HAL
open science

Etude des contraintes résiduelles dans les multicouches Au/Ni

L. Barallier, S. Labat, O. Thomas, Claude Alfonso, A. Charaï, B. Gilles, A. Marty

To cite this version:

L. Barallier, S. Labat, O. Thomas, Claude Alfonso, A. Charaï, et al.. Etude des contraintes résiduelles dans les multicouches Au/Ni. Journal de Physique IV Proceedings, 1996, 06 (C4), pp.C4-231-C4-237. 10.1051/jp4:1996421 . jpa-00254304

HAL Id: jpa-00254304

https://hal.science/jpa-00254304

Submitted on 4 Feb 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

JOURNAL DE PHYSIQUE IV
Colloque C4, supplément au Journal de Physique III, Volume 6, juillet 1996

Etude des contraintes résiduelles dans les multicouches Au/Ni

L. Barallier, S. Labat*, O. Thomas*, C. Alfonso**, A. Charaï**, B. Gilles*** et A. Marty***

MécaSurf, C.E.R. E.N.S.A.M., 13617 Aix-en-Provence cedex 1, France
** MATOP, URA 1530 du CNRS, Faculté de Saint Jérôme, 13397 Marseille cedex 20, France*
*** EDIFIS, URA 443 du CNRS, Faculté de Saint Jérôme, 13397 Marseille cedex 20, France*
**** CEA/DRFMC/SP2M, Centre d'Etudes Nucléaires, 38054 Grenoble cedex 9, France*

Résumé : Les matériaux multicouches font aujourd'hui l'objet d'études très complètes de caractérisation physico-chimique pour améliorer leur performance. L'étude des contraintes résiduelles générées lors de leur élaboration constitue un enjeu important dans la compréhension de leurs propriétés mais aussi dans celle des interfaces métal/métal. Cette étude a été entreprise sur une multicouche or/nickel obtenue par dépôt assisté par jet moléculaire. Les contraintes résiduelles ont été déterminées par diffraction des rayons X en utilisant une analyse triaxiale des contraintes par la méthode dite des « $\sin^2\psi$ ».

Abstract : Multilayer materials appears today very studied in order to increase these physico-chemical characteristics. The determination of residual stresses that occur during the elaboration of multilayers is very important in the knowledge of these properties but also the metal/metal interfaces one. This study was made on Au/Ni multilayers obtained by molecular beam epitaxy. Residual stress were determined by X-ray diffraction using triaxial analysis of stresses and « $\sin^2\psi$ » method.

1. INTRODUCTION

L'élaboration de multicouches métalliques génère des déformations résiduelles qui ont une grande influence sur les propriétés physico-chimiques. On peut citer par exemple l'anisotropie magnétique perpendiculaire induite par ces déformations. L'étude de ces déformations résiduelles passe non seulement par la caractérisation de la structure des interfaces (densité de dislocations, rugosité, formation d'alliage,...) mais aussi par l'évaluation de l'état de contrainte résiduelle.

Dans cette étude on a privilégié l'approche mécanique en mettant au point une procédure expérimentale permettant d'analyser l'état mécanique de la multicouche en utilisant la diffractométrie X. La méthode des « $\sin^2\psi$ » [1] généralement utilisée dans le cas de matériaux polycristallins massifs a été choisie et adaptée au cas des multicouches métalliques.

2. CARACTERISATION

Les multicouches étudiées, de type Au/Ni, ont été élaborées à température ambiante par la technique d'épitaxie par jet moléculaire (EJM) sur un substrat de silicium monocristallin orienté (100) et d'épaisseur 100 µm [2]. La période de la multicouche est de 5 nm. Un dépôt de

Article published online by EDP Sciences and available at http://dx.doi.org/10.1051/jp4:1996421

cuivre de 50 nm d'épaisseur fait office de couche tampon entre le silicium et la multicouche. L'épaisseur totale de la multicouche est d'environ 200 nm pour une fraction massique d'or et de nickel à peu près identique.

La microstructure des échantillons a été étudiée par diffraction des rayons X (mode Bragg-Brentano symétrique, mais aussi mesure de figures de pôle en réflexion) et microscope électronique à transmission à haute résolution (METHR). Tous les échantillons possèdent une direction de type <111> perpendiculaire à la surface. Les figures de pôles montrent une relation d'épitaxie entre le cuivre et le silicium du type $(100)_{Cu}$ $<110>_{Cu}$ // $(100)_{Si}$ $<100>_{Si}$. Quatre différentes variantes ont été observées dans les plans {111} de l'or et du nickel : $<110>_{Au,Ni}$ // $<110>_{Cu}$ [3].

L'observation par METHR de coupes de la multicouche montre une rugosité cumulée importante des interfaces [4]. Une rugosité similaire induite par la sous-couche de cuivre sur le silicium a été observée [5] et expliquée par la formation de siliciure de cuivre. Cette rugosité peut être aussi attribuée à un autre phénomène : la relaxation des contraintes durant le processus de dépôt.

3. DETERMINATION DES CONTRAINTES RESIDUELLES

Les contraintes résiduelles générées lors de l'élaboration de la multicouche ont été déterminées en utilisant la diffractométrie X et la méthode des « $\sin^2\psi$ » [6]. Cette méthode est basée sur la mesure des déformations en utilisant les plans interréticulaires comme jauges internes de déformation.

Dans le cas d'échantillons cristallins sans orientation cristalline préférentielle, il est possible de relier la variation Δd_{hkl}, de la distance interréticulaire d_{hkl} à la variation $\Delta\theta_{hkl}$ de la position angulaire θ_{hkl} du pic de diffraction en différenciant la loi de Bragg. En fait il est tout à fait possible de déterminer la déformation $\varepsilon_\perp$ dans la direction du vecteur diffusion coïncidant avec la normale aux plans de diffraction {hkl}. Dans le cas d'un matériau homogène et isotrope, en considérant les notations définies figure 1, l'expression permettant de relier les déformations $\varepsilon_{\phi\psi}$ dans une direction quelconque à l'état triaxial de contrainte peut être écrite sous la forme :

$$\varepsilon_\perp=\Delta d_{hkl}/d_{hkl}=-\cot\theta_{hkl}\Delta\theta_{hkl}\approx\varepsilon_{\phi\psi}=-\cot\theta_0(\theta_{\phi\psi}-\theta_0)=1/2S_{2hkl}[\sigma_\phi\sin^2\psi+\tau_\phi\sin2\psi]-S_{1hkl}(\sigma_{11}+\sigma_{22})$$

$$(1)\quad \sigma_\phi=\sigma_{11}\sin^2\phi+\sigma_{22}\cos^2\phi+\sigma_{12}\sin2\phi$$

$$\tau_\phi=\sigma_{13}\cos\phi+\sigma_{23}\sin\phi$$

où $1/2S_{2hkl}=(1+\nu_{hkl})/E_{hkl}$ et $S_{1hkl}=\nu_{hkl}/E_{hkl}$ sont les constantes d'élasticité radiocristallographiques (CER). Dépendant de la direction <hkl>, le module d'Young E_{hkl} et le coefficient de Poisson ν_{hkl} sont différents des constantes d'élasticité macroscopiques à cause de l'anisotropie élastique des domaines cohérents de diffraction (DCD). Les CER peuvent être déterminées expérimentalement et/ou par le calcul en utilisant un modèle approprié. Dans le cas d'une résolution triaxiale des contraintes la composante σ_{33} est supposée nulle et un calcul itératif est utilisé pour déterminer la valeur correspondante θ_0 du paramètre non contraint [7].

Dans le cas d'un matériau anisotrope l'équation 1 peut être généralisée à :

$$(2)\qquad \varepsilon_{\phi\psi}=F_{ij}\sigma_{ij}\qquad i,j\in\{1,2,3\}$$

Pour une famille de plans de diffraction choisie, les facteurs F_{ij} sont fonction des constantes d'élasticité du monocristal et de la fonction de distribution des orientations (FDO) des cristallites. Le calcul de la FDO passe par la détermination de la texture cristalline de la multicouche (figures de pôles). Par la suite en utilisant une simulation numérique il est possible de créer un pseudo-matériau composé de quelques milliers de cristallites dont l'orientation est donnée par la FDO. Avec les caractéristiques élastiques du monocristal et en utilisant un modèle autocohérent, les constantes d'élasticité du monocristal équivalent au polycristal texturé sont calculées afin d'obtenir les facteurs F_{ij} fonction des plans {hkl} choisis [8].

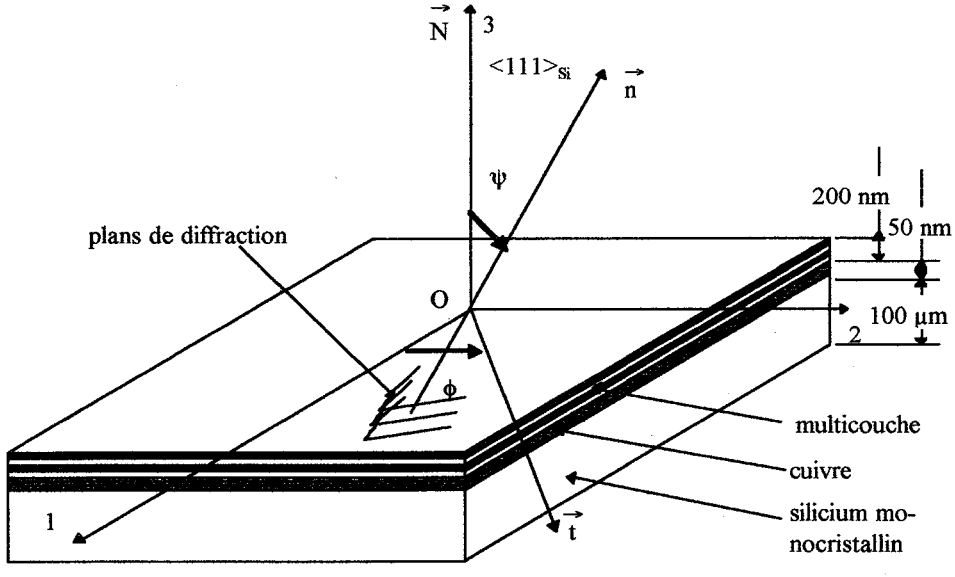

Figure 1 : Schématisation de la multicouche et repère de l'étude.
Schematization of the multilayer and definition of the study axis.

Afin d'appliquer cette méthode à la caractérisation de la multicouche il est nécessaire : i) de déterminer les textures cristallines des couches d'or et de nickel, ii) de créer un pseudo-matériau et de calculer les constantes d'élasticité du monocristal équivalent, iii) de déterminer les composantes F_{ij}, iv) d'acquérir des pics de diffraction pour différentes directions de l'espace afin d'en déduire leur position, v) de calculer le tenseur des contraintes résiduelles dans l'or et le nickel.

4. RESULTATS EXPERIMENTAUX

Les analyses ont été effectuées sur un goniomètre 4 cercles Seifert MZ-VI TS. Les contraintes ont été déterminées dans l'or et le nickel. Les différents paramètres utilisés sont définis dans le tableau 1.

Détermination des contraintes					Calcul de la FDO		
pas 2θ (°2θ)	plan réticu-laire	rayon-)nement	angles ϕ	angles ψ	figure de pôle	rayon-)nement	
0.032	Au {111}	Cr-Kα	15,45,75,105 135,165,195	29,5 80	Au {111} {200} {220}	Cr-Kα	
	Ni {111}	Co-Kα	225,255,285 315,345°	29,5 58,5 80	Ni {111} {200} {220}	Co-Kα	

Tableau 1: Paramètres expérimentaux utilisés pour déterminer les contraintes résiduelles par diffractométrie X.
Experimental parameters used to determine residual stresses by X-ray diffraction.

Le calcul des différentes FDO de l'or et du nickel a été effectué en utilisant 3 figures de pôles en réflexion permettant de caractériser la texture cristalline. La figure 2 montre des coupes successives de la FDO de l'or et confirme ainsi les 4 orientations préférentielles des cristallites à 15°, 45°, 75° et 105° par rapport au bord de l'échantillon. Les mêmes conclusions peuvent être faites pour le nickel.

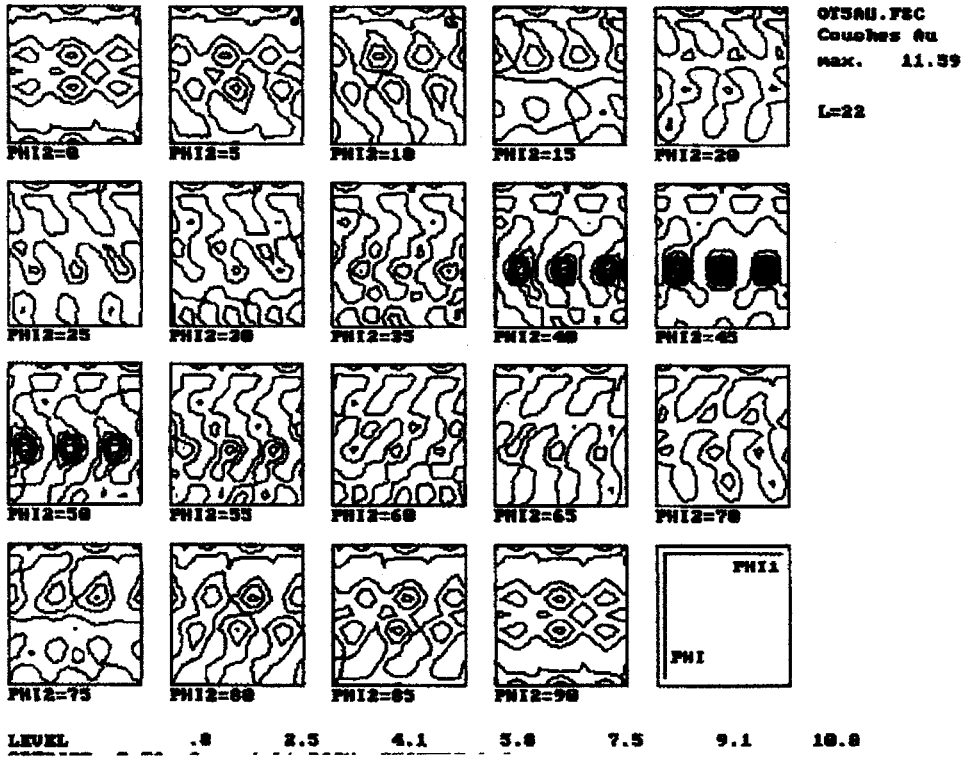

Figure 2 : Coupes de la FDO de l'or.
ODF section of gold.

La détermination des constantes d'élasticité en simulant un pseudo matériau a été faite avec 3000 cristallites. La solution utilisant le modèle autocohérent de Kröner-Eshelby peut être comparée au modèle de Voigt (homogénéité des déformations) [9] et au modèle de Reus (homogénéité des contraintes) [10]. Les tenseurs d'élasticité de l'or et du nickel sont donnés tableau 2. Dans les deux cas, on note une certaine symétrie quadratique à isotropie transverse du tenseur d'élasticité. Cela signifie que dans le plan du dépôt le module d'élasticité est homogène.

TPa	Modèle de Reuss						Modèle de Voigt						Modèle de Kröner-Eshelby					
Ni	0,322	0,122	0,097	0	0	0	0,305	0,129	0,097	0	0	0	0,314	0,130	0,097	0	0	0
	0,122	0,322	0,097	0	0	0	0,129	0,305	0,097	0	0	0	0,130	0,314	0,097	0	0	0
	0,097	0,097	0,346	0	0	0	0,097	0,097	0,346	0	0	0	0,097	0,097	0,346	0	0	0
	0	0	0	0,075	0	0	0	0	0	0,062	0	0	0	0	0	0,068	0	0
	0	0	0	0	0,075	0	0	0	0	0	0,062	0	0	0	0	0	0,068	0
	0	0	0	0	0	0,1	0	0	0	0	0	0,083	0	0	0	0	0	0,092
Au	0,213	0,148	0,139	0	0	0	0,206	0,155	0,139	0	0	0	0,211	0,151	0,139	0	0	0
	0,148	0,213	0,139	0	0	0	0,155	0,206	0,139	0	0	0	0,151	0,211	0,139	0	0	0
	0,139	0,139	0,223	0	0	0	0,139	0,139	0,223	0	0	0	0,139	0,139	0,223	0	0	0
	0	0	0	0,024	0	0	0	0	0	0,019	0	0	0	0	0	0,021	0	0
	0	0	0	0	0,024	0	0	0	0	0	0,019	0	0	0	0	0	0,021	0
	0	0	0	0	0	0,033	0	0	0	0	0	0,026	0	0	0	0	0	0,03

Tableau 2: Tenseurs d'élasticité pour l'or et le nickel calculés avec les différents modèles d'homogénéisation.
Elastic tensors of Ni and Au layers calculated with different homogeneisation models.

Le résultat du calcul du tenseur des contraintes résiduelles montre un état biaxial dans les deux cas comme le montre le tableau 3. La moyenne des contraintes est de l'ordre de -1250±150 MPa dans l'or et 1430±400 MPa dans le nickel. Dans le cas du nickel, les incertitudes sur les valeurs des contraintes sont certainement dûes aux difficultés dans l'obtention des pics de diffraction et au faible angle de diffraction qui est de l'ordre de 105° 2θ.

	Au			Ni		
σ	-1306±149	-41±77	28±61	1413±459	-74±191	-200±211
MPa	-41±77	-1238±143	-28±61	-74±191	1443±387	-82±170
$a_0^{multicouche}$	28±61	-28±61	0±346	-200±211	-82±170	0±781
(Å)	4,0786	($a_0^{monocristal}$= 4,0786)		3,5775	($a_0^{monocristal}$= 3,5234)	

Tableau 3 : Tenseurs des contraintes résiduelles dans la multicouche déterminés par diffraction des rayons X.
Residual stress tensors in the multilayer determined by X-ray diffractometry.

La moyenne des contraintes dans la multicouche est de l'ordre de 180 MPa, elle correspond à la différence des contraintes dans l'or et le nickel en tenant compte de leur fraction massique identique. Ce résultat est en accord avec celui issu d'une méthode de déflexion utilisant la relation de Stoney [11]. Le signe de ces contraintes est en accord avec l'écart respectif du paramètre de maille indiquant une cohérence des résultats. En effet une cohérence totale entre couches signifierait un niveau de contrainte de 17,8 GPa ! Cette estimation est basée sur un écart de

paramètre cristallin de 14 % entre l'or et le nickel avec respectivement un module d'élasticité des plans {111} pour l'or et le nickel de 189 et 389 GPa.
Pour l'or, le paramètre de maille a_0 du matériau non contraint est en accord avec celui de l'or polycristallin. Ce résultat implique que l'hypothèse $\sigma_{33} = 0$ est réaliste et que la variation, de l'ordre de 1,5 %, du paramètres de maille du nickel de la multicouche par rapport au nickel polycristallin correspondrait en fait a un effet de solution solide de l'or dans le nickel ou une modification de la structure électronique. Une variation similaire a été aussi mise en évidence dans les couches argent/nickel [12].

5. CONCLUSION

Dans le cadre de cette étude, nous avons déterminé les contraintes résiduelles dans une multicouche or/nickel preparées par EJM. La symètrie matérielle analysée par diffraction des rayons X est identique dans les couches d'or et les couches de nickel. Elle correspond à une symètrie isotrope transverse. L'utilisation de la loi des « $\sin^2\psi$ » dans le cas triaxial pour un matériau anisotrope a permis de déterminer les contraintes dans le nickel et dans l'or et par la suite les contraintes moyennes dans la multicouche. Les contraintes sont en compression dans l'or (-1,25 GPa) et en traction dans le nickel (1,43 GPa). Il est aussi possible d'en déduire que les couches de nickel sont en fait une solution solide de nickel et d'or.

Références

[1] *HTM*, Sonderheft (1+2) Spannungsermittlungen mit Röntgenstrahlen (1976).

[2] Labat S., Pichaud B., Thomas O., Alfonso C., Charaï A., Barrallier L., Gilles B., Marty A.. « Microstructure and Residual Stresses in {111} Au/Ni Multilayers. EMRS », Strasbourg, may 1995.

[3] Alfonso C., Barrallier L., Barreau G., Burles N., Charaï A., Gilles B., Labat S., Marty A., Pichaud B., Thomas O.. « Etude de la microstructure entre contrainte résiduelle et microstructure dans des multicouches Au/Ni ». GFCC, Grenoble, mars 1995.

[4] Alfonso C., Charai A., Labat S., Pichaud B., Thomas O., Barrallier L., Gilles B., Marty A.. « Strain and Microstructure Relation in {111} Au/Ni Multilayers ». SFME.

[5] Parkin S., Li Z., Smith D., *Appl Phys, Lett.* **58** (1991) pp. 2710.

[6] Dölle H., Hauk V.. *Z. fur Metallkde*, **70** (1979) pp.682.

[7] Castex L., Sprauel J.M.. *Revue Française de Mécanique* **1987-2** (1987) pp.103-110.

[8] François M.. « Détermination de contraintes résiduelles sur des fils d'acier eutectoïde de faible diamètre par diffraction des rayons X ». Thèse de docteur de l'ENSAM Paris, juin 1991.

[9] Voigt W.. Lehrbuch der Kristallphysik. (Leipzig, U.Berlin, Teubner, 1910).

[10] Reuss A.. Z. Angew. math. Mech. **9** (1929) pp.49-81.

[11] Stoney G, Proc. Roy. Soc. London, Ser.A **82** (1909) 172.

[12] Jonnard P., Vergand F., Bonnelle C. and Badawi K., Accepté dans *J. Appl. Phys.* (1995).