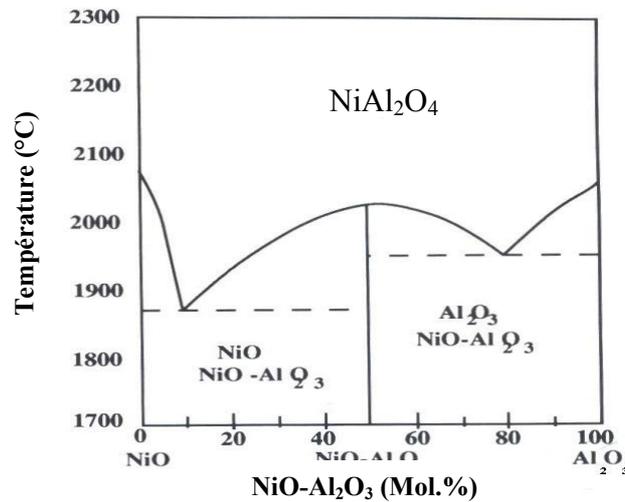


Figure II. 3 : Diagramme binaire Al_2O_3-NiO .

Trumble *et al.* [58] ont montré qu'il n'est pas nécessaire de mettre de l'oxyde de nickel en contact avec de l'alumine pour former le spinelle $NiAl_2O_4$ mais qu'il est possible de former ce dernier à partir du nickel pur même dans des conditions de vide très poussé. La formation du spinelle est fortement dépendante du taux d'oxygène contenu d'une part dans l'atmosphère de liaison et d'autre part dans le nickel. La pression partielle d'oxygène nécessaire à la formation du spinelle est : $P > 3,8 \cdot 10^{-8}$ atm à 1663 K. Les auteurs montrent dans leur étude que l'épaisseur maximale de spinelle qu'il est possible d'obtenir dépend de la quantité d'oxygène dissout dans le nickel et de l'épaisseur de nickel. Aussi il semble que l'orientation cristallographique de l'alumine puisse avoir une influence sur la formation de $NiAl_2O_4$, la vitesse la plus faible est relevée sur les plans $\{0001\}$ de l'alumine. L'influence du spinelle sur le comportement mécanique de la liaison est assez mal connue, et des résultats contradictoires apparaissent dans la littérature. Pour certains auteurs, il conduit à une interface très résistante [53,76,77], alors que d'autres considèrent que le spinelle fragilise la liaison [24,78].

Drillet [32] a mis en évidence par microscopie électronique en transmission, une phase amorphe du type alumino-silicate à l'interface entre le nickel et l'alumine polycristalline industrielle (Ni/Al_2O_3) réalisée par thermocompression. La formation de cette phase est due à la migration vers l'interface Ni/Al_2O_3 des impuretés initialement présentes dans la céramique lors de son élaboration. L'auteur ne précise pas l'influence de la formation de cette phase sur la tenue mécanique des assemblages.

II.4. ADHÉRENCE

D'un point de vue microscopique, nous avons vu que la force de la liaison à l'interface est caractérisée par le travail d'adhésion. D'un point de vue macroscopique, il faut aussi tenir compte du comportement mécanique de l'interface et des corps en présence. Dans un premier temps, nous définissons les mécanismes de fissuration à l'interface ainsi que le paramètre caractérisant la force d'une interface, définie par l'énergie de rupture interfaciale G_c . Dans un second temps, nous parlons des différentes trajectoires de fissures possibles. Nous voyons enfin le rôle des concentrations de contraintes résiduelles dans la fissuration des assemblages métal/céramique.

II.4.1. Comportement mécanique à l'interface

La nécessité de comprendre l'endommagement des multimatériaux sous l'effet de sollicitations extérieures a conduit à la mise en place de concepts nouveaux en mécanique de la rupture. La théorie classique de l'endommagement développée pour les matériaux isotropes métalliques ou céramiques est insuffisante pour rendre compte des phénomènes qui interviennent par exemple dans un assemblage métal-céramique.

Les bimatériaux et plus particulièrement les assemblages métal-céramique, du fait de la présence d'une interface, milieu non homogène, ont un comportement singulier vis-à-vis de la rupture. Celle-ci peut intervenir de plusieurs manières [47,79] :

- fragile ou ductile dans le volume de l'un ou l'autre des matériaux en général dans la céramique (rupture cohésive),
- adhésive suite à la propagation d'une fissure dans l'interface,
- mixte, suite à la déviation d'une fissure pré-existante dans l'interface dans l'un ou l'autre des matériaux massifs.

Le comportement vis-à-vis de la rupture d'un multimatériau est fortement dépendant :

- de la distribution des défauts dans les trois milieux : céramique, zone interfaciale, métal,
- de la résistance intrinsèque de chaque milieu (énergies de rupture de chaque milieu),
- du niveau de la répartition des contraintes résiduelles,
- de la proportion relative de métal et de sa contrainte d'écoulement plastique.

L'ensemble conduit à une anisotropie dans les mécanismes mis en jeu lors de sollicitations mécaniques, et l'endommagement peut intervenir soit par rupture fragile dans la céramique, soit par rupture fragile ou ductile dans l'interface ou encore par rupture ductile dans le métal.

Les premiers chercheurs à s'être intéressés aux mécanismes de fissuration à l'interface entre deux matériaux sont *England et al.*, *Erdogan et al.* [80], *Rice et al.* [81]. Les notations utilisées dans cette étude bibliographique sont celles développées par *Hutchinson et al.* [82].

On considère deux matériaux liés ; chacun des matériaux possède des propriétés élastiques isotropes. *Dundurs* [83] a démontré que pour ce type de problème la solution en déformation plane ne dépend que de deux paramètres à savoir :

$$\alpha = \left[\frac{G_1(1-\nu_2) - G_2(1-\nu_1)}{G_1(1-\nu_2) + G_2(1-\nu_1)} \right] \quad \text{II.6}$$

$$\beta = \left[\frac{G_1(1-\nu_2) + G_2(1-\nu_1)}{G_1(1-\nu_2) - G_1(1-\nu_1)} \right] \quad \text{II.7}$$

Où :

G : Module de cisaillement des matériaux 1 et 2,

ν : Coefficient de poisson des matériaux 1 et 2.

α et β tendent vers 0 si la différence des propriétés élastiques des deux matériaux devient nulle. Cependant les paramètres α et β peuvent avoir des valeurs négatives ou positives, selon les valeurs des constantes élastiques des deux solides.

Pour un couple de matériaux, on peut écrire le champ de contrainte agissant sur l'interface à une distance r du front de fissure sous la forme complexe suivante :

$$\sigma_{22} + i\sigma_{12} = \frac{(K_I + iK_{II})}{\sqrt{2\pi r}} r^{i\varepsilon} \quad \text{II.8}$$

avec

$$\varepsilon = \frac{1}{2\pi} \ln \left[\frac{1-\beta}{1+\beta} \right]$$

K_I et K_{II} sont des facteurs d'intensité de contrainte définis pour être compatibles avec les facteurs d'intensité de contrainte des matériaux homogènes. Ils dépendent linéairement des charges appliquées et de la forme des assemblages.

Lorsque $\varepsilon \neq 0$, K_I et K_{II} ne peuvent pas être interprétés comme des facteurs d'intensité de contrainte en mode I (ouverture) et II (cisaillement) directement liés aux contraintes normales et de cisaillement, mais, pour la plupart des couples présentant un intérêt, ε reste faible. Par conséquent, un développement de la mécanique de la rupture interfaciale directement applicable à la détermination de la ténacité critique à partir des essais expérimentaux, ou bien permettant de prédire les ruptures à partir des données expérimentales n'est possible qu'en prenant $\beta = 0$ et donc $\varepsilon = 0$ [84]. Notons que dans ce cas de figure ($\beta = 0$ et donc $\varepsilon = 0$), K_I représente la composante normale de la singularité de contrainte en traction à l'interface, K_{II} correspond à la composante de cisaillement.

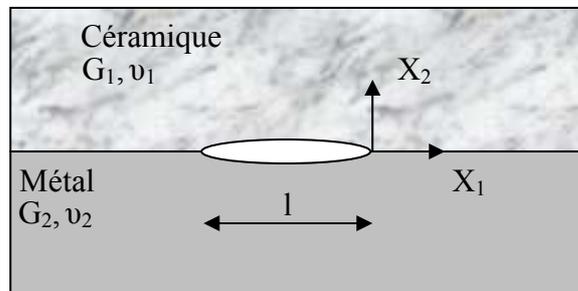
Prenons le cas d'une fissure située sous l'interface à une distance h petite par rapport à la longueur l de la fissure (Figure II.4). Lorsque $h \rightarrow 0$ avec l fixe, la solution du problème se rapproche de celle à l'interface. *Comninou* [85] a pu développer une relation mettant en jeu les modes I et II des facteurs d'intensité de contraintes complexes au voisinage de l'interface. Le champ de contrainte en fond de fissure est de la forme :

$$\sigma_{\alpha\beta} = \text{Re} \left[\frac{K}{\sqrt{2\pi r}} r^{i\varepsilon} \sigma_{\alpha\beta}(\theta) \right] \quad \text{II.9}$$

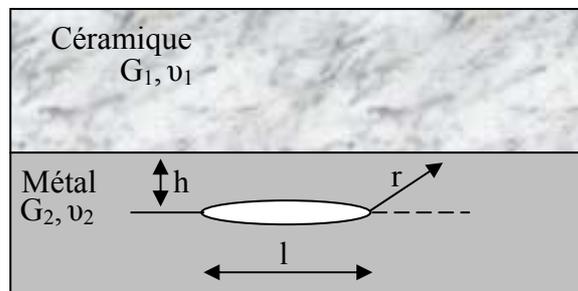
Où:

r et θ sont les coordonnées polaires par rapport à l'origine,

K : facteur d'intensité de contrainte au voisinage de l'interface ($K = K_I + K_{II}$) avec une dépendance angulaire pour un couple de matériaux donné.



Fissure à l'interface



Fissure sous l'interface

Figure II.4 : Représentation du problème de fissuration à l'interface.

II.4.2.Énergie de rupture interfaciale

D'un point de vue macroscopique, la résistance de l'interface métal/céramique peut être quantifiée par l'énergie de rupture de l'interface notée G_c (qui a la dimension d'une force).

Dans le cas où $\varepsilon = 0$, l'énergie de rupture interfaciale est définie comme la valeur critique du terme énergétique G associé à la propagation de la fissure dans l'interface. Selon le formalisme de Griffith, la rupture se produit quand la variation d'énergie de déformation est au moins égale à la variation d'énergie nécessaire à la création de nouvelles surfaces. Cette énergie de déformation relâchée par le corps est appelée taux de restitution d'énergie et est notée G . La fissure s'amorce donc lorsque le taux de restitution d'énergie G est au moins égal à une valeur critique G_c (énergie de rupture interfaciale).

L'énergie qui est libérée lors de la propagation sur une unité de longueur de la fissure interfaciale est reliée aux facteurs d'intensité de contrainte en mode I et II [86] :

$$G = \frac{1}{2} \frac{E_1 + E_2}{\cosh^2 \pi \varepsilon} (K_I^2 + K_{II}^2) \quad \text{II.10}$$

Cette relation est une généralisation de la formule d'Irwin pour un matériau isotrope homogène en contrainte plane.

G étant une fonction de K_I et K_{II} , G_c ne peut être défini que comme une fonction de l'angle $\psi = \text{Arctan}\left(\frac{K_{II}}{K_I}\right)$ et peut être définie par des essais mécaniques sur des échantillons ayant des géométries bien particulières. Cependant, cette détermination expérimentale ne permet pas d'obtenir une valeur empirique de l'énergie de rupture puisqu'il a été montré que celle-ci est fortement influencée par la trajectoire de fissuration et donc par le type d'essai réalisé. Il est cependant intéressant de connaître son ordre de grandeur.

Le tableau II.6 présente différents tests utilisés pour déterminer l'énergie de rupture interfaciale. Chaque test correspond à une gamme de valeurs de ψ . Une interface métal-céramique donnée n'est donc pas caractérisée par une énergie de rupture spécifique mais par un ensemble de valeurs de G_c fonction de ψ [87,88].

Calcul du G_c	Tests
G_c dépend des propriétés du film	<p>Test de pelage</p>
$M = \frac{Pl}{2b}$ $\frac{b^2 h^3 E G_c}{P^2 l^2} = k \left(\frac{h}{H} \right)$ <p style="text-align: center;">$\Psi \approx 50^\circ$</p>	<p>Test de délaminage</p>
$\frac{G_c E}{S^2 R} \approx 0.25$ <p style="text-align: center;">$70^\circ < \Psi < 90^\circ$</p>	<p>Test de pull-out</p>
$\frac{b^2 h E G_c}{P^2} = 12 \left(\frac{a}{h} \right)^2 \left[1 + \left(\frac{2}{3} \right) \left(\frac{h}{a} \right) \right]^2$ <p style="text-align: center;">$0 < \Psi < 5^\circ$</p>	<p>Test de double cantilever</p>
$\frac{4bwEG_c}{9P(L-l)} = a \left(1,99 - 2,47 \left(\frac{a}{w} \right) + 12,97 \left(\frac{a}{w} \right)^2 \right)^2$ <p style="text-align: center;">$0 < \Psi < 5^\circ$</p>	<p>Test de flexion 4 points</p>

Tableau II.6 : Différents tests utilisés pour déterminer l'énergie de rupture interfaciale G_c d'une interface [22].

L'énergie de rupture interfaciale dépend du travail d'adhésion pour une faible part, mais aussi, comme dans un matériau homogène, de phénomènes physiques en bout de fissure tels que la plasticité, le frottement et la rugosité. Cette dernière apporte une contribution à l'augmentation de G_c avec l'angle ψ [47,79]. La rugosité en fond de fissure peut être schématisée de la façon suivante (Figure II.5) :

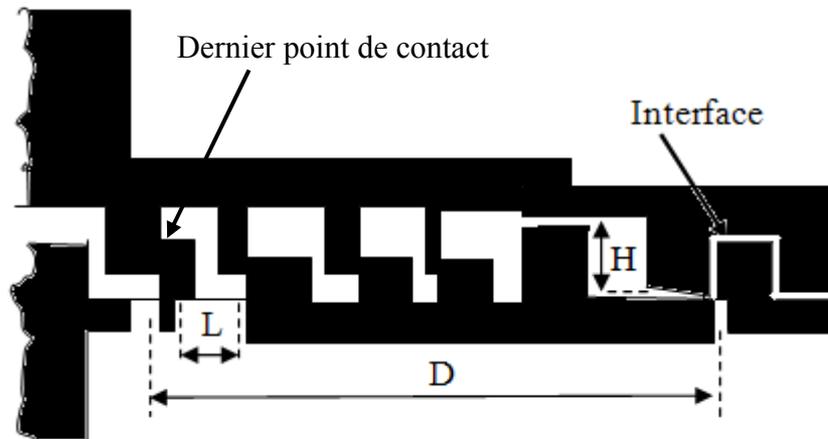


Figure II.5 : Représentation schématique de la rugosité de l'interface en fond de fissure.

Les zones de contact freinent le mouvement de la surface de la fissure par friction et blocage. Par suite la résistance à la rupture interfaciale est modifiée. La longueur de la zone de contact D et donc l'amplitude du freinage est fonction des paramètres ψ (cf. Tableau II.6) [89] :

$$\chi = \frac{EH^2}{LG_0} \quad \text{II.11}$$

E : module de Young du métal,

G_0 : énergie de rupture interfaciale à $\psi = 0$,

D , H et L définis dans la figure II.4.

- Lorsque $\psi = 0$ ou $\chi = 0$: la longueur de la zone de contact D est nulle, donc la fissure n'est pas freinée.
- Lorsque $\psi \neq 0$ ou $\chi \neq 0$: il peut y avoir un freinage de la fissure qui va dépendre à la fois des valeurs de l'angle ψ et du coefficient de frottement μ et de la morphologie de la rugosité.

Un autre effet est celui de la plasticité mais aussi de tous les autres termes dissipatifs d'énergie comme le frottement. Ceci conduit à écrire d'une façon générale [1] :

$$G_c = W_{ad} + \Phi (W_{ad} + \sum \text{termes de dissipation}) \quad \text{II.12}$$

En particulier la déformation plastique apporte une forte contribution à l'énergie de rupture dans les liaisons métal-céramique [90]. L'éroussement des fissures par glissement est un aspect important de la plasticité. Les propriétés du métal, notamment sa limite d'écoulement, et la présence de défauts au voisinage de l'interface vont déterminer le mode de rupture (fragile ou ductile) et son énergie. Cependant, jusqu'à présent, les effets de la plasticité en front de fissure sont encore mal connus. Ainsi, *Evans et al.* [47] ont proposé la relation suivante.

$$G_c = W_{ad} + \underbrace{\frac{EH^2}{LG_0}}_{\text{rugosité}} + \underbrace{\frac{EW_{ad}^2}{e\sigma_E^2}}_{\text{déformation}} \quad \text{II.13}$$

e : épaisseur du métal.

σ_E : limite d'élasticité du métal.

E : module de Young du métal.

Le 1^{er} terme est le travail d'adhésion, le 2^{ème} terme correspond à l'effet de rugosité et le 3^{ème} à la dissipation par déformation plastique. Plus qualitativement la figure II.6 montre la variation et la dépendance de l'énergie de rupture G_c en fonction de ψ prenant en considération l'effet de la rugosité et le terme de dissipation lié à la déformation plastique [91].

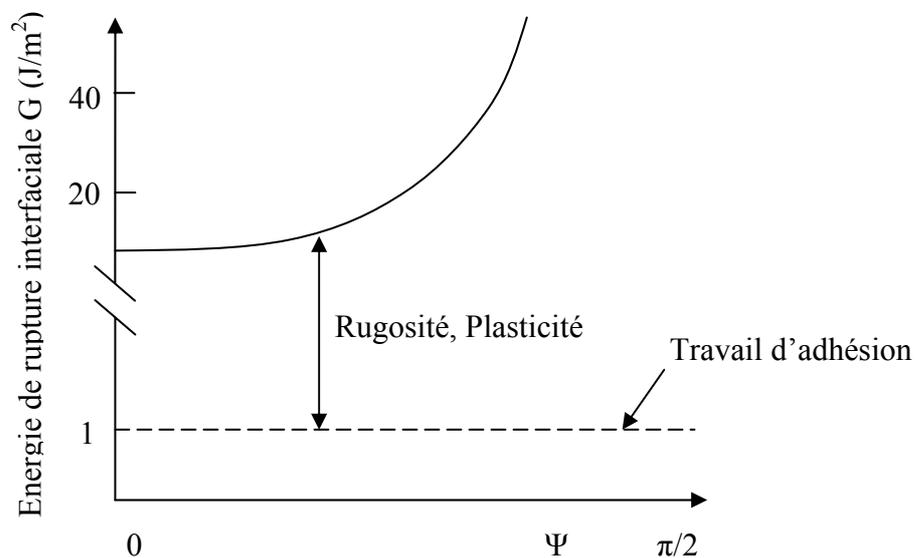


Figure II.6 : Dépendance de l'énergie avec l'angle ψ [91].

Expérimentalement, *Elsner et al.* [19] ont fait une comparaison entre les valeurs expérimentales des énergies de rupture G_c et des travaux d'adhésion pour deux types d'interface $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}$ et Verre/epoxy (Tableau II.7).

	<i>Travail d'adhésion (J/m²)</i>	<i>Énergie de rupture G_c (J/m²)</i>
<i>Al₂O₃/Nb</i>	0.82	43.4
<i>Verre/époxy</i>	0.178	58.3

Tableau II.7 : Comparaison entre le travail d'adhésion et l'énergie de rupture pour deux interfaces différentes.

On constate que l'ordre de grandeur de l'énergie de rupture est de plusieurs dizaines de J/m² alors que celui de l'adhésion est inférieur à 1 J/m². Cette importance s'explique par le fait que la majeure partie de l'énergie est dissipée de façon irréversible par déformation plastique ou autres énergies dissipées. Pour le cas de la liaison Nb/Al₂O₃, les mêmes auteurs ont montré que l'énergie de rupture est dépendante de l'orientation cristallographique de la liaison. Des valeurs record ont été enregistrées dépassant les 2100 J/m² (Figure II.7).

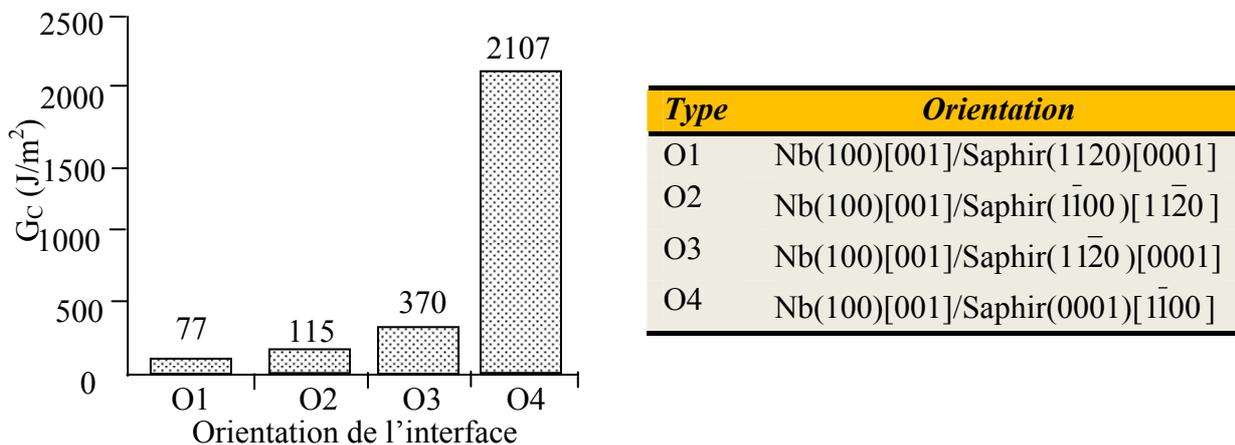


Figure II. 7: Variation du taux de restitution d'énergie G_C en fonction de l'orientation cristallographique d'une interface non dopée Nb/Al₂O₃ (matériaux monocristallins) [19].

II.4.3. Trajectoire de fissure

Comme on l'a mentionné dans le paragraphe précédent, l'énergie de rupture de l'interface métal-céramique dépend fortement de la valeur du paramètre ψ et par suite du test mécanique utilisé. Si cette énergie est supérieure à celle de l'un des deux matériaux de l'assemblage, la rupture peut se produire de façon fragile [86,92]. La question qui se pose alors est : la fissure se propagera-t-elle à l'interface, à travers l'interface, dans le métal, ou dans la céramique ?

Des études approfondies sur les modes de fissuration [89,93,94] ont montré que la trajectoire des fissures dépend du mode de sollicitation : mode I (ouverture) et mode II (cisaillement). Dans le cas d'une sollicitation mixte, deux trajectoires sont possibles :

- le long de l'interface : c'est une rupture adhésive,
- en dehors de l'interface : c'est une rupture cohésive.

Un troisième type de rupture serait possible, à savoir une rupture mixte, mais sous certaines conditions décrites par *Evans et al.* [79].

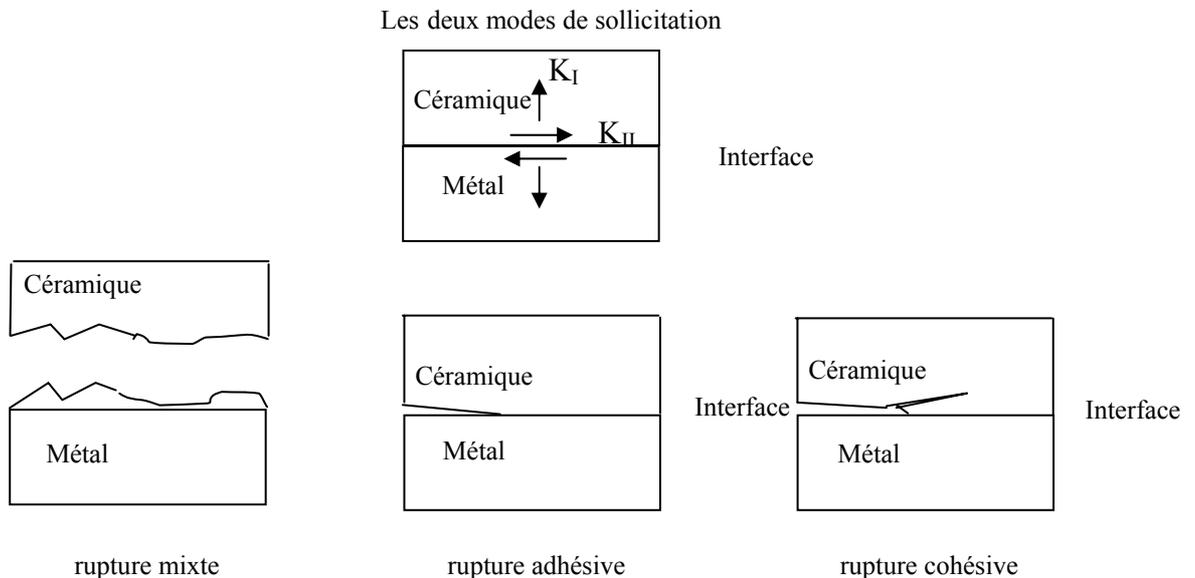


Figure II.8 : Les trajectoires de fissure dans le cas d'une sollicitation mixte.

Evans et al. [79] ont présenté une étude synthétique des conditions de fissuration des bimatériaux. De cette étude on peut retenir les grandes idées suivantes :

- lorsque les deux matériaux formant l'interface sont fragiles, la trajectoire de fissure dépend de l'angle $\psi = \tan^{-1}\left(\frac{K_I}{K_{II}}\right)$. La probabilité pour que la fissure sorte de l'interface a

été calculée et est maximale pour $\psi = 70^\circ$. Dans ce cas, la fissure se propage dans le matériau dont le module de Young est le plus faible,

- lorsqu'un des matériaux est fragile et l'autre ductile, le cas est encore plus complexe. Il a été montré que la trajectoire de fissuration est très sensible au signe de l'angle ψ , si $\psi > 0$ on est ramené au cas précédent. Dans le cas contraire ($\psi < 0$) la fissure reste parallèle à l'interface et alors deux cas sont possibles (Figure II.8) :

① cas où le matériau à une faible limite d'élasticité : une déformation plastique aura lieu dans la zone interfaciale et le mécanisme de propagation fera intervenir la ductilité,

② cas où le matériau présente une limite d'élasticité élevée : dans ce cas, la fissure pourra interagir avec des défauts déjà présents dans le matériau fragile et on pourra observer des morceaux du matériau fragile accrochés à la surface de fracture, c'est ce qu'on appelle une fissure mixte.

II.4.4. Types de rupture

II.4.4.1. Rupture ductile

C'est une rupture qui intervient dans le métal en mode d'ouverture I (K_I). La fissure suit alors une trajectoire telle que le facteur d'intensité de contrainte en mode II soit nul ($K_{II} = 0$) [95,96]. Le point d'amorçage de la rupture reste difficile à localiser, car il est fonction des défauts et du champ de contraintes au voisinage de l'interface.

II.4.4.2. Rupture fragile

La rupture intervient par un mécanisme classique de rupture fragile, l'interface influence néanmoins la résistance mesurée en agissant comme un site de nucléation des défauts [90]. La présence de zones interfaciales non liées ou de pores situés loin de l'interface favorise ce mode de rupture.

II.5. LES CONTRAINTES RÉSIDUELLES

II.5.1. Définition des contraintes résiduelles : Aspects macro et microscopique

Les contraintes résiduelles sont des contraintes multiaxiales statiques. Elles existent dans un système en équilibre mécanique isolé, soumis à aucune force ni moment extérieur [97,98].

A cause du caractère polycristallin et hétérogène des matériaux métalliques, les sources de contraintes peuvent provenir de déformations aux échelles macro- micro- ou submicroscopiques. En effet, un matériau cristallin est constitué de phases, qui elles-mêmes sont formées de grains. Chaque grain est un monocristal qui peut être considéré dans un modèle simple, comme divisé en petits domaines séparés par un réseau de dislocations. Chaque domaine est constitué par un empilement régulier d'atomes, qui peut être défini par un ensemble de mailles cristallines identiques.

Quelle que soit l'échelle à laquelle on considère le matériau, on peut mettre en évidence des contraintes ayant pour origine des déformations assurant la continuité du matériau, par exemple autour des défauts ponctuels, des dislocations, des joints de grains, des joints d'interphase, au niveau des grains, des phases et enfin de la pièce elle-même. Trois ordres de contraintes résiduelles liés à l'échelle d'observation et de mesure ont été définis [98,99,100] :

- les contraintes résiduelles du 1^{er} ordre (σ^I) ou macroscopiques sont homogènes sur un très grand domaine du matériau (plusieurs grains : quelques 1/10 de mm). Les forces internes liées à ces contraintes sont en équilibre dans chaque section, et les moments liés à ces forces sont nuls autour de tout axe. Des variations dimensionnelles macroscopiques résultent toujours d'une modification de l'équilibre des forces et des moments liés à ces contraintes σ^I ,

- les contraintes résiduelles du 2^{ème} ordre (σ^{II}) sont homogènes sur de petits domaines du matériau (un grain ou une phase : quelques 1/10 de μm). Les forces internes et les moments liés à ces contraintes sont en équilibre dans un assez grand nombre de grains. Des variations dimensionnelles macroscopiques peuvent résulter d'une modification de cet équilibre,
- les contraintes résiduelles du 3^{ème} ordre (σ^{III}) ou submicroscopiques sont inhomogènes sur les plus petits domaines du matériau (quelques distances interatomiques : quelques 1/10 de nm). Les forces internes et les moments liés à ces contraintes sont en équilibre dans de très petits domaines. Ces contraintes peuvent atteindre des valeurs très élevées mais les dimensions macroscopiques ne peuvent être affectées par une évolution de cette famille de contraintes résiduelles.

Dans le cas de matériaux réels, l'état de contraintes résiduelles résulte de la superposition des contraintes d'ordre I, II et III comme ceci est schématisé sur la figure II.9 dans le cas d'un matériau polyphasé.

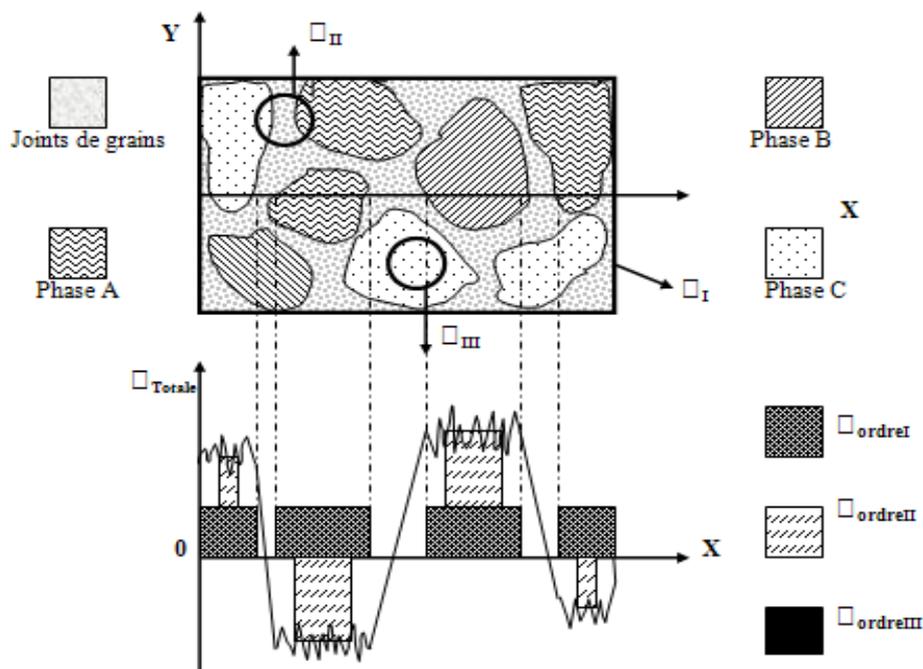


Figure II. 9 : Définition schématique des différents ordres de contraintes pour un matériau polyphasé [101,102].

Localement, la contrainte totale est la résultante des contraintes des ordres I, II et III

$$\sigma_{\text{résiduelle}}^{\text{Totale}} = \sigma_{\text{résid.}}^{\text{I}} + \sigma_{\text{résid.}}^{\text{II}} + \sigma_{\text{résid.}}^{\text{III}} \quad \text{II.14}$$

Cette classification proposée pour les contraintes internes a un aspect pour l'instant théorique, car la séparation effective des différents ordres de contraintes n'est atteinte par aucune méthode de calcul ou de mesure. Cependant, elle a pour intérêt de montrer que

toute hétérogénéité de déformation introduite à toute échelle de la structure entraîne l'existence de contraintes résiduelles.

II.5.2. Les contraintes résiduelles dans les assemblages métal/céramique

La réalisation d'une liaison entre une céramique et un métal s'accompagne toujours de la création d'un champ de contraintes résiduelles multiaxial. Différentes origines physiques et mécaniques expliquent la genèse des contraintes résiduelles à l'interface de liaison, dans la céramique et le métal lors de la formation de la liaison céramo-métallique :

- les contraintes d'origine thermiques issues du gradient thermique de l'environnement expérimental (loi de refroidissement). Dans ce contexte, un gradient thermique est généré au niveau de l'éprouvette du fait de la différence de conductibilité thermique qui existe entre la céramique et le métal,
- les contraintes issues de la formation de nouvelles phases à l'interface (liaisons réactives), provoquant une augmentation de volume et le blocage des dislocations à courte distance,
- les contraintes générées par une transformation de phase de l'alliage métallique lors du refroidissement,
- les contraintes liées à l'effet de la création de charges électrostatiques d'espace dans la céramique,
- les contraintes d'origine purement mécanique générées par la différence des propriétés physiques (α : coefficient de dilatation thermique, E : module d'élasticité).

L'expérience montre que les contraintes résiduelles sont critiques dans la partie céramique et peuvent mener à la rupture du matériau (rupture cohésive) sans chargement extérieur. Lorsque la liaison est réalisée, le champ des contraintes internes existant se superpose au champ appliqué et contribue ainsi à la qualité de la tenue mécanique des liaisons. A terme, la maîtrise des contraintes résiduelles doit conduire à l'amélioration de la tenue et de la fiabilité des assemblages.

Dans ce contexte, l'évaluation de ces contraintes est précieuse pour la réalisation de pièces. Plusieurs méthodes expérimentales existent actuellement qui peuvent être appuyées par des calculs analytiques et/ou numériques.

II.6. INCIDENCE DES MÉTHODES DE LIAISON ET DES COUCHES D'OXYDES SUR LES CONTRAINTES RÉSIDUELLES AU NIVEAU DE L'INTERFACE

II.6.1. Incidence des méthodes de liaison

Dans le cas des dépôts minces obtenus par voie chimique ou physique (C.V.D ou P.V.D), l'adhérence métal/céramique est assez aisément obtenue, dans la mesure d'une préparation convenable des surfaces. La C.V.D et la P.V.D sont des techniques largement utilisées dans les industries des couches minces comme l'industrie de l'électronique.

L'adhérence est d'autant meilleure par ces méthodes qu'une interdiffusion chimique se manifeste à l'interface.

Par contre, quand les dépôts sont épais ou quand la jonction intéresse des matériaux massifs, ce qui est notre cas, notamment pour des applications de nature thermomécaniques, l'adhérence est bien plus difficile à atteindre. En effet, les coefficients de dilatation thermique des céramiques sont généralement beaucoup plus faibles que ceux des métaux ce qui crée des contraintes résiduelles au niveau de la jonction. L'analyse de ces contraintes résiduelles reste un problème technologique important. Les liaisons étant réalisées à haute température, l'assemblage est soumis au cours du refroidissement à des contraintes, notamment à l'interface, dues à la différence importante des coefficients de dilatation entre les métaux et les céramiques.

Au cours de l'élaboration, qu'elle soit réalisée à l'état solide ou liquide, l'état des contraintes peut être schématisé par le modèle de bloc (Figure II.10). Avant liaison : les deux blocs ont des longueurs identiques. Au cours du refroidissement : le bloc qui se dilate le plus (métal) est soumis à des efforts de compression. Par réciprocity le bloc voisin subit de la traction. Au retour à l'ambiante, il y a déformation plastique inhomogène ; le bloc ductile (métal) se rétracte de façon rémanente. Le bloc fragile (céramique) conserve sa longueur initiale. Après liaison, il y a conservation de la continuité entre les deux blocs. L'équilibre génère des contraintes résiduelles dans chaque bloc. Elles sont de signe opposé au signe des forces ayant servi à les créer. Le bloc fragile est en compression tandis que le bloc ductile est en tension.

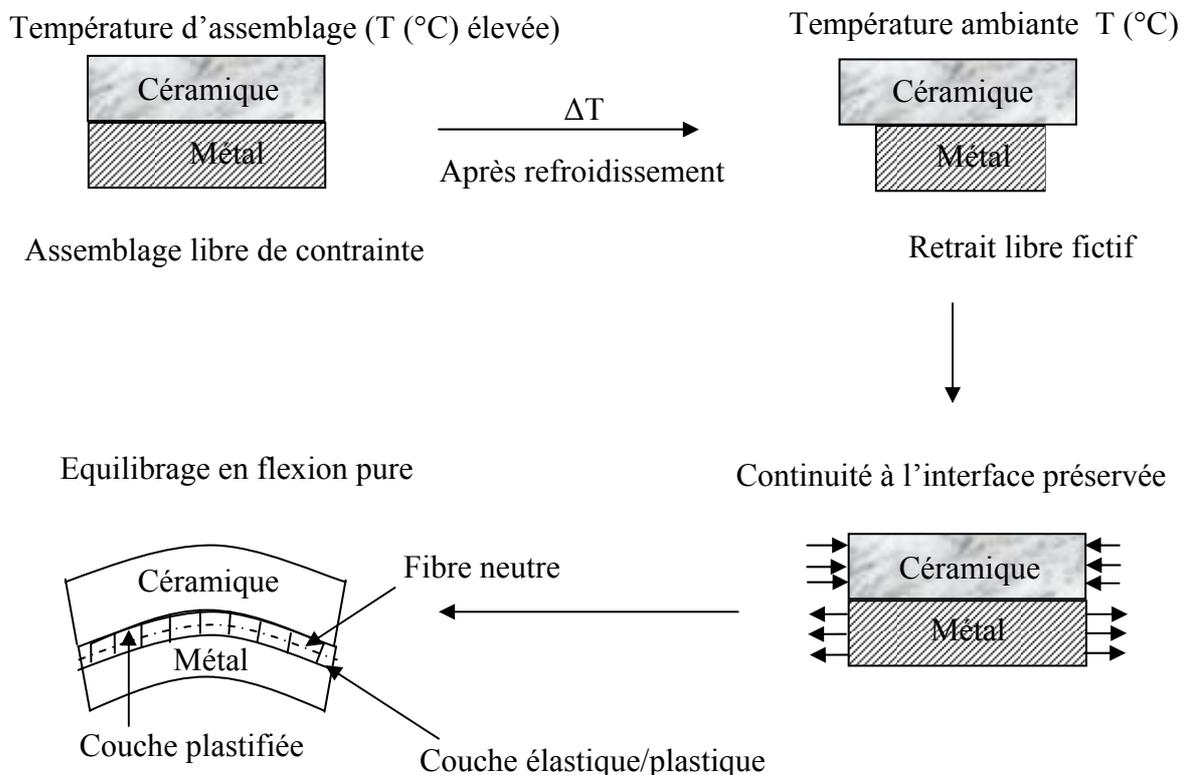


Figure II.10 : Genèse des contraintes résiduelles dans une liaison métal/céramique [103].

A la température de la liaison il y a contact et accommodation des surfaces, les matériaux pouvant être en compression (thermocompression) ou non contraints (métallisation, projection, émaillage, brasure eutectique Cu-Cu₂O). Si la liaison est effective, il y a apparition de contraintes de cisaillement à l'interface au cours du refroidissement dues à l'égalisation des déformations qui sont respectivement :

$$\varepsilon_c = \alpha_c \Delta T \quad \text{II.15}$$

$$\varepsilon_m = \alpha_m \Delta T \quad \text{II.16}$$

α_c et α_m sont les coefficients de dilatation de la céramique et du métal. ΔT est la différence entre la température d'élaboration et la température ambiante.

Des contraintes sont aussi engendrées dans le volume des deux matériaux, celles-ci dépendent de la différence des coefficients de dilatation mais aussi de facteurs géométriques ainsi que des grandeurs et caractéristiques mécaniques (module de Young, coefficient de Poisson, limite d'élasticité, charge à la rupture...).

Plusieurs techniques sont utilisées afin de minimiser les contraintes internes. Elles consistent à ajuster les coefficients de dilatation en plaçant d'autres matériaux entre le métal et la céramique, soit des métaux mous [104,105], soit une couche composite type cermet composée d'un mélange des deux matériaux à assembler [106].

Dans le cas du couple Cu/Al₂O₃ par exemple, le retrait différentiel est estimé à environ 1 % [107], ce qui est bien inférieur à la limite de rupture, mais suffisant pour introduire des contraintes résiduelles. Elles peuvent se manifester à l'interface sous la forme de contraintes de compression, difficiles à relaxer.

L'expression de ces contraintes résiduelles à l'interface de jonction est exprimée par la formule d'Evans [79] :

$$\sigma = \frac{E \alpha \Delta T}{1 - \nu} \quad \text{II.17}$$

α : coefficient de dilatation moyen du substrat métallique,
 $\Delta T = T_1 - T_r$ avec T_r la température de référence, T_1 la température de liaison,
 ν : coefficient de Poisson du substrat métallique,
 E : module de Young du substrat métallique.

La fragilité intrinsèque de la céramique est un obstacle important à la réalisation de couples métal/céramique. Il faut donc dans un premier temps utiliser des méthodes de liaison susceptible de relaxer en partie les contraintes résiduelles interfaciales issues de différences de coefficient de dilatation. La thermocompression permet de réaliser des liaisons directes à l'état solide avec des matériaux présentant des coefficients de dilatation thermique assez différents. Les liaisons obtenues présentent souvent une résistance mécanique élevée. L'application de fortes pressions uniaxiales conduit à une déformation plastique du composant métallique et donc à la relaxation des contraintes thermiques dans les céramiques [108].

D'autres auteurs [7,107] préconisent d'utiliser des processus avec réaction interfaciale (avec formation d'oxydes mixtes ou de phases intermétalliques) qui permettront alors la relaxation des contraintes. Mais de nombreuses études ont montré l'influence souvent néfaste de ces oxydes mixtes sur la tenue mécanique à l'interface et sur la résistance à la corrosion des jonctions [24,78]. Ce qui nous amène à évoquer l'influence des couches d'oxydes.

II.6.2. Incidence des couches d'oxydes

La croissance de nouvelles phases au niveau de la jonction métal/céramique, comme toute croissance par interdiffusion, peut conduire au développement de contraintes d'origines diverses. Le problème a été particulièrement approfondi pour l'oxydation et peut être étendu au cas des liaisons métal/céramique réactives. Ainsi la différence entre le volume d'oxyde formé par rapport au volume équivalent de métal consommé génère des contraintes [32].

Les lois d'oxydation des métaux sont mesurées par les méthodes volumétriques, en fonction du temps et la quantité de gaz consommé à pression constante, par l'échantillon placé dans une enceinte close. Ces méthodes fournissent des informations notamment sur la cinétique de la corrosion sèche.

Dans le cas du système Ni/NiO par exemple [109], il existe une contrainte de compression élevée, causée par oxydation isothermique du Ni qui peut être additionnée à la contrainte générée par la différence de coefficient de dilatation. Cette contrainte peut être cependant éliminée par un recuit sous vide supplémentaire. *Yamané et al.* [109] ont montré dans cette étude que la contrainte de compression était nécessaire au maintien d'une force de liaison entre Ni et NiO.

Les contraintes associées à la formation et à la croissance des couches d'oxyde ont également une influence importante sur la structure de l'interface métal/oxyde, par établissement de relations d'épitaixie entre le métal et son oxyde, ou par des variations de composition. *Ishida et al.* [110] dans leur étude du couple Nb/Al₂O₃ ont supposé l'existence d'une fine couche de NbO à l'interface. Ils prédisent une fracture de cette couche intermédiaire résultant d'une large concentration de contrainte dans la couche céramique près de l'interface. Le front de fissure aurait alors pour conséquence de facetter l'alumine, lequel facettage est couramment observé en microscopie électronique en transmission.

C'est la raison pour laquelle de nombreux auteurs préfèrent réaliser des interfaces métal/céramique en évitant au maximum la présence ou la formation d'oxyde ou de couches intermédiaires. Quand dans une expérience de thermocompression, des métaux sont connus pour former des couches d'oxydes, il faut alors appliquer une pression supplémentaire pour casser cette couche et relâcher les contraintes, c'est le cas par exemple des liaisons utilisant des joints d'aluminium [11].

II.7. MÉTHODES D'ESTIMATION DES CONTRAINTES RÉSIDUELLES

Les assemblages métal-céramique peuvent être examinés par diverses méthodes d'analyses des contraintes résiduelles qui sont non destructives (diffraction des rayons X, diffraction des neutrons, interférométrie optique) ou destructives (méthode du trou,

enlèvement de couches, indentation Vickers ou méthode de la flèche). Les calculs par des méthodes analytiques sont réalisables dans des cas simples. L'utilisation de codes de calculs par éléments finis s'avère indispensable pour des modélisations complètes de la répartition spatiale des contraintes résiduelles au sein d'assemblages plus complexes. Les possibilités et les limites des méthodes utilisées sont décrites à la lumière des données bibliographiques concernant l'étude des liaisons métal/céramique.

II.7.1. Techniques diffractométriques

La technique diffractométrique est considérée comme la plus appropriée à l'étude des assemblages métal/céramique. Cette technique permet d'apprécier le signe, le niveau et la répartition spatiale des contraintes résiduelles au sein d'un assemblage. Seule la diffraction neutronique permet un contrôle totalement non destructif de pièces jointes épaisses du fait de la grande profondeur de pénétration des neutrons [111,112]. Les volumes analysés sont beaucoup plus importants (plusieurs mm^3), ce qui requière un équipement lourd avec des temps de comptages très longs. Pour cette raison, la diffraction des rayons X est plus employée malgré la faible pénétration des photons. Son principe consiste à utiliser le paramètre cristallin comme jauge de déformation. Le protocole de mesure sera décrit au chapitre III, § 6.2.

Les filiations de contraintes résiduelles par diffraction X de l'assemblage peuvent être faites parallèlement ou perpendiculairement à l'interface sur une face latérale dans l'un et/ou l'autre des matériaux. La surface libre plane des pièces assemblées est également analysable en vue de la détermination des contraintes dans un plan parallèle à la zone interfaciale.

II.7.1.1. Mesures parallèles et normales à l'interface

Tanaka et al. [113] ont conduit des travaux sur des éprouvettes réalisées en vue de tests de flexion 4 points de largeurs différentes avec des liaisons symétriques $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cu}/\text{XC45}/\text{Cu}/\text{Si}_3\text{N}_4$ réalisées par brasage. Le métal d'apport intercalé entre les substrats est un alliage de base Ag-Cu-Ti. La figure II.11 reprend les résultats d'une filiation dirigée selon la direction de l'interface x d'une éprouvette d'épaisseur 30 mm. En chaque point, les contraintes résiduelles dans la direction de l'interface σ_x et perpendiculaire à celle-ci σ_y sont déterminées avec le rayonnement $K\alpha$ Cr. Les mesures sont pratiquées dans le Si_3N_4 à une distance de $y = 0.1$ mm de l'interface.

Les résultats obtenus montrent que dans la direction normale à l'interface, des contraintes résiduelles de tension ($\sigma_y = 200$ MPa) existent sur les bords libres de la pièce. Elles décroissent pour atteindre un minimum à environ 2 mm du bord et atteignent à nouveau des valeurs positives plus élevées que sur les bords ($\sigma_y = 250$ MPa) au centre de la liaison.

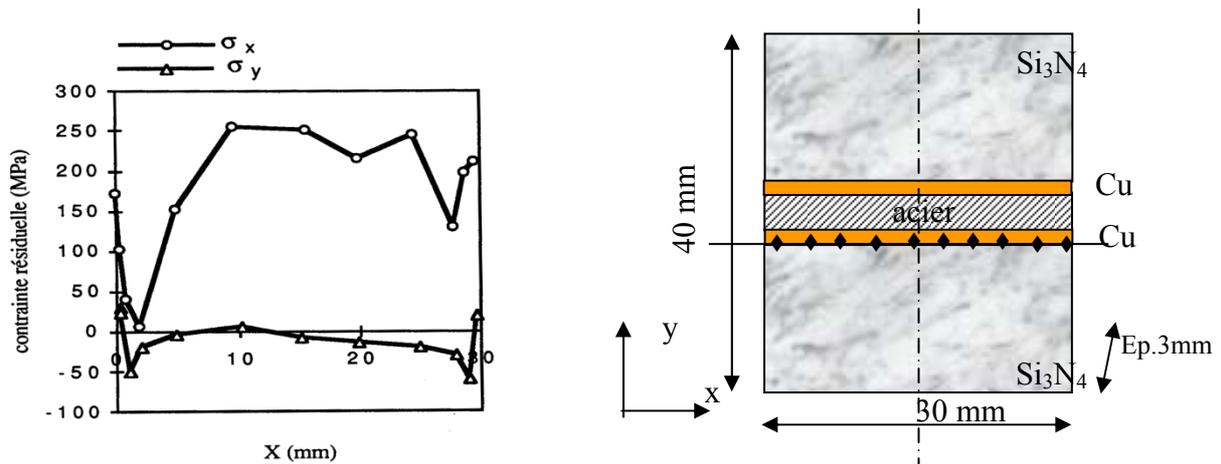


Figure II.11 : Distributions des contraintes résiduelles le long de l'interface d'un joint $Si_3N_4/Cu/XC45/Cu/Si_3N_4$ [113].

Les résultats de *Tanaka et al.* et *Kurita et al.* [113,114] sont en accord au sujet des filiations de contraintes résiduelles au centre d'une face latérale, dirigées selon l'axe y normal à l'interface. Les contraintes déterminées sont faibles loin de l'interface et toujours maximales à proximité de l'interface. Un extremum intermédiaire est parfois détecté.

Un exemple de profil expérimental réalisé par *Kurita et al.* [114] répondant à cette description est donné sur la figure II.12.

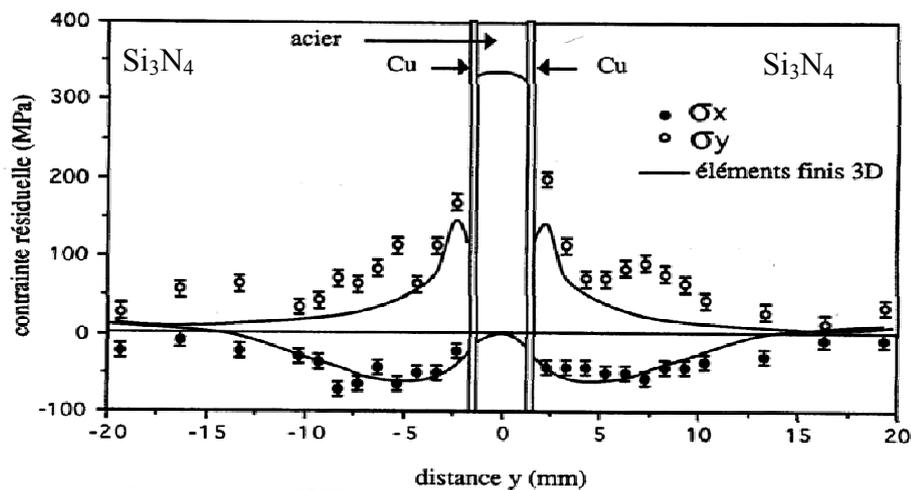


Figure II.12 : Distributions des contraintes résiduelles par diffraction X et par éléments finis du système symétrique $Si_3N_4/Cu/XC45/Cu/Si_3N_4$ [114].

Avec une géométrie cylindrique, *Colin* [26] qui s'intéresse au couple $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Inconel 600}$ obtenu par compression isostatique à chaud, montre que la composante normale σ_y déterminée dans la partie céramique est positive et maximale près de l'interface et tend vers une contrainte nulle loin de l'interface. Les mesures par diffraction X ont pu être réalisées sur les faces latérales malgré la difficulté posée par la courbure des éprouvettes.

II.7.1.2. Mesures sur les faces parallèles à l'interface

Des mesures ponctuelles ou une filiation en différents points sont réalisables selon la taille de la zone irradiée comparée à la superficie des faces des éprouvettes. *Colin* [26] a présenté les profils de contraintes résiduelles déterminées par diffraction des rayons X au sommet de pièces cylindriques non symétriques d'épaisseur variable du couple $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Inconel 600}$ obtenu par compression isostatique à chaud (Figure II.13).

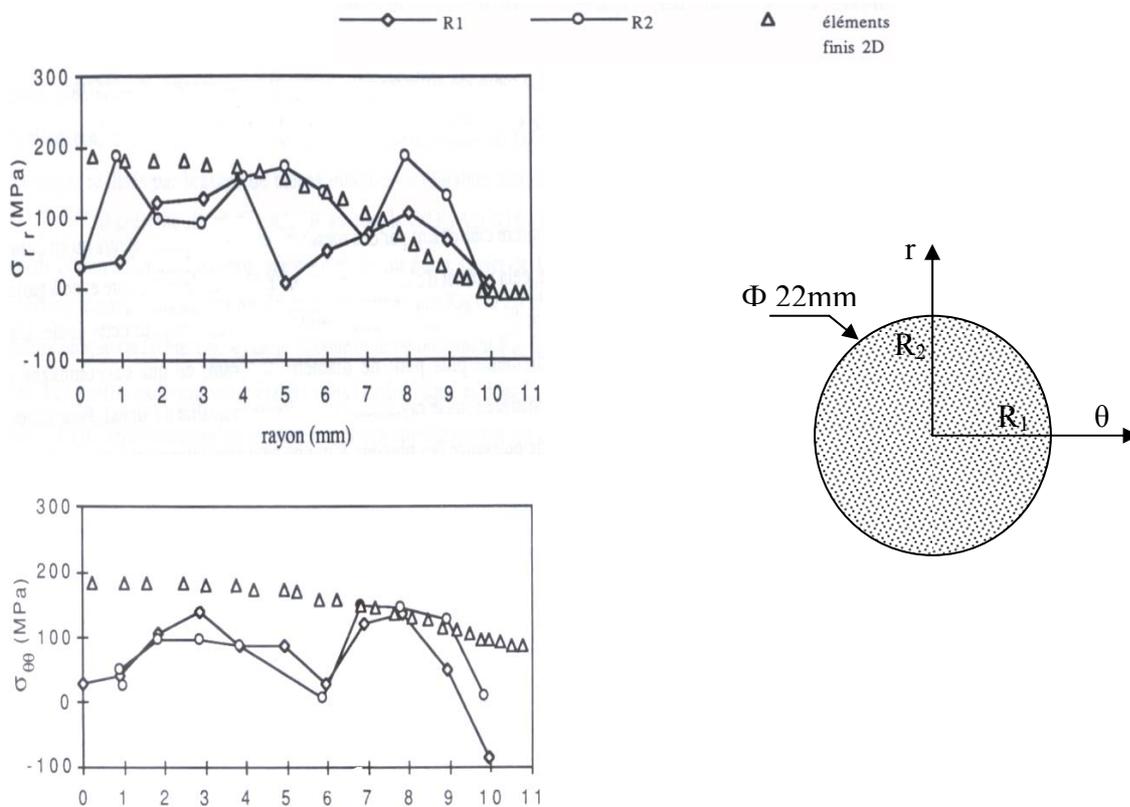


Figure II.13 : Filiation des contraintes résiduelles radiales et circonférentielles par diffraction X et par éléments finis au sommet de la céramique alumine de pièces cylindriques [26].

Suivant les deux rayons R_1 et R_2 les profils expérimentaux sont proches : l'hypothèse d'axisymétrie du système est respectée. Les composantes σ_{rr} et $\sigma_{\theta\theta}$ à la surface de la céramique sont nettement en tension sauf près du bord et dans la direction circonférentielle. A cet endroit, on note une tendance à de la compression mais celle-ci reste d'un niveau faible.

II.7.1.3. Limite de l'analyse diffractométrique

Les mesures par diffraction des rayons X sur des surfaces gauches ne sont pas rigoureuses du point de vue théorique et doivent être présentées avec précaution. Dans les cas de pièces cylindriques, il faut que la taille de la zone irradiée ne soit pas trop importante pour limiter l'influence du rayon de courbure de la pièce [26].

Tanaka [113] démontre l'importance du choix de la taille de la zone irradiée pour la mise en œuvre de la méthode diffractométrique appliquée aux liaisons métal/céramique. Les mesures près de l'interface sont d'autant plus précises et localisées que la taille de la zone irradiée est faible.

II.7.2. Mesures par indentation Vickers

Moins répandue que la diffraction X mais pourtant aisée à mettre en œuvre pour l'étude des liaisons métal/céramique, la méthode par indentation Vickers peut être appliquée pour évaluer les contraintes résiduelles dans le matériau céramique près de la zone interfaciale (Figure II.14).

Lasca [115] décrit le protocole opératoire que nous détaillerons au chapitre III. Il consiste à effectuer des indentations successives dans la céramique en s'éloignant de l'interface d'un pas de 0.1 mm à chaque point. La longueur de la fissure mesurée sur la céramique assemblée correspond à la fissuration dans la direction parallèle à l'interface.

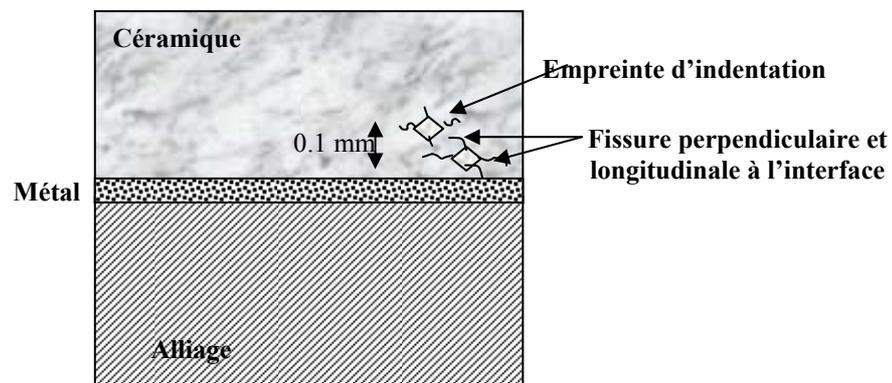


Figure II.14 : Schéma explicatif de la méthode de détermination des contraintes résiduelles par indentation Vickers.

Le tableau II.8 donne des valeurs ainsi mesurées pour différents assemblages métal/céramique. Les longueurs de fissures mesurées sont toutes plus grandes après liaison ce qui vérifie effectivement que les contraintes estimées sont systématiquement en traction. Les valeurs des contraintes estimées doivent être prises avec précaution pour plusieurs raisons. Il s'agit d'une valeur moyenne superficielle entachée d'une erreur liée à la difficulté d'apprécier précisément les longueurs de fissures.

Couple	Technique de la liaison	σ_r calculée (MPa)
ZrO ₂ (TZP)/XC18	Brasage (Ag-Cu-Ti)	142
ZrO ₂ + Al ₂ O ₃ /Ti	Thermocompression	131
ZrO ₂ + Al ₂ O ₃ /Zircaloy	Thermocompression	334

Tableau II.8 : Exemple de mesure de contraintes résiduelles à l'interface d'un assemblage métal/céramique par indentation Vickers [115].

II.7.3. Méthodes numériques

La simulation numérique par éléments finis [116] est un outil puissant dont l'utilisation doit permettre la prédiction de la répartition spatiale des contraintes résiduelles lorsque les méthodes analytiques sont inefficaces.

Le résultat du calcul des contraintes résiduelles dans le cas de l'étude de la liaison brasée Si₃N₄/Ag-Cu-Ti/XC18 en mode élasto-plastique donne la répartition spatiale des contraintes résiduelles sur l'intégralité de la pièce [101]. La figure II.15 représente les composantes radiale σ_{rr} et circonférentielle $\sigma_{\theta\theta}$.

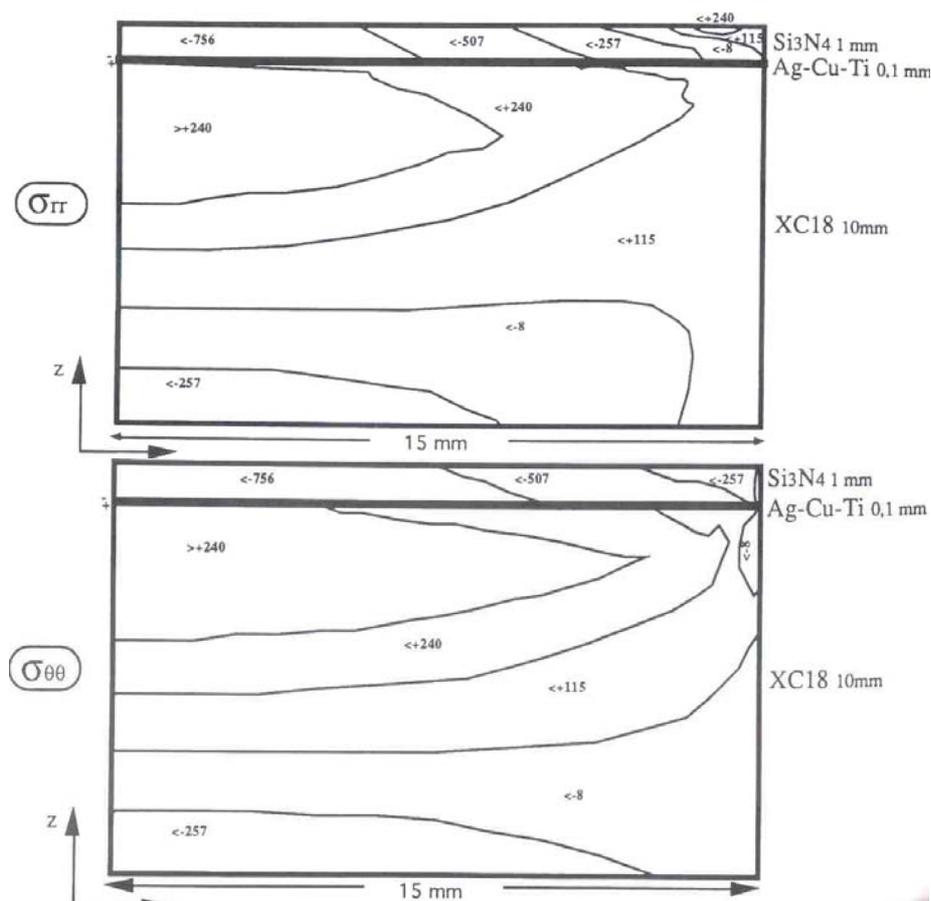


Figure II.15 : Cartographie des contraintes résiduelles d'origine thermique obtenues par éléments finis [101].

Ces représentations donnent un aperçu global du niveau de contraintes résiduelles. La céramique est intégralement en compression avec des valeurs élevées au centre, ce qui est bénéfique pour la tenue de la céramique. En revanche, près du bord, la céramique présente une zone en tension. L'acier est en tension en sous couche de la brasure tandis que la base est en compression.

II.7.4. Comparaison des méthodes

L'une des sources de genèse des contraintes résiduelles dans les assemblages métal/céramique est la différence entre les coefficients de dilatation thermique des antagonistes. *Lourdin* [22], dans son étude du couple $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ par thermocompression a montré qu'à température ambiante, le taux de contraintes résiduelles dépend uniquement de la vitesse de refroidissement et non de l'écart entre la température de liaison et la température ambiante. En proposant un modèle intégrant la vitesse de refroidissement et le fluage du métal, le même auteur a montré que le fluage permet ainsi une relaxation des contraintes d'origine thermique en plus de la relaxation plastique. D'après l'auteur, le métal va être freiné dans son retrait par la céramique car généralement la céramique se contracte moins vite que le métal. La céramique subit l'effet inverse. En conséquence, la continuité est préservée si les matériaux se déforment à une vitesse correspondant à la différence entre les vitesses de déformation de chacun d'eux.

Les vitesses de déformations respectives sont appréciées grâce aux cartes de déformation caractérisant le comportement en fluage des matériaux. Les déformations de l'alumine sont négligeables par rapport à celles du nickel. En conséquence la déformation imposée au cours du refroidissement est totalement prise en compte par le nickel.

En 1992, *Ebihara et al.* [117] sur un assemblage $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{AgCuTi}/\text{Cu}/\text{SUS 304}$ ont montré l'influence de la géométrie de l'échantillon. Les contraintes résiduelles sont maximales aux coins de l'interface et indépendantes de l'épaisseur de Cu. Des études plus poussées sur un assemblage saphir/Nb conduites par *Ishida et al.* [110] ont démontré que la création d'un produit de réaction à l'interface favorisait le déplacement des dislocations et par conséquent diminuait les contraintes résiduelles.

Trois années plus tard, *Gao et al.* [118] confirment les résultats de Ebihara, à savoir que les contraintes résiduelles sont maximales aux coins de l'interface ce qui est en accord avec les faciès de rupture observés. Par contre, ils constatent l'influence de l'épaisseur de métal sur la répartition et la valeur des contraintes résiduelles en montrant que le paramètre clé reste le choix du coefficient de dilatation thermique.

En 1998, *Kovalev et al.* [119] ont également montré par un calcul par éléments finis que l'épaisseur du métal avait peu d'influence sur les contraintes résiduelles ainsi que la différence entre les coefficients de dilatation thermique entre la céramique et le métal. Ces dernières sont beaucoup plus affectées par les propriétés mécaniques du métal. Les résultats obtenus sur les deux couples étudiés montrent que plus le métal est ductile plus les contraintes sont faibles.

Colin [26] a montré qu'il existe une corrélation entre les contraintes résiduelles calculées par éléments finis, et celles déterminées par diffraction X. Cet accord entre les

deux approches concerne les contraintes axiales en fonction de la distance à l'interface (cf. Figure II.13)

Lasca [115] d'un point de vue quantitatif a pu estimer le niveau de contraintes résiduelles à l'interface en appliquant la méthode d'indentation. Il a répertorié les valeurs obtenues pour différents couples métal/céramique brasés ou thermocompressés (cf. Tableau II.8).

Les mesures par diffraction des rayons X obtenues à l'interface d'une liaison sur le bord d'une pièce brasée Si_3N_4 /acier [113] et les mesures obtenues par indentation Vickers données par *Lasca* [115] sont comparables. Qualitativement, les mesures diffractométriques se caractérisent par $\sigma_{Rx} \approx 0$ le long de l'interface et $\sigma_{Ry} > 0$ perpendiculairement à l'interface ce qui est en accord favorable avec les mesures par indentation Vickers qui donnent $\sigma_{Ry} > 0$. Ces deux méthodes démontrent l'existence de contraintes superficielles près de l'interface. Qualitativement, la comparaison est délicate car les matériaux assemblés et les géométries sont différents mais l'ordre de grandeur des deux méthodes est proche.

Guipont [101] a fait une comparaison entre différentes méthodes de mesures expérimentales et de modélisations sur un assemblage Si_3N_4 /AgCuTi/Acier. Deux méthodes expérimentales ont été mises en œuvre : la mesure par enlèvement de couches et jauge de contraintes ainsi que des mesures par diffractions de rayon X au cours de l'enlèvement de couches. Une modélisation élasto-plastique par éléments finis et un calcul analytique ont été réalisés en parallèle (Figure II.16).

Les différences entre les méthodes ne peuvent être négligées. La méthode des éléments finis donne des valeurs plus fortes en compression alors que le calcul analytique prévoit des contraintes moins intenses. Les mesures expérimentales donnent des valeurs intermédiaires.

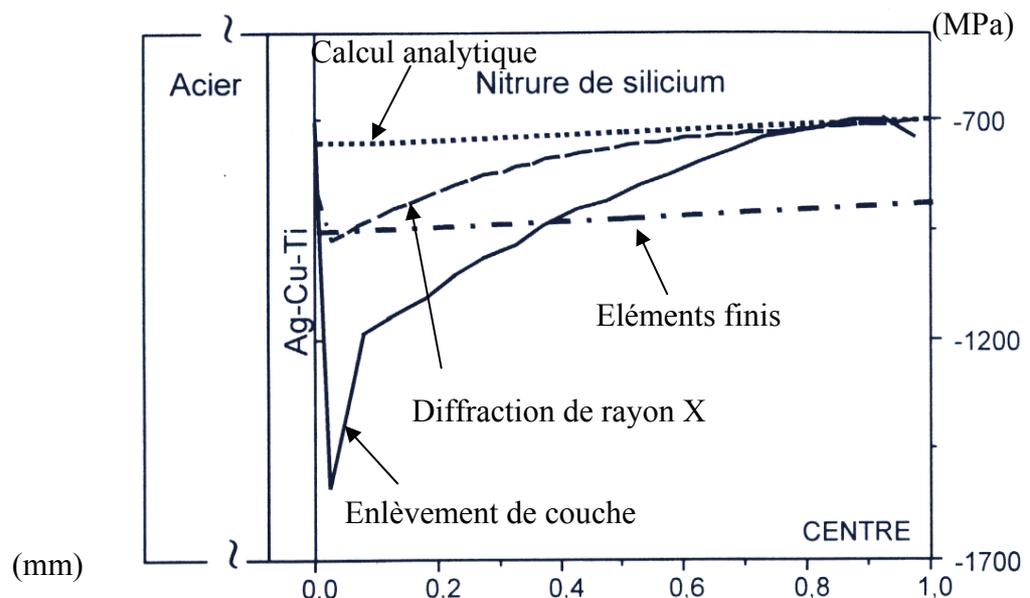


Figure II. 16: Comparaison de quatre méthodes de détermination des contraintes résiduelles dans la céramique (assemblage Si_3N_4 /acier par brasure AgCuTi) [101].

Le même auteur a confronté les résultats de la modélisation par éléments finis avec les résultats expérimentaux de la diffraction X obtenus sur une pièce équivalente. Des profils de contraintes résiduelles selon une rangée de nœuds particuliers sont extraits.

Les figures II.17a et b montrent clairement que les valeurs de contraintes résiduelles calculées à la surface de la céramique sont plus élevées (i.e. plus en compression) par rapport aux mesures par diffraction X. L'écart entre les deux méthodes est peu important de l'ordre de 150 MPa mais non négligeable. Si l'on examine les résultats de la simulation, la zone la plus critique est située à environ 1 mm du bord, endroit où le maximum de tension est obtenu. Cette dernière remarque est à prendre avec précaution compte tenu de la taille du maillage qui mériterait d'être affinée pour augmenter la fiabilité des résultats en bordure.

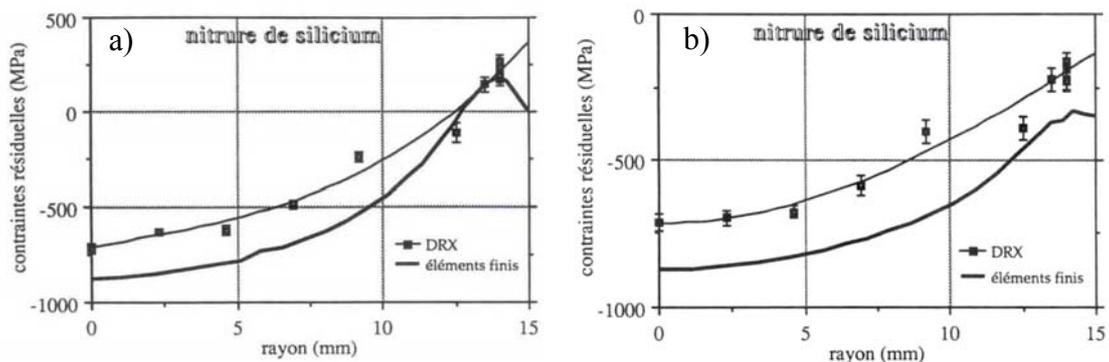


Figure II.17 : Comparaison des profils de contraintes résiduelles à la surface de la céramique Ni_3Si de l'assemblage $Si_3N_4/Ag-Cu-Ti/XC18$. a) direction radiale, b) direction circonférentielle.

II.8. SOLUTIONS POUR DIMINUER LES CONTRAINTES RÉSIDUELLES DANS LES LIAISONS MÉTAL/CÉRAMIQUE

De nombreuses méthodes ont été développées afin de minimiser les contraintes résiduelles d'un assemblage métal-céramique. Elles font souvent appel à des couches intermédiaires dont le but est d'ajuster les coefficients de dilatation des deux matériaux. Des métaux tels que le cuivre et l'aluminium ont donné de bons résultats. De part sa plasticité et son faible point de fusion, l'aluminium peut donner des liaisons fortes avec les céramiques telles que l'alumine et le nitruure de silicium [104,105].

Un autre métal, le niobium a été étudié [120,121,122]. Il a été utilisé comme couche intermédiaire pour l'élaboration par thermocompression des jonctions alumine/acier. Les effets des contraintes internes à l'interface Al_2O_3/Nb sont minimisés. A l'interface Al_2O_3/Nb , la déformation est nulle, et le niobium subit un écrouissage considérable jusqu'à la jonction niobium-acier.

La réduction des contraintes interfaciales peut être assurée par une autre technique, qui consiste à réaliser une couche intermédiaire de type cermet (composée d'un mélange des deux matériaux à assembler) [122]. La méthode de multicouche métallique composée de métal (a) et métal (b) déposée entre les matériaux à assembler (céramique, métal) peut minimiser les contraintes internes à condition que les coefficients de dilatation thermique remplissent les conditions suivantes [122]:

$$\alpha_{\text{céramique}} \approx \alpha_{\text{métal (a)}} > \alpha_{\text{métal (b)}} \text{ et } \alpha_{\text{métal (b)}} > \alpha_{\text{métal}}$$

Naka et al. [123] lors des essais de traction sur des assemblages impliquant du nitrure de silicium, ont démontré que la résistance de l'assemblage diminuait quand le différentiel de coefficients de dilatation thermique entre le nitrure de silicium et le substrat métallique augmentait. Par conséquent, l'utilisation d'une couche intermédiaire composée d'un matériau ayant un coefficient de dilatation thermique proche de celui de la céramique devrait limiter les contraintes résiduelles dans la céramique, et donc augmenter la tenue de l'assemblage. Par contre, une faible dilatation thermique est souvent associée à une limite d'élasticité importante, alors que plusieurs auteurs ont montré que l'usage de matériaux ductiles pouvait limiter les contraintes résiduelles [124,125].

Zhou et al. [126] dans leur étude des liaisons Ni_3Si /acier ont démontré l'avantage de l'utilisation d'un matériau à forte plastification tel que le cuivre doux, par rapport à un matériau à coefficient de dilatation intermédiaire. La figure II.18 montre l'évolution de la tenue en traction d'un assemblage Ni_3Si /acier en fonction du coefficient de dilatation du matériau de la couche intermédiaire. Le cuivre doux en tant que couche intermédiaire donne un meilleur résultat que le tungstène ou le molybdène qui ont pourtant des coefficients de dilatation beaucoup plus proches de celui du Ni_3Si .

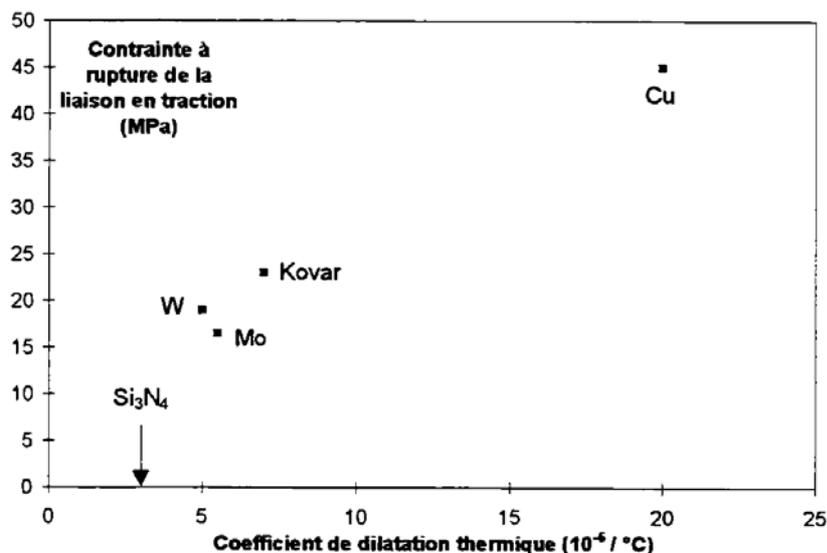


Figure II.18 : Evolution de la tenue en traction d'un assemblage Ni_3Si /acier en fonction du coefficient de dilatation du matériau composant une couche intermédiaire de 1.5 mm de différents métaux [126].

II.9. LE PROBLEME DU POINT SINGULIER

Il y a une singularité de contraintes sur le bord libre en regard de l'interface entre les deux matériaux (Figure II.19). Cette singularité est due aux différences de propriétés élastiques entre les deux substrats. Les contraintes dans une région proche d'une singularité sont délicates à évaluer numériquement par la méthode des éléments finis. En effet dans ces régions les contraintes calculées dépendent fortement de la taille du maillage. Il est par contre possible par éléments finis de caractériser l'importance de la

singularité, en déterminant son ordre et son facteur d'intensité. Le cas général consiste à étudier la singularité sur le bord libre quand l'angle d'assemblage des deux matériaux est quelconque [127].

$$\sigma_{ij}(r, \theta) = \sum_{k=0}^n \frac{K_k}{\left(\frac{r}{l}\right)^{w_k}} f_{ijk}(\theta) \quad \text{II.19}$$

r et θ sont définis sur la figure II.19,
 l est une dimension caractéristique du composant,
 Les fonctions f sont nommées fonctions angulaires,
 Les K_k sont les facteurs d'intensité de contraintes,
 les f_{ijk} sont les ordres de singularité.

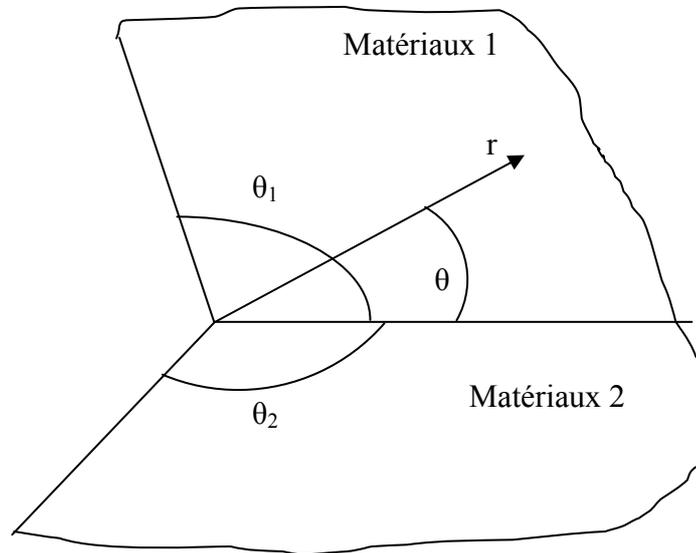


Figure II. 19 : Singularité dans un assemblage quelconque de deux matériaux [127].

Les ordres de singularité et les fonctions angulaires dépendent des propriétés élastiques des matériaux et des angles θ_1 et θ_2 , mais sont indépendants des conditions de chargement (ils ne dépendent pas des coefficients de dilatation) tandis que les facteurs d'intensité dépendent des propriétés thermoélastiques des matériaux. Les ordres de singularité peuvent être déterminés analytiquement. Ils sont solutions d'un système d'équations linéaires [128] qui fournit leurs variations en fonction du rapport des modules de Young des matériaux liés, ou de l'angle d'assemblage des matériaux. Si l'on considère l'intersection de l'interface avec le bord libre ($\theta_1 = \theta_2 = 90^\circ$), le champ local des contraintes au point singulier et le long de l'interface ($\theta = 0$) peut être caractérisé par la somme d'un terme singulier et d'un terme non singulier [128]:

$$(\sigma_{yy} - i\sigma_{xy})_{\theta=0} = \frac{K_I - iK_{II}}{\sqrt{2\pi}} r^{-\omega} + \sigma_0 \quad \text{II.20}$$

Le terme non singulier σ_0 est fonction du différentiel des coefficients thermiques, du changement de température et des propriétés mécaniques des matériaux. L'évolution de

l'ordre de singularité en fonction du rapport des modules de Young (Figure II.19) montre que la singularité ne disparaît que si les modules des matériaux sont identiques [129]. Pour le même rapport de modules, on peut faire varier la géométrie afin de réduire la singularité avec l'aide de la simulation par éléments finis qui permet d'évaluer l'ordre de singularité.

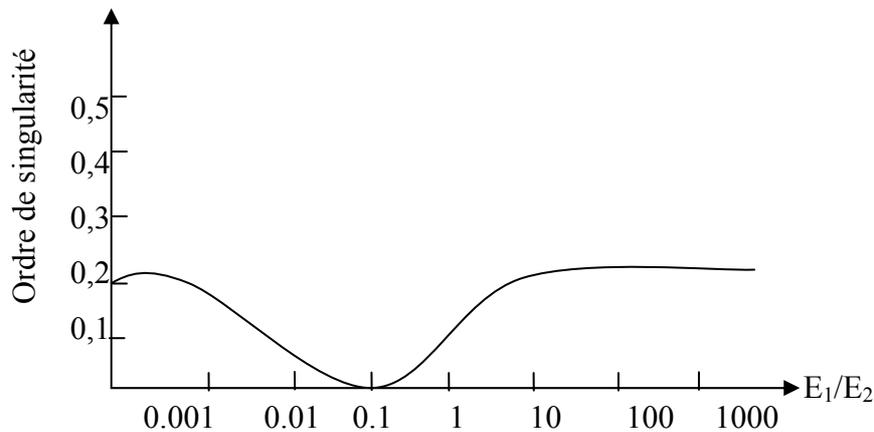


Figure II.20 : Ordre de singularité en fonction du rapport des modules de Young pour un assemblage plan [129].

La présence du point singulier entraîne des contraintes élevées susceptibles de provoquer la rupture de l'assemblage lors du refroidissement après assemblage. Il faut donc développer des techniques visant à limiter ces contraintes résiduelles.

II.10. APPLICATIONS DES LIAISONS MÉTAL/CÉRAMIQUE DANS LE DOMAINE DES HAUTES TEMPÉRATURES

Ce sont surtout les moteurs à turbine qui constituent les applications les plus importantes dans le domaine des hautes températures (au delà de 1000 °C). Ce type de moteur pourrait être utilisé en aéronautique et pour les turbines industrielles.

Les aubes de stator et de rotor et les rotors monoblocs sont en nitrure de silicium. Les anneaux et chambres de combustion sont, en général, réalisés en carbure de silicium. Les stators céramiques ont accumulé plus de 4000 heures de fonctionnement, démontrant un taux de défaillance divisé par dix par rapport au métal [4].

Une autre application potentielle est le véhicule électrique hybride, où les batteries sont rechargées, en dehors des agglomérations, par un alternateur à grande vitesse entraîné par une turbine. Cela garantirait un taux d'émission de gaz polluant très faible et un excellent rendement. La chambre de combustion catalytique et le récupérateur de chaleur sont aussi en céramique. Les turbines sont déjà mises au point aux Etats-Unis et au Japon.

Une autre utilisation des céramiques à haute température concerne les échangeurs de chaleur. Pour cette application, le carbure de silicium, ayant une forte conductivité (125 W/m.K), constitue la solution optimale du point de vue thermique. Les céramiques oxydes telles que l'alumine ou la cordiérite sont, elles aussi, envisagées pour certaines

applications. La société C&C produit des plaques et des tubes en SiC. Il ne reste plus qu'à les assembler pour constituer un échangeur tubes-calandres (Figure II.21) [4].

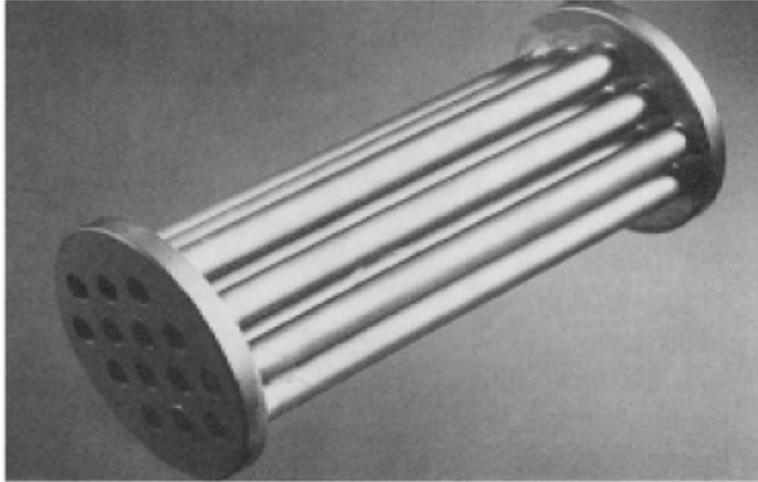


Figure II. 21: Prototype à échelle réduite d'un échangeur de chaleur tube-calandre en SiC.

Ces échangeurs trouvent de nombreuses utilisations potentielles, comme les incinérateurs, l'industrie chimique ou l'aéronautique. Dans l'aéronautique, on essaie d'améliorer le rendement des turbines en augmentant la température d'entrée. Les principaux attraits des échangeurs sont, dans ce cas, constitués par leur rendement élevé, leur faible densité ainsi que leur grande réfractarité. Le nitrure de silicium pouvant être utilisé à l'air jusqu'à 1200 °C et possédant une résistance mécanique supérieure à celle du SiC ou de l'alumine, fait l'objet de nombreuses recherches. La céramique permet de réduire le poids par sa faible densité mais aussi parce qu'elle ne nécessite pas de refroidissement.

On peut citer aussi d'autres applications des liaisons métal/céramique dans le domaine de la physique nucléaire et des plasmas performants de longue durée. La filière d'étude la plus développée à ce jour est celle des tokamaks (figure II.22) (cf. Annexe II).

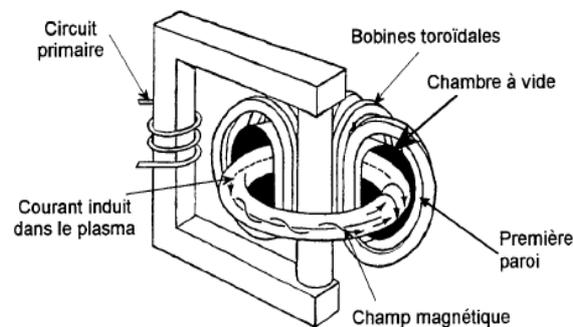


Figure II. 22 : Principe de tokamaks.