

Caractérisation micro/macromécanique de l'élasticité des couches minces par modélisation multiéchelle, diffraction des rayons X et technique d'excitation impulsionnelle

M. F. SLIM^{a,*}, A. ALHUSSEIN^b, E. ZGHEIB^b, M. FRANCOIS^a

^a ICD-LASMIS, Université de Technologie de Troyes, UMR 6281, CNRS, 12 rue Marie Curie, CS 42060, 10004 Troyes, France.

^b ICD-LASMIS, Université de Technologie de Troyes, UMR 6281, CNRS, Antenne de Nogent, Pôle Technologique Sud Champagne, 26 rue Lavoisier, 52800 Nogent, France.

* Correspondance: M.F. Slim, mohamed_fares.slim@utt.fr; Tel.: +33-325-759-732

Résumé :

L'objectif de ce travail est de proposer une méthodologie permettant de déterminer les constantes d'élasticité monocristallines d'une phase incluse dans un film mince multiphasé en prenant en compte sa microstructure (multiphasage, porosité, texture et morphologie). La méthode présentée est basée sur l'utilisation d'un test macro-mécanique, la technique d'excitation impulsionnelle, un test micro-mécanique, la diffraction des rayons X sous chargement imposé, et la modélisation multiéchelle à l'aide du modèle autocohérent de Kröner-Eshelby. La méthode a été appliquée à une couche mince de tungstène biphasée déposée par pulvérisation cathodique magnétron et les constantes d'élasticité monocristallines de la phase W_β métastable ont été déterminées.

Mots clefs : modèles micromécaniques, constantes d'élasticité monocristallines, diffraction des rayons X, dépôt, PVD, technique d'excitation impulsionnelle, texture, multiphasage, morphologie, tungstène.

1 Introduction

La prédiction du comportement élastique des composants revêtus nécessite une parfaite connaissance des constantes d'élasticité du revêtement qui dépendent de ses propriétés microstructurales. Une couche mince est généralement multiphasée, texturée, poreuse et présente des grains sous forme de colonnes. De ce fait, seulement la connaissance de ses constantes d'élasticité macroscopiques n'est pas suffisante pour prédire son comportement élastique. On peut citer comme exemple le problème de détermination des contraintes résiduelles qui nécessite la connaissance des constantes d'élasticité monocristalline des différentes phases.

En utilisant la diffraction des rayons X (DRX), les constantes d'élasticité monocristallines d'un polycristal peuvent être déterminées à partir de ses constantes d'élasticité macroscopiques et ses constantes d'élasticité radiocristallographiques [1-5]. Faurie et al. [6, 7] ont déterminé les constantes

d'élasticité monocristallines de deux dépôts d'or monophasés, l'un non texturé et l'autre avec une texture de fibre. Cependant, à notre connaissance aucune étude n'a été faite sur des dépôts multiphasés en prenant en compte la texture, la morphologie des grains et la porosité.

Le but de ce travail est de développer une méthodologie permettant de déterminer les constantes d'élasticité monocristalline d'une phase incluse dans un film multiphasé en prenant en compte ses propriétés microstructurales (multiphasage, porosité, texture cristallographique et texture morphologique). Afin de déterminer les constantes d'élasticité monocristalline, une complémentarité entre outils expérimentaux et modélisations a été exploitée. La méthodologie est basée sur l'utilisation d'un essai macro-mécanique, la technique d'excitation impulsionnelle (TEI), qui permet de mesurer une partie du tenseur de rigidité macroscopique de la couche déposée et un essai micro-mécanique, la diffraction des rayons X sous chargement imposé, qui permet de mesurer la déformation du réseau cristallin de la phase étudiée. Enfin, les données expérimentales macroscopiques et microscopiques seront ajustées à l'aide du modèle autocohérent de Kröner-Eshelby (KE) afin d'extraire les constantes d'élasticité monocristallines. Une présentation schématique de la méthode est donnée par la Figure 1. La méthodologie développée a été appliquée sur un film de tungstène biphasé ($W_\alpha + W_\beta$) déposé par pulvérisation cathodique magnétron pour déterminer les constantes d'élasticité monocristallines de la phase W_β .

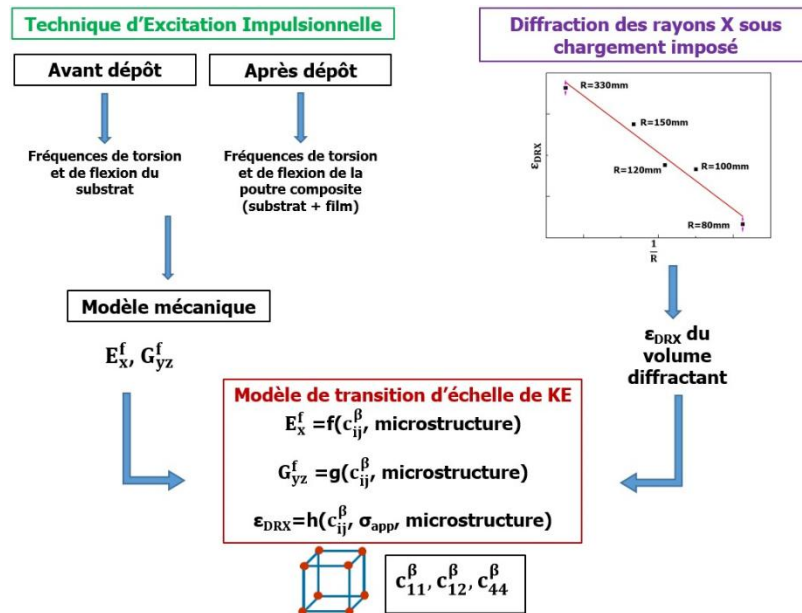


Figure 1 : Schéma représentatif de la méthodologie.

2 Bases théoriques : modèle de Kröner-Eshelby

Le modèle autocohérent de Kröner-Eshelby (KE) [8, 9] permet de relier l'état mécanique macroscopique, noté σ et ϵ , à l'état mécanique microscopique, noté σ_Ω^i et ϵ_Ω^i , à l'aide d'un tenseur de polarisation satisfaisant à la fois la cohérence des déformations et des contraintes.

$$\epsilon_\Omega^i = (\mathbf{I} + \mathbf{u}_\Omega^i) : \epsilon = \mathbf{A}_\Omega^i : \epsilon \quad 1$$

$$\sigma_\Omega^i = (\mathbf{I} + \mathbf{t}_\Omega^i) : \sigma = \mathbf{B}_\Omega^i : \sigma \quad 2$$

Avec \mathbf{t}_Ω^i et \mathbf{u}_Ω^i , des tenseurs d'ordre 4 appelés tenseur de polarisation. L'indice Ω représente l'orientation de chaque cristallite dans le repère de l'échantillon et l'exposant i correspond à la phase étudiée. \mathbf{A}_Ω^i et \mathbf{B}_Ω^i sont des tenseurs d'ordre 4, appelés respectivement tenseur de localisation des déformations et tenseur de concentration des contraintes. \mathbf{I} est le tenseur identité d'ordre 4.

En supposant que les cristallites peuvent être représentées par des ellipsoïdes, le tenseur de localisation des déformations \mathbf{A}_Ω^i peut être exprimé à l'aide de l'équation 3 :

$$\mathbf{A}_\Omega^i = [\mathbf{P}(\mathbf{C}) : (\mathbf{c}_\Omega^i - \mathbf{C}) + \mathbf{I}]^{-1} \quad 3$$

Avec \mathbf{C} le tenseur de rigidité macroscopique et $\mathbf{P}(\mathbf{C})$ un tenseur d'ordre 4, appelé tenseur de Morris [10] et qui dépend de la forme de l'inclusion et de la rigidité du polycristal (équation 4) :

$$P_{ijkl} = \frac{1}{4\pi} \int_0^\pi \sin \theta \, d\theta \int_0^{2\pi} \gamma_{ijkl} \, d\phi \quad 4$$

Avec :

$$\gamma_{ijkl} = K_{ij}^{-1}(\xi) \xi_k \xi_l \quad 5$$

$$K_{ip}(\xi) = \mathbf{C}_{ijpl} \xi_j \xi_l \quad 6$$

$$\xi_1 = \frac{\sin \theta \cos \phi}{a_1} \quad \xi_2 = \frac{\sin \theta \sin \phi}{a_2} \quad \xi_3 = \frac{\cos \theta}{a_3} \quad 7$$

$0 < \theta < \pi$ et $0 < \phi < 2\pi$ sont les angles qui définissent la direction en coordonnées sphériques du vecteur ξ par rapport aux axes de l'ellipsoïde $2a_1$, $2a_2$ et $2a_3$ [11]. Les ratios de l'équation 7 permettent de décrire la forme de l'inclusion [11].

Dans le cas d'un polycristal constitué de deux phases et dans le cadre du modèle de KE, le tenseur de rigidité macroscopique et l'état de contrainte macroscopique peuvent être exprimés à l'aide des équations 8 et 9 :

$$\mathbf{C} = \left[V_\alpha \langle \mathbf{c}_\Omega^\alpha : [\mathbf{P} : (\mathbf{c}_\Omega^\alpha - \mathbf{C}) + \mathbf{I}]^{-1} \rangle_{\Omega \in \alpha} + V_\beta \langle \mathbf{c}_\Omega^\beta : [\mathbf{P} : (\mathbf{c}_\Omega^\beta - \mathbf{C}) + \mathbf{I}]^{-1} \rangle_{\Omega \in \beta} \right] \quad 8$$

$$\boldsymbol{\sigma} = \left[V_\alpha \langle \mathbf{c}_\Omega^\alpha : [\mathbf{P} : (\mathbf{c}_\Omega^\alpha - \mathbf{C}) + \mathbf{I}]^{-1} \rangle_{\Omega \in \alpha} + V_\beta \langle \mathbf{c}_\Omega^\beta : [\mathbf{P} : (\mathbf{c}_\Omega^\beta - \mathbf{C}) + \mathbf{I}]^{-1} \rangle_{\Omega \in \beta} \right] : \boldsymbol{\varepsilon} \quad 9$$

A l'aide de la diffraction des rayons X, la déformation moyenne d'un groupe de cristallite, appelé volume diffractant (VD), est déterminée à l'aide du décalage du pic de diffraction par rapport à sa position de référence. Elle est exprimée à l'aide du modèle de KE par l'équation 10 :

$$\varepsilon_{\varphi\Psi}^{\{hkl\}_i} = \vec{n} \cdot \left[\langle [\mathbf{P} : (\mathbf{c}_\Omega^i - \mathbf{C}) + \mathbf{I}]^{-1} \rangle_{\Omega \in \text{VD}} : \mathbf{C}^{-1} : \boldsymbol{\sigma} \right] \cdot \vec{n} \quad 10$$

Où $\theta_0^{\{hkl\}_i}$ et $\theta_{\varphi\Psi}^{\{hkl\}_i}$ représentent respectivement la position du pic de diffraction d'un matériau libre de contrainte (matériau de référence) et la position du pic de diffraction d'un matériau contraint. h, k et l sont les indices de Miller. φ et Ψ sont respectivement les angles d'azimut et d'inclinaison définissant la direction de la mesure \vec{n} (équation 11, Figure 2).

$$\vec{n} = \begin{pmatrix} \cos \varphi \sin \Psi \\ \sin \varphi \sin \Psi \\ \cos \Psi \end{pmatrix} \quad 11$$

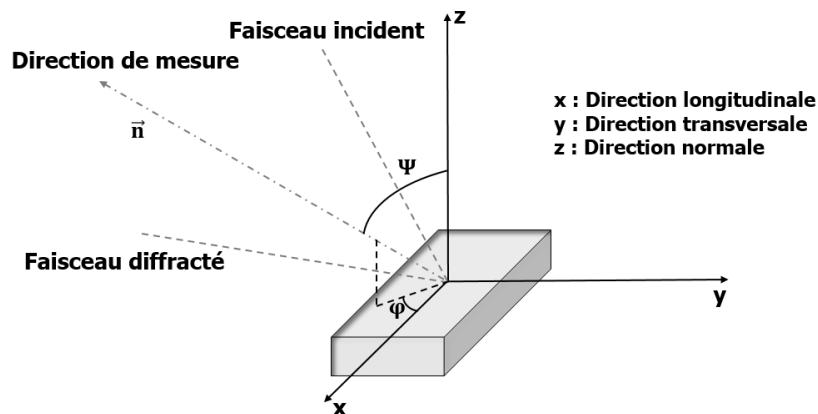


Figure 2 : Définition de la direction de mesure \vec{n} par rapport au repère de l'échantillon (x,y,z).

3 Détails expérimentaux

3.1 Elaboration

Un réacteur Plassys-MP450 a été utilisé pour déposer des couches minces de tungstène à température ambiante par pulvérisation cathodique magnétron sur des substrats en verre, en acier inoxydable (316L) et en silicium. Une cible de tungstène de forme rectangulaire (200 * 100 * 6 mm³) ayant une pureté de l'ordre de 99.95% a été utilisée. Les substrats de verre, ont été utilisés pour déterminer le module d'Young et le module de cisaillement des couches minces par TEI. Les substrats d'acier ont été utilisés pour les essais de DRX sous chargement imposé. Les substrats de silicium ont été utilisés pour l'imagerie par microscope électronique à balayage (MEB). Les substrats ont été nettoyés à l'éthanol et à l'acétone puis fixés sur un porte-substrat animé d'une rotation (3tr/min) afin de garantir l'homogénéité du dépôt. La distance cible-substrat a été fixée à 8 cm. Un vide poussé de l'ordre de 10⁻⁴ Pa a tout d'abord été créé à l'intérieur de l'enceinte grâce à un système de pompage. Avant la phase de dépôt, la cible de tungstène a été décapée pour éliminer les impuretés et la contamination de surface. Les substrats ont été polarisés par un RF (radio fréquence, 13,56 MHz, une puissance appliquée de 200 W) et nettoyés par des ions d'argon pendant 10 min (débit d'argon de

25 sccm). Le dépôt a été réalisé, sans RF, sous basse pression de 0,3 Pa avec un débit d'argon de 20 sccm et une décharge de 1A, appliquée à la cible de tungstène à l'aide d'un générateur de courant continu pulsé. Le dépôt a été réalisé pendant 4 heures sur l'une des deux faces des substrats et nous avons obtenu une couche de tungstène d'une épaisseur $h_f = 2.1 \mu\text{m}$.

3.2 Caractérisations

Les constantes d'élasticité macroscopiques, E_x et G_{yz} , ont été mesurées par TEI en suivant la même procédure décrite dans les précédents travaux [12-14].

La morphologie de la couche de tungstène déposée a été observée à l'aide d'un microscope électronique à balayage Hitachi S3500 SEM-FEG.

L'analyse de la structure cristalline et de la texture de la couche de tungstène déposée a été réalisée à l'aide d'un diffractomètre à rayons X, Bruker D8 Advance, équipé d'une anticathode de cuivre délivrant un rayonnement de longueur d'onde $\lambda = 0.15418 \text{ nm}$.

L'ensemble film-substrat a été mis en flexion à l'aide d'un gabarit de chargement fabriqué par impression 3D. Cinq gabarits de chargement avec cinq rayons de courbure différents ont été utilisés (330mm, 150mm, 120mm, 100mm et 80mm). L'état mécanique macroscopique du film suite à la mise en flexion est donné par l'équation 12. Les mesures de diffraction sous chargement de flexion in-situ ont été faites sur les pôles d'intensité des deux plans cristallographiques $\{440\}_\beta$ et $\{520\}_\beta$.

$$\varepsilon = \begin{pmatrix} \frac{h}{2R} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{-v}{E}(\sigma_{xx} + \sigma_{yy}) \end{pmatrix} \quad \sigma = \begin{pmatrix} \frac{hE}{2R(1-v^2)} & 0 & 0 \\ 0 & v\sigma_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad 12$$

4 Résultats

La couche déposée présente une morphologie colonnaire. La forme colonnaire des grains a été prise en compte dans la modélisation mécanique à l'aide des ratios (tenseur de Morris) présentés par l'équation 7. Les grains ont été considérés comme des inclusions de forme ellipsoïdale avec un rayon six fois plus grand dans la direction perpendiculaire à la surface du film que dans les deux autres directions.

L'étude par diffraction des rayons X montre la présence de deux phases : une phase W_α stable de structure cubique centrée et une phase métastable W_β de structure cubique A15. La couche déposée est constituée de 74.4% de phase W_α et 25.6% de phase W_β . La phase W_α admet une texture $\{110\}\langle 1\bar{1}0\rangle$ tandis que la phase W_β admet une texture $\{100\}\langle 0\bar{1}0\rangle$. La dispersion de la texture autour des composantes idéales a été négligée. La méthode des groupes de texture a été utilisée dans la modélisation mécanique. La description de la texture dans la modélisation mécanique a été faite à l'aide des angles d'Euler selon la convention de Bunge [15].

Afin de calculer les constantes d'élasticité monocristallines de la phase W_β , les expressions du tenseur de rigidité macroscopique et des déformations dérivées à l'aide du modèle de KE ont été ajustées sur les résultats expérimentaux en minimisant une fonction coût définie par la différence entre les quantités expérimentales et les quantités calculées analytiquement. Les constantes d'élasticité monocristallines de la phase W_β calculées sont $c_{11}=350 \text{ GPa}$, $c_{12}=108.8 \text{ GPa}$ et $c_{44}= 90 \text{ GPa}$.

5 Conclusion

Une méthodologie permettant de déterminer les constantes d'élasticité monocristallines d'une phase incluse dans un film mince multiphasé, texturé, présentant des grains sous forme d'aiguilles et poreux a été développée. Elle est basée sur l'utilisation de deux techniques de caractérisation à deux échelles différentes, macroscopique et microscopique, et la modélisation multiéchelle à l'aide du modèle autocohérent de Kröner-Eshelby. La méthode a été appliquée à un film de tungstène biphasé afin de déterminer les constantes d'élasticité monocristallines de la phase métastable W_{β} non connues dans la littérature.

Références

- [1] V. Hauk, H. Kockelmann, Ermittlung der einkristallkoeffizienten aus den mechanischen und röntgenographischen elastizitätskonstanten des vielkristalls, *Z. Metallkd.* 70 (1979) 500–502.
- [2] M. Hayakawa, S. Imai, M. Oka, Determination of single-crystal elastic constants from a cubic polycrystalline aggregate, *Journal of applied crystallography*, 18 (1985) 513-518.
- [3] T. Gnäupel-Herold, P. C. Brand, H. J. Prask, Calculation of single-crystal elastic constants for cubic crystal symmetry from powder diffraction data, *Journal of Applied Crystallography*, 31 (1998) 929-935.
- [4] S. Matthies, H. G. Priesmeyer, M. R. Daymond, On the diffractive determination of single-crystal elastic constants using polycrystalline samples, *Journal of Applied Crystallography*, 34 (2001) 585-601.
- [5] S. Fréour, D. Gloaguen, M. François, A. Perronnet, R. Guillén, Determination of single-crystal elasticity constants in a cubic phase within a multiphase alloy: X-ray diffraction measurements and inverse-scale transition modelling, *Journal of Applied Crystallography*, 38 (2005) 30-37.
- [6] D. Faurie, P. O. Renault, E. Le Bouhris, Ph. Goudeau, Study of texture effect on elastic properties of Au thin films by X-ray diffraction and in situ tensile testing, *Acta Materialia*, 54 (2006) 4503-4513.
- [7] D. Faurie, P. Djemia, E. Le Bouhris, P. O. Renault, Y. Roussigné, S. M. Chérif, R. Brenner, O. Castelnaud, G. Patriarche, Ph. Goudeau, Elastic anisotropy of polycrystalline Au films : Modeling and respective contributions of X-ray diffraction, nanoindentation and Brillouin light scattering, *Acta Materialia*, 58 (2010) 4998 – 5007.
- [8] V. E. Kröner, Berechnung der elastischen Konstanten des Vielkristalls aus den Konstanten des Einkristalls, *Zeitschrift für Physik*, 151 (1958) 504-518.
- [9] J. D. Eshelby, The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems, *Proceedings of the Royal Society A*, 241 (1957) 376-396.
- [10] P. R. Morris, Elastic constants of polycrystals, *International Journal of Engineering Science*, 8 (1970) 49-61.
- [11] U. F. Kocks, C. N. Tome, H. R. Wenk, *Texture and anisotropy: Preferred orientations in polycrystals and their effect on materials properties*, Cambridge University Press (1998).
- [12] M. F. Slim, A. Alhussein, A. Billard, F. Sanchette, M. François, On the determination of Young's modulus of thin film with Impulse Excitation Technique, *Journal of Materials Research*, 32 (2017) 497-511.
- [13] M. F. Slim, A. Alhussein, F. Sanchette, B. Guelorget, M. François, An enhanced formulation to determine Young's and shear modulus of thin films by means of Impulse Excitation Technique, *Thin Solid Films*, 631 (2017) 172-179.
- [14] M. F. Slim, A. Alhussein, M. François, Elasticity constants of a two-phase tungsten thin film, *Proceedings ICEM 2018, MDPI*, 2, 423, doi:10.3390/ICEM 18-05272 (2018).
- [15] H. J. Bunge, *Texture analysis in materials science*, Butterworths, London (1982).