Détermination des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X dans une couche mince de 1 000 Å de tungstène

K. Badawi, A. Declémy, A. Naudon, P. Goudeau

► To cite this version:

K. Badawi, A. Declémy, A. Naudon, P. Goudeau. Détermination des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X dans une couche mince de 1 000 Å de tungstène. *Journal de Physique III*, 1992, 2 (9), pp.1741-1748. 10.1051/jp3:1992209 . jpa-00248840

HAL Id: jpa-00248840

<https://hal.science/jpa-00248840>

Submitted on 1 Jan 1992

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.

Classification
Physics Abstracts
68.60

Détermination des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X dans une couche mince de 1 000 Å de tungstène

K. F. Badawi, A. Declémy, A. Naudon et Ph. Goudeau

Laboratoire de Métallurgie Physique (URA 131), Faculté des Sciences, 86022 Poitiers, France

(Reçu le 16 janvier 1992, accepté le 22 mai 1992)

Résumé. — Dans cette étude, nous avons déterminé le tenseur complet des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X, selon la méthode des $\sin^2 \psi$, sur une couche de 1 000 Å de tungstène déposé sur un monocristal de silicium. Les contraintes sont de traction et d'une grande intensité (1,5 GPa). Elles sont presque isotropes dans le plan de la couche. Les cisaillements sont faibles, mais non négligeables. Après bombardement ionique avec un faisceau de Xe^{++} de 320 keV, les contraintes sont devenues de compression de l'ordre de $-1,3$ GPa. Ces résultats démontrent la faisabilité de la détermination des contraintes par la méthode des $\sin^2 \psi$ dans des couches aussi minces que 1 000 Å et ouvrent des perspectives intéressantes de recherche.

Abstract. — In this study, we have determined the complete residual stress tensor by X-rays diffraction, using the $\sin^2 \psi$ method, in a 1 000 Å tungsten thin film deposited on a silicon monocrystal. Stresses are tension wise of big magnitude (1.5 GPa). They are almost isotropic in the film plane. Shear stresses are low but not negligible. After a bombardment by a 320 keV Xe^{++} ion beam, the stresses became compressive (about -1.3 GPa). These results demonstrate the feasibility of stress determination by the $\sin^2 \psi$ method in films as thin as 1 000 Å and open interesting areas for futur research.

1. Introduction.

L'utilisation des couches minces connaît un développement important à cause de leurs propriétés électriques, optiques, mécaniques, tribologiques, et/ou leur résistance à la corrosion.

Les contraintes résiduelles influent directement sur la plupart de ces propriétés. Leur connaissance revêt donc une importance particulière. Ce sujet a été étudié principalement par les différentes variantes de la méthode de la flèche [1-7 par exemple]. Celle-ci est basée sur une hypothèse restrictive sur le tenseur des contraintes : celui-ci doit être biaxial et isotrope. En plus, elle exige le dépôt de la couche sur une surface de géométrie parfaitement contrôlée. L'état des contraintes ainsi déterminé n'est pas représentatif de celui qui existera dans la couche mince quand elle sera déposée sur son substrat réel.

Une autre méthode utilisée est celle de la diffraction des rayons X. Elle est basée sur la dérivée de la relation de Bragg :

$$\varepsilon_{\phi\psi} = \frac{\Delta d}{d} = -(\theta - \theta_0) \cot \theta_0 \quad (1)$$

où d est la distance interréticulaire de la famille cristallographique diffractante, θ = angle de diffraction de la couche contrainte correspondant à la famille diffractante, θ_0 = angle de diffraction de la couche sans contrainte.

Deux variantes sont utilisées pour exploiter cette relation.

La première (voir par exemple [8-12]) utilise, comme pour la méthode de la flèche, l'hypothèse de la biaxialité des contraintes (tenseur réduit à σ_1 et σ_2 , voir Fig. 1). On détermine θ et θ_0 pour une famille diffractante parallèle à la surface et l'on obtient ε_3 par la relation (1). La relation entre les déformations et les contraintes permet alors d'écrire :

$$\varepsilon_3 = \alpha \sigma_1 + \beta \sigma_2 \quad (2)$$

où α et β sont des fonctions des constantes élastiques et de la structure de la couche. Cette méthode ne permet pas de déterminer σ_1 et σ_2 sauf dans le cas où $\sigma_1 = \sigma_2$. Cette variante a ainsi deux limitations. La première est due à l'hypothèse sur les contraintes. La deuxième est due à la difficulté d'obtenir une couche de référence sans contrainte ayant la même microstructure que celle avec contrainte pour mesurer θ_0 .

La deuxième variante est de loin la plus intéressante puisqu'il s'agit de déterminer le tenseur complet des contraintes avec le minimum d'hypothèses. Cette méthode est connue sous le nom de la méthode des $\sin^2 \psi$ (voir par exemple Réfs. [13-16]). Elle consiste à mesurer les déformations $\varepsilon_{\phi\psi}$ en fonction des angles d'Euler ϕ et ψ (Fig. 1). L'équation générale qui sous-tend la méthode est donnée par :

$$\varepsilon_{\phi\psi} = \sin^2 \psi \cos^2 \Phi \varepsilon_{11} + \sin^2 \psi \sin^2 \Phi \varepsilon_{22} + \cos^2 \psi \varepsilon_{33} + \sin^2 \psi \sin 2\Phi \varepsilon_{12} + \sin 2\psi \cos \Phi \varepsilon_{13} + \sin 2\psi \sin \Phi \varepsilon_{23} \quad (3)$$

Fig. 1. — Référentiel utilisé.
[Referential system.]

C'est l'équation d'une ellipsoïde. La mesure de $\varepsilon_{\phi\psi}$ pour différents ϕ et ψ donne les ε_{ij} , d'où les σ_{ij} . Mais les $\varepsilon_{\phi\psi}$ ne peuvent être déterminées que si l'on connaît l'angle θ_0 . En effet, en remplaçant $\varepsilon_{\phi\psi}$ par sa valeur tirée de l'équation (1), on trouve :

$$\theta = \frac{-A}{\cot \theta_0} + \theta_0 \quad (4)$$

où A est le deuxième membre de l'égalité (3).

On voit clairement que les coefficients de A ne peuvent être déterminés qu'à une constante près égale à θ_0 .

Pour résoudre ce problème, on émet l'hypothèse (la seule sur les contraintes) que la surface est en équilibre mécanique, c'est-à-dire $\sigma_{33} = 0$. Ceci permet alors de déterminer θ_0 et ensuite le tenseur complet des déformations.

Généralement, on simplifie l'équation (4) en utilisant la méthode proposée par Dölle [13-15], basée sur la remarque qu'en changeant ψ en $-\psi$, les termes en $\sin^2 \psi$ de l'équation (4) ne changent pas de signe, alors que ceux en $\sin 2\psi$ en changent. Ensuite, on forme les quantités

$$A^+ = 1/2(\varepsilon_{\phi\psi}^+ + \varepsilon_{\phi\psi}^-)$$

et

$$A^- = 1/2(\varepsilon_{\phi\psi}^+ - \varepsilon_{\phi\psi}^-)$$

où les signes $+$ et $-$ de l'exposant de ε indiquent le signe du ψ utilisé. On trouve ainsi :

$$A^+ = \sin^2 \psi (\cos^2 \phi \varepsilon_{11} + \sin^2 \phi \varepsilon_{22} - \varepsilon_{33} + \sin^2 \phi \varepsilon_{12}) + \varepsilon_{33}. \quad (5)$$

C'est une droite en fonction de $\sin^2 \psi$. Sa pente donne, pour différents ϕ , les ε_{ij} entre parenthèses.

et

$$A^- = \sin |2\psi| (\cos \phi \varepsilon_{13} + \sin \phi \varepsilon_{23}). \quad (6)$$

C'est également une droite en fonction de $\sin |2\psi|$. Sa pente donne pour $\phi = 0$ et $\phi = \pi/2$ ε_{13} et ε_{23} .

En remplaçant les ε_{ij} par leur valeur tirée de l'équation (1), et en utilisant les relations entre les contraintes et déformations pour un matériau isotrope par exemple, on obtient les équations équivalentes suivantes :

$$a^+ = \frac{1}{2} (2 \theta_{\phi\psi}^+ + 2 \theta_{\phi\psi}^-) = \frac{-2}{\cot \theta_0} \left(\frac{1+\nu}{E} \right) \sigma_{\phi} \sin^2 \psi + \frac{\nu}{E} \frac{2}{\cot \theta_0} (\sigma_1 + \sigma_2) + 2 \theta_0$$

où E et ν sont respectivement les modules d'Young et le coefficient de Poisson relatif à la famille cristallographique diffractante et σ_{ϕ} la contrainte dans la direction ϕ , égale à $\sigma_{11} \cos^2 \phi + \sigma_{22} \sin^2 \phi + \sigma_{12} \sin 2\phi$

$$\text{et} \quad a^- = \frac{1}{2} (2 \theta_{\phi\psi}^+ - 2 \theta_{\phi\psi}^-) = -\frac{2}{\cot \theta_0} \left(\frac{1+\nu}{E} \right) \tau_{\phi} \sin |2\psi|$$

où τ_{ϕ} = le cisaillement dans la direction ϕ .

Malheureusement, cette méthode, en dépit de ses avantages, est rarement appliquée aux couches d'épaisseur inférieure à $1 \mu\text{m}$ [17]. La raison en est double :

i) Pour des couches très minces ($< 1 \mu\text{m}$), la taille des domaines diffractants est très faible (quelque dizaines d'Å), ce qui élargit beaucoup le pic de diffraction et rend la détermination de sa position très difficile ;

ii) le volume irradié étant trop faible, l'intensité diffractée est également faible, et le rapport signal sur bruit n'est pas suffisant pour détecter le déplacement de la position du pic avec précision.

Dans cette étude, nous présentons une détermination complète d'un tenseur des contraintes par cette méthode dans une couche de tungstène aussi mince que $1\,000 \text{ Å}$.

Nous avons résolu les problèmes soulevés par la méthode en utilisant :

— d'une part, un monochromateur pour réduire la largeur du pic incident (à $0,1^\circ$ de largeur à mi-hauteur). Ceci a réduit la largeur à mi-hauteur des pics diffractés à quelques degrés seulement (1,5 à 3) ;

— d'autre part, un générateur de R.X. à anode tournante de 5 kW qui donne une brillance 10 fois supérieure à celle d'un tube scellé.

2. Conditions expérimentales.

2.1 ECHANTILLONS. — Les couches de tungstène sont déposées sur des tranches de silicium en pulvérisant une cible massive à l'aide d'une source d'ions de type Kauffman [18]. Le vide avant et après le dépôt est respectivement de 2×10^{-6} et 10^{-4} torr. La rotation du porte-échantillon refroidi à l'eau permet d'assurer une bonne homogénéité du dépôt. La vitesse d'évaporation est de l'ordre de 1 Å s^{-1} et les épaisseurs sont contrôlées par quartz. Nous avons donc réalisé deux dépôts de W d'épaisseur $1\,000 \text{ Å}$ environ.

Irradiation. — Deux types d'implantation ont été réalisés :

— l'un à faible dose (2×10^{14}) avec des ions Ar^{++} de 300 keV ; cette dose est suffisante pour observer la transition $W_\beta \rightarrow W_\alpha$ [19], la phase β étant instable et à grains très fins ;

— l'autre, à forte dose (10^{16}) avec des ions Xe^{++} de 320 keV pour modifier l'état des contraintes résiduelles. L'énergie des ions incidents est choisie de telle façon que la profondeur de pénétration des ions soit adaptée à l'épaisseur de la couche de tungstène.

2.2 APPAREILLAGE. — Les pics de diffraction sont obtenus en utilisant la raie $K\alpha_1$ du cuivre délivrée par un générateur Rigaku de 5 kW à anode tournante. La taille apparente du foyer est de $3 \times 0,3 \text{ mm}^2$. Le monochromateur utilisé était un cristal courbe de quartz. La divergence horizontale du faisceau est de $0,1^\circ$ et verticale de 1° environ. Le goniomètre possède des rotations $\theta/2$ θ indépendantes, effectuées par des moteurs pas à pas commandés par un mini-ordinateur (installation 1).

Le détecteur était du type proportionnel équipé d'un système de fentes limitant la divergence du faisceau reçu à $0,15^\circ$. Nous avons ensuite reproduit le résultat en utilisant un détecteur à localisation linéaire rempli d'un mélange Xe- CH_4 (installation 2). Sa résolution spatiale est de $132 \mu\text{m}$.

La configuration utilisée pour déterminer les contraintes dans les deux installations était la configuration Ω .

2.3 DÉTERMINATION DES CONTRAINTES. — Après l'enregistrement des pics bruts de diffraction, nous avons soustrait leur bruit de fond et avons effectué la correction de Lorentz polarisation-absorption. Ensuite, nous les avons lissés et avons déterminé leur position par le milieu de la corde à mi-hauteur. Nous avons également mesuré la largeur de cette corde ainsi que l'intensité du pic. Les quantités a^+ et a^- ont ainsi été calculées pour $\Phi = 0$,

$\Phi = \pi/4$ et $\Phi = \pi/2$ sur l'installation 1, $\Phi = 0$ sur l'installation 2. L'erreur commise sur les contraintes a été estimée selon la méthode statistique que nous avons détaillée par ailleurs [20-21]. Cette estimation considère tout écart de la position de a^+ ou a^- par rapport à la régression linéaire comme une erreur. Elle inclut donc les erreurs instrumentales et les écarts dus à la microstructure du matériau (hétérogénéité de la taille des domaines diffractants, texture, etc.).

Enfin, nous avons effectué une mesure des déformations sur une poudre recuite d'aluminium dans les mêmes conditions. Les contraintes et les cisaillements établis sur la poudre étaient inférieurs à 10 MPa.

3. Résultats.

Sur l'installation 1, nous avons utilisé onze valeurs de ψ correspondant à $\sin^2 \psi$ variant de 0 à 0,5 par incrément de 0,1. Les $\sin^2 \psi$ sont obtenus pour $\psi > 0$ et $\psi < 0$. La famille diffractante était la $\{321\}$ du tungstène α . Les angles de diffraction sont déterminés à $\pm 0,03^\circ$. Le tableau suivant donne les résultats obtenus. La figure 2 reproduit quelques pics bruts de diffraction et la figure 3 illustre un exemple de variation de a^+

Fig. 2. — Exemple de pics bruts de diffraction (après bombardement).

[Examples of diffraction pics (after bombardment).]

Fig. 3. — a^+ en fonction de $\sin^2 \psi$ avant (●) et après (◆) bombardement.

[a^+ as a function of $\sin^2 \psi$ before (●) and after (◆) bombardment.]

Tableau I. — Angles de diffraction en fonction des Φ et des ψ . Installation 1.

[Diffraction angles as a function of Φ and ψ .]

$\sin^2 \psi$	0,5	0,4	0,3	0,2	0,1	0	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5
$2\theta(\Phi = 0)$	131,39	—	131,58	131,56	131,74	131,85	131,68	131,72	131,52	131,52	131,45
$2\theta(\Phi = \pi/4)$	131,44	131,42	131,62	131,54	—	131,83	—	131,76	131,42	131,42	131,42
$2\theta(\Phi = \pi/2)$	131,30	—	131,50	131,45	131,65	131,80	131,55	131,70	131,45	131,51	131,35

Le tableau I et la figure 3 montrent que les angles suivent bien la loi de $\sin^2 \psi$, mais que la dispersion des points de mesure autour de la régression linéaire n'est pas négligeable.

Compte tenu des valeurs de E et ν de la famille {321} du tungstène α , soit 389 GPa pour E et + 0,284 pour ν , on trouve les valeurs suivantes des contraintes :

$$\sigma(\Phi = 0) = 1,48 \text{ GPa} \pm 0,19$$

$$t(\Phi = 0) = 0,077 \text{ GPa} \pm 0,078$$

$$\sigma(\Phi = \pi/4) = 1,62 \text{ GPa} \pm 0,21$$

$$t(\Phi = \pi/4) = 0,011 \text{ GPa} \pm 0,015$$

et $\sigma(\Phi = \pi/2) = 1,57 \text{ GPa} \pm 0,20$

$$t(\Phi = \pi/2) = 0,038 \text{ GPa} \pm 0,045.$$

Ces valeurs montrent que les contraintes sont de traction et de très forte intensité, et qu'elles ne varient presque pas en fonction de Φ . Les cisaillements sont faibles, mais non négligeables.

Les valeurs élevées des contraintes sont en excellent accord avec celles trouvées par la méthode de la flèche sur le même type de couches par Sivaram *et al.* [3] et Hagiri *et al.* [4].

D'autre part, la détermination des contraintes sur l'installation (2) pour $\theta = 0$ conduit aux résultats suivants :

$$\sigma(\Phi = 0) = 1,44 \text{ GPa} \pm 0,16$$

et $t(\Phi = 0) = + 0,148 \text{ GPa} \pm 0,136.$

Ces valeurs sont en bon accord avec celles obtenues sur l'installation 1.

Nous avons ensuite déterminé les contraintes sur une couche de tungstène de 1 000 Å après bombardement ionique avec un flux de Xe^{++} de 320 keV en utilisant l'installation 2. Le tableau suivant donne les angles de diffraction obtenus pour $\Phi = \pi/2$.

Tableau II. — Angles de diffraction après bombardement au Xe^{++} pour $\Phi = \pi/2$.

[Diffraction angles after Xe^{++} bombardment : $\Phi = \pi/2$.]

$\sin^2 \psi$	0	0,05	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,6
$2 \theta^+$	130,39	130,48	130,62	130,75	130,75	130,81	130,85	130,86
$2 \theta^-$	130,39	130,58	130,59	130,59	130,55	130,78	130,70	130,78

Le calcul des contraintes donne les valeurs suivantes :

$$\sigma(\Phi = 0) = -1,32 \pm 0,16 \text{ GPa}$$

$$t(\Phi = 0) = 0,094 \pm 0,071 \text{ GPa}$$

$$\sigma(\Phi = \pi/2) = -1,23 \pm 0,18 \text{ GPa}$$

$$t(\Phi = \pi/2) = 0,128 \pm 0,082 \text{ GPa}.$$

Le signe des contraintes s'est donc inversé par le bombardement. C'est un résultat d'une importance capitale puisqu'il démontre l'influence spectaculaire du bombardement ionique sur les contraintes résiduelles dans les couches considérées.

4. Conclusion.

Cette étude a montré que la détermination des contraintes résiduelles par diffraction des R.X. (méthode de $\sin^2 \psi$) était possible sur des couches de tungstène aussi minces que 1 000 Å, moyennant un dispositif expérimental approprié.

Les contraintes déterminées sur de telles couches sont de traction et d'une grande intensité (1,5 GPa). Elles varient peu dans le plan de la couche et contiennent des éléments de cisaillement qui restent faibles par rapport aux contraintes normales.

Par ailleurs, le bombardement ionique a inversé d'une manière spectaculaire les contraintes de tension en contraintes de compression de grande intensité (de 1,5 GPa à -1,32 GPa). Ces résultats sont préliminaires mais ils ouvrent la voie à la détermination précise et non destructive des tenseurs des contraintes dans les couches minces par la méthode des $\sin^2 \psi$ et à leur maîtrise en fonction des paramètres de dépôt et d'implantation.

Remerciements.

Les auteurs remercient MM. G. Gladyszewski et C. Fayoux pour la préparation des échantillons et Mme Pichaut pour la frappe du manuscrit.

Bibliographie

- [1] THURNER G., ABERMANN R., *Thin Solid Films* **192** (1990) 277-285.
- [2] PARK H. W., DANYLUK S., *J. Mat. Sci.* **26** (1991) 23-27.
- [3] SIVARAM S., CHEN S., DIAO D., SKUKLA R., FRASER D., *Mat. Research Society publication USA* (1988) 407-414 ; Proc. 11th Int. Vac. Congress, 1279-1282.
- [4] HAGIRI-GOSNET A. M., LADAN F. R., MAYEUX C., LAUNOIS H., JONCOUR M. C., *J. Vac. Sci. Technol.* **A7** (1989) 2663-2669.
- [5] THORNTON J. A., HOFFMAN D. W., *J. Vac. Sci. Technol. A* **3** (1985) 576-579.
- [6] HOFFMAN D. W., *Thin Solid Films* **112** (1984) 219-225.
- [7] DIRKS A. G., VAN DENBROEK J. J., *Thin Solid Films* **96** (1982) 257-263.
- [8] LAFONTAINE W. R., PASZKIET C. A., KORHONEN M. A., CHE-YU LI, *J. Mater. Res.* **6** (1991) 2084-2090.
- [9] WINDOW B., HARDING G. L., *J. Vac. Sci. Technol. A* **8** (1990) 1277-1282.
- [10] OSHIDA Y., CHEN P. C., *J. Nondestr. Eval.* **8** (1989) 235-245.
- [11] NARAYANA G. S., MISRA N. K., *Indian J. Phys. A* **64A** (19..) 151-155.
- [12] KORHONEN M. A., PASZKIET C. A., *Scr. Metall.* **23** (1989) 1449-1454.
- [13] DÖLLE H., HAUKE V., *Z. Für Metallk.* **70** (1979) 682.
- [14] DÖLLE H., *J. Appl. Cryst.* **12** (1979) 489.
- [15] DÖLLE H., COHEN J. B., *Met. Tras.* **11A** (1980) 159.
- [16] CASTEX L., LEBRUN J. L., MAEDER G., SPRAUEL J. M., *Pub. Sci. Tech. ENSAM, Paris* (1981).
- [17] VINK T. J., SOMERS M. A. J., DAAMS J. L. C., DIRKS A. G., *J. Appl. Phys.* **70** (1991) 4301-4308.
- [18] JAULIN M., LAPLANCHE G., DELAFOND J., PIMBERT-MICHAUX S., *Surf. Coat. Tech.* **37** (1989) 225.
- [19] GLADYSZEWSKI G., GOUDEAU Ph., NAUDON A., JAOUEN Ch., PACAUD J., *Mater. Lett.* (1991).
- [20] KAHLOUN C., BADAWI K. F., DIOU A., *Rev. Phys. Appl.* **25** (1990) 1225-1238.
- [21] KAHLOUN C., Thèse de Doctorat, Université de Bourgogne (Février 1991).