Simulation de la diffraction cohérente d'un film polycristallin

H. PROUDHON[a], N. VAXELAIRE[b,c],S . LABAT[b,c], S. FOREST[a], O. THOMAS[b,c]

a. MINES ParisTech, Centre des matériaux, CNRS UMR 7633, BP 87 91003 Evry Cedex (France)
b. Aix-Marseille université, IM2NP
c. CNRS, IM2NP (UMR 6242), Faculté des Sciences et Techniques, Campus de St Jérome, F-13397 Marseille Cedex, France

Résumé :

La diffraction cohérente permet de caractériser les hétérogénéités de déformation dans un polycristal. La figure de diffraction dans l'espace réciproque dépend de la forme du grain illuminé et de son champ de déformation. Dans ce travail, La déformation d'un film mince polycristallin est calculée par élément finis et les figures de diffraction de certains grains en sont déduites en fonction de la déformation imposée. L'influence de la densité de maillage, de la taille et de la forme du grain illuminé est étudiée.

Abstract :

Coherent X-ray diffraction allows to characterize strain inhomogeneities in a polycrystal. The Bragg peak in reciprocal space is related to the crystal shape and the displacement field within the grain. In this paper, the strain inside a polycrystalline thin film is calculated based on Finite Element Modelling and the diffraction patterns for several grains are deduced. Mesh density, grain shape and mechanical loading conditions are studied.

Mots clefs : diffraction cohérente, méthode des éléments finis, film polycristallin

1 Introduction

Les films minces métalliques sont des composants essentiels en microélectronique, où la miniaturisation des dispositifs est un enjeu très important. Cependant, le comportement mécanique des films polycristallins à ces petites dimensions est encore mal connu. Voila pourquoi, il est nécessaire de caractériser les champs de déformations et de contraintes dans ce type d'objet. Malheureusement, une mesure directe en 3 dimensions de la contrainte reste aujourd'hui un véritable défi expérimental. Une des techniques les plus utilisées pour sonder l'état de la matière de façon non destructive reste la diffraction des rayons X. Celle-ci est très sensible aux positions atomiques mais souffre de la perte de phase de l'onde diffusée, ce qui rend toute analyse quantitative délicate. Une nouvelle technique apparue ces dernières années peut permettre de contourner cette limitation : la diffraction X en faisceau cohérent (CXRD). Son principe essentiel est de tirer parti d'une extension du théorème d'échantillonnage de Shannon. Il s'agit d'enregistrer le signal de diffraction avec une fréquence d'échantillonnage au moins deux fois supérieur à la fréquence de Nyquist [1]. Cette précaution permet par la suite de reconstruire la phase de l'onde diffractée. Dans la pratique, un certain nombre d'algorithmes sont utilisés pour parvenir à cette reconstruction [2].
Cette technique a pu être transposée au domaine des rayons X seulement grâce à l'émergence des sources synchrotron de troisième générations comme l'European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) à Grenoble ou encore le synchrotron Soleil à Orsay. De part sa brillance, ce type de synchrotron peut fournir un faisceau monochromatique présentant un haut degré de cohérence (ligne de lumière ID01 à l'ESRF ou la ligne Cristal à Soleil par exemple).
Dans un premier temps, cette nouvelle technique a été validée sur un certain nombre de petits objets notamment de petits cristaux non déformés [3]. Le problème s'avère plus ardu lorsque l'on déforme les objets étudiés. En effet, la déformation peut modifier de manière significative la tache de diffraction et les informations de forme de l'objet sont ainsi brouillées. Il semble alors nécessaire de connaître par une autre manière la forme de l'objet pour pouvoir faire converger les algorithmes de reconstruction de phase [4]. Les déformations reconstruites peuvent être de très faibles amplitude [5], si bien que des phénomènes physiques tels que l'effet de l'absorption du faisceau X par le matériau ou bien les imperfections du front d'onde peuvent être du même ordre de grandeur.
Toutes ces difficultés expérimentales illustrent bien l'apport potentiel de la simulation numérique de ces phénomènes. Ce travail montre comment il est aujourd'hui possible de calculer à priori le pic de diffraction à partir de champs de déformations calculés par méthode des éléments finis. Après un bref rappel théorique, la méthodologie employée est décrite en détail et les résultats de calculs sont exposés. En particulier, les effets de

la densité de maillage, de la forme et de l'orientation du grain illuminé sont étudiés.

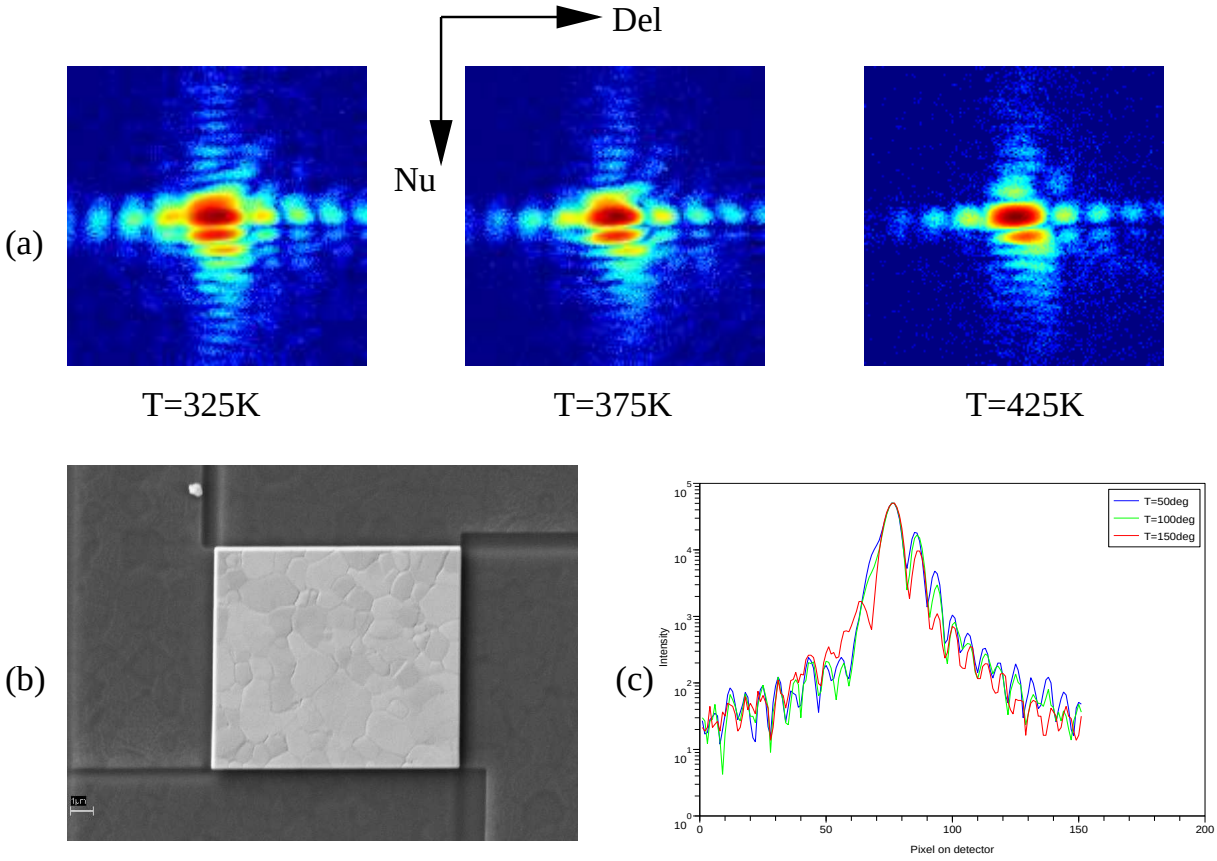


FIG. 1 – Exemple de mesures expérimentales de CXRD obtenu sur la ligne ID01 de l'ESRF au cours d'un chargement thermique : a) Coupes 2D du pic de Bragg (111), b) L'échantillon est un film polycristallin d'Au d'épaisseur 200 nm avec des grains de l'ordre du micron en surface, c) Comparaison des franges aux 3 températures dans la direction *Nu* du goniomètre.

2 Aspects théoriques

Dans le cadre de la théorie cinématique de la diffraction justifié pour ce genre de petits cristaux métalliques, l'intensité 3D résultante de la diffraction cohérente sur un nano-cristal s'exprime comme le carré de la somme de l'amplitude complexe diffusée par chaque atome :

$$I(\mathbf{q}) \propto \left| \sum_n f_n(\mathbf{q}) \exp \imath \mathbf{q} \mathbf{r}_n \right|^2 \tag{1}$$

où $\mathbf{r}_n$ correspond à la position de l'atome n et f_n à son facteur de diffusion.
Pour un cristal déformé, il est intéressant d'introduire le champ de déplacement $\mathbf{u}(x, y, z)$ correspondant au terme de déviation par rapport au réseau cristallin parfait. Ainsi, $\mathbf{r}_n = x\mathbf{a} + y\mathbf{b} + z\mathbf{c} + \mathbf{u}(x, y, z)$ où x, y et z sont entiers.
Ainsi, en exprimant le vecteur de diffusion dans l'espace réciproque (**A**,**B**,**C**), l'Eq. (1) s'écrit comme :

$$I(\mathbf{q}) \propto \left| \sum_{xyz} f(x, y, z, \mathbf{q}) \exp \left(\imath \mathbf{u}(x, y, z).\mathbf{q}\right) \exp \left(\imath 2\pi(hx + ky + lz)\right) \right|^2 \tag{2}$$

D'autre part, nous nous interessons ici à des matériaux purs, pour lesquels f_n est indépendant de n. De plus, il est possible dans la limite de Takagi [6] et en posant $\mathbf{q} = \mathbf{G} + \Delta\mathbf{q}$, de réecrire l'Eq. (2) à l'aide d'une transformée de Fourier lorsque $\Delta\mathbf{q}.\mathbf{u} \simeq 0$:

$$I(\mathbf{q}) \propto \left| TF \left\{ \rho(\mathbf{r}). \exp \left(\imath \mathbf{G}.\mathbf{u}(\mathbf{r})\right) \right\} \right|^2 \tag{3}$$

C'est cette intensité que l'on va évaluer en utilisant le champ de déplacement calculé par éléments finis avec un modèle polycristallin.

3 Simulation numérique de la diffraction

3.1 Méthodologie adoptée

Les calculs FEM ont été réalisés avec le code Z-Set/ZeBuLoN[1]. La microstructure synthétique du film polycristallin est créée à partir d'une tesselation de Voronoi 2D extrudée pour donner un modèle 3D (cf. Fig. 2). Cette procédure simplifiée représente assez bien une microstructure réelle de grains colonaires obtenus par croissance et ce type de microstructure à été récemment utilisé pour simuler les hétérogénéités de déformation dans des films minces de cuivre [7]. Les grains reçoivent une texture de fibre avec l'axe $\langle 111 \rangle$ perpendiculairement à la surface et une orientation dans le plan aléatoire. Un unique grain orienté $\langle 100 \rangle$ est aussi introduit dans la microstructure pour étudier l'effet de la désorientation cristalline. Dans l'étude qui suit on calculera le signal de diffraction de ce grain ainsi que celui d'un autre grain orienté $\langle 111 \rangle$ (cf. Fig. 2). Ces deux grains sont situés au centre du film pour limiter les effets de bords éventuels.
Précisément, une fois le calcul effectué, la tache de diffraction est calculée à partir du champ de déplacement par transformé de Fourier rapide (*FFT*) en appliquant l'Eq. (3). Pour cela, il est nécessaire d'avoir les valeurs du champ sur un réseau régulier. Un transfert du champ de déplacement est donc effectué entre le maillage éléments finis et un maillage régulier. Pour s'affranchir autant que possible du biais dû au transfert de champ dans l'étude de la densité du maillage, le maillage régulier est plus fin que le plus fin des maillages libres testés dans cette étude. Par simplicité, on calcule ici uniquement la tache due à la diffraction du plan correspondant à la surface supérieure du matériau par une FFT 2D ; en toute rigueur, il faut une FFT 3D pour tenir compte de l'épaisseur du film.

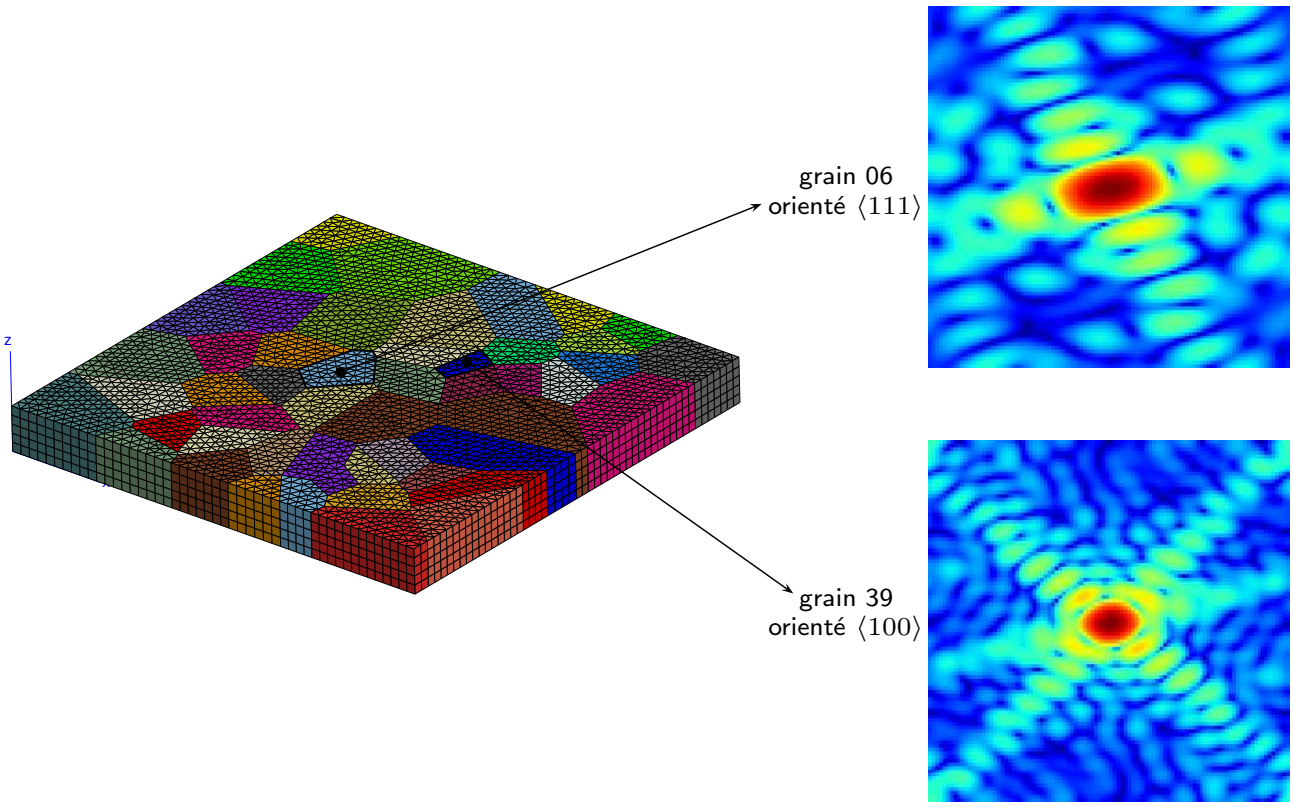


FIG. 2 – Illustration de la méthodologie de calcul : maillage du film polycristallin et exemple de calcul de taches de diffraction en l'absence de déformation (seule la forme des grains joue).

Les calculs par éléments finis sont réalisés en élasticité linéaire avec une anisotropie cubique. Les constantes élastiques C_{ij} sont de l'ordre de la centaine de GPa pour les métaux purs usuels que l'on étudie [8]. Les calculs sont ici réalisés sur un film d'or de dimensions $500 \times 500 \times 50$ µm^3. Les valeurs des C_{ij} utilisées sont les suivantes : $C_{11} = 192\,340$ MPa, $C_{12} = 163\,140$ MPa et $C_{44} = 41\,950$ MPa. Pour les cristaux cubiques à faces centrées, le vecteur de Bragg s'écrit $\mathbf{G}_{hkl} = \frac{2\pi}{a}[h,k,l]$ où a est le paramètre de maille du matériau, ici

[1] www.nwnumerics.com

$a = 0,4078$ nm.

3.2 Influence de la densité du maillage

Pour étudier l'influence du raffinement du maillage sur la forme des taches de diffraction simulées, plusieurs maillages (m_5, m_3, m_2, m_1) de la même microstructure (visible sur la Fig. 2) ont été réalisés avec des éléments de dimensions caractéristiques respectifs de 25, 15, 10 et 5 µm (cf. Tab. 3.2). Le maillage régulier pour le transfert de champ est, quand à lui toujours le même avec une taille d'éléments de 5 µm. L'évolution du pic de Bragg (111) simulé pour le grain 39 pour les différents maillages est présenté sur la Fig. 3. La tache est subtilement modifiée lorsque le maillage est raffiné mais ces modifications tendent à s'amenuiser. On peut ainsi considérer que le maillage m_2 donne des résultats satisfaisants.

maillage	m_5	m_3	m_2	m_1
nombre total d'éléments	1172	5940	27430	224410
éléments dans le grain 06	32	93	460	3860
éléments dans le grain 39	12	45	160	1340

TAB. 1 – Détails concernant le raffinement du maillage.

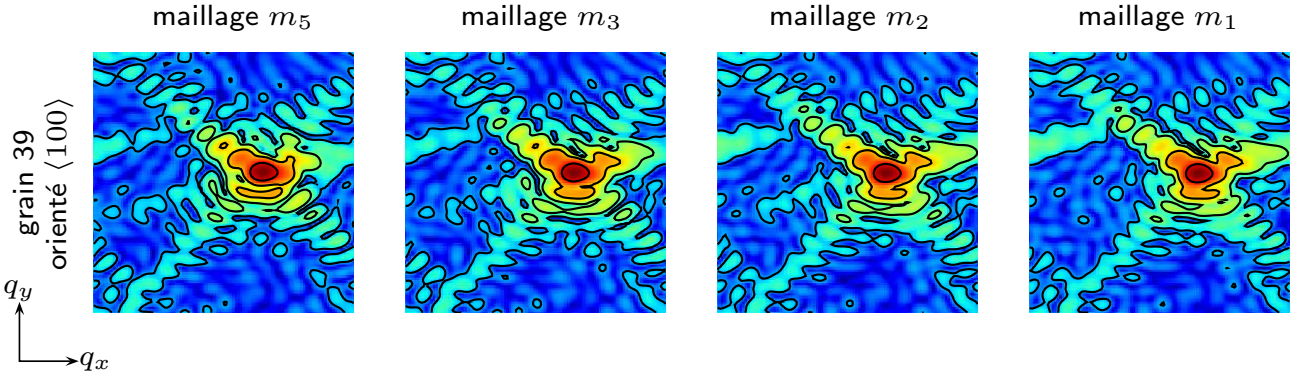


FIG. 3 – Tâche de diffraction (111) calculée pour le grain 39 avec une déformation moyenne de 1% avec un maillage de plus en plus fin ; la structure de diffraction est globalement la même mais s'affine légèrement (figures en échelle logarithmique normalisée, les contours représentent les niveaux 0.3, 0.5, 0.7, 0.9).

3.3 Exemple d'un chargement mécanique

Nous nous intéressons ici à un chargement mécanique en traction simple. Un déplacement de 0.005 mm est imposé latéralement. Les résultats de calcul ainsi que l'évolution des taches de diffraction sont présentés sur la Fig. 4.
Globalement, au cours de la déformation, les signaux de diffraction subissent un déplacement du centre de la tache couplé à des modifications de forme. Le déplacement du centre est lié à la variation moyenne du champ de déplacement au sein du grain alors que les distorsions morphologiques dépendent directement des hétérogénéités de ce champ. Pour le grain orienté $\langle 100 \rangle$, les effets sont plus prononcés que pour le grain $\langle 111 \rangle$, avec notamment la disparition d'une série de franges. Cela correspond au fait que les hétérogénités de déformation sont plus fortes pour le grain $\langle 100 \rangle$ en raison de la désorientation cristalline avec ses premiers voisins. Le grain $\langle 111 \rangle$ possède une configuration géométrique proche de celle d'un film mince texturé $\langle 111 \rangle$ et se déforme de façon plus homogène. Ce résultat numérique semble être en accord avec le comportement du film fortement texturé $\langle 111 \rangle$ observé expérimentalement (cf. Fig. 1), où les distorsions de la tache de Bragg induites par le chargement thermique sont faibles.

4 Conclusion

Ce travail montre la possibilité de simuler la diffraction X cohérente en couplant avantageusement la méthode des éléments finis, la simulation de microstructure et la transformée de Fourier rapide[2]. Le processus à été automatisé par un *post_processing* Z-Set/ZeBuLoN, permettant une utilisation efficace de ce type de simulations.

[2]nous avons utilisé la librairie libre *fftw* `(www.fftw.org) version 3.2.1`

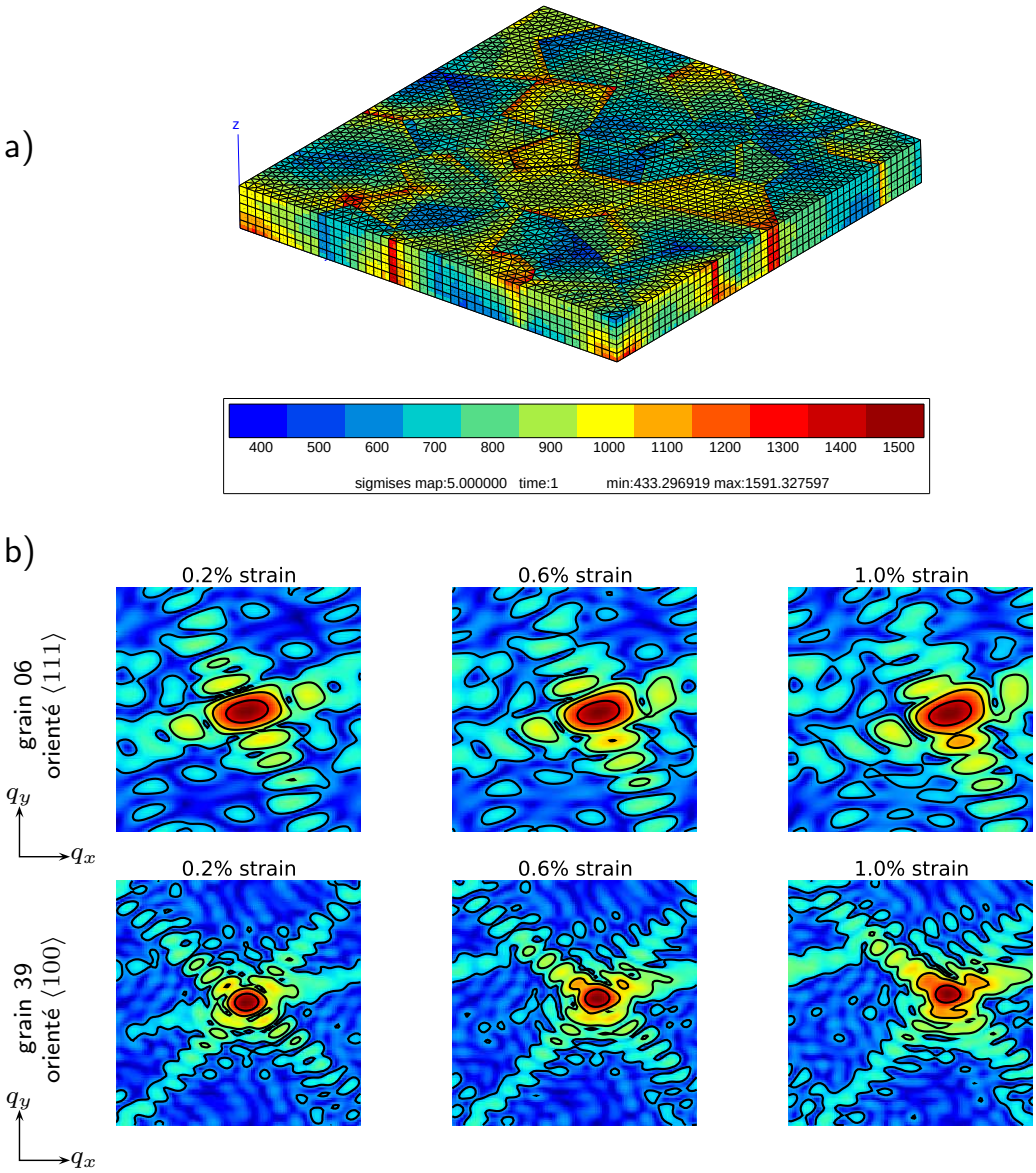


FIG. 4 – a) Iso-contraintes de von Mises dans le polycristal déformé, les deux grains étudiés en diffraction sont soulignés, b) évolution du pic (111) au cours du chargement mécanique (figures en échelle logarithmique normalisée, les contours représentent les niveaux 0.3, 0.5, 0.7, 0.9).

La suite de ce travail verra l'utilisation de maillage réalisé à partir de mesures EBSD représentant au mieux les microstructures réelles (cf. Fig. 1b) ce qui permettra de valider les mesures expérimentales et de confronter directement les différents modèles mécanique (élasticité et plasticité) pour de tels objets de faible dimensions.

5 Remerciements

Les auteurs remercient vivement A. Diaz (ID01-ESRF) pour l'aide précieuse lors des expériences à l'ESRF et J. Keckes (Univ. Leoben) pour les échantillons d'or polycristallin.

Références

[1] Sayre D. Some implications of a theorem due to shannon. Acta Crystallogr., 1952.

[2] Fienup J. R. Phase retrieval algorithms : a comparison. Appl. Opt, 1982.

[3] Williams G. J., Pfeifer M. A., Vartanyants I. A., and Robinson I. K. Three-dimensional imaging of microstructure in au nanocrystals. Phys. Rev. Lett., 90(17), 175501, Apr 2003.

[4] A. A. Minkevich J.-S. M. B. C. V. C., M. Gailhanou and Thomas O. Inversion of the diffracted pattern from an inhomogeneously strained crystal using an iterative algorithm. Phys. Rev. B, 2007.

[5] Pfeifer M., Williams G., Vartanyants I., Harder R., and Robinson I. Three-dimensional mapping of a deformation field inside a nanocrystal. NATURE, 442(7098), 63–66, JUL 6 2006.

[6] Takagi S. J. Phys. Soc. Jpn, 1969.

[7] Siska F., Forest S., Gumbsch P., and Weygand D. Finite element simulations of the cyclic elastoplastic behaviour of copper thin films. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, 15(1), S217–S238, 2007.

[8] Neighbours J. R. and Alers G. A. Elastic constants of silver and gold. Phys. Rev., 111(3), 707–712, Aug 1958.