Analyse de l'état mécanique et microstructural de films minces supraconducteurs $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ par diffraction des rayons X

S. Auzary, K. Badawi, L. Bimbault, J. Rabier, R. Gaboriaud, P. Goudeau

► To cite this version:

S. Auzary, K. Badawi, L. Bimbault, J. Rabier, R. Gaboriaud, et al.. Analyse de l'état mécanique et microstructural de films minces supraconducteurs $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ par diffraction des rayons X. Journal de Physique III, 1997, 7 (1), pp.35-46. 10.1051/jp3:1997108 . jpa-00249571

HAL Id: jpa-00249571

<https://hal.science/jpa-00249571>

Submitted on 1 Jan 1997

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.

Analyse de l'état mécanique et microstructural de films minces supraconducteurs $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ par diffraction des rayons X

S. Auzary (*), K.F. Badawi, L. Bimbault, J. Rabier, R.J. Gaboriaud
et Ph. Goudeau

UFR Sciences SP2MI, Laboratoire de Métallurgie Physique (**), bd 3 Téléport 2, BP 179,
Université de Poitiers, 86960 Futuroscope Cedex, France

(Reçu le 21 décembre 1995, révisé le 25 juin et le 11 septembre 1996, accepté le 4 octobre 1996)

PACS.68.60.-p – Physical properties of thin films, nonelectronic

PACS.61.10.-i – X-ray diffraction and scattering

PACS.74.60.-w – Type II superconductivity

Résumé. — Cette étude présente une analyse de l'état mécanique et microstructurale dans un film mince de 100 nm d'épaisseur d'YBCO déposé sur un substrat de MgO. En utilisant la diffraction des rayons X couplée à une approche tensorielle, nous avons déterminé les déformations, les contraintes, les paramètres libres de contraintes, les microdistorsions élastiques ainsi que la taille des domaines cohérents de diffraction. Les paramètres libres de contrainte sont supérieurs à ceux du massif. Une valeur élevée des contraintes est expliquée à partir des contraintes de cohérence, des contraintes thermiques et intrinsèques. L'analyse des profils des pics de diffraction suggère la présence de sous-joints et de distorsions élastiques élevées au niveau des mailles cristallographiques.

Abstract. — Mechanical and microstructural analysis in a 100 nm thin film is presented in this study. Using X-ray diffraction with a tensorial approach, we have determined stresses, strains, stress-free lattice parameters, microdistorsions and diffracting coherent domains size. Stress-free lattice parameters are higher than the bulk values. A high value of stresses is explained as a combination of coherent stresses, thermal stresses and intrinsic ones. Diffraction peaks line profiles analysis suggests grain boundaries presence as well as high lattice elastic microdistorsions.

1. Introduction

L'élaboration de matériaux supraconducteurs sous la forme de films minces présente un intérêt fondamental du point de vue structural et technologique dans la perspective de réaliser à terme des jonctions Josephson très performantes [1–3].

Les propriétés des matériaux supraconducteurs sous forme de films minces sont très supérieures à celles obtenues sur les matériaux massifs. À ce jour, il n'existe pas d'explication claire de ces différences de propriétés. Ces performances dépendent principalement de la microstructure de ces films et plus précisément des défauts du réseau cristallin [4–7]. Citons, à

(*) Auteur auquel doit être adressée la correspondance

(**) URA CNRS 131

titre d'exemple la mobilité des vortex qui limite sérieusement l'intensité des courants traversant ces matériaux [8–11]. L'ancrage des vortex par des défauts dans le cristal peut permettre de repousser cette limite et donc d'atteindre des courants critiques élevés.

Parmi les techniques permettant d'analyser la structure des films minces, la diffraction des rayons X reste une technique de choix. Elle est non destructive et permet une analyse fine et rigoureuse de l'état mécanique du film sur son substrat en particulier lorsqu'elle est couplée à une approche tensorielle (contrainte, paramètres libres de contraintes, taille des domaines cohérents de diffraction et microdéformation).

Les travaux menés par diffraction des rayons X sur des films d'YBaCuO [12–14] ont toujours fait jusqu'à ce jour l'hypothèse que les paramètres de maille libres de contraintes du film étaient ceux du massif. Un grand nombre d'études sur d'autres matériaux ont montré qu'il n'en était rien [15–17] et que cette hypothèse peut avoir d'importantes conséquences sur les résultats et donc sur les interprétations qui en découlent.

L'objectif de cette étude consiste à donner une image structurale et mécanique dans ces films en insistant plus particulièrement sur la détermination des paramètres libres de contrainte et des microdéformations dont les valeurs dépendent étroitement de la microstructure du matériau. Afin d'extraire ces différents paramètres, le formalisme tensoriel et les hypothèses mises en œuvre dans le cas d'une structure orthorhombique sont détaillés. Les résultats sont ensuite discutés.

Les mesures sont effectuées sur une couche mince épitaxiée de 100 nm d'YBaCuO déposée par ablation laser sur un substrat de MgO. Les caractéristiques supraconductrices du film étudié sont les suivantes :

Orientation :	(001)
"Rocking Curve"	0,6°
Résistivité à 300 °C (mΩ cm)	0,25
T_c (onset)	91,3
ΔT	0,3

2. Détermination des tenseurs des déformations et des contraintes

Comme la plupart des méthodes de détermination des contraintes, la technique de diffraction des RX consiste à effectuer une mesure de déformations et à calculer les contraintes à partir des équations de la mécanique des milieux continus [18–20]. Sous l'action d'un champ de contraintes, les distances interréticulaires sont modifiées et varient avec l'orientation de la normale au plan (hkl). La mesure consiste à rechercher ces distances interréticulaires dans différentes directions du demi-espace libre à la surface du matériau cristallisé, puis à calculer les déformations correspondantes.

Afin d'obtenir l'équation générale permettant de décrire le champ de contrainte à partir des résultats de la diffraction, les hypothèses suivantes sont indispensables :

- le matériau doit être homogène et continu,
- les déformations doivent être élastiques et linéaires,
- les déformations et les contraintes doivent être homogènes dans le volume irradié.

Ces conditions vérifiées, il est alors possible d'appliquer la loi de Hooke reliant les contraintes et les déformations :

$$\varepsilon_{ij} = S_{ijkl}\sigma_{kl} \quad \text{ou bien} \quad \sigma_{ij} = C_{ijkl}\varepsilon_{kl}. \quad (1)$$

Un formalisme complet permettant d'obtenir le tenseur des déformations du cristal à partir des tenseurs métriques est détaillé par Gergaud [18]. La méthode générale permet de déterminer le tenseur métrique complet. Cependant, pour des raisons physiques (cisaillement nul), nous imposons aux termes croisés de ce tenseur d'être nuls. En effet, une valeur non nulle de ces termes impliquerait une maille déformée triclinique et non orthorhombique.

Le problème majeur est lié à la méconnaissance de l'état de référence qui intervient sous la forme du tenseur métrique g_{kl}^0 car il est difficile, voire impossible de mesurer les paramètres a_i du cristal supposé parfait. Tout traitement destiné à provoquer une relaxation des contraintes du cristal est susceptible d'entraîner des modifications microstructurales et donc d'avoir des répercussions sur le paramètre cristallin.

On peut cependant faire l'approximation suivante : la diffraction X ne concerne qu'un volume localisé situé près d'une surface libre du cristal et dans lequel le vecteur de contrainte $T_i = \sigma_{ij}n_j$ suivant la normale à cette surface est nul.

En choisissant le référentiel ($\mathbf{i}, \mathbf{j}, \mathbf{k}$) tel que $\mathbf{k}$ soit la normale à la surface libre irradiée, la condition précédente entraîne :

$$\sigma_{33} = 0. \quad (2)$$

Cette condition est nécessairement remplie pour un monocristal et se traduit dans le cas orthorhombique par l'équation suivante :

$$\sigma_{33} = C_{31}\varepsilon_{11} + C_{32}\varepsilon_{22} + C_{33}\varepsilon_{33} = 0 \quad (3a)$$

où C_{ij} sont des constantes élastiques de l'YBaCuO trouvées dans la littérature [21] ($C_{31} = 83$, $C_{32} = 84$, $C_{33} = 271$ [GPa]), et

$$\varepsilon_{ii} = \frac{1}{2} \left(\frac{g_{ii}}{(a_0^i)^2} - 1 \right) \text{ avec } a_1 = a, a_2 = b \text{ et } a_3 = c. \quad (3b)$$

Les relations (3b) forment un système de trois équations à six inconnues (les trois ε_{ii} et les a_i). La relation (3a) permet de réduire ces inconnues et conduit à l'équation suivante :

$$\sigma_{33} = \frac{C_{31}}{2} \left(\frac{g_{11}}{a_0^2} - 1 \right) + \frac{C_{32}}{2} \left(\frac{g_{22}}{b_0^2} - 1 \right) + \frac{C_{33}}{2} \left(\frac{g_{33}}{c_0^2} - 1 \right) = 0 \quad (4)$$

Le problème consiste à résoudre l'équation $\sigma_{33} = 0$, avec trois inconnues : a_0 , b_0 et c_0 libres de contraintes. Une telle équation admet une infinité de solutions. On est alors amenés à faire une hypothèse sur les paramètres a_0 , b_0 et c_0 afin de fournir les deux équations manquantes au système.

Nous envisageons dans cet article des défauts répartis de façon aléatoire dans la maille et sur l'ensemble du film, l'effet moyen d'une telle répartition est un gonflement isotrope de la maille donnant lieu à un champ élastique de symétrie sphérique. Connaissant les paramètres de maille d'un cristal massif, ceux du cristal libre de contraintes s'écrivent sous la forme :

$$\begin{aligned} a_0 &= a_m(1 + \zeta) \\ b_0 &= b_m(1 + \zeta) \\ c_0 &= c_m(1 + \zeta) \end{aligned} \quad (5)$$

où ζ est une inconnue à déterminer et a_m , b_m et c_m sont les paramètres d'un cristal d'YBa₂Cu₃O₇ massif (cf. Tab. I). Cette hypothèse a l'avantage de réduire les trois inconnues a_0 , b_0 et c_0 à une seule : ζ .

Ces paramètres sont directement liés à la microstructure. Leur connaissance est souvent primordiale pour analyser l'état microstructural d'un matériau. Les déformations sont alors obtenues à partir des relations suivantes :

$$\varepsilon_{ii} = \frac{1}{2} \left(\frac{g_{ii}}{(a_m^i)^2 (1 + \zeta)^2} - 1 \right) \quad (6)$$

L'ensemble de ces équations permet de déterminer ζ et donc d'avoir accès aux paramètres de maille libres de contraintes ainsi qu'au tenseur de déformations à l'aide de la relation (6) et au tenseur des contraintes *via* la loi de Hooke.

3. Analyse des microdéformations

En première approximation, on relie couramment la largeur d'un pic de diffraction (corrigé de l'élargissement instrumental) à la taille des grains diffractants. Ainsi, la formule de Scherrer [23], est souvent appliquée. En réalité, cette approche ne prend pas en compte les distorsions du réseau cristallin qui peuvent s'avérer très importantes dans le cas de grains nanométriques et entraîner une détermination erronée de la taille des domaines cohérents de diffraction. En effet, les microdéformations induisent également un élargissement du pic de diffraction. Cet effet est différent de l'effet "classique" lié aux déformations uniformes à l'échelle macroscopique donnant lieu à un déplacement de ces pics (contraintes résiduelles) [24].

Les microdéformations qui sont déterminées sont des nombres sans dimension qui représentent l'écart quadratique moyen des déformations à l'échelle nanométrique, telles que celles existant au voisinage de défauts ponctuels, d'impuretés, de cœurs des dislocations, *etc.* Elles traduisent l'écart du cristal réel par rapport au cristal parfait.

Une méthode dite de la largeur intégrale, permet d'avoir accès aux ordres de grandeurs des microdéformations ainsi qu'à la taille des domaines cohérents. Le but de cet article n'étant pas de présenter la partie théorique d'une telle méthode déjà décrite par ailleurs [15, 24, 25], seules les grandes lignes de cette analyse sont précisées.

La largeur intégrale d'un pic de diffraction est définie par la formule suivante :

$$b(s) = \frac{\int I(s) ds}{I_{\max}(s)} \quad (7)$$

où $I(s)$ est l'intensité diffractée pour le vecteur s de l'espace réciproque, avec :

$$s = \frac{2 \sin \theta}{\lambda} \quad (8)$$

où θ est l'angle de diffraction et λ la longueur d'onde des rayons X.

L'élargissement des pics de diffraction dépend de la taille des domaines cohérents de diffraction, des microdéformations et de l'effet instrumental.

L'élargissement total du pic de diffraction, après correction instrumentale et dans l'hypothèse où le produit de convolution est celui de deux gaussiennes, est donné par la formule :

$$b^2(s) = \frac{1}{D^2} + 2\pi\varepsilon^* s^2 \quad (9)$$

où ε^* est la valeur des microdéformations et D la taille des domaines cohérents de diffraction.

En traçant $b^2(s)$ en fonction de s^2 , on obtient une droite dont la pente permet de calculer les microdistorsions, l'ordonnée à l'origine, la taille des domaines cohérents de diffraction.

Fig. 1. — Pics de diffraction des plans : a) (018), b) (108), c) (019), d) (109) et e) (006).

[YBCO (018), (108), (019), (109) and (006) plane diffraction peaks.]

4. Résultats et discussion

4.1. DÉFORMATION ET CONTRAINTES. — La détermination du tenseur des déformations et des contraintes a été réalisée sur un goniomètre 4-cercles du rayonnement synchrotron du LURE. Les microdéformations ont été mesurées sur un diffractomètre deux cercles ($2\theta - \Omega$) au laboratoire.

Les pics utilisés lors de cette étude sont les pics (006), (018), (108), (019), (109) et (128) (cf. Fig. 1).

On remarque la superposition des pics (018) et (108) ainsi que des pics (019) et (109). Ces pics se distinguent par une rotation de $\pi/2$ autour de l'axe c . Leur superposition montre que la maille du cristal déformé se comporte en moyenne comme un pseudo-quadratique. La précision instrumentale ne permettant pas de séparer des distances inférieures à 2×10^{-3} Å, ce résultat peut provenir d'une structure en sous grain où les directions a et b sont alternées. Quoiqu'il en

Tableau I. — *Paramètres de maille du cristal déformé, libre de contrainte et massif.*
Lattice parameter of strained, strain-free and bulk YBCO.]

Paramètres en Angström	Déformés	Libres de contraintes	Matériau massif
<i>a</i>	$3,879 \pm 0,001$	3,839	3,818
<i>b</i>	$3,879 \pm 0,001$	3,907	3,886
<i>c</i>	$11,732 \pm 0,003$	11,743	11,680

Tableau II. — *Contraintes et déformations dans le film.*
[Stresses and strains in the film.]

Indices	Déformations	Contraintes (GPa)
11	$(1,05 \pm 0,50) \times 10^{-2}$	$1,75 \pm 1,30$
22	$(-0,71 \pm 0,35) \times 10^{-2}$	$-0,90 \pm 0,90$
33	$(-0,10 \pm 0,05) \times 10^{-2}$	0

soit, ce résultat indique une orthorhombicité de la structure extrêmement faible. De tels défauts ont souvent été observés dans $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ déposé sur MgO et sont observés en microscopie électronique

Les paramètres de la maille déformée, libres de contrainte ainsi que ceux du cristal massif sont récapitulés dans le tableau I.

Les paramètres de maille libres de contraintes sont supérieurs aux paramètres de maille du massif. La maille est étirée dans les trois directions de l'espace.

Les valeurs des tenseurs des contraintes et de déformations qui en résultent sont présentées dans le tableau II.

Nous obtenons une contrainte en tension relativement importante selon *a* et une contrainte en compression selon *b*. La valeur élevée de ces contraintes peut avoir différentes origines :

4.1.1. Contraintes de cohérences. — La croissance épitaxiale d'une couche sur un substrat de nature différente, entraîne l'apparition de contraintes à l'interface [26].

La cause principale de ces contraintes est la différence de paramètres cristallins des deux matériaux caractérisée par l'écart relatif des paramètres cristallins du substrat (*b*) et de la couche déposée (*a*) :

$$\varepsilon = \frac{b - a}{a}. \quad (10)$$

Compte tenu de la valeur du paramètre cristallin de MgO ($4,21 \text{ \AA}$) et de ceux mesurés dans le film, nous obtenons suivant les deux directions :

$$\varepsilon_{11} = 0,1025 \text{ et } \varepsilon_{22} = 0,0834.$$

Ces déformations correspondent à des contraintes dans le plan très élevées :

$$\sigma_{11} = 21 \text{ GPa et } \sigma_{22} = 17 \text{ GPa.}$$

De telles contraintes sont difficilement envisageables dans le film si elles se sont relaxées par des dislocations d'épitaxie. Ceci serait en accord avec les résultats de Keller [27] qui a démontré

qu'au-delà d'une épaisseur critique de 10 nm pour un film mince d'YBa₂Cu₃O₇, les contraintes se relaxent. Les défauts créés sont généralement des dislocations localisées à l'interface.

Cette hypothèse ne peut en aucun cas expliquer la genèse des contraintes de compression suivant l'axe *b* comme celles qui sont observées. Par conséquent, elle est peu probable dans les deux directions mais elle peut s'appliquer à la direction *a* ce qui correspond à une hétérotaxie partielle.

Notons que le dépôt s'effectue dans la phase quadratique et que les contraintes peuvent résulter de l'hétéroépitaxie en phase quadratique qui est suivie de la transformation quadratique-orthorhombique.

4.1.2. Contraintes thermiques. — Elles proviennent d'une différence des coefficients de dilatation thermique du substrat et du film. Lors de l'élaboration des échantillons, une montée en température jusqu'à 750 °C entraîne des contraintes thermiques. Elles sont données par la relation suivante :

$$\sigma_{th} = \frac{E_f}{1 - \gamma_f} (\alpha_f - \alpha_s) (T_d - T) \quad (11)$$

où α_f , α_s , E_f et γ_f représentent les coefficients d'expansion thermique du film et du substrat, le module d'Young et le coefficient de Poisson du film, T_d étant la température de dépôt et T la température ambiante [28–30].

On obtient une contrainte thermique : $\sigma_{th} = -0,7$ GPa. Les coefficients de dilatation thermique étant les mêmes dans les deux directions du plan, cette contrainte est isotrope.

4.1.3. Contraintes intrinsèques. — Elles sont dépendantes de la nature du film et du substrat, ainsi que de la méthode de dépôt. La température, la pression en oxygène, les impuretés, déterminent l'état de contraintes [28]. En général, les contraintes intrinsèques proviennent d'un atome ou d'un ion ne se trouvant pas dans leur position d'énergie minimum dans le film. Elles sont souvent isotropes.

La résultante totale mesurée est la somme des contraintes énumérées ci-dessus :

$$\sigma_{tot} = \sigma_c + \sigma_{th} + \sigma_i. \quad (12)$$

En admettant que les contraintes intrinsèques et thermiques soient isotropes et que les contraintes de cohérence suivant l'axe *b* soient nulles, la relation précédente conduit aux deux équations suivantes :

$$\begin{aligned} \sigma_{11} &= \sigma_{11}(c) + \sigma(th) + \sigma_i \\ \sigma_{22} &= \sigma(th) + \sigma_i \end{aligned} \quad (13)$$

avec

$$\sigma(th) = -0,78 \text{ GPa la contrainte thermique,}$$

$$\sigma_{11} = 1,75 \text{ GPa,}$$

$$\sigma_{22} = -0,90 \text{ GPa.}$$

$\sigma_{11}(c)$ est la contrainte de cohérence suivant *a* et σ_i , la contrainte intrinsèque isotrope dans le plan. De ce système de deux équations à deux inconnues ($\sigma_{11}(c)$ et σ_i) on peut déduire :

$$\sigma_i = -0,12 \text{ GPa}$$

et

$$\sigma_{11}(c) = 2,65 \text{ GPa.}$$

Les contraintes intrinsèques seraient donc très faibles dans le film alors que la contrainte de cohérence est nettement inférieure à celle qui résulterait d'une hétérotaxie totale. La présence de dislocations d'épitaxies avec un vecteur de Burgers parallèle à l'axe b serait en accord avec le calcul précédent. Des études en microscopie électronique en transmission sont en cours afin de confirmer ce point.

Les valeurs qui sont obtenues sont tributaires de la validité de l'hypothèse d'une déformation élastique isotrope. Des études fondées sur la mesure des contraintes et des déformations par la méthode de la flèche sont en cours afin de vérifier la validité de notre hypothèse.

Nous avons calculé les composantes du tenseur des contraintes avec les paramètres de maille de l'YBCO massif. Les résultats sont les suivants :

$$\begin{aligned}\sigma_{11} &= 3,65 \text{ GPa} \\ \sigma_{22} &= 0,89 \text{ GPa} \\ \sigma_{33} &= 2,37 \text{ GPa}.\end{aligned}$$

On remarque que la contrainte σ_{33} normale à la surface est très difficile à justifier physiquement, car l'équilibre thermique de la surface entraîne $\sigma_{33} = 0$, et si sa valeur moyenne dans l'épaisseur du film est de 2,37 GPa, cela voudrait dire qu'il existe un gradient de contrainte de plus de 5 GPa sur 200 nm d'épaisseur. De tels gradients sont des milliers de fois supérieurs à tout ce qui a été observé jusqu'à maintenant, aussi bien dans les matériaux massifs que dans les films minces.

D'autres hypothèses sont possibles. Par exemple, celle où l'on considère a_0 , b_0 et c_0 libres de contrainte comme les paramètres des différentes phases $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ massives trouvées dans la littérature [22]. Cependant cette hypothèse s'est avérée incompatible avec la relation $\sigma_{33} = 0$ ce qui nous a conduit à conclure que le matériau considéré dans notre étude n'a pas les paramètres libres des contraintes correspondant aux paramètres de l'état massif et recuit de la littérature. C'est une conclusion importante car elle démontre que la microstructure de l'YBaCuO sous forme de films minces est très différente de celle du massif. Des observations similaires ont souvent été faites pour des films minces métalliques ou réfractaires (Cu, Ni, Ag, Au, Mo, W, *etc.* [15–17]), mais à notre connaissance c'est la première fois qu'une telle conclusion est faite au sujet de l'YBaCuO.

4.2. MICRODÉFORMATIONS. — L'analyse des microdéformations nécessite au moins deux pics de diffraction d'une même famille cristallographique mais d'ordres différents. Les pics (003), (005) et (006) (*cf.* Fig. 2) ont été utilisés.

En tenant compte de l'élargissement instrumental des pics, nous obtenons les résultats suivants :

- Microdéformations . $(2,38 \pm 0,1) \times 10^{-3}$
- Taille des domaines : $30 \pm 1 \text{ nm}$.

Les microdéformations sont très importantes. Dans un échantillon massif, elles sont de l'ordre de 10^{-4} , ce qui démontre que le film étudié doit contenir beaucoup de défauts cristallins comme des fautes d'empilement et des dislocations confirmant les observations faites par d'autres auteurs [31–33].

Ces défauts peuvent résulter de l'introduction d'une phase supplémentaire : la phase 124 ($\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$) qui correspond à l'introduction d'un plan CuO dans la structure parfaite ou la phase 224 ($\text{Y}_2\text{Ba}_2\text{Cu}_4\text{O}_9$) qui présente deux plans adjacents Y et CuO supplémentaires. D'autres défauts observés en microscopie électronique tels que des joints de grains, des dislocations mais aussi des distorsions du réseau cristallin apparaissent à différents endroits du film [34, 35].

Fig 2. — Élargissement des pics de diffraction (00l).

[Broadening of (00l) diffraction peaks.]

La taille des domaines cohérents de diffraction est relativement petite par rapport à l'épaisseur du film (100 nm), ce qui suggère effectivement la présence de sous-joints de grains.

5. Conclusion

Dans cet article nous avons étudié les déformations, les contraintes et les paramètres cristallins libres de contraintes par diffraction des rayons X dans un film mince (100 nm) d'YBaCuO. L'utilisation du formalisme des tenseurs métriques, associé à la déconvolution des pics de diffraction nous a permis d'obtenir les résultats suivants :

- 1) Les paramètres cristallins libres de contraintes sont beaucoup plus importants que ceux du matériau massif recuit. La maille du film étudié est "gonflée" dans toutes les directions.
- 2) Les contraintes et les déformations sont fortement anisotropes (1,75 GPa suivant a et $-0,90$ GPa suivant b). Elles ont été analysées en superposant les effets des contraintes thermiques, de l'interaction avec le substrat et des contraintes intrinsèques.
- 3) L'analyse de l'élargissement des pics de diffraction met en évidence la présence de sous-joints de grains et de fortes distorsions élastiques.

Remerciements

Nous remercions A. Catherinot et C. Champeau du Laboratoire "Matériaux Céramique et Traitements de Surface" (URA 320 CNRS) de l'université de Limoges qui nous ont fourni le film mince étudié dans cet article.

Bibliographie

- [1] Talvacchio J., Wagner G.R. and Talisa S.H., High T_c film development for electronic applications, *Microwave J.* **105** (1991).
- [2] Huang C.L., Butler D.P. and Butler J.K., Dielectric waveguide with a YBa₂Cu₃O_{6+x} boundary layer at 94 GHz, *J. Appl. Phys.* **67** (1990) 3194.
- [3] Valenzuela A.A. and Russer P., High Q coplanar transmission line resonator of YBa₂Cu₃O_{7-x} on MgO, *Appl. Phys. Lett.* **55** (1989) 1029.
- [4] Jorgensen J.D., Veal B.W., Kwock W.K., Grabtree G.W., Umezawa A., Nowicki L.J. and Paulikas A.P., Structural and superconducting properties of orthorhombic and tetragonal YBa₂Cu₃O₇: the effect on oxygen stoichiometry and ordering on superconductivity, *Phys. Rev. B* **36** (1987) 5731.
- [5] Müller D., Ullrich M., Heinemann K. and Freyhardt H.C., Microstructure of melt-textured YBa₂Cu₃O_{7-x}, *Physica C* **220** (1994) 67.
- [6] Rusiecki S., Bucher B., Kaldis E., Jilek E. and Karpinski J., 123 near equilibrium samples: anomalies of the lattice parameters and some physical properties, *J. Less Common. Metals* **164 & 165** (1990) 31.
- [7] McIntyre P.C. and Cima M.J., Microstructural inhomogeneities in chemically derived YBa₂Cu₃O_{7-x} thin films: implication for flux pinning, *J. Mater. Res.* **9** (1994) 2778.
- [8] Brandt E.H., Esquinazi P. and Neckel H., A superconducting vibrating reed applied to flux-line pinning, *J. Low Temp. Phys.* **63** (1986) 187.

- [9] Farrell D.E., Rice J.P. and Ginsberg D.M., Experimental evidence for flux-lattice melting, *Phys. Rev. Lett.* **67** (1991) 1165.
- [10] D'Anna G., Benoit W., Sadowski W. and Walker E., Experimental evidence of a crossover in the pinning of vortices in untwinned single crystals of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, *Europhys. Lett.* **20** (1992) 167.
- [11] Brandt E.H., Double peaks in the dissipation of vibrating superconductor, *Phys. Rev. Lett.* **68** (1992) 3769.
- [12] Abert A., Contour J.P., Defossez A., Ravelosona D., Schwegle W. and Ziemann P., E-MRS 95 Spring Meeting, Strasbourg (France), *Appl. Surf. Sci.* (à paraître).
- [13] Contour J.P., Defossez A., Ravelosona D., Abert A. and Ziemann P., *Z. Phys.* (à paraître).
- [14] Huang T.C., Segmüller A., Lee W., Lee V., Bullock D. and Karimi R., X-ray diffraction analysis of high T_c superconducting thin films, *Adv. X-Ray Anal.* **32** (1989) 269.
- [15] Durand N., Bimbault L., Badawi K.F. et Goudeau P., Mesure par diffraction des rayons X des microdéformations dans les films minces texturés d'Au, *J. Phys. III France* **4** (1994) 1025.
- [16] Badawi K.F., Declémy A., Naudon A. et Goudeau Ph., Détermination des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X dans une couche mince de 1000 Å de tungstène, *J. Phys. III France* **2** (1992) 1741.
- [17] Vink J.J., Somers M.A.J., Daams J.L.C. et al., Stress, strain and microstructure of sputter-deposited Mo thin films, *J. Appl. Phys.* **70** (1991) 4301.
- [18] Gergaud P., Analyse mécanique et microstructurale de dépôts de molybdène carbone élaborés par pulvérisation cathodique magnétron, Thèse (ENSAM Paris, 1992).
- [19] Barral M. et Sprauel J.M., Microstructure et Mécanique des Matériaux (ENSAM, Paris, 1987).
- [20] Zhou N., Détermination des déformations et des contraintes dans les matériaux monocristallins par diffraction des rayons X. Thèse (ENSAM Paris, 1994).
- [21] Menon and Eldhose, Third order elastic constants of high temperature superconductor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, *Solid State Com.* **81** (1992) 357.
- [22] Bucher B., Karpinski J., Kaldis E. and Wachter P., Pressure dependence of T_c and anisotropic features in the family $\text{Y}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_{(6+n)}\text{O}_{(14+n)}$ ($n = 0, 1, 2$), *J. Less Common. Metals* **164 & 165** (1990) 20.
- [23] Guinier A., Théorie et Technique de la Radiocristallographie (Dunod, Paris, 1964)
- [24] Maeder G., X-Ray Diffraction and Stress Measurement, *Chem. Scripta A* **26** (1986) 23.
- [25] Castex L., Lebrun J.L., Maeder G. et Sprauel J.M., Détermination des Contraintes Résiduelles par Diffraction des Rayons X (Pub. Sci. Tech. ENSAM, Paris, 1981).
- [26] Alimoussa, Contribution à l'étude des interfaces et défauts de croissance dans les couches minces et multicouches supraconductrices à haute température critique, Thèse d'Université (Université P. Sabatier, Toulouse, 1992).
- [27] Keller D., Nucléation-Croissance de films minces supraconducteurs d'YBaCuO déposés par ablation laser sur substrat de MgO (001), Thèse d'Université (Université Pierre et Marie Curie, Paris VI, 1994).
- [28] Desu S.B., Stress induced modifications in ferroelectric films, *Phys. Stat. Sol. (a)* **141** (1994) 119.
- [29] Contour J.P., Croissance des couches minces et des multicouches de matériaux supraconducteurs HT_c : bilan et perspectives, *J. Phys. III France* **4** (1994) 2159.

- [30] Burns S.J., Goyal A. and Funkenbush P.D., Crystallographic thermal expansion and elasticity across the superconducting transition in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, *Phys. Rev. B* **39** (1989) 16.
- [31] Ramesh R., Huang D.M., Barner J.B., Nazar L., Ravi T.S., Inam A., Dutta B., Wu X.D. and Venkatesan T., Defect structure of laser deposited YBaCuO thin films on single crystal MgO substrate, *J. Mater. Res.* **4** (1990) 704.
- [32] Daitoh Y., Shimura K., Terashima T. and Bando Y., A TEM study of microstructures of ultrathin $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ films on $\text{SrTiO}_3(100)$ and $\text{MgO}(100)$, *Bull. Inst. Chem. Res. Kyoto Univ.* **70** (1993) 5.
- [33] Marshall A.F., Char K., Barton R.W., Kapitulnik A. and Laderman S.S., Microstructural interaction of $\text{Y}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_8\text{O}_{16}$ stacking faults within $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, *J. Mater. Res.* **10** (1990) 2049.
- [34] Laval J.Y., Drouet M. et Swiatnicki W., Structure atomique interfaciale et atténuation du courant supraconducteur par les joints de grains dans les céramiques $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, *J. Phys. III France* **4** (1994) 2198.
- [35] Gao Y., Merkle K.L., Bai G., Chang H.L M. and Lam D.J., (001) tilt grain boundaries in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ thin films, *Ultramicroscopie* **37** (1991) 326.