



HAL
open science

Simulations numériques et mesures expérimentales du comportement mécanique de films minces, effets d'échelles

Sinh Vu Hoang

► **To cite this version:**

Sinh Vu Hoang. Simulations numériques et mesures expérimentales du comportement mécanique de films minces, effets d'échelles. Autre. Université de Grenoble, 2013. Français. NNT : 2013GREN1105 . tel-03219708

HAL Id: tel-03219708

<https://theses.hal.science/tel-03219708>

Submitted on 6 May 2021

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.

UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE GRENOBLE

Spécialité : **Matériaux, Mécanique, Génie Civil, Electrochimie**

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

Sinh VU HOANG

Thèse dirigée par **Marc VERDIER** et
coencadrée par **Guillaume PARRY**

préparée au sein du **Laboratoire Science et Ingénierie des
Matériaux et des Procédés**
dans l'**Ecole Doctorale Ingénierie-Matériaux Mécanique
Énergétique Environnement Procédés Production**

Simulations numériques et mesures expérimentales du comportement mécanique de films minces

Thèse soutenue publiquement le **11 Juillet 2013**,
devant le jury composé de :

M. Samuel FOREST

Professeur, Mines de Paris (Rapporteur)

M. Christian OLAGNON

Professeur INSA Lyon (Rapporteur)

M. Christophe TROMAS

Maître de Conférences, Université de Poitiers (Examineur)

M. Rafael ESTEVEZ

Professeur, Université Joseph Fourier (Président)

M. Marc VERDIER

Chargé de Recherche CNRS, lab. SIMaP (Directeur)

M. Guillaume PARRY

Maître de Conférences, Grenoble INP (co Encadrant)



Table des matières

1	CONTEXTE ET REVUE BIBLIOGRAPHIQUE	7
1.1	CADRE DU PROBLEME POSE	7
1.2	GENERALITES SUR L'ESSAI D'INDENTATION	7
1.2.1	CHOIX D'UN INDENTEUR	10
1.2.2	MECANIQUE DU CONTACT ELASTIQUE	10
1.3	APPLICATION DES SOLUTIONS ELASTIQUES	11
1.3.1	EXPLOITATION DE L'INDENTATION INSTRUMENTEE	11
1.3.2	ELASTICITE ANISOTROPE	13
1.4	METHODES D'IDENTIFICATION D'UNE LOI DE COMPORTEMENT PLASTIQUE	14
1.5	PLASTICITE CRISTALLINE	18
1.5.1	PLASTICITE CRISTALLINE ET INDENTATION	18
1.5.2	LOIS CONSTITUTIVES ET BASE PHYSIQUE DE LA PLASTICITE CRISTALLINE	22
1.6	GEOMETRIE FILM/SUBSTRAT	24
1.6.1	DETERMINATION DU MODULE D'ELASTICITE DES FILMS	24
1.6.2	PLASTICITE FILM/SUBSTRAT	27
1.7	EFFET DE TAILLE EN INDENTATION	29
1.8	CONTEXTE ET OBJECTIFS DE L'ETUDE	30
2	METHODES NUMERIQUES ET EXPERIMENTALES	33
2.1	METHODE NUMERIQUE UTILISEE	33
2.1.1	METHODE DES ELEMENTS FINIS	33
2.1.2	LOIS DE COMPORTEMENT DE PLASTICITE CRISTALLINE	35
2.1.3	FORMULATION IMPLICITE UMAT	35
2.2	POST-TRAITEMENT DES CALCULS	40
2.2.1	AIRE DE CONTACT	41
2.2.2	RIGIDITE DE CONTACT	44
2.3	NANOINDENTATION	45
2.3.1	MATERIEL ET CONDITIONS EXPERIMENTALES	45
2.4	AFM	48
2.5	MATERIAUX	50
2.5.1	MONOCRISTAUX DE CU	50
2.5.2	FILM CU/SI	50
2.5.3	FILM VERRES METALLIQUES ZRNI/SI	51
3	ECHANTILLON MASSIF	53
3.1	PRISE EN COMPTE DE LA DEFORMATION DE L'INDENTEUR	53
3.2	CHARGEMENT ET RIGIDITE DE CONTACT DANS LE CAS ELASTO-PLASTIQUE	58
3.3	CAS DE LA PLASTICITE ANISOTROPE (PLASTICITE CRISTALLINE)	63
3.4	STRATEGIE D'IDENTIFICATION ET ROBUSTESSE DU MODELE- CU (111)	68
3.4.1	IDENTIFICATION DE P ₁ A PARTIR DES COURBES DE CHARGE	69
3.4.2	IDENTIFICATION DES RIGIDITES	72
3.4.3	SENSIBILITE DES DEFORMEES DE SURFACE PAR RAPPORT AUX MODELES D'ECROUISSAGE	75
3.5	APPLICATION AU CAS DU CU (001)	79
3.6	BILAN DE L'ANALYSE	84
4	FILM SUR SUBSTRAT	87

4.1	CADRE DU CHAPITRE.....	87
4.2	COMPORTEMENT FILM ELASTIQUE-PLASTIQUE ISOTROPE SUR SUBSTRAT ELASTIQUE.....	89
4.3	CAS DU FILM ELASTIQUE-PLASTIQUE ANISOTROPE.....	93
4.4	VALIDATION EXPERIMENTALE : FILM DE Cu(001) SUR Si(001).....	99
4.4.1	POINTE CONIQUE 72°.....	100
4.4.2	POINTE CONIQUE 62°.....	108
4.5	CONCLUSIONS	113
5	<u>ÎLOT SUR SUBSTRAT.....</u>	<u>115</u>
5.1	CONTEXTE DE L'ETUDE	115
5.2	SOLLICITATION THERMO-ELASTIQUE ET DIFFRACTION X COHERENTS.....	115
5.2.1	RESULTATS EXPERIMENTAUX Cu/TA	115
5.2.2	SIMULATIONS EN ELASTIQUE ANISOTROPE	117
5.3	INDENTATION SUR ILOT Cu/TA.....	119
5.4	CONCLUSIONS	120
6	<u>CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES.....</u>	<u>122</u>
7	<u>ANNEXES.....</u>	<u>125</u>
7.1	GEOMETRIE DES INDENTEURS CLASSIQUES	125
7.2	SCRIPTS MATLAB	126
7.3	FILM DE VERRE METALLIQUE ZrNi/Si	126
7.3.1	IDENTIFICATION DU MODULE D'ELASTICITE	127
7.3.2	IDENTIFICATION A UNE LOI D'HOLLOMON	129
8	<u>BIBLIOGRAPHIE.....</u>	<u>132</u>

REMERCIEMENTS

Ce travail a été réalisé au laboratoire Science et Ingénierie des Matériaux et Procédés SIMaP, au sein du groupe Physique des Métaux (PM). Je tiens à remercier Mr Michel Pons, directeur du laboratoire et Mme Patricia Donnadiou, responsable du groupe PM, de m'y avoir accueilli.

Je tiens à grand remercier tout particulièrement les deux personnes qui ont encadré cette thèse: Mr Marc VERDIER, chargé de Recherche CNRS, et Mr Guillaume PARRY, Maître de Conférences, Grenoble INP. J'ai apprécié en particulier leurs compétences scientifiques, leurs grandes qualités humaines et leurs soutiens professionnels ce qui m'a permis d'approfondir mes connaissances dans le domaine de technique indentation et simulation numérique. En effet, le moment quand j'écris ce rapport, je suis déjà traversé plusieurs postes: post-doctorant de l'école de Mine de Saint-Etienne, 5 mois dans une entreprise prestataire à Paris en tant que l'ingénieur de calcul, 5 mois le chef de mon entrepreneur photographique et 2 ans dans l'entreprise Michelin. La technique d'indentation, plus tôt la connaissance dans le domaine élastoplastique des métaux et la technique de la méthode des éléments finis que j'ai pris avec vous me permet de servir beaucoup dans la suite de mon carrière.

Je tiens également à remercier profondément l'ensemble des membres du SIMAP, spécialement à l'équipe PM avec qui j'ai passé d'agréables moments durant ces trois années.

Merci à mes amis français et mes amis Vietnamiens en France. Merci à tous pour votre bonne humeur et votre encouragement, je garderai un excellent souvenir de ces années. Spécialement, je tiens à remercier Benjamin qui m'a partagé un très bon moment autour des activités photographiques.

Enfin, grand merci à mes parents, mes sœurs, ma femme Minh-Thi et mon fils Lucas pour leurs encouragements et soutiens.

1 Contexte et revue bibliographique

1.1 Cadre du problème posé

L'essai de nanoindentation est une technique de caractérisation des propriétés mécaniques locales. Cet outil est aujourd'hui largement utilisé mais l'interprétation en vue d'une exploitation fine de la physique des mécanismes de déformation reste encore limitée. Les travaux de cette thèse portent sur la modélisation de l'essai d'indentation sur des matériaux ayant un comportement élasto-plastique. Dans cette étude fondamentale, l'approche de modélisation se veut quantitative (capable de reproduire des résultats expérimentaux) et prédictive (capable d'anticiper sur des résultats expérimentaux une fois les paramètres matériaux et géométriques correctement calés). Il est donc nécessaire de mener, en parallèle du calcul, des expériences de nanoindentation sur des systèmes "modèles", c'est à dire dont les mécanismes élémentaires de déformation sont suffisamment compris et dont la microstructure est connue. Notre choix de système modèle s'est porté vers des monocristaux de Cu déformés à température ambiante ainsi que sur un film Cu épitaxié sur Si d'une épaisseur de l'ordre du micron, qui permet d'explorer les effets de confinement lors de la déformation. La robustesse du modèle sera évaluée par rapport à sa capacité à reproduire un certains nombres de réponses du système en déformation, en particulier la courbe de charge comme c'est classiquement le cas, la déformation résiduelle de surface après décharge rarement rapportée de manière quantitative et de manière plus originale, la rigidité de contact et la dureté en fonction du déplacement total imposé. In fine, une exploration numérique sera menée sur des systèmes aux conditions limites plus complexes tels que des îlots épitaxiés sur substrat.

1.2 Généralités sur l'essai d'indentation

L'essai d'indentation est une méthode simple pour mesurer des propriétés mécaniques locales des matériaux. Historiquement cette méthode de caractérisation a été développée par les géologues pour comparer la dureté de roches en mesurant l'empreinte résiduelle suite à l'application d'un coup de marteau ou d'une rayure. Une échelle qualitative définie par F.Mohs en 1822 a été ainsi établie pour classer relativement la capacité à rayer. Ultérieurement des protocoles plus quantitatifs ont été établis et la méthode 'statique' en métallurgie consiste à appliquer une charge calibrée à l'aide d'un poinçon 'dur' (généralement

en diamant ou saphir), de géométrie bien définie et connue (sphère -Brinell, pyramide – Vickers, cône...) et de mesurer la taille de l’empreinte résiduelle dans le matériau à caractériser : on peut ainsi définir une dureté (pression d’écoulement) à partir de l’exploitation de la force appliquée F et de l’aire mesurée A , soit F/A . Il faut noter ici que quelle que soit la définition de la dureté utilisée, cette mesure n’est pas intrinsèque des propriétés physiques des matériaux car dépendante du type d’indenteur, des paramètres de l’essai etc. Elle traduit d’une manière générale la résistance du matériau à la pénétration d’un indenteur. Son intérêt est lié à son caractère local –mesure non destructive sur des échantillons massifs- et sa grande simplicité de mise en œuvre -cas des films minces sur substrat où l’extraction d’une éprouvette est fastidieuse voire impossible.

L’essai instrumenté, étendu aux fines échelles (sub-micrométrique) vers la fin des années 1980 notamment par Loubet en France et Pethica en Angleterre, consiste à mesurer et contrôler finement la force appliquée ainsi que le déplacement total de l’indenteur. L’exploitation quantitative de la courbe de force-déplacement, représentée Figure 1 devient alors possible. Cet essai instrumenté (‘nanoindentation’ aux échelles submicrométriques) est devenu une technique standard de caractérisation locale de propriétés mécaniques, en particulier pour ce qui concerne les matériaux en films minces sur substrat [Nix 97]. La *Figure 1* montre une courbe typique du comportement d’un solide élasto-plastique au cours d’un essai d’indentation.

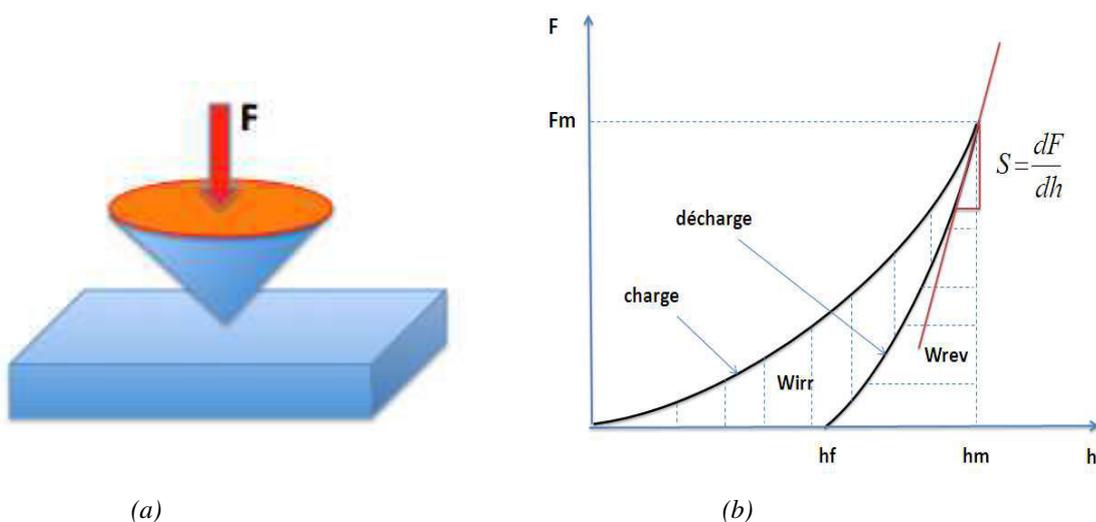


Figure 1: Essai d’indentation (a) Indentation avec un indenteur conique, (b) Courbe de force-déplacement pour un solide élasto-plastique

La courbe est constituée d'une étape de charge avec une évolution de la force d'une valeur initiale nulle vers une valeur maximale F_m auquel correspond à un enfoncement h_m . Le stade de décharge est déterminé lorsque l'indenteur est retiré de la surface du matériau. La force diminue d'une valeur de F_m à une valeur nulle lorsque l'indenteur quitte la surface du matériau. L'intérêt de ce stade est de déterminer la rigidité de contact entre l'indenteur et le matériau analysé. Cette grandeur, notée S , est la rigidité de contact (Stiffness contact). En résumé, un essai d'indentation instrumenté consiste à acquérir finement trois grandeurs que sont l'effort (force en Newton), le déplacement (en mètre) et la rigidité de contact (N/m).

L'évolution de la courbe de charge et de décharge dépend du comportement du matériau. Lorsque le comportement du matériau est élastique, les courbes de charge et décharge sont confondues ; si le comportement de matériau est par exemple élasto-plastique, à la fin de la décharge, il reste une profondeur finale h_f , nommée profondeur résiduelle causée par la déformation plastique.

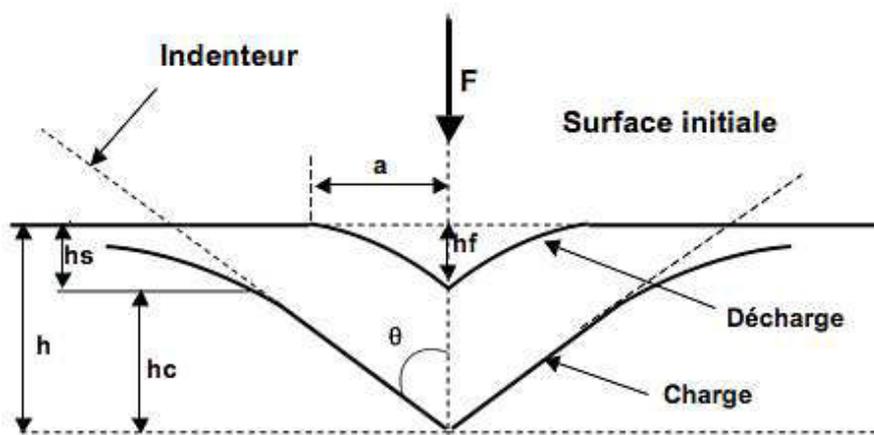


Figure 2: Topologie du contact d'un essai d'indentation d'un indenteur sphéro-conique. Profondeur de l'indentation h (h_m), profondeur résiduelle h_f , hauteur de contact h_c (associé à a rayon de contact)

Le travail de déformation élastique et plastique est facilement identifiable sur la courbe de charge-déplacement Figure 1(b). Le travail total W_{tot} de l'indentation et le travail irréversible W_{irr} sont définis respectivement par l'aire au dessous de la courbe de charge et entre la courbe de charge et décharge. Le travail total est la somme du travail réversible et du travail irréversible.

$$W_{tot} = W_{rév} + W_{irr} \quad \text{Équation 1}$$

Le travail réversible est récupérable, le travail irréversible est dissipé à cause de la déformation plastique (au sens général : plasticité cristalline, endommagement...).

1.2.1 Choix d'un indenteur

Le choix de l'indenteur est la première étape d'un tel essai. Il y a deux critères: le matériau constitutif et la forme de l'indenteur. Pour rendre minimale l'influence de la déformation de l'indenteur pendant l'essai, le matériau de la pointe doit être le plus rigide et dur possible. Dans la pratique, le diamant et le saphir sont les matériaux les plus couramment utilisés (Ediamant~1100GPa, Esaphir~400GPa ; Hdiamant~40 GPa et Hsaphir~30GPa) [McColm 90] sous différentes géométries : une sphère de rayon R, un cône de demi angle θ , et plus couramment des pyramides, Vickers (4 faces) ou Berkovich (3 faces) dont le détail est donné en annexe. L'intérêt des formes pyramidales est dans le polissage plus aisé du diamant sous cette forme que celle d'un cône. La pyramide à trois faces est préférée car l'apex de la pointe est réalisée avec un meilleur contrôle (interception de 3 plans). La géométrie de l'indenteur conditionne la forme du contact via le déplacement imposé par la pointe. Mécaniquement, il s'agit d'un problème complexe où les conditions limites sont mixtes : champ de déplacement imposé au niveau du contact entre la pointe et le matériau et contrainte nulle (surface libre) hors du contact.

1.2.2 Mécanique du contact élastique

Historiquement la résolution du problème du contact mécanique élastique a été établie à partir de la fin du XIX siècle grâce notamment aux travaux de Hertz (1882) –contact entre deux sphères, Boussinesq (1885) [Boussinesq 85] – force ponctuelle sur un massif semi-infini, Love (1939) –contact avec une pointe conique et Sneddon (1948) –rigidité de contact généralisée [Sneddon 48]. La table suivante résume les solutions analytiques pour les trois principales géométries d'indenteur en sollicitation élastique: $P(h)$, $S(h)$, $r_c(h)$, $S(r_c)$ sont respectivement la force, la rigidité de contact, le rayon de contact et la surface de contact à une profondeur h, R le rayon de la sphère / du poinçon plat et θ le demi-angle du cône [Johnson 85].

<i>Indenteur</i>	<i>Cône</i>	<i>Sphère</i>	<i>Poinçon plat</i>
$P(h)$	$\frac{2}{\pi} E_{eq} \tan(\theta) h^2$	$\frac{4}{3} E_{eq} \sqrt{Rh}^{\frac{3}{2}}$	$2E_{eq} Rh$

$S(h)$	$\frac{4}{\pi} E_{eq} \tan(\theta) h$	$2E_{eq} \sqrt{Rh}$	$2E_{eq} R$
$r_c(h)$	$\frac{4}{\pi} E_{eq} \tan(\theta) h$	\sqrt{Rh}	R
$S(r_c)$	$2E_{eq} r_c$		
$H(h)$	$\frac{1}{2} E_{eq} \cot(\theta)$	$\frac{4}{3\pi} E_{eq} \sqrt{h/R}$	$\frac{2E_{eq} h}{\pi R}$

Tableau 1: Solutions élastiques pour des géométries de pointes conique, sphérique et plate

On peut remarquer ici la généralité de l'équation de Sneddon :

$$S=2.E.r_c \quad \text{Équation 2}$$

concernant la rigidité de contact, relation fondamentale qui va permettre une exploitation quantitative des essais instrumentés.

1.3 Application des solutions élastiques

1.3.1 Exploitation de l'indentation instrumentée

La clé de l'exploitation quantitative des essais d'indentation instrumentée repose sur l'équation de Sneddon. Entre 1973 et 1987, différents auteurs (Shorshorov, Bulychev, Alekin) ont montré l'extension de son application à des comportements élasto-plastiques et à des indenteurs ne présentant pas de symétrie de révolution [Bulychev 87] : la courbe de décharge pouvant être considérée comme élastique, la pente initiale ($S_{\max}=dF_{\max}/dh$) Figure 1 peut être assimilée à une raideur et le produit $E.r_c$ exploité. Il est ainsi possible d'accéder au module élastique, indépendamment de la plasticité, et sous réserve d'hypothèses fortes ou de mesures post-mortem, à l'aire de contact qui est l'inconnue principale.

La méthode proposée par W.Oliver et G.Pharr [Oliver 92] est la méthode la plus répandue et fait appel à une hypothèse forte de partitionnement de la hauteur d'enfoncement à partir des courbes de décharge. Expérimentalement, il est montré qu'en décharge, l'effort F se retrouve dans une relation générale avec l'enfoncement h et la profondeur résiduelle, h_f , c'est l'observation expérimentale constatée par l'école russe:

$$F = \alpha(h - h_f)^m \quad \text{Équation 3}$$

Avec α et m sont des constantes dépendant du matériau. $1.2 \leq m \leq 1.6$

La profondeur h_s , Figure 2, est déterminée dans le cadre d'hypothèse que l'enfoncement est de type élastique:

$$h_s = \varepsilon \frac{F_{\max}}{S} \quad \text{Équation 4}$$

Les auteurs partitionnent alors pour obtenir la hauteur de contact h_c :

$$h_c = h_{\max} - \varepsilon \frac{F_m}{S_{\max}} \quad \text{Équation 5}$$

avec ε une constante qui dépend de la géométrie de l'indenteur et est obtenue à partir de l'hypothèse de décharge élastique (équations $F(h)$ de la table 1 combiné au déplacement normal de la solution élastique le long de l'axe de révolution) : $\varepsilon=1$ pour le poinçon plat, $\frac{3}{4}$ pour la sphère et $2/\pi(\pi-2)$ pour le cône (~ 0.72).

La dureté du matériau est définie par le rapport de la force avec l'aire de contact:

$$H = \frac{F_m}{A} \quad \text{Équation 6}$$

Le module d'élasticité du matériau est déterminé par la relation de Sneddon entre la rigidité et l'aire de contact. Cette relation est toujours correcte dans le cas de contact élastique.

$$S = \beta \frac{2}{\sqrt{\pi}} E_{\text{eff}} \sqrt{A} \quad \text{Équation 7}$$

avec β est une constante dépendant de la géométrie de l'indenteur, E_{eff} est le module apparent défini par (hypothèses d'élasticité isotrope et d'addition des raideurs pointe/matériau en série):

$$\frac{1}{E_{\text{eff}}} = \frac{1-\nu^2}{E} + \frac{1-\nu_1^2}{E_1} \quad \text{Équation 8}$$

avec E , ν , E_i, ν_i qui sont respectivement le module d'élasticité, le coefficient de Poisson du matériau analysé et celui de l'indenteur. En élasticité isotrope, le module élastique d'indentation M est en effet défini par $M = E/(1-\nu^2)$.

La méthode d'Oliver-Pharr est l'analyse la plus utilisée et citée pour exploiter directement l'essai instrumenté. Elle est cependant restreinte à l'hypothèse forte de la topologie du contact élastique : dans ce cas h_c/h est toujours inférieur à 1 (phénomène d'enfoncement ou sink-in) alors que l'empreinte est le résultat de l'étape de charge et donc par exemple d'un écoulement élasto-plastique qui peut conduire au contraire à la formation d'un bourrelet, Figure 3.

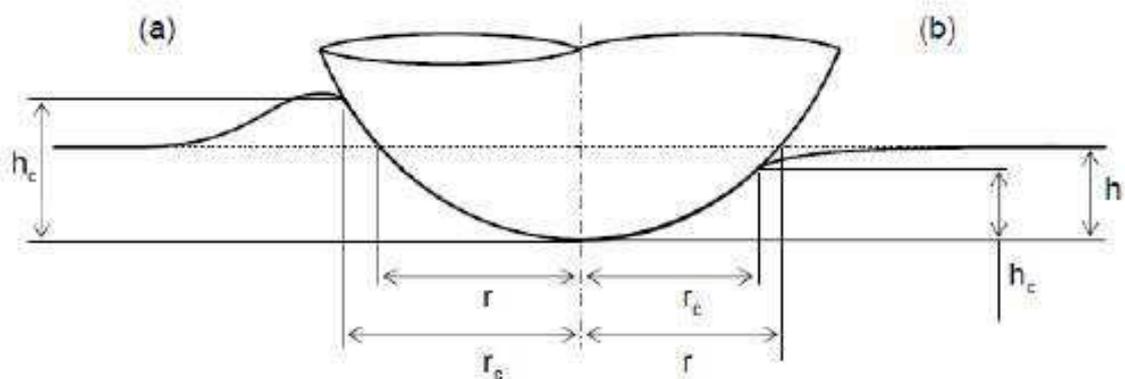


Figure 3 : Topologie de contact sous charge correspondant à (a) un bourrelet $h_c > h$, (b) un enfoncement $h_c < h$

Un bourrelet apparaît dans le cas général des métaux ou de géométrie confinée comme le film sur substrat rigide qui nous intéresse dans cette étude. L'analyse Oliver-Pharr est alors source d'erreurs importantes [Cheng 98].

Une alternative phénoménologique valide en comportement général (enfoncement/bourrelet) a été proposée par JL Loubet et validée par des calculs par la méthode des éléments finis [Hochstetter 04, Bucaille 02] et propose d'utiliser le partitionnement $h_c = \alpha_{Loubet} F/S$, avec $\alpha_{Loubet} = 1.2$.

1.3.2 Elasticité anisotrope

A de rares exceptions, la plupart des matériaux présentent une élasticité anisotrope. En s'appuyant sur une méthode semi-inverse proposée par Willis [Willis 66] du calcul d'un poinçon plat circulaire sur un massif semi-infini anisotrope élastique, Vlassak et Nix [Vlassak 93] ont proposé des expressions pour déterminer le module élastique d'indentation pour des

surfaces de haute symétrie cristallographique ((001), (111) et (110)). Ces auteurs ont montré une dépendance du module d'indentation à l'orientation de la surface indentée qui est certes moins importante qu'en essai de sollicitation uni-axiale mais ne peut être négligée (variation de 25% pour le Cuivre). La démarche plus précise que nous appliquerons consiste à faire appel à la méthode des éléments finis en 3D: le tenseur élastique complet du cristal et la surface cristallographique à indenter sont introduits dans un calcul élastique de la courbe de charge $F(h)$ ainsi que la géométrie précise et le comportement élastique de l'indenteur. La dérivée de cette courbe avec la détermination du rayon de contact permettent d'utiliser la relation de Sneddon pour obtenir le module d'indentation sans hypothèse de calcul.

1.4 Méthodes d'identification d'une loi de comportement plastique

Pour identifier la loi de comportement d'un matériau à partir de l'essai d'indentation, il est nécessaire de postuler une loi de comportement. La prise en compte du comportement élasto-plastique est complexe, car elle nécessite de définir la contribution de chaque mécanisme (élastique / plastique) pendant l'essai. Pour cela, Tabor [Tabor 51] a comparé sur des aciers les valeurs de dureté obtenues avec des indenteurs sphériques à la courbe de traction du matériau : il propose d'associer à un essai d'indentation une déformation représentative ϵ_r . La relation qu'il obtient s'écrit :

$$\epsilon_r \sim 0.2 a/R \quad \text{Équation 9}$$

pour une sphère de rayon R et avec un rayon de contact $r_c = a$ (Figure 3),

$$\epsilon_r \sim 0.2 \cotg(\theta) \quad \text{Équation 10}$$

pour un cône. On voit ici la distinction fondamentale entre les indenteurs sphériques et les indenteurs de type auto-similaire : au cours de l'enfoncement de la sphère, le rayon de contact croît et donc la déformation équivalente aussi, alors que pour un cône (et par assimilation les géométries pyramidales que l'on peut associer Vickers et Berkovich) cette déformation représentative est constante quelle que soit la profondeur de l'essai. Elle vaut de l'ordre de 7% pour un indenteur Berkovich. La sphère, suivant le rayon R employé, va permettre une sollicitation élastique pure puis élasto-plastique, alors que pour un cône parfait (sans défaut de pointe), la plasticité est initiée immédiatement [Johnson 85]. A partir des expressions dimensionnelles de la déformation représentative, Tabor aboutit à la relation entre dureté et contrainte d'écoulement σ_r à la déformation correspondante ϵ_r :

$$H \sim 3\sigma_r$$

Équation 11

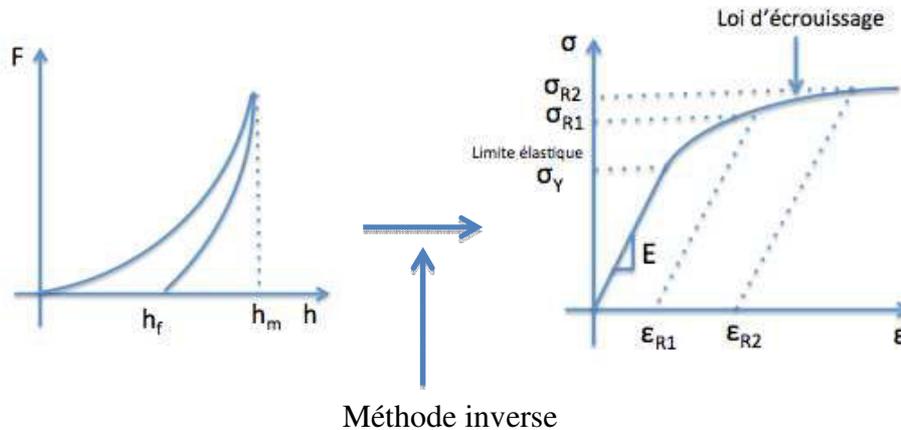


Figure 4 : Correspondance schématique entre courbe d'indentation et essai de traction équivalent

Tabor montre que pour reconstruire une courbe de traction équivalente, il faut utiliser plusieurs sphères ou plusieurs cônes d'angle différents, Figure 4, afin de couvrir, par différents ϵ_r , le domaine de déformation recherché. Dans le cadre d'un comportement élastique-plastique parfait, Johnson propose un modèle de cavité en expansion [Johnson 85] qui repose sur une hypothèse forte de symétrie radiale du champ de déplacement et permet de retrouver notamment la relation de Tabor entre la dureté et la limite de plasticité, mais aussi de définir un volume plastique à partir du type d'indenteur et du matériau (module élastique et limite d'élasticité).

Méthodes inverses

Les approches précédentes permettent d'obtenir des relations qualitatives mais les hypothèses retenues concernant le chemin de déformation et les lois de comportement du matériau ne permettent pas d'établir de résultats quantitatifs. La méthode inverse est une exploitation numérique des courbes d'indentation expérimentales en vue d'en déduire des renseignements sur le comportement plastique des matériaux indentés. Elle simule l'indentation de toute une famille de comportements représentatifs des matériaux étudiés. Une fois cette discrétisation du domaine étudié effectuée, une courbe d'indentation expérimentale peut être décrite comme une pondération des courbes simulées les plus proches. Le matériau associé est alors déduit par interpolation entre les comportements matériaux associés à ces deux courbes

d'indentation voisines. C'est par l'utilisation extensive de la méthode des éléments finis que Larsson et al. ont ainsi mis en œuvre cette démarche pour le problème de l'indentation de matériaux élasto-plastiques [Giannakopoulos 94]. La majeure partie de ces études s'appuie sur l'utilisation de lois de comportement plastique phénoménologique de type Hollomon, à partir d'une limite d'élasticité σ_y et d'un écrouissage en déformation plastique en loi puissance :

Le domaine élastique linéaire est défini par :

$$\forall \varepsilon \in [0, \varepsilon_y] : \sigma = E\varepsilon \quad \text{Équation 12}$$

Le domaine plastique est défini par :

$$\forall \varepsilon > \varepsilon_y : \sigma = \sigma_y \left(\frac{\varepsilon}{\varepsilon_y} \right)^n \quad \text{Équation 13}$$

Le coefficient n est le coefficient d'écrouissage et sa valeur est comprise entre 0 et 0.5, valeurs typiques relevées sur les métaux correspondant à un comportement plastique parfait et à une très fort durcissement d'écrouissage respectivement. Le domaine plastique est entièrement défini par le couple (σ_y, n) . On peut décomposer la déformation totale, ε_{tot} , en une déformation plastique ε_{pl} et une déformation élastique, ε_{el} . A une contrainte σ donnée, on écrit ces trois déformations comme:

$$\varepsilon_{tot} = \frac{\sigma_y}{E} \left(\frac{\sigma}{\sigma_y} \right)^{\frac{1}{n}} \quad \text{Équation 14}$$

$$\varepsilon_{el} = \frac{\sigma}{E} \quad \text{Équation 15}$$

$$\varepsilon_{pl} = \varepsilon_{tot} - \varepsilon_{el} \quad \text{Équation 16}$$

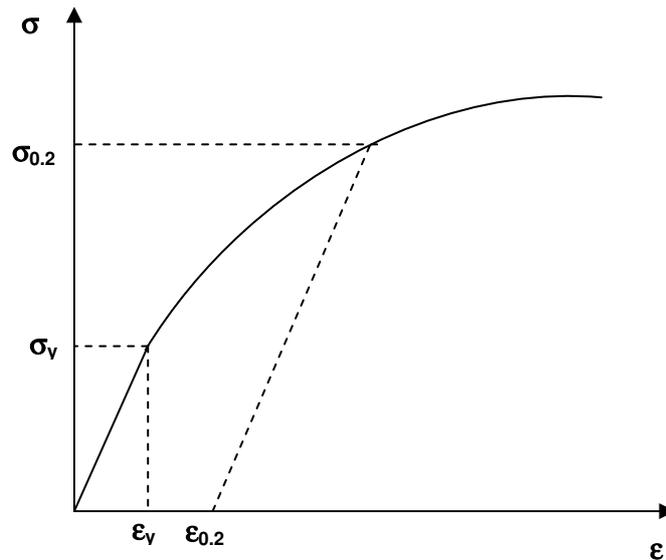


Figure 5 : Courbe de contrainte en fonction de la déformation

Le processus d'identification correspond alors à retrouver au moins les trois paramètres constitutifs : E , ϵ_y et n . L'étude dimensionnelle de l'essai d'indentation a été menée complètement par Cheng et al [Cheng 98] [Cheng 02]: en effet le nombre de simulations nécessaires est le produit sur le nombre de paramètres d'entrée à identifier, les plages de variations discrétisées et la résolution désirée. Afin de minimiser le nombre de simulations nécessaires les travaux de Cheng et Cheng ont permis d'identifier les relations de similitudes et d'influence dimensionnelle. En ce qui concerne l'indentation par des pointes coniques ou pyramidales, on peut ainsi déduire un comportement parabolique des courbes de charge ($F=C.h^2$), ainsi qu'une allure homothétique des courbes d'indentation en fonction du module élastique du matériau. En plus de cette analyse dimensionnelle, des limites sont fixées quant aux nombres de paramètres identifiables indépendamment à partir d'une courbe de charge-déplacement : un seul paramètre pour la courbe de charge et 2 pour la décharge : potentiellement seuls 3 paramètres sont identifiables. De nombreuses études paramétriques ont été publiées proposant des solutions numériques : elles se distinguent essentiellement par les algorithmes et les grandeurs additionnelles pour enrichir les solutions. Dao et al. sont ainsi les premiers à proposer une méthode [Dao 01] pour identifier 3 paramètres, sans enrichissement extérieur à la courbe d'indentation : cette méthode n'est pas robuste car comme le montre [Casals 05], il n'existe pas de bijectivité dans l'approche suivie par Dao et al : deux courbes de traction distinctes par exemple peuvent produire la même réponse en indentation et une manière de lever l'incertitude est par exemple de comparer les topologies des empreintes résiduelles. De plus Casals et al montrent qu'il n'est pas possible d'identifier

plus de deux grandeurs à partir d'une seule courbe d'indentation. Simultanément sont proposées des approches combinant plusieurs géométries de pointes : [Bucaille 02] proposent d'utiliser par exemple deux cônes de demi-angle compris entre 60 et 70° (domaine dans lequel le coefficient de friction serait négligeable) pour déterminer les 3 paramètres d'une loi de type Hollomon, similairement à [Chollacoop 03]. Enfin Kermouche [Kermouche 05] propose une loi phénoménologique s'inspirant des solutions de Lockett d'approche du type slip lines field [Lockett 63] permettant de reconstruire la loi élasto-plastique du matériau aussi à partir de plusieurs indenteurs, loi qui a le mérite de tendre vers les bonnes solutions pour les cas limites de comportement élastique parfait ou rigide parfait.

Il est par contre possible de simuler l'essai d'indentation par exemple avec la méthode des éléments finis en imposant des lois de comportement des matériaux pour en évaluer leur applicabilité. Il est donc possible d'associer une courbe d'indentation à un comportement matériau donné et ainsi résoudre ponctuellement le problème. C'est la méthode directe que nous privilégions dans le cadre de cette étude portant sur la plasticité cristalline : en effet les lois type Hollomon ne sont pas à base physique : elles « miment » un comportement d'érouissage par une loi puissance sans permettre de relier à des mécanismes physiques de la déformation plastique comme les dislocations dans les matériaux cristallins. L'intérêt d'une approche directe à base physique est aussi de pouvoir enrichir le modèle par des données extérieures à la courbe d'indentation comme par exemple les anisotropies de déformations / d'écoulement ou de rotation cristalline.

1.5 Plasticité cristalline

1.5.1 Plasticité cristalline et indentation

La plasticité cristalline concerne la modélisation du comportement mécanique des matériaux cristallins. Dans les matériaux cristallins, la plasticité est causée par les mouvements de lignes de dislocation. Dans les métaux cubique face centré à la température ambiante comme le Cu de notre sujet d'étude, les dislocations glissiles sont restreintes aux plans (111). Les lignes de dislocations sont caractérisées par le défaut de Burgers correspondant à un saut atomique suivant [110] soit $b=2.56$ Angstroms pour le Cu: il y a ainsi 12 systèmes de glissement (111)[110] représentés Figure 6 et la table associée (3 directions [110] sur les 4 plans (111)).

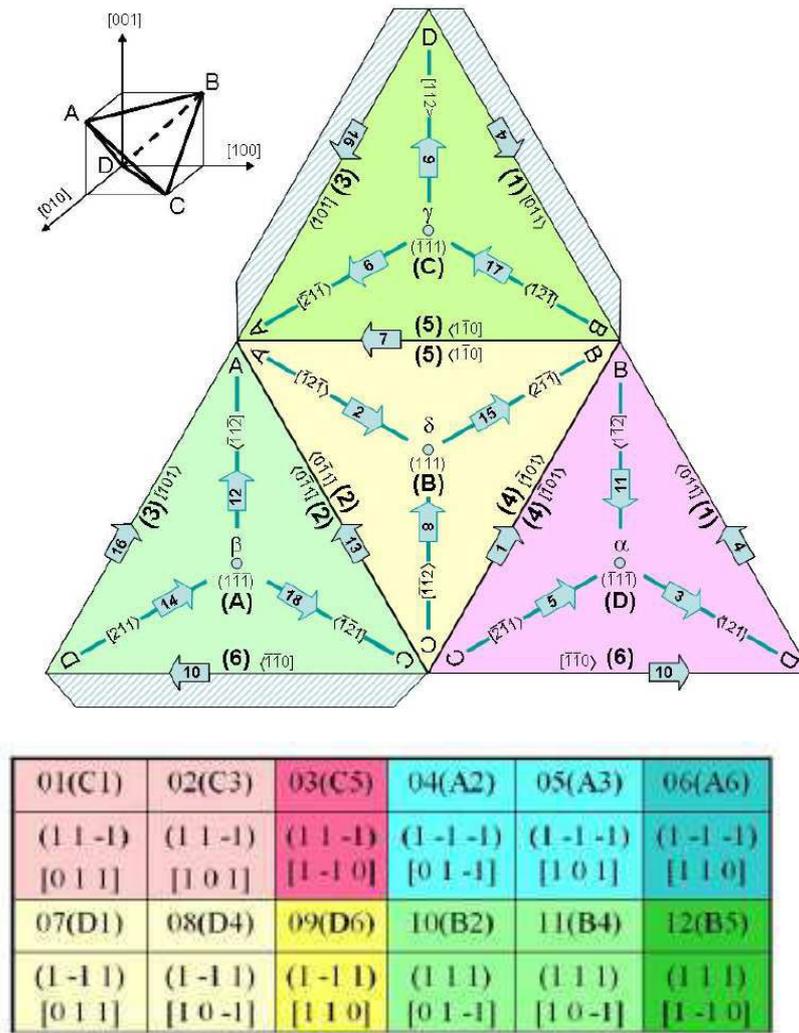


Figure 6 : les douze systèmes de glissement d'un matériau Cu-CFC et leur représentation sur le tétraèdre de Thompson. –découpable et collable, courtesy of M.Fivel.

La déformation plastique macroscopique correspond à la somme des aires cisillées des boucles dans le cristal. La déformation plastique est physiquement localisée dans les plans de glissement (111): l'observation de la déformée de la surface (par microscopie à force atomique (AFM) par exemple) indique la trace de l'émergence des systèmes de dislocations glissiles. L'observation AFM des empreintes d'indentation sur des monocristaux révèle la forte anisotropie de l'écoulement plastique, même sur les surfaces de haute symétrie comme l'illustre la Figure 7 : les motifs (rosettes) des lobes de bourrelets autour d'empreintes sur des monocristaux de Cu [Verdier 08] correspondent aux projections sur la normale des plans (111) des systèmes de glissement ayant une composante normale non nulle.

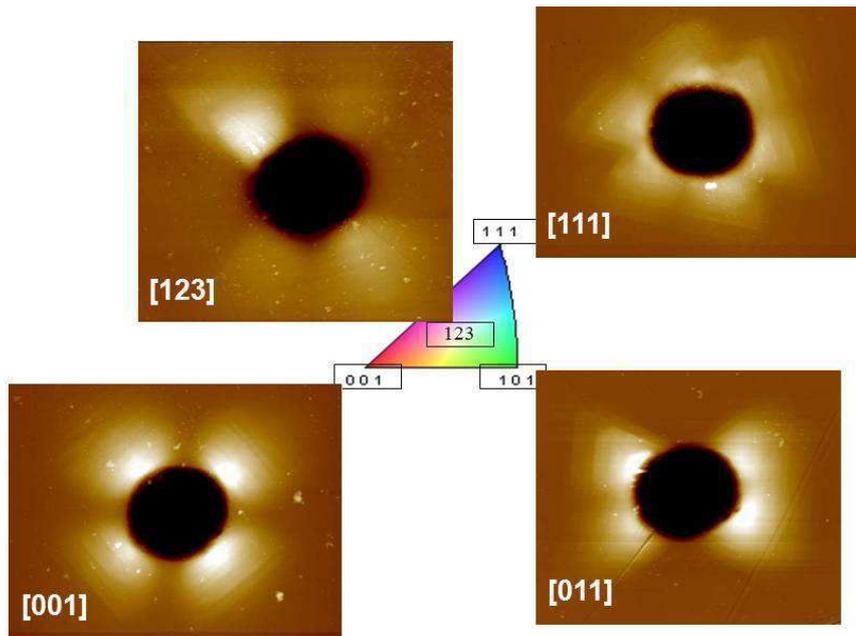


Figure 7 Topographie des hauteurs autour d'empreintes (indenteur conique 72°) dans des monocristaux de Cu. Taille latérale 30µm, échelle de hauteur 0.2µm ; profondeur d'indentation 1.5 µm –d'après [Verdier 08]

L'analyse des déplacements normaux et des traces des plans (111) correspond aux systèmes activés et leur projection sur chaque surface sont représentées Figure 8 en notation de Schmid et Boas (table de la Figure 6)[Chang 09]. Par exemple, dans le cas de la surface orientée (001), le bourrelet situé en haut à droite correspond à l'émergence des dislocations issues des systèmes B2 et B4 et le déplacement des projections normales à la surface sont indiquées par des flèches bleues.

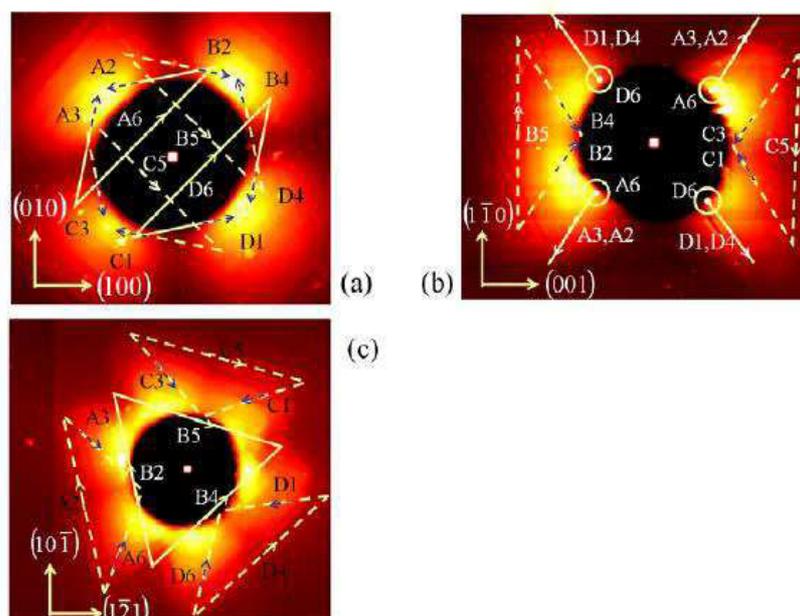


Figure 8 : Contribution des systèmes de glissement à la formation des rosettes d'indentation (flèches bleues), surface (a)(001), (b) (011), (c)(111) de la Figure 7

Par ailleurs l'observation et la compréhension des déformations de la surface est une démarche très riche qui a permis d'identifier la nature des systèmes actifs dans de nombreux matériaux, cf. pour une revue complète [Chaudhri 04]. Une extension moderne de cette démarche permet même de révéler la structure complète 3D des dislocations autour de l'empreinte par des polissages/attaques contrôlées successifs couplées à des observations AFM pour suivre l'émergence des figures d'attaque laissées par les cœurs des dislocations [Gaillard 05].

En ce qui concerne les essais d'indentation, plusieurs équipes ont étudiés l'indentation cristalline par la méthode des éléments finis D.Raabe [Wang 04][Zaafarini 06][Zaafarini 08], Alcalá [Casals 07][Casals 08] et Komanduri [Liu 08], à partir d'indenteurs sphériques ou pyramidaux. Les formulations des lois cristallines s'appuient sur la définition d'une matrice d'érouissage inter-systèmes, mais n'utilisent pas de variable interne basée sur la densité de dislocations ou d'approche multi-échelles. Par ailleurs, ces communications ne reportent pas de confrontations à des résultats expérimentaux (courbes de charges etc.), l'ordre de grandeur des efforts/déplacements simulés est généralement bien supérieures aux mesures expérimentales. C'est ce que les travaux de la thèse de H.J.Chang [Verdier 08],[Chang 09],[Chang 10][Chang 10b] ont permis d'obtenir par une première implémentation des modèles à base de densité de dislocations. La Figure 9 illustre l'un des résultats les plus marquants de cette approche que nous allons prolonger : il s'agit de la comparaison entre résultats expérimentaux d'indentation et d'AFM, sur deux monocristaux de surface (111).

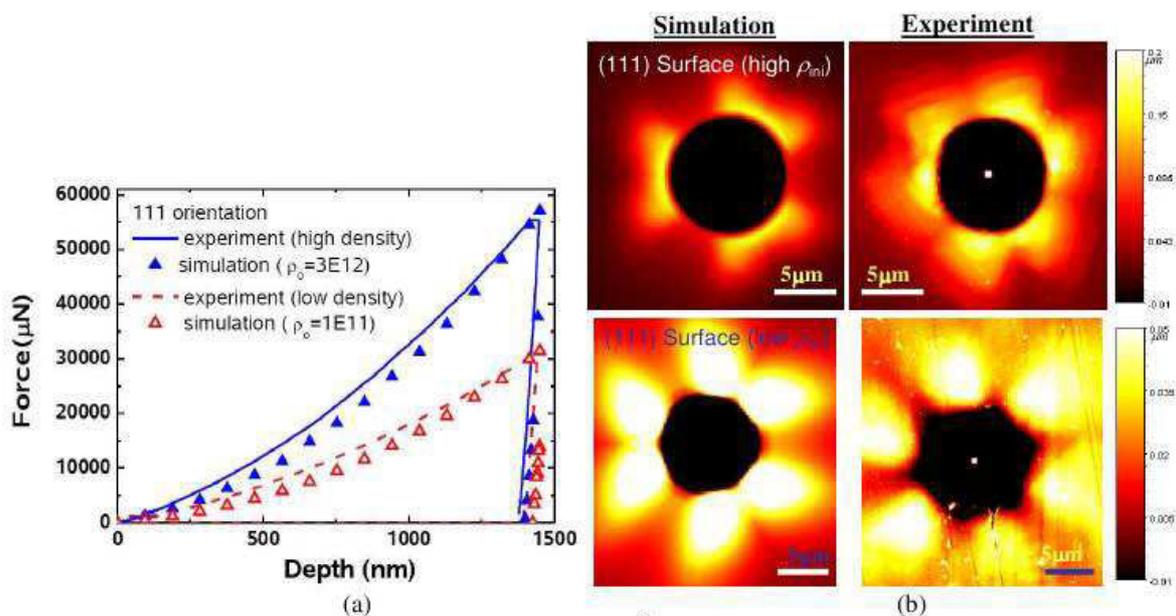


Figure 9 Confrontation des simulations d'indentation avec des lois cristallines à base physique sur deux cristaux de surface (111) : (a) courbes expérimentales et simulées, unique paramètre d'ajustement, densité de dislocations initiale et (b) comparaison des déformations normales à la surface pour les deux cristaux.

L'unique paramètre d'ajustement des calculs, la densité de dislocations, est en bon accord avec les mesures de diffraction par rayons X [Chang 10b] et l'allure des courbes de charge est bien reproduite. Une fois cet ajustement obtenu, la comparaison des déformations normales à la surface entre le calcul et les expériences est relativement bon, la barre d'échelle des déplacements verticaux est identique, Figure 9b.

1.5.2 Lois constitutives et base physique de la plasticité cristalline

L'aire cisailée des dislocations se traduit mécaniquement comme une inclusion de déplacement suivant le vecteur \mathbf{b} sur l'aire de la boucle dans le continuum élastique du cristal. Les dislocations interagissent ainsi à très longue distance suite à cette discontinuité de déplacement qui crée un champ élastique. De plus, lors de l'intersection entre les lignes de dislocations, des interactions de cœur des lignes de dislocations conduisent à des réarrangements: on peut alors former des jonctions plus ou moins sessiles. Il s'agit de la base physique du mécanisme de la forêt [Friedel 64] responsable du durcissement d'écroutissage permettant d'expliquer les interactions entre les systèmes de glissement, Figure 10.

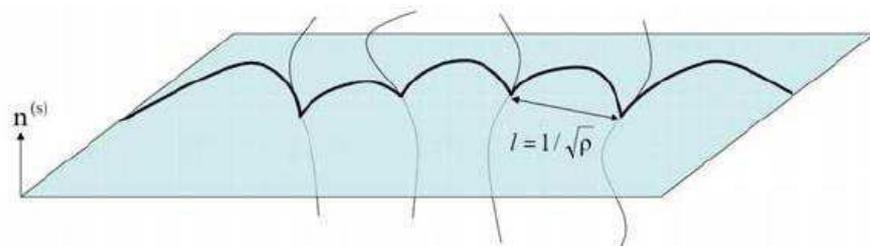


Figure 10 : schéma du modèle de la forêt d'une ligne de dislocation ancrée par des jonctions formées avec des dislocations appartenant à un autre système.

Les interactions élastiques régissent l'expansion d'une boucle de dislocation (assimilables à l'effet du tenseur de contrainte via l'équation de Peach-Koehler [Hirth] combiné à une tension de ligne), la cission résolue critique τ d'une ligne ancrée sur une longueur L s'approxime par

$$\tau = 0.5\mu b/L \quad \text{Équation 17}$$

La limite d'élasticité est ainsi directement proportionnelle au libre parcours moyen $\langle L \rangle$ des dislocations qui pour une densité ρ de dislocations (ρ est définie par la longueur totale des lignes par unité de volume, en m^{-2}) vaut

$$\langle L \rangle = \rho^{-1/2} \quad \text{Équation 18}$$

La relation de Taylor est alors retrouvée,

$$\tau = \alpha \mu b \rho^{1/2} \quad \text{Équation 19}$$

où α est une constante qui peut être formalisée par une matrice d'interaction entre chaque système et représente dans les approches classiques de plasticité cristalline la matrice d'écroissage inter-système du cristal. Elle traduit les termes correspondant à l'auto-écroissage et à l'écroissage latent. La démarche suivie dans les modèles de plasticité cristalline à base physique consiste à établir des équations d'évolutions de la densité de dislocations à partir de mécanismes locaux d'interactions. Une aide précieuse est ici apportée par des simulations de type Dynamique Moléculaire pour étudier la formation et la résistance des jonctions, et de type de dynamique de dislocations pour identifier la matrice de durcissement et les équations d'évolutions [Kubin 08], [Devincre 08], [Chang 10].

Phénoménologiquement, l'allure de courbe de tractions de monocristaux cfc à température équivalente ($T/T_f \sim 0.3$) correspondant au domaine de déformation par plasticité cristalline, est représentée Figure 11 [Kocks 94]. On y dénote plusieurs stades de durcissement d'écroissage caractérisés dans le schéma par l'évolution du taux d'écroissage $d\tau/d\gamma$ en fonction de τ .

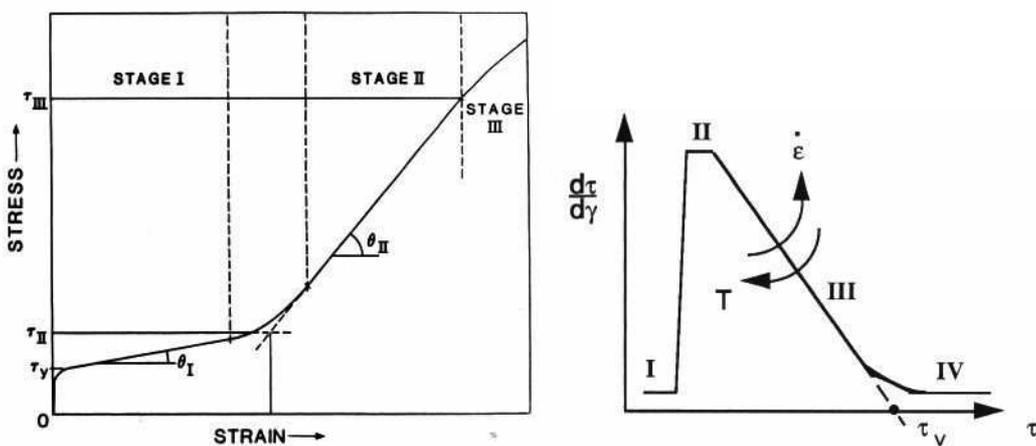


Figure 11 : Allure type de la courbe de traction d'un monocristal cfc orienté initialement en glissement simple et des domaines du durcissement d'écroissage associé et à droite schéma équivalent du taux d'écroissage en fonction de la contrainte -d'après [Kocks 94]

La modélisation physique de la déformation plastique du monocristal est prise en compte dans des équations constitutives reliant la vitesse de déformation à la contrainte à chaque état de la déformation. L'écroissage du matériau est déterminé par l'évolution de la contrainte interne (athermique) en fonction de la variable interne, la densité de dislocation suivant le modèle

proposé par F.Kocks [Kocks 03][Mecking 81] et décrit de manière générale par exemple dans [Forest 04]. Les densités de dislocation sur chaque système de glissement sont décrites par des équations d'évolution correspondant à chaque stade d'écrouissage en termes de stockage et d'annihilation.

Les détails du modèle de plasticité cristalline que nous utiliserons seront donnés au chapitre suivant dans la description de la routine de comportement (UMAT) que nous mettrons en place pour des analyses des comportements mécaniques des massifs et film sur substrat en indentation. Pour gérer l'évolution des déformations plastiques deux ingrédients sont nécessaires : une matrice d'interaction entre les systèmes de glissement (matrice d'écrouissage) et les lois d'évolutions des densités de dislocations. Cette approche a ainsi le mérite de pouvoir incorporer des ingrédients physiques qui peuvent être calculés à l'aide de simulations physiques aux échelles inférieures et de ne reposer que sur un paramètre ajustable, la densité de dislocations initiale.

1.6 Géométrie film/substrat

Les procédés d'élaboration planaires sont à la base de l'industrie de la micro-électronique, procédant pour l'élaboration de structures 3D à des dépôts de films minces sur un substrat et à des étapes de lithographie/gravure. La mesure des propriétés mécaniques des films est un premier pas pour l'intégration de nouveaux matériaux et assurer une stabilité thermomécanique à l'ensemble de l'architecture. L'indentation instrumentée est dans ce domaine devenue une technique standard et intégrée aux procédés industriels de contrôle et de développement. Même si l'interprétation en terme de physique de déformation des matériaux est difficile et loin d'être aboutie, la sensibilité et la reproductibilité des mesures primaires des courbes de charge expérimentales aux différents paramètres d'élaboration (composition chimique, densité, épaisseur, contraintes résiduelles, endommagement etc) en ont fait un outil de caractérisation incontournable.

1.6.1 Détermination du module d'élasticité des films

La première exploitation quantitative de l'essai d'indentation sur la géométrie film/substrat concerne l'évaluation du module élastique de la couche, en pratique les propriétés du substrat étant supposées connues. Avec cette introduction d'une échelle de longueur dans le problème de l'indentation (épaisseur du film t), l'influence du substrat est inévitable : les propriétés mécaniques du film (E_f, ν_f) sont différentes de celles du substrat ($E_s,$

v_s). L'évolution du module du composite film/substrat E' dépend de la profondeur de l'indentation: on s'attend pour les cas limites à ce que le module composite film/substrat E' soit égale à E_f pour $h = 0$ et $E' = E_s$ pour $h \gg t$.

Dans ce problème élastique, l'influence du substrat apparaît dès la formation du contact mécanique et il n'existe pas de règle du type 10% de la profondeur d'indentation pour s'en affranchir comme il est souvent publié: la Figure 12 reporte les solutions obtenues pour différents contraste de module de film souple sur substrat plus rigide (E_s/E_f de 2 à 100) issues de [Perriot 04]. La grandeur adimensionnelle a/t est utilisée pour renormaliser le problème et correspond au rapport du rayon de contact a sur l'épaisseur du film.

Il existe plusieurs traitements pour traiter de ce problème :

- Les approches analytiques simples: elles proposent une fonction de transfert,

$$E' = E_s + (E_f - E_s)\Phi(x) \text{ ou } E' = E_f + (E_s - E_f)\Psi(x) \quad \text{Équation 20}$$

dont la fonction $\Phi(x)$ repose soit sur des ajustements avec des paramètres empiriques [Mencik 97], soit sur des approximations fortes. C'est par exemple le cas des modèles de Gao [Gao 92] ou de Bec [Bec 96][Bec 06]. Cette dernière approche, basée sur une approximation de rigidités en série (film et substrat suivant $S=2.E.a_c$) couplée à une pondération polynomiale des aires a_c a le mérite de la simplicité et d'un bon support physique. Cependant l'accord quantitatif avec les solutions exactes du problème n'est pas très bon ou dans un domaine restreint de contraste (E_f/E_s).

- Les approches élastiques : elles reposent sur la résolution du problème élastique complet en utilisant l'intégration de l'intégrale de Fredholm du problème de Boussinesq (force ponctuelle sur un semi-infini) d'un indenteur axisymétrique en contact sur un système film/substrat à travers un algorithme mathématique utilisant un médium homogène équivalent (afin d'utiliser l'équation de Sneddon): une solution itérative est proposée par des séries de Chebyshev [Yu 90] ou de la fonction de Green [Perriot 04].
- Les approches numériques : elles consistent à des calculs paramétriques par la méthode des éléments finis qui sont par la suite interpolées, par exemple [Hay 11]. Elles conduisent à des résultats équivalents aux résolutions numériques du traitement élastique [Hsueh 04] et en accord avec une confrontation à des systèmes expérimentaux modèles [Sakai 09].

Les résolutions ‘exactes’ permettent de ramener le problème du film/substrat à celui du massif semi-infini : l’évolution de la rigidité en fonction de l’aire de contact normalisée (a/t), Figure 12 peut être obtenue.

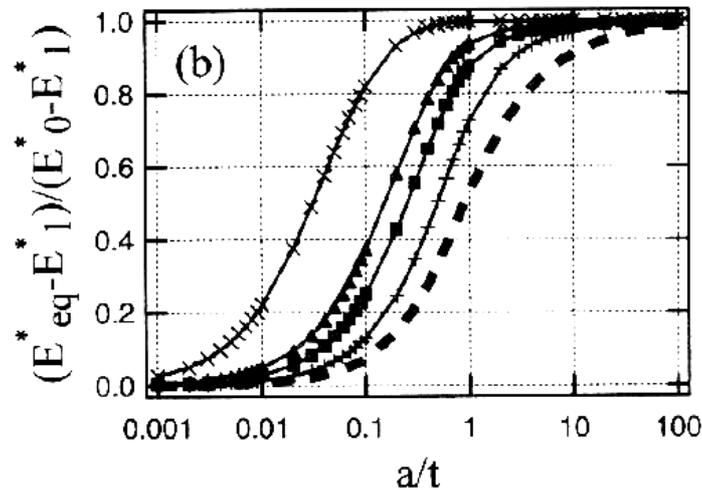


Figure 12 : Evolution du module d’indentation équivalent en fonction du rapport du rayon de contact sur l’épaisseur de film (a/t) pour différents rapports $E_{substrat}/E_{film}=2(+)$, 5, 10 et 100(x), la solution proposée par Gao [Gao 92] est reportée en traits tirées –figure d’après [Perriot 04]

A travers une étude paramétrique par la méthode des éléments finis prenant en compte les contrastes de module film/substrat mais aussi la plasticité du film et du substrat (élastique-plastique parfait) [Chen 01] ont montré un résultat très important : la relation de Sneddon perdurait dans leur cadre d’étude : autrement dit, un calcul élastique du film/substrat conduit à une évolution $S=2.E'a$ qui reste valable en écoulement élastique-plastique parfait et peut être utilisé pour exploiter les courbes expérimentales [Li 09][Saha 02][Han05 et 05b] ; cependant les exploitations des expériences utilisent toujours le partitionnement du déplacement total proposé par Oliver et Pharr [Oliver 92] pour déterminer le rayon de contact, or comme indiqué dans [Perriot 04], cela n’est plus valable au cours de la pénétration du système film/substrat, même en comportement élastique pur, Figure 13 où le rapport normalisé devrait être constant et égal à 1.

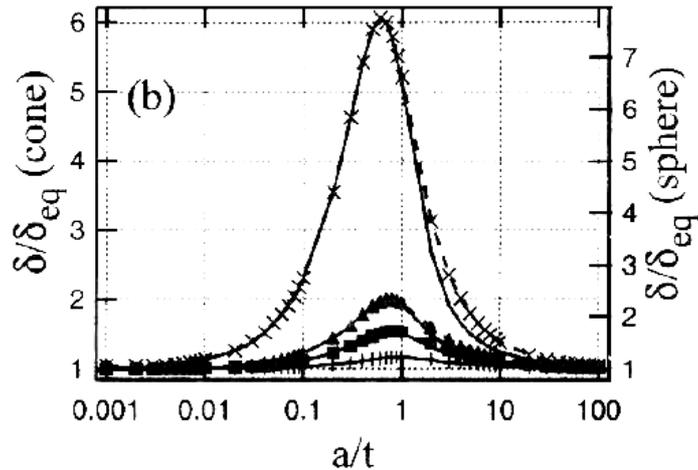


Figure 13 : Evolution du rapport de la hauteur de pénétration normalisée : rapport de la hauteur contact (film/substrat) sur la hauteur du solide équivalent (Oliver-Pharr) en fonction du rapport du rayon de contact sur l'épaisseur de film (a/t) pour différents rapports $E_{\text{substrat}}/E_{\text{film}}=2(+)$, 5, 10 et 100(x) ; indenteur conique et sphérique –figure d'après [Perriot 04]

Il devient alors nécessaire pour exploiter les essais de mesurer l'aire de contact au moins à une pénétration donnée pour déterminer un point sur la courbe $S(a/t)$ et valider le module du film avec les calculs élastiques par exemple [Jauffres 11]. De plus, la relation de Sneddon a été prouvée comme valide par Vlassak [Chen 01] pour un comportement élastique-plastique parfait mais il n'a pas été prouvé son applicabilité pour des comportements avec écrouissage du film par exemple.

1.6.2 Plasticité film/substrat

Les études publiées concernant l'étude du comportement plastique du système film/substrat en indentation ont comme finalité d'exprimer la dureté du film à partir d'une loi des mélanges, pour une revue [Burnett 87]. [Jonsson 84] propose ainsi une loi des mélanges basées sur les aires indentées, ce qui suppose une pénétration totale du film, suivant la Figure 14,

$$H_c = \left(\frac{A_f}{A}\right)H_f + \left(\frac{A_s}{A}\right)H_s$$

Équation 21

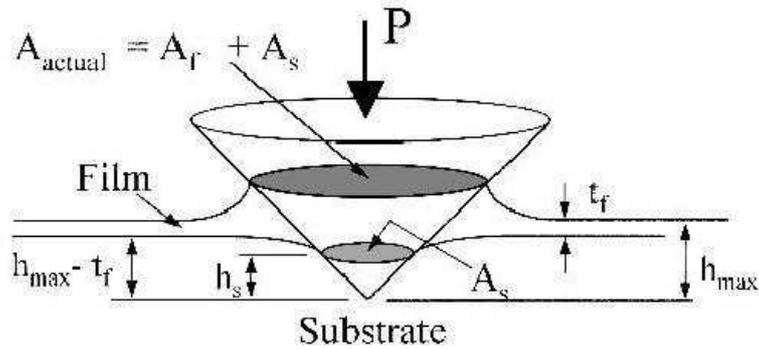


Figure 14 Schéma de la loi des mélanges basée sur les aires [Jonsson]

Cette approche a été complétée par [Tsui 03] pour prendre empiriquement en compte la correction due à la formation de bourrelets. Une démarche équivalente, mais suivant une loi des mélanges des volumes déformés a été proposé par [Burnett 87].

Enfin [Bhattacharya 88] ont proposé des fonctions de poids empiriques dépendant de la pénétration normalisée (h/t) et du rapport $\sigma_{y_film}.E_s/(\sigma_{y_sub}.E_f)$, pour les cas distincts d'un film mou sur substrat dur et de la réciproque.

Il n'existe à notre connaissance que très peu d'études paramétriques de la plasticité du système film/substrat à partir de lois élasto-plastiques : celles de Vlassak [Chen 01], Rowcliffe [Xu 04] et Sakai [Sakai 09]. Dans ces études, le comportement plastique est celui d'un plastique parfait (pas d'effet de l'érouissage). La Figure 15 illustre un résultat de l'étude de [Xu 04] : on remarque une relative bonne adéquation du modèle proposé par [Bhattacharya 88] que pour le cas du film dur sur substrat mou. Pour le cas qui nous intéresse, film sur substrat dur et rigide, la dureté apparente reste quasiment constante et égale à celle du film, quelle que soit la profondeur d'indentation relative (<100%), résultat aussi obtenu par [Chen 01]. [Ni 05] montre par une étude adimensionnelle que l'effet du substrat sur la dureté apparente est moins forte qu'en élasticité et que dans le cas d'un film mou sur substrat dur, un domaine de pénétration relatif jusqu'à 30% permettait de s'affranchir de l'influence du substrat.

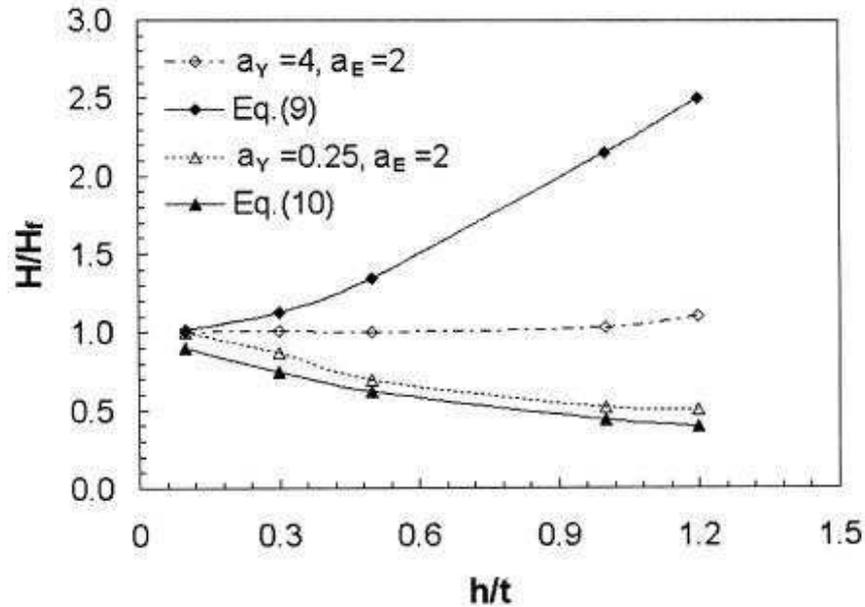


Figure 15 Evolution du rapport de la dureté apparente H sur celle du film H_f en fonction de la pénétration totale normalisée par l'épaisseur du film (h/t) pour différents rapports de limite d'élasticité a_Y ($\sigma_{y_substrat}/\sigma_{y_film}$) et élastique $a_E = E_{substrat}/E_{film}$. Les équations 9 et 10 sur la figure se réfèrent aux équations proposées par [Bhattacharya 88] –figure d'après [Xu 04].

En ce qui concerne l'utilisation de lois en plasticité cristalline, seule une étude a été publiée par Casals et Forest [Casals 09], sur l'indentation sphérique pour les cas d'un film cfc et hexagonal sur un substrat élastique. Ces auteurs montrent une modification profonde du chemin de déformation en comparant les volumes plastiques et la déformée de surface d'un film massif.

1.7 Effet de taille en indentation

L'effet de taille en indentation (ISE Indentation Size Effect) concerne l'augmentation de dureté observée à mesure que la profondeur d'indentation diminue. En ce qui concerne les indenteurs auto-similaires (pyramidaux et coniques), cet effet est important pour des pénétrations inférieures à $1\mu\text{m}$. Elle est observée depuis longtemps, dans les métaux depuis la fin des années 50 [Pharr 10] mais aussi pour des céramiques [McColm 90]. Son origine est toujours très discutée et comme l'indique une revue critique récente de cet effet [Pharr 10], la préparation des échantillons et les mesures fines à ces échelles (forme de pointe, mesure de rigidité...) affectent grandement l'amplitude de cet effet.

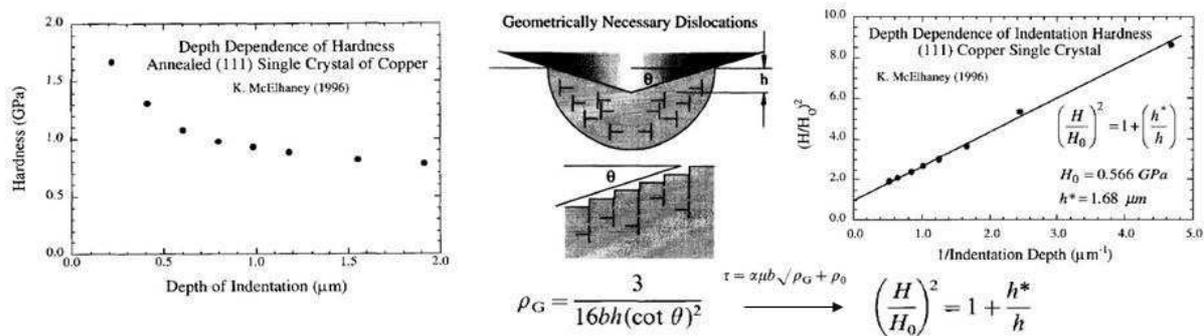


Figure 16 Evolution de la dureté en fonction de la profondeur d'indentation dans le Cu ; au milieu : schéma des dislocations géométriquement nécessaires (boucles prismatiques) pour une pointe conique d'angle θ et ajustement du modèle sur les données [Nix 97]

L'interprétation actuelle d'un point de la mécanique des milieux continus repose sur un modèle à gradient de plasticité introduit par Gao et Nix, où à faible profondeur d'indentation les dislocations 'géométriquement nécessaires' ρ_G qui accommodent notamment la forme conique de l'indenteur dominant devant les dislocations 'statistiques' [Nix 97], Figure 16. Cet argument géométrique couplé à la relation de Taylor conduit à une dépendance de la dureté en $1/h^{1/2}$. Retenons que pour le Cu cet effet est relativement faible pour des monocristaux recuits à partir d'une profondeur de $1\mu\text{m}$.

1.8 Contexte et objectifs de l'étude

L'objectif de ce travail est de développer une approche quantitative pour l'évaluation des propriétés élastiques et plastiques des monocristaux. Le matériau modèle que nous choisissons pour cela est le cuivre. En effet, le cristal CFC de Cu a un comportement plastique qui a été longuement étudié, et sans doute l'un des mieux connus qui soit. L'anisotropie de son comportement n'est pas négligeable contrairement au cas de l'aluminium. Enfin, c'est un matériau très utilisé dans l'industrie microélectronique, en particulier sous forme de films minces (interconnexions). Il est ainsi possible d'utiliser des modèles à base physique pour décrire l'écoulement plastique du cuivre.

La thèse présentée ici est principalement axée sur la simulation par éléments finis de la déformation de Cu par nano-indentation. La modélisation numérique mise en œuvre a pour vocation d'être mise en parallèle avec les mesures expérimentales de nano-indentations effectuées au laboratoire. Le travail s'inscrit dans la suite de la thèse sur plasticité cristalline multiéchelles de l'indentation de H-J. Chang, qui avait développé une approche de dynamique des dislocations (DDD) et de calculs par la méthode des éléments finis (FEM) à basés sur un modèle cristallin. Ce travail avait donné des résultats prometteurs. Il a, ainsi que son prolongement à travers la présente thèse, permis de structurer des projets sous forme de

l'ANR Blanche MECANIX (cohérence X sur nano-plots métalliques avec déformation in situ par indentation) et l'ANR MEGAPROSE (film de verres métalliques).

Les nouveaux objectifs sont de traiter les cas de géométries diverses : massifs mais aussi films et îlots, et ainsi d'évaluer les effets de confinement géométrique et d'additions de surfaces libres, qui seront essentiellement pour nous gérées par les *conditions aux limites* du problème mécanique.

Ce travail s'effectue avec la conscience de la limite de validité de ces lois lorsque les longueurs caractéristiques se réduisent. **On veut tester leur limite quantitativement par comparaison à l'expérimental, sans développer de lois à gradient de plasticité**. Par rapport à ces questions de confinement géométrique, deux remarques s'imposent :

- – limite en échelle de longueur : on évite les effets d'échelle aux petites tailles en travaillant au minimum à l'échelle du *micron*.
- – limite sur les effets géométriques : notre modèle ne comporte pas d'écroûissage cinématique. Comment cela affecte-t-il la réponse du système, notamment en film/substrat, par rapport aux observations expérimentales?

Les résultats de la thèse de H.-J. Chang étaient encourageants, avec des accords entre courbes de charge simulées et expérimentales bons, mais pas parfaits (notamment au niveau de la courbure). De plus, ces travaux n'avaient pas donné lieu à une réelle exploitation de la donnée de rigidité de contact, qui est une donnée expérimentale importante en nano-indentation. Nous voulons l'exploiter dans la présente étude. Le schéma de résolution utilisé dans la thèse de H.-J. Chang était explicite, ce qui imposait des contraintes particulières pour contrôler les séquences charge/décharge. Ici, **un schéma implicite a été utilisé**, adapté de la routine développée à Harvard [Harvard 91].

Il est intéressant de noter que dans la littérature, pour le cas de films sur substrats, des modélisations ont été faites comme indiqué dans la bibliographie ci-dessus, mais pas comparés de manière quantitative à des expériences. En résumé, parmi les questions auxquelles on souhaite répondre grâce à ce travail, les principales sont :

- La relation de Sneddon (rigidité de contact fonction d'un module apparent variable avec la profondeur et le rayon de contact [Sneddon 65]) est-elle préservée dans le cas de film déposés sur substrat avec écroûissage dans le film et pour des caractères anisotropes des lois de comportement en régime élastique et plastique? Jusqu'ou faut-il pousser la modélisation pour que la donnée de la rigidité en fonction de l'enfoncement peut-elle être reproduite de manière satisfaisante ? Il s'agit d'un défi car la réponse $S(h)$ est fonction de l'élasticité et de la plasticité-> (loi physique, géométrie de pointe, comportement élastique pointe...)
- Quel effet du changement de chemin de déformation peut-on observer entre la géométrie de référence du semi-infini par rapport à l'introduction d'une échelle de longueur « obstacle » (confinement spatial) dans le cas du film sur substrat élastique ?

En particulier, on s'intéressera à l'effet du durcissement d'écroutissage en plasticité isotrope pour compléter les travaux de Chen et Vlassak [Chen 01].

- Comment se comportent, vis à vis de mesures expérimentales, les lois de plasticité cristalline à base de densité de dislocations que nous avons validées au chapitre précédent lorsqu'elles sont confrontées au contexte d'un confinement spatial?

2 Méthodes numériques et expérimentales

2.1 Méthode numérique utilisée

2.1.1 Méthode des éléments finis

L'analyse mécanique du test de nanoindentation conduit à modéliser le problème sous forme d'équations locales aux dérivées partielles (équations d'équilibre du milieu élastique) et d'équations intégrales (gestion du contact entre la pointe et l'échantillon). Les équations sont non-linéaires. Les deux sources de non-linéarité sont :

- les non linéarités provenant de la loi de déformation du matériau (déformations plastiques)
- les non linéarités inhérentes au problème de contact.

La méthode des éléments finis est bien adaptée au traitement de ce type de problème : aptitude à représenter des géométries complexes, possibilité d'utiliser des maillages non structurés, imposition naturelle des conditions aux limites.

Le processus de discrétisation du problème conduit dans un premier temps à mailler le domaine spatial étudié, c'est-à-dire à paver le domaine en une réunion d'**éléments** de forme et de taille arbitraires. Cette discrétisation doit être faite de telle sorte que les éléments ne se recouvrent pas et qu'aucune zone du domaine ne soit laissée non recouverte. Dans notre cas, le maillage a été réalisé à l'aide d'ABAQUS CAE, l'outil de conception visuel de modèles associé à ABAQUS [Abaqus 09]. Dans chaque élément, un certain nombre de points doivent être définis, qui sont situés aux sommets des éléments et éventuellement à l'intérieur de ceux-ci. Ces points sont les **nœuds** du maillage. Ils servent à construire les approximations des champs étudiés dans tout le domaine. Le problème de déformation est formulé en déplacement. Ainsi, à chaque nœud du maillage, correspondent 3 inconnues qui sont les trois composantes du déplacement en ce point. Le vecteur inconnu à déterminer lors du calcul a pour taille 3 fois le nombre de nœuds du modèle.

Notre modèle présente environ 23 000 éléments de type hexaèdres à 8 nœuds (polynôme d'interpolation linéaire). Afin d'optimiser le temps de calcul, on cherche à réduire le nombre

d'éléments utilisés, dans la mesure où ce nombre conditionne la taille du système à résoudre. Le maillage doit être assez dense sous l'indenteur, car c'est une région où les champs de déformations sont à fort gradient (Figure 17). Augmenter leur nombre, et ainsi réduire leur taille, permet à la fois d'avoir plus de points d'interpolation et de minimiser la distorsion lorsque la déformation plastique est présente. A mesure que l'on s'éloigne de la zone d'indentation, des éléments de plus en plus gros sont choisis. On prolonge la géométrie suffisamment loin de la zone indentée de manière à éviter des effets de bords. La simulation est analysée avec une pénétration de plusieurs microns, les dimensions des modèles indentés sont des cylindres de l'hauteur de 5 mm et de 5mm de diamètre. Ils sont suffisamment grands pour éviter l'influence des conditions aux limites.

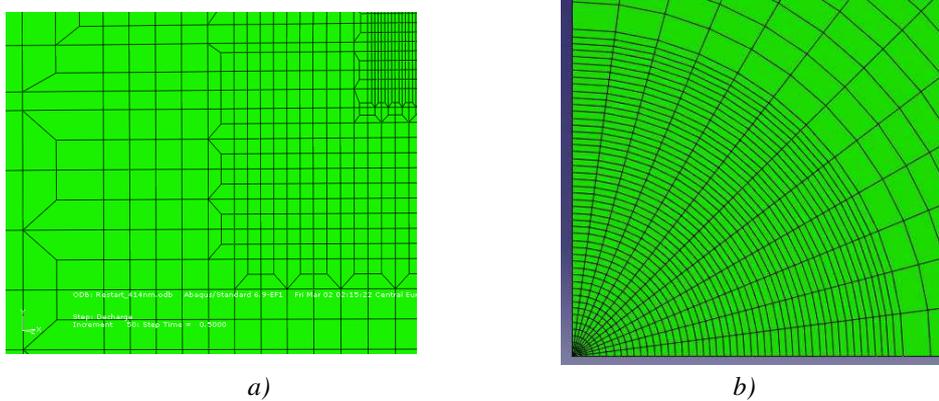


Figure 17: Transition entre maillage fin et maillage grossier dans le problème d'indentation

a) vue en coupe (plan contenant l'axe de l'indenteur)

b) vue en coupe (plan perpendiculaire à l'axe de l'indenteur)

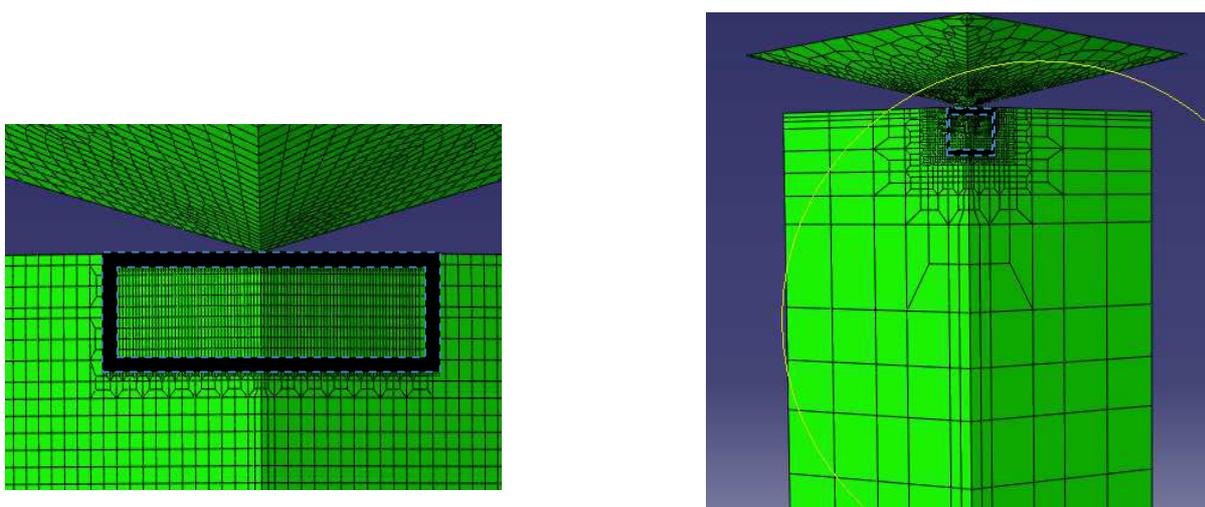


Figure 18 : Raffinage de maillage – vue large

a) zone sous l'indenteur - environs 100 éléments dans la zone de contact

b) zone de transition et zone loin de l'indenteur

Dans les calculs, l'anisotropie du cristal est prise en compte. En vertu de la symétrie du système cubique à face centré, on modélise un quart ou un tiers du modèle entier selon que les directions d'indentation sont (001) ou (111), respectivement. Techniquement, le maillage est réalisé point par point sur une tranche de $7,5^\circ$. Cette tranche est ensuite copiée un certain nombre de fois de manière à obtenir un secteur angulaire plus grand, multiple de $7,5^\circ$ (12 fois pour le modèle 90° et 16 fois pour le modèle 120°).

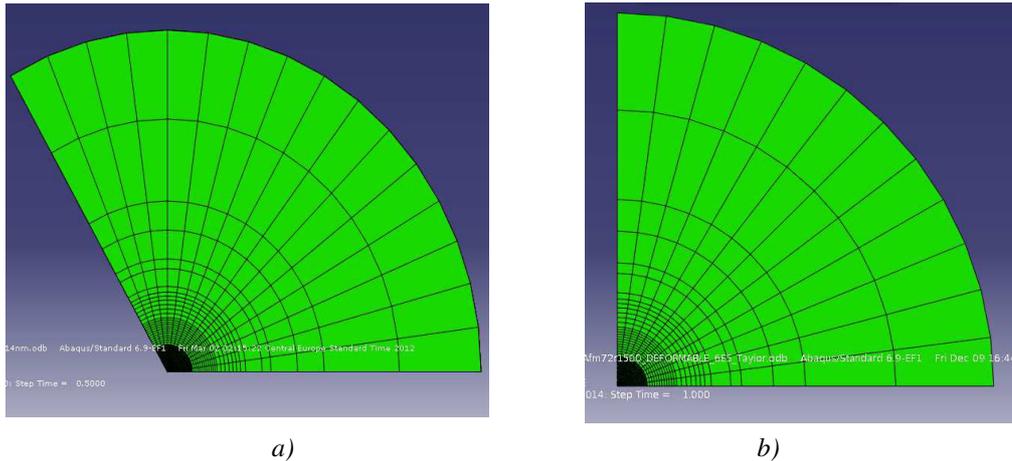


Figure 19: rotation de maillage en direction de l'indentation

a) modèle indenté en direction (111)

b) modèle indenté en direction (001)

2.1.2 Lois de comportement de plasticité cristalline

2.1.3 Formulation implicite UMAT

La théorie de la plasticité cristalline est la théorie de déformation basée sur la mécanique des milieux continus pour expliquer le comportement mécanique des matériaux cristallins. La déformation plastique est due au mouvement des dislocations accumulées dans le réseau cristallin. Les dislocations sont des lignes de défauts du cristal qui sont à l'origine des déformations plastiques. Ces lignes de défauts glissent dans des plans spécifiques dépendants de la structure cristalline. La combinaison entre un plan spécifique et un vecteur de Burgers définit un système de glissement. Dans un cristal CFC, il y a 12 systèmes de glissement, Figure 1.

Chaque système de glissement est caractérisé par une matrice de Schmid, définie par le produit tensoriel du vecteur de glissement m_s (direction de glissement) du vecteur définissant la normale au plan de glissement, n_s

$$\mu_s = m_s \otimes n_s$$

Équation 22

Ce tenseur « enregistre » toutes les possibilités de glissement des dislocations dans le cristal. Plus le facteur correspondant à un système est élevé, plus le glissement sera facile à déclencher par application d'un chargement extérieur. La déformation globale dans le réseau cristallin est reliée à la déformation plastique accumulée sur chaque système de glissement. L'activation du système de glissement dépend du facteur Schmid. Le système avec le facteur Schmid le plus grand est activé en premier. Si deux systèmes ont le même facteur de Schmid, ils sont activés en même temps.

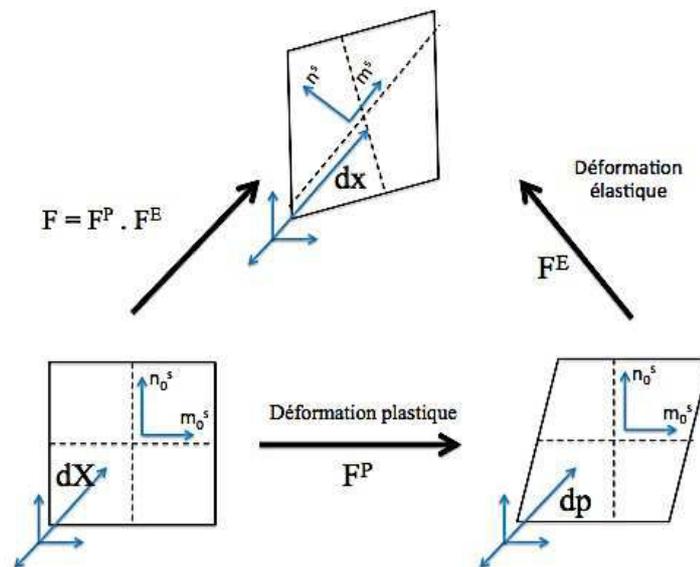


Figure 20: Description mathématique de la déformation plasticité cristalline

Cinématique de la déformation

La gradient déformation est défini par :

$$dx = FdX$$

Équation 23

Avec dX et dx sont des vecteurs infinitésimaux assimilables à des « fibres de matière » dans l'état initial et final respectivement. L'état final de la déformation est obtenu par l'addition des contributions des déformations plastiques et élastiques. Le gradient de déformation total F se décompose en un gradient de déformation élastique (F^E) et le gradient de la déformation plastique (F^P) :

$$F = F^E F^P \quad \text{Équation 24}$$

Le gradient de déformation plastique transforme le vecteur de l'état initial dX en un état de déformation dp :

$$dp = F^P dX \quad \text{Équation 25}$$

Le gradient de déformation plastique se décompose en déformation plastique locale sur chaque système de glissement (s) :

$$\dot{F}^P F^{P-1} = \sum_s \dot{\gamma}^s m_0^s \otimes n_0^s \quad \text{Équation 26}$$

Où I , μ_s^0 sont le tenseur unité d'ordre 2 et le tenseur du système de glissement s respectivement. γ^s représente le glissement (i.e. la déformation par cisaillement) sur le système s .

Le gradient de déformation élastique est défini de même façon :

$$dx = F^E dp \quad \text{Équation 27}$$

On note que le gradient de déformation élastique représente la déformation élastique et la rotation du réseau cristallin. Après la déformation élastique, la direction et la normal du plan de glissement sont changés. Leurs orientations sont présentées en fonction du gradient de déformation élastique :

$$m^s = F^E m_0^s \quad \text{Équation 28}$$

$$n^s = n_0^s F^{E-1} \quad \text{Équation 29}$$

Le gradient de la vitesse L est défini :

$$L = \dot{F}F^{-1} = \dot{F}^E F^{E-1} + F^E \dot{F}^P .F^{P-1} F^{E-1} = D + \Omega \quad \text{Équation 30}$$

Le gradient de vitesse L se décompose en deux termes: la déformation D et la rotation Ω . Ils sont décomposés en deux parties liées aux gradients de la déformation :

$$D = D^E + D^P \quad \text{Équation 31}$$

$$\Omega = \Omega^E + \Omega^P \quad \text{Équation 32}$$

$$L^E = D^E + \Omega^E = \dot{F}^E .F^{E-1} \quad \text{Équation 33}$$

$$L^P = D^P + \Omega^P = \sum_s \dot{\gamma}^s m^s \otimes n^s \quad \text{Équation 34}$$

Equation constitutive

L'équation constitutive doit représenter la relation entre la contrainte et la déformation. La relation d'écoulement s'exprime sous la forme classique d'une loi puissance entre vitesse de déformation et contrainte normalisée :

$$\dot{\gamma}^s = \dot{\gamma}_0^s \left| \frac{\tau^s}{\tau_\mu^s} \right|^n \quad \text{Équation 35}$$

Avec s désigne l'indice du système, $\dot{\gamma}_0^s$, τ_μ^s et n sont la vitesse de déformation de référence, la contrainte athermique et n est la sensibilité de la vitesse de déformation. Il faut noter que cette loi ne prend pas en compte l'écoulement cinématique. Cette addition serait nécessaire pour

prendre en compte le comportement oligocyclique du monocristal. La loi de glissement

devrait alors s'écrire sous une forme semblable à $\dot{\gamma}^s = \dot{\gamma}_0^s \left\langle \frac{|\tau^s - x^s| - \tau_c^s}{k} \right\rangle^n \text{signe}(\tau^s - x^s)$.

Ce type de loi est plus phénoménologique, et l'interprétation de physique de chaque terme est plus délicate.

Loi d'érouissage

L'érouissage du matériau est déterminé par la relation entre la contrainte athermique τ_μ^s et les densités de dislocations (variables internes du problème). La relation classique de Taylor s'écrit:

$$\tau_\mu^s = \alpha \mu b \sqrt{\rho} \quad \text{Équation 36}$$

Avec α une constante (estimée à 0.33 pour le Cu [Baszinski]), μ le module de cisaillement, ρ est la densité de dislocations. La contrainte athermique peut s'écrire sur les 12 systèmes de glissement du monocristal CFC :

$$\tau_\mu^s = \mu b \sqrt{\sum_{p=1}^{12} \alpha^{sp} \rho^p} \quad \text{Équation 37}$$

La relation d'érouissage est complétée par une loi d'évolution de la densité de dislocations sur chaque système de glissement. La densité de dislocations est écrite comme un bilan entre un terme de production et un terme d'annihilation :

$$\dot{\rho}^s = \frac{1}{b} \left(\frac{\sqrt{\sum_{p=1}^{12} \alpha^{sp} \rho^p}}{Kg} - 2y_c \rho^s \right) |\dot{\gamma}^s| \quad \text{Équation 38}$$

Une écriture plus classique consiste à donner la loi d'écoulement complétée d'une loi d'érouissage liant directement l'évolution temporelle de la contrainte athermique sur un

système s , τ_μ^s , à l'évolution des taux de cisaillement de tous les systèmes de glissement $\dot{\gamma}$ via une matrice d'écrouissage a .

$$d\tau_\mu^s = \sum_p \frac{\mu\alpha^{sp}}{2\sqrt{\sum_q \alpha^{sq}\rho^q}} \left(\frac{\sqrt{\sum_{p=1}^{12} \alpha^{sp}\rho^p}}{Kg} - 2y_c\rho^s \right) d\gamma^p \quad \text{Équation 39}$$

Schéma d'intégration implicite

Un schéma d'intégration implicite est utilisé. Dans la subroutine UMAT, la contrainte athermique τ_μ^s , le glissement γ^s , le cisaillement résolu τ^s , les normales aux plans de glissement n^s et les directions de glissement m^s sont considérés comme des variables dépendantes de la solution. Les contraintes, déformations et variables d'état sont résolues de manière incrémentale par ABAQUS. Lorsque la subroutine est appelée, elle a comme donnée d'entrée l'état du système au début de l'incrément (contraintes et variables d'états), l'incrément de déformation *estimé*, et l'incrément de temps. La subroutine UMAT réalise deux tâches :

- la mise à jour des contraintes et des variables d'état
- le calcul de la matrice jacobienne $\frac{\partial \Delta \sigma}{\partial \Delta \varepsilon}$ liée au modèle constitutif.

L'avantage du schéma implicite est sa stabilité, même si il est plus lent et plus contraignant (calcul de la matrice jacobienne).

2.2 Post-traitement des calculs

La modélisation par la méthode des éléments finis requiert une étape de post-traitement des résultats pour deux raisons :

- pour d'une part reproduire les données obtenues d'un essai d'indentation instrumentée : la force appliquée sur la pointe, le déplacement de l'indenteur sont aisément extraits, la rigidité de contact nécessite elle un post-traitement.
- d'autre part pour accéder à une analyse 3D qu'offre le calcul et calculer des grandeurs physiques pertinentes pour l'essai, tels que l'aire de contact réel (sous

charge et après décharge), les champs de rotation cristallographique ou le volume plastifié.

Python est un langage interprété de programmation orienté objet qui est utilisé ici à cette fin : les accès aux champs de données et aux fonctions d'ABAQUS sont en effet bien implémentées. Des programmes Python peuvent être intégrés sous forme de module dans ABAQUS et permettre un pilotage complet de l'essai et du traitement des données. Nous détaillons ci-dessous les procédures mises au point pour déterminer les aires de contact et la rigidité de contact.

2.2.1 Aire de contact

L'aire de contact est le paramètre important pour caractériser la rhéologie du matériau indenté et n'est pas accessible directement expérimentalement. L'aire de contact est par ailleurs nécessaire pour définir la dureté ou pour appliquer l'équation de la rigidité de contact de Sneddon. Comme on l'a rappelé, il existe plusieurs méthodes analytiques pour déterminer l'aire de contact réel entre l'indenteur et l'échantillon dans l'essai d'indentation mais en utilisant des hypothèses fortes sur le mode déformation du matériau : la morphologie de contact peut être en effet sous la forme d'un bourrelet ou d'un enfoncement. Pour des déformations très anisotropes comme dans le cas d'un monocristal, le calcul permet d'obtenir l'aire de contact complexe mais il faut développer une méthode pour l'évaluer précisément. Ici, nous passons en revue les méthodes qui nous ont permis d'évaluer l'aire de contact, la plupart utilisent une connaissance de la géométrie de l'indenteur.

Méthode directe, aire de contact obtenue par la simulation d'ABAQUS :

Le logiciel ABAQUS permet d'obtenir l'aire de contact à chaque itération de calcul. Cependant l'aire obtenue ici est l'aire réelle développée, que l'on ne peut convertir simplement en aire projetée que si le contact est isotrope, par exemple pour un indenteur parfait conique de demi-angle θ ,:

$$A_{pro} = \sin^2(\theta)A_{réel} \quad \text{Équation 40}$$

Cette équation est très simple et rapide mais dépend fortement de la taille des éléments en contact entre l'indenteur et l'échantillon et n'est applicable que sous charge. Elle est de plus fautive pour des aires anisotropes, car il faut alors calculer la projection géométrique de chaque élément.

Pour les calculs concernant le monocristal où nous avons très bien raffiné les éléments en contact, l'aire de contact obtenue est toujours sur-estimée par rapport à l'aire obtenue par les autres méthodes. De plus, lorsqu'on fait la comparaison de l'évolution de la rigidité de contact (équation de Sneddon) en fonction de l'aire de contact entre les géométries film sur substrat et massif, la réponse n'est pas la même, même si l'on utilise le même module pour le film et le substrat : cette erreur est liée à la plus forte anisotropie du contact en bourrelet dans le cas du film sur substrat.

Méthode indirecte, la normale de la surface

Cette méthode est utilisée dans cette thèse pour déterminer l'aire de contact. Le principe de cette méthode est de calculer le vecteur normal de la surface afin de déterminer l'angle θ avec la normale de la surface initiale. Si l'échantillon est en contact avec l'indenteur, le vecteur normal de l'échantillon est le même que celui de l'indenteur conique. Dans le cas de l'état déchargé, l'angle est inférieur mais demeure constant dans la zone plastifiée. La méthode consiste alors à déterminer le lieu de variation de la normale locale qui définit alors la hauteur de contact. Il faut choisir un critère portant sur une variation de l'angle θ indiquant l'orientation de la normale à la surface libre. Ici nous avons choisi une variation de deux degrés par rapport de l'angle du cône. Cette méthode est applicable aussi pour les indenteurs pyramidaux de type Berkovich.

Le déplacement de la surface pendant et après l'indentation peut s'exprimer par une fonction de surface :

$$x_3 = f_{surf}(x_1, x_2) \quad \text{Équation 41}$$

Le vecteur normal local de la surface s'écrit en fonction de F_{surf} :

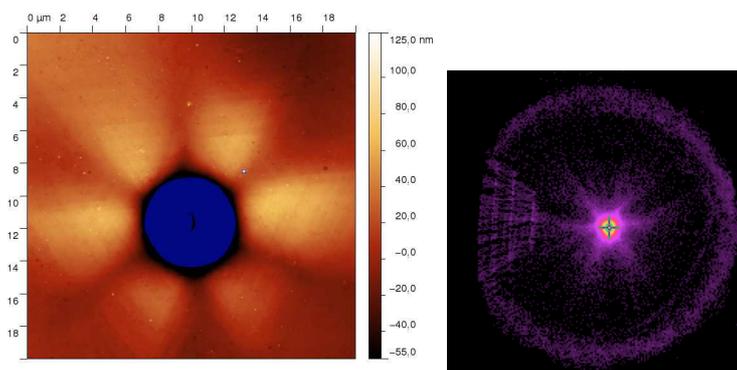
$$n_{surf} = \left(\frac{\partial f_{surf}}{\partial x_1}, \frac{\partial f_{surf}}{\partial x_2}, 1 \right) \quad \text{Équation 42}$$

L'angle entre la normale de la surface libre l'axe d'indentation est θ_n :

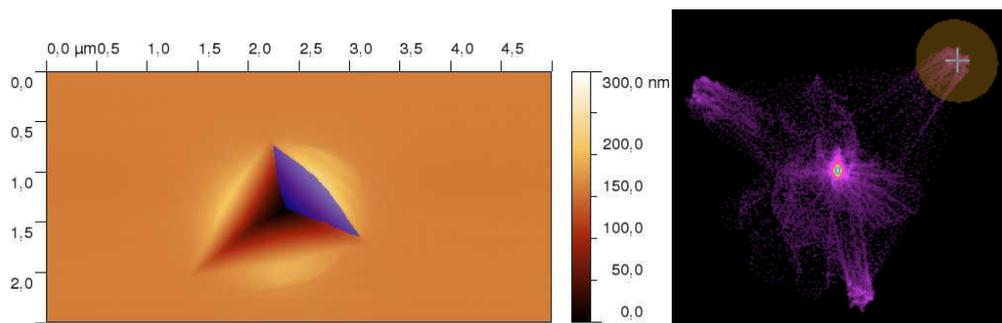
$$\theta_n = \cos^{-1} \left(\frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{\partial x_3}{\partial x_1} \right)^2 + \left(\frac{\partial x_3}{\partial x_2} \right)^2}} \right) \quad \text{Équation 43}$$

Intégration dans le logiciel Gwyddion

Ces calculs des angles de la normale locale est réalisé soit grâce à un script Matlab [ref Scilab][refMatlab], soit directement au sein du logiciel OpenSource Gwyddion [refGwyddion] dédié à l'analyse AFM dans lequel nous importons à la fois les fichiers AFM, et les déplacements de surface sur une grille régulière issue d'ABAQUS. Ce logiciel permet de visualiser les distributions des normales suivant le repère polaire des angles θ, ϕ (ϕ angle azimutal, pris égal à zéro sur l'axe horizontal x) et de masquer les domaines de θ d'intérêt comme illustré ci-dessous.



(a)



(b)

Figure 21: Masques(en bleu) sur la topographie (AFM) obtenu par sélection de la distribution des facettes normales pour un indenteur : (a) sphéroconique (62°) sur un monocristal Cu[111] (b) Berkovich sur un film de verre métallique sur Si, seule une facette pyramidale est sélectionnée dans le repère θ, ϕ ($\theta=27^\circ$, tolérance 3°) – [Gwyddion]

La Figure 21 représente les opérations effectuées sous Gwyddion sur des topographies expérimentales d'un monocristal de Cu [111] (a) et sur un film de 828nm de verre métallique ZrNi sur Si indentés respectivement par un indenteur de géométrie conique et pyramidale (Berkovich). Les zones en bleu indiquent le marquage obtenu après sélection d'une gamme d'angle θ représenté dans le repère (θ, ϕ) à droite des topographies. En ce qui concerne l'indenteur conique (a), tous les angles θ (couronne périphérique) sont sélectionnés et pour l'indenteur pyramidale, l'exemple illustre l'une des facettes à angle constant de la pyramide berkovich (position de la croix et du disque de tolérance 3° sur la figure de droite dans le repère (θ, ϕ)).

2.2.2 Rigidité de contact

La rigidité de contact est définie par la dérivée de la courbe de force en décharge en fonction de l'enfoncement de l'indenteur dans un domaine de déformation élastique. C'est la pente initiale de la courbe lorsque la décharge commence. La décharge élastique est considérée linéaire et ajustée par une droite sur les 20% de la force maximale [Oliver 04]. Ce critère est validé par la rigidité de contact obtenu en expérimental et en simulation numérique.

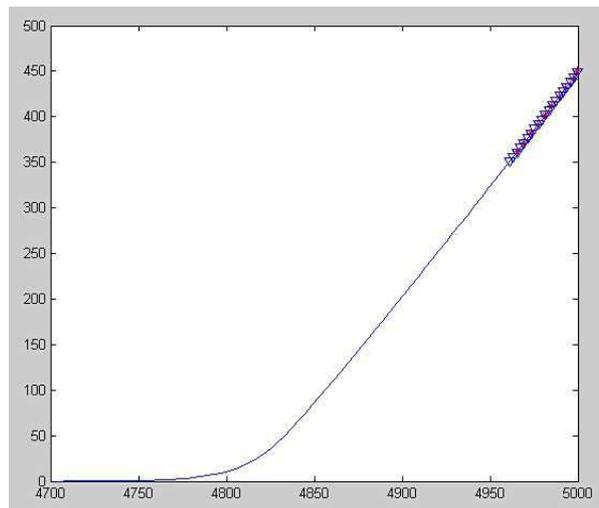


Figure 22: Post-traitement de la rigidité de contact - la pente de la courbe de décharge

La Figure 22 est un exemple de post-traitement de la rigidité de contact dans un cas de décharge à 5000nm d'un film monocristallin avec l'indenteur sphéro-conique. La courbe de décharge (force en fonction du déplacement) est représentée en trait continu. La force est maximale pour 5000nm d'enfoncement et s'annule vers une profondeur de 4750nm. Le fit de la rigidité de contact par une droite est également représenté. La tangente de la courbe est la rigidité à déterminer.

2.3 Nanoindentation

2.3.1 Matériel et conditions expérimentales

Les essais d'indentation expérimentaux ont été réalisés par Marc Verdier sur un nano-indenteur de type XP fabriqué par MTS Système au laboratoire SIMaP. Deux têtes de mesures ont été utilisées : une colonne de mesure de type XP et une DCM. Le principe de fonctionnement en est présenté sur la Figure 24. Ces deux colonnes (XP/DCM) se distinguent par leur résolution en force (respectivement 700mN / 30mN), en dynamique (masse de la colonne) ainsi qu'en force et déplacement maximales (100nN/10nN et 750 μ m/ 30 μ m respectivement). En plus des deux signaux de base mesurés indépendamment que sont la force exercée (F) et le déplacement de la colonne (h), ces deux unités de mesure disposent d'un mode dynamique de détection synchrone permettant d'accéder à (dF/dh) par superposition d'une oscillation en force ou déplacement (de 0.5 à 10 nm typiquement à environ 45Hz/80Hz pour la XP/DCM). Ce mode dynamique permet grâce à ces 'nanodécharges' continues d'accéder à la rigidité de contact (mode CSM pour Continuous Stiffness Measurement). Le mode CSM permet de plus une détection très fine de la surface qui est définie à partir d'une augmentation brutale liée au contact avec la surface de l'échantillon, Figure 23. Sur nos matériaux métalliques de module moyen à 100GPa, une rigidité détectée à 100 N/m correspond à un rayon de contact de 1nm, le seuil du zéro de la surface est établi à 20 N/m au maximum.

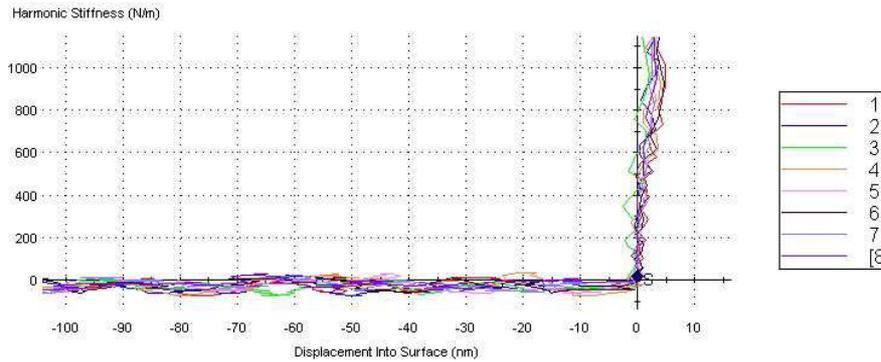


Figure 23 Exemple de détection de la surface (point S) à partir de la détection synchrone de la rigidité de contact, cas de 8 essais sur un monocristal de Cu (111).

L'effort réel F est quant à lui calculé a posteriori grâce à la mesure du déplacement et la connaissance de la raideur colonne k_z avec $F = F_{app} - k_z h_{tot}$. La calibration de k_z , est effectué systématiquement en déplacement libre

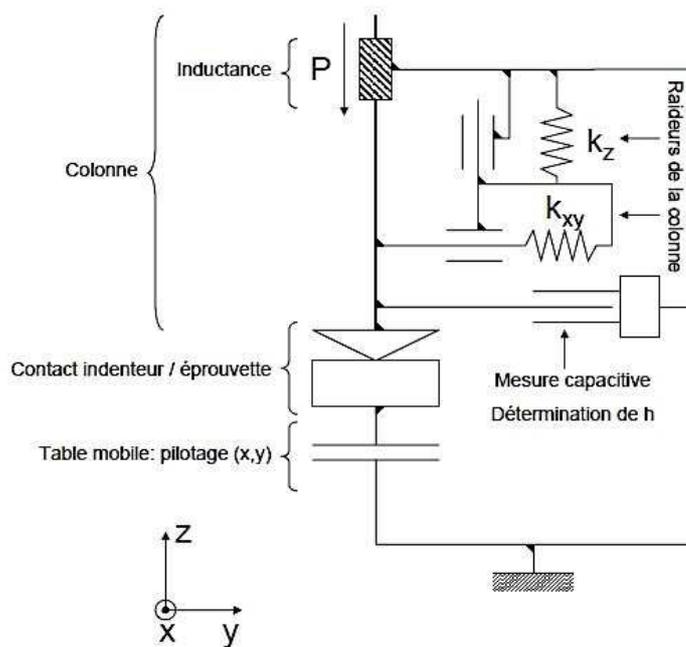


Figure 24 : Schéma de principe du nanoindenteur MTS

L'essai d'indentation sur notre machine est piloté en force, l'effort F est appliqué par le biais d'une inductance. Le déplacement h induit est déterminé par mesure capacitive. Enfin la raideur machine (cadre + montage échantillon) est de l'ordre de 7.10^6 N/m (en pratique elle est réalisée grâce au mode CSM sur de la silice recuite de rapport F/S^2 connu [Oliver 04]).

Géométrie des indenteurs

Les essais sont réalisés avec deux géométries : un indenteur sphéro-conique pour des monocristaux et des films de Cu sur un substrat Si, un indenteur de type Berkovich pour les films des verres métalliques.

La pointe sphéro-conique est axisymétrique et est bien adaptée pour étudier la plasticité de matériaux anisotropes, son apex sphérique est lié à la difficulté de réalisation d'un cône parfait, un rayon minimum est d'environ 500nm. Nous avons utilisé 3 pointes différentes, définies respectivement par le demi-angle du cône et le rayon d'apex, notées Angle($^{\circ}$)R(nm) à partir des mesures communiquées par le fabricant par profil en microscopie électronique en transmission. De par sa plus grande facilité de polissage pour réaliser un cône, ces pointes sont en saphir. La géométrie sphéro-conique que nous privilégierons pour l'étude de l'anisotropie plastique cristalline est aussi bien adaptée aux matériaux isotropes pour les calculs axi-symétriques. La pointe Berkovich, pyramide à trois faces détaillée en annexe permet d'obtenir un apex de pointe plus petit (typiquement un défaut de rayon de courbure de 50nm pour une pointe neuve) et de pouvoir bénéficier d'une forme auto-similaire à faible profondeur de pénétration. Dans cette thèse, nous avons varié les pointes pour les échantillons suivants :

- pour l'étude de plasticité cristalline (Cu [111]), nous avons utilisé les indenteurs sphéro-coniques 62R500 et 72R500 (soit par exemple 62R500: 62° est demi-angle de la partie de cône et R500 est le rayon 500nm de la partie sphérique, cf Annexe.
- Pour les monocristaux et les films de l'orientation de la surface (001), nous avons utilisé les pointes 62R500 et 72R1500 à l'indentation à profondeur maximale de 7000 nm (la pointe 72R500 ayant été endommagée).
- Enfin pour les films de verres métalliques ZrNi sur Si, une pointe Berkovich a été utilisée.

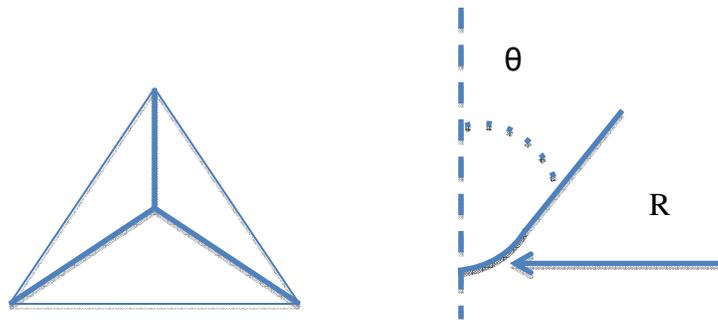


Figure 25: schéma des indenteurs utilisés pour des essais indentation (détails en annexe).a) Indenteur Berkovich parfait b) Indenteur sphéroconique avec le rayon R et semi-angle θ

Des défauts des indenteurs

Les pointes sphéro-coniques contiennent deux parties: une partie sphérique et une partie conique. Les profils d'apex sont mesurés par le fabricant que sur une hauteur de 500nm par profils en microscopie électronique en transmission (MET). On verra plus loin l'importance de la prise en compte du profil réel de la pointe par rapport aux données du fabricant.

2.4 AFM

La microscopie à force atomique (AFM) est utilisée comme un outil de métrologie à l'échelle nanométrique. La machine est de type Dimension 3100 fabriquée par Veeco.

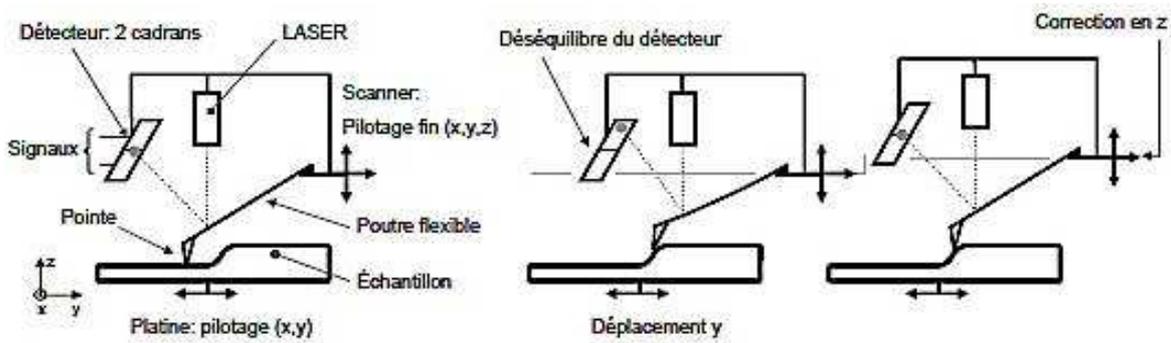


Figure 26: Schéma de principe de microscope à force atomique et d'imagerie de la topographie.

Fonctionnement de l'appareil :

La microscopie à force atomique exploite les interactions entre une pointe et une surface dont on désire obtenir une topographie en fonction de coordonnées en l'espace (x, y, z). La qualité géométrique de la pointe est maximisée pour permettre l'observation de défauts de faible échelle (rayon de pointe 10nm). La Figure 26 montre l'architecture du microscope et son principe de fonctionnement. Le microscope comporte 2 ensembles de rôle distincts :

La platine : C'est le support de l'échantillon. Elle permet des mouvements importants dans le plan (x, y). Elle permet de positionner la zone à imager sous la tête et sa position reste fixe par la suite.

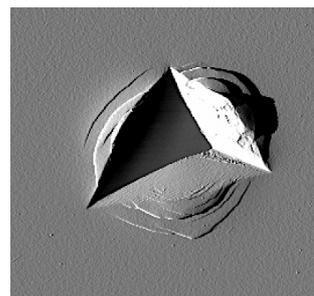
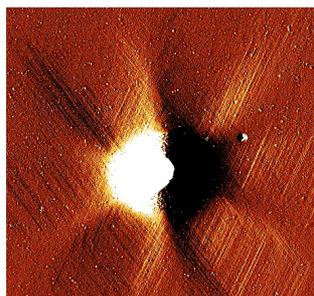
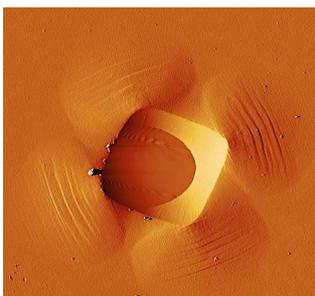
La tête et scanner : la tête est fixée sur le bâti du microscope. Elle comporte un scanner piloté en (x, y, z) au moyen d'actionneurs piézo-électriques qui autorisent des mouvements précis et de faible amplitude. Les mouvements générés par le scanner sont utilisés pour déplacer une pointe sur la surface de l'échantillon. La pointe est située à l'extrémité d'une poutre flexible de raideur k. L'autre extrémité cette poutre

est encastrée sur le scanner. Un faisceau laser incident est orienté sur l'extrémité de la poutre du côté de la pointe. Le faisceau réfléchi sur la pointe crée un spot lumineux sur un détecteur photodiode à 2 cadrans. La position du détecteur est calibrée pour qu'une déflexion donnée de la poutre engendre un spot centré sur le détecteur. Si le spot est centré, les signaux issus des deux cadrans du détecteur sont d'amplitudes identiques. Si le spot se décale, les signaux issus des deux cadrans de détecteur ne sont plus identiques. Il suffit d'observer la différence entre ces deux signaux pour détecter un mouvement du spot et une déflexion de la poutre.

Modes d'imagerie

Le mode contact est la méthode la plus simple pour produire une image. Le scanner est mis en mouvement selon z pour mettre la pointe en contact avec la surface et créer une déflexion z_p de la poutre. Une force $F_p = k.z_p$ est donc appliquée au contact. Le scanner est ensuite mis en translation selon y pour décrire des lignes sur la surface. Entre deux lignes, la position en x est incrémentée. Le scanner décrit ainsi une grille sur la surface, généralement 512x512 points.

Nous avons systématiquement utilisé un mode dynamique appelé « tapping ». Ce pilotage exploite un contact alternatif entre la pointe et la surface de l'échantillon. La poutre qui supporte la pointe possède une fréquence de résonance f_r , sur laquelle elle est ajustée. La composante z_0 permet de piloter la position moyenne du scanner. En l'absence de contact, un signal d'amplitude constante est mesuré sur le détecteur. Pour obtenir une image de la surface, le scanner est approché en jouant sur la composante z_0 . Quand un contact alternatif entre la pointe et la surface apparaît, l'amplitude mesurée sur le détecteur diminue. Pendant le balayage de la surface, la position $z_0(t)$ est asservie pour maintenir l'amplitude mesurée par le détecteur constante au travers d'une boucle de régulation Proportionnel-Intégral : ce qui constitue le signal de topographie de la surface.



a)

b)

c)

Figure 27: Signal d'erreur d'amplitude de tapping : surface de a) film(Cu) 10 micron -surface (001) b) Monocristal Cu indenté à 1500nm- surface (111) c) Film d'un verre métallique

En plus de la topographie $z(x, y)$ le signal d'erreur est très utile. Il correspond à la différence entre l'amplitude mesurée et l'amplitude constante imposée : le balayage se faisant sur l'axe des abscisses x , ce signal peut être assimilé à la dérivée partielle dz/dx : cela permet de mettre en évidence tout changement de pente (noir : descente, blanc : montée) de la surface et ainsi de révéler les changements abrupts tels que les émergences des dislocations ou des bandes de cisaillement comme illustrées Figure 27. Ce signal peut être utilisé pour mesurer les aires de contact pour des bords francs (cas a) et c) mais pas b)) des illustrations ci-dessus.

2.5 Matériaux

2.5.1 Monocristaux de Cu

Deux des monocristaux de Cu avec comme orientation de la surface (001) et (111). Sont utilisés. Ces monocristaux massifs (10mm de hauteur) ont été recuits plusieurs heures sous haut vide (10^{-7} Torr) à 650°C . La surface a été préalablement préparée par un polissage final électrochimique (H_3PO_4 20% - éthanol à un potentiel de 0.65V, électrode en Cu 4N) permettant d'obtenir une rugosité finale de l'ordre du nm (RMS).

2.5.2 Film Cu/Si

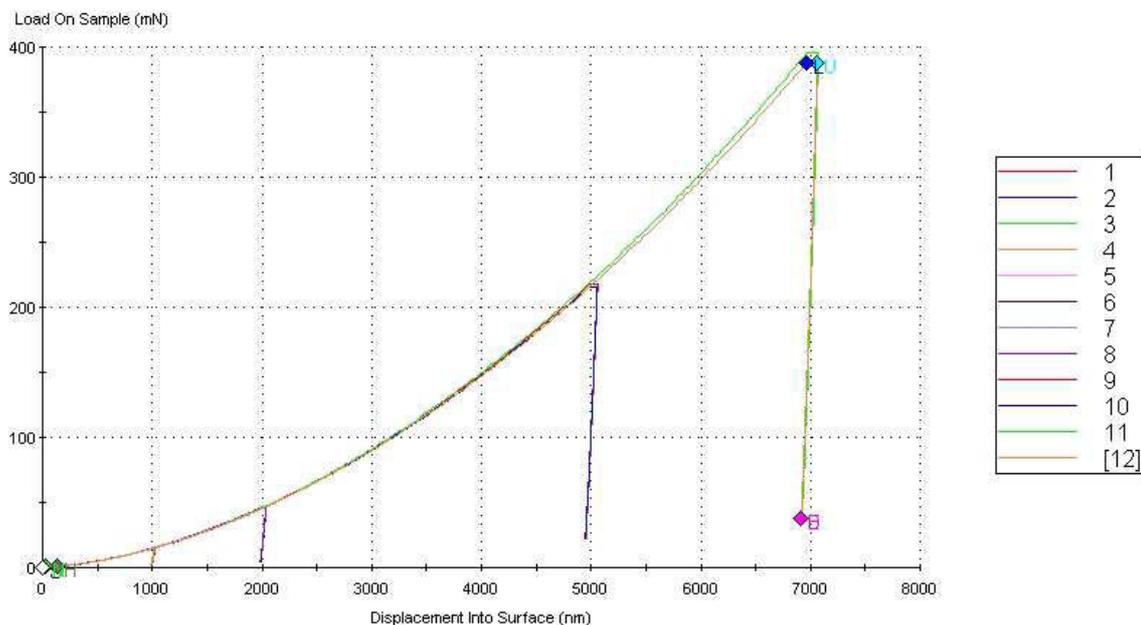
Dans la partie des films, nous avons utilisé des films épitaxiés sur Si (001) avec l'orientation de la surface (001), déposé au Los Alamos Nat Lab sur une épaisseur de 10 microns. Des mesures complémentaires sur des films polycristallins de 3 microns ont été réalisées à partir de dépôts réalisés au Léti (CEA Grenoble). Ces films sont déposés sur un substrat de Si préalablement recouvert d'une mince barrière de diffusion (10 nm TiN) et recuits 30 min. à 450°C avant un polissage mécano-chimique (CMP) : une rugosité finale inférieure au nm (RMS) est obtenue.

2.5.3 Film Verres métalliques ZrNi/Si

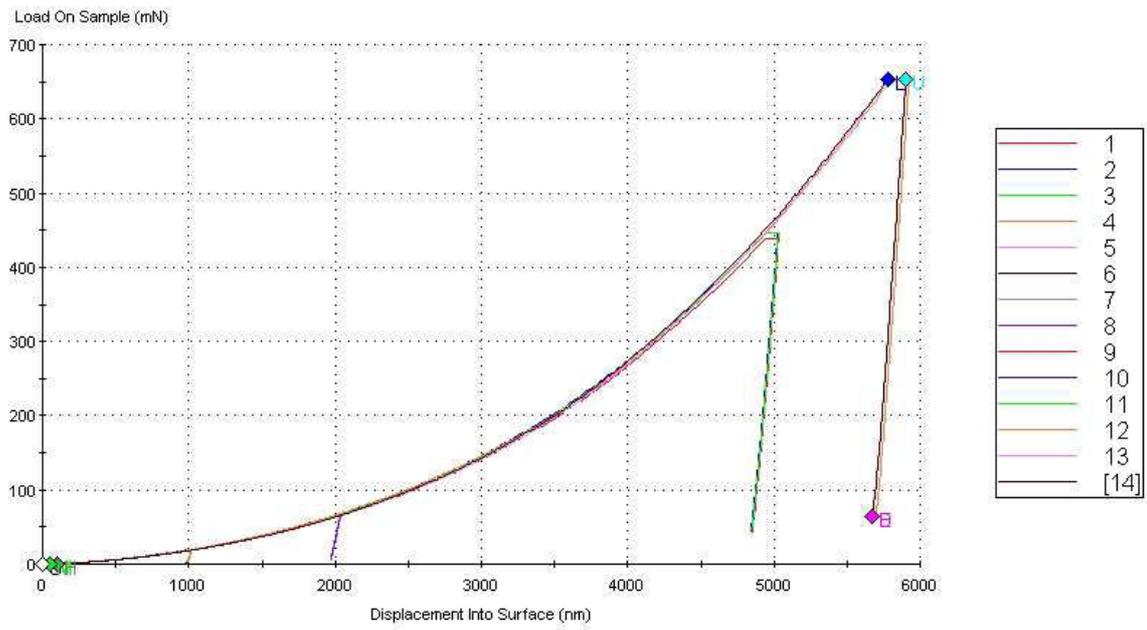
Dans le cadre de la thèse d'Antoine Volland de l'ANR MEGAPROSE au laboratoire, nous avons étudié l'indentation d'un film isotrope ayant différentes épaisseurs sur un substrat: il s'agit d'un verre métallique modèle ZrNi élaboré par A.Volland [Volland 12]. Ces films sont déposés en PVD sur des substrats de Si (100) par pulvérisation (DC magnétron) de cible ZrNi à la PTA (Plateforme Technologique Avancée à Grenoble).

Sur l'ensemble de ces matériaux, la reproductibilité des essais de nanoindentation est excellente (déviations de moins de 2% sur 10 essais): la rugosité et les conditions d'élaboration et de recuit permettent d'assurer cette condition. A titre d'exemple, les courbes sur un massif, le Cu (111), un film épitaxié Cu(001)/Si et un film polycristallin Cu_{poly}/Si sont présentées ci-dessous, ce dernier étant un exemple typique d'échantillon « hétérogène ».

Cu(111), pointe saphir C75R1500 :



Cu (001)/Si, pointe saphir C72R1500 :



Cu polycrystallin/Si , 2-5 grains / indents, pointe C72R500 :

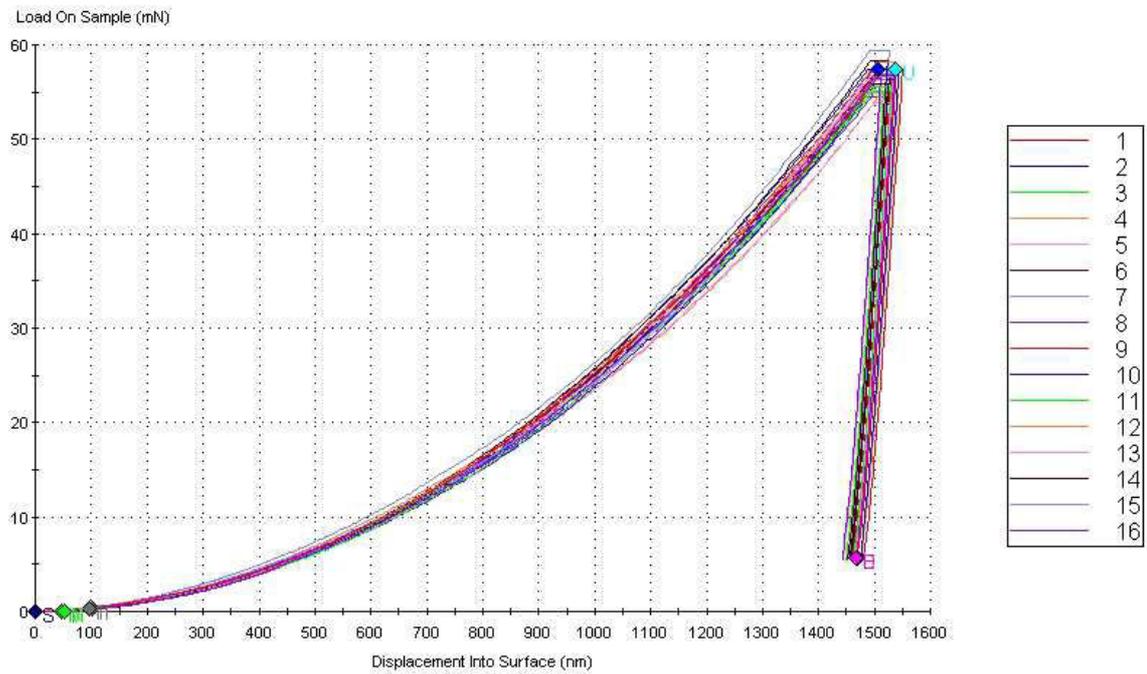


Figure 28 Exemples de courbes de charge / reproductibilité sur Cu(111), Cu(001)/Si et Cu_{polys}/Si

3 Echantillon Massif

3.1 Prise en compte de la déformation de l'indenteur

Les modèles mécaniques permettant de remonter au module d'Young des matériaux testés à partir des données expérimentales doivent prendre en compte l'élasticité de l'indenteur, qui peut notablement modifier la réponse globale du système. En général, c'est une correction très simple qui est effectuée, du type « complaisance en série » [Johnson 85]:

$$\frac{1}{E_{eff}} = \frac{1-\nu_m^2}{E_m} + \frac{1-\nu_1^2}{E_1} \quad \text{Équation 44}$$

avec E_m et ν_m le module d'Young et coefficient de Poisson du matériau indenté, E_1 et ν_1 ceux de l'indenteur, E_{eff} le module de l'association série, dit module effectif. On notera

$M_m = \frac{E_m}{1-\nu_m^2}$ et $M_i = \frac{E_i}{1-\nu_i^2}$ respectivement les modules réduits du matériau indenté et de

l'indenteur. On rappelle qu'expérimentalement, on a accès à la mesure de la rigidité de contact S . On utilise ensuite la formule de Sneddon (Équation 7) pour extraire E_{eff} .

Dans notre cas, les matériaux indentés ont des modules d'Young compris entre 100 et 150 GPa. Les pointes utilisées lors des indentations sont des pointes saphir (400GPa) et diamant

(1140 GPa). On peut utiliser l' $\frac{1}{E_{eff}} = \frac{1-\nu_m^2}{E_m} + \frac{1-\nu_1^2}{E_1}$

Équation 44 pour estimer l'erreur faite en négligeant la déformation de l'indenteur. En calculant l'écart relatif entre module réduit du matériau indenté et module effectif, on estime

une erreur de $\left| \frac{M_m - E_{eff}}{M_m} \right| = 0.1$ (10%) dans le cas d'un indenteur diamant et 20% dans le cas

du saphir. Ainsi il convient bien de prendre en compte la déformation de l'indenteur dans tous les cas que nous considérons dans cette étude.

Pour les simulations décrites ici, on modélise l'indenteur comme un corps élastique linéaire isotrope, de forme sphéro-conique. Le substrat est aussi considéré comme élastique linéaire isotrope dans ce paragraphe. Les valeurs des modules d'Young de la pointe (E_i) et de l'échantillon (E_m) sont reportées dans le Tableau 2. Le coefficient de Poisson est fixé à 0,3 pour l'indenteur et pour l'échantillon.

Matériau indenté (E_m) : GPa	Matériau de l'indenteur (E_i) GPa	E_i/E_m
100	50	0.5
100	100	1
100	200	2
100	300	3
100	400	4
100	1000	10
100	10000	100

Tableau 2: Valeurs des modules d'Young de l'indenteur et l'échantillon, pour les simulations avec échantillon élastique linéaire isotrope.

Les courbes de charge en fonction de la pénétration de l'indenteur 72R500, pour différents rapports E_i/E_m , sont reportées Figure 29. Les réponses du système varient beaucoup en fonction de la rigidité de l'indenteur. Comme attendu, pour un déplacement imposé donné, la force de réaction est d'autant plus forte que l'indenteur est rigide. Ainsi dans notre exemple d'un matériau indenté de module d'Young s'élevant à 100 GPa, pour un enfoncement de 1 μ m, la force est de 100 mN si l'indenteur et l'échantillon ont des modules identiques, alors qu'elle est de 250 mN si l'indenteur est infiniment rigide.

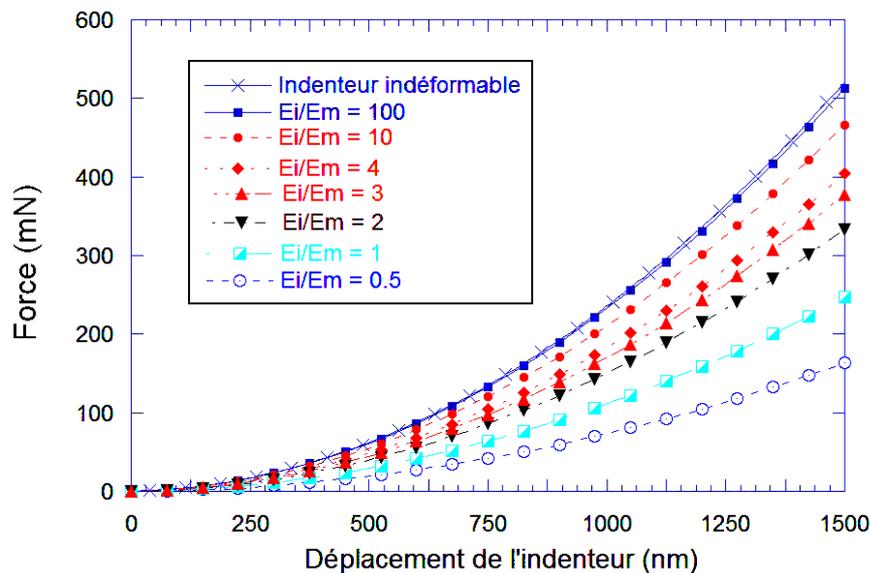
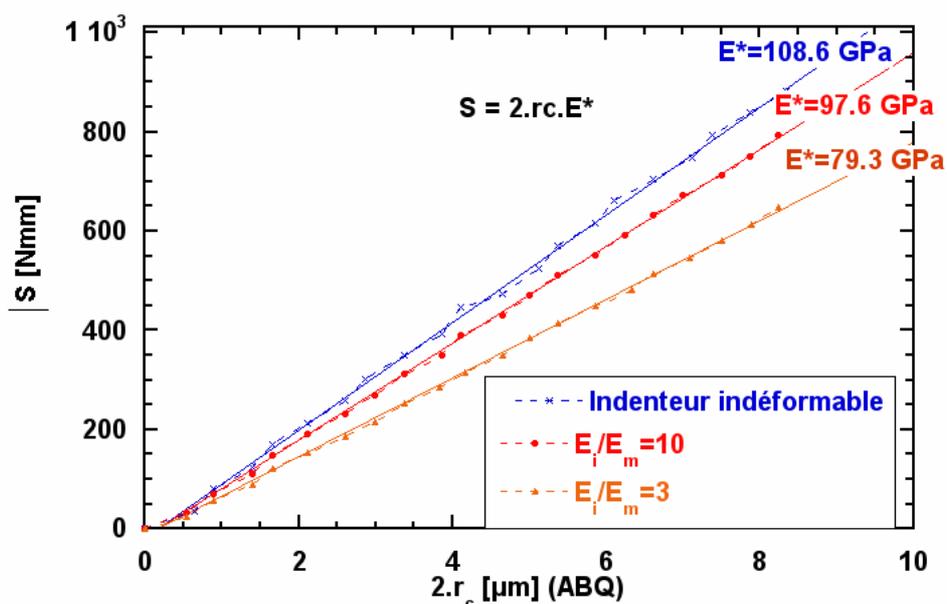


Figure 29: Evolution de la force en fonction du déplacement de l'indenteur pour différents rapports des modules d'Young E_i/E_m dans le cas de matériaux élastiques isotropes.

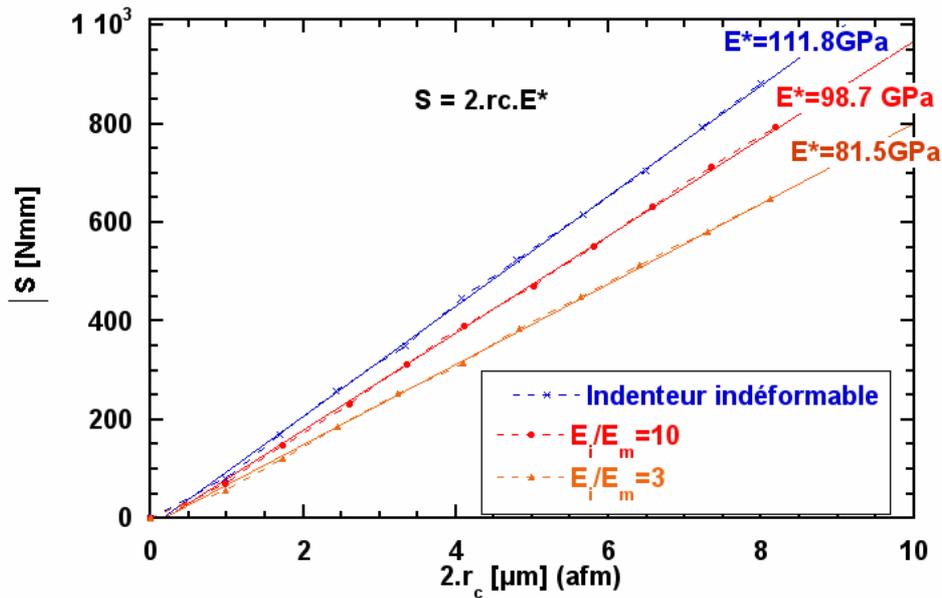
La validité de l'approximation série (Equation 44) a été vérifiée à l'aide de nos calculs numériques. Deux méthodes du calcul de l'aire de contact ont été utilisées :

- L'une notée ABAQUS est simplement la donnée de sortie du calcul sous ABAQUS de l'aire de contact, identifiée à partir du champ des pressions de contact.
- L'autre notée AFM, repose sur un post-traitement à l'aide d'un programme Scilab des champs de déplacement en surface issus du calcul par éléments finis. Cette méthode a été décrite dans le chapitre 3. Pour mémoire, il s'agit d'une analyse de la déformée de surface (dans la direction normale à la surface indentée) visant à détecter la frontière de la zone en contact entre échantillon et indenteur.

La relation de Sneddon donne une dépendance linéaire entre la rigidité S et le rayon de contact r_c . Un fit linéaire a donc été effectué sur les données de rigidité issues du calcul. Les résultats numériques ainsi que les fits linéaires sont reportés Figure 30 ((a) à partir des données d'aire d'ABAQUS, (b) par la méthode de la déformée de surface).



(a)



(b)

Figure 30 : Vérification de la relation de Sneddon dans le cas d'un indenteur déformable (72R500) avec le rayon de contact obtenu (a) par ABAQUS (b) par la déformée de surface (cf. chapitre 3, § XX).

Les résultats sont synthétisés dans le Tableau 3. Dans la partie gauche du tableau, les résultats rapportés correspondent à la première méthode de mesure de surface (ABAQUS), alors que la partie droite correspond à l'utilisation de la deuxième méthode (AFM). On note que la méthode AFM est plus précise que la méthode ABAQUS. Cela est sans doute dû en partie au fait qu'ABAQUS fournit l'aire de contact réelle, et non pas l'aire projetée suivant la direction d'indentation, qui est celle qu'il convient d'utiliser dans la formule de Sneddon. La méthode AFM donne un écart relatif pratiquement constant autour de 1,5%, quel que soit le rapport E_i/E_m (de 3 à ∞). Ces résultats démontrent que l'approximation série est très robuste !

E_i/E_m	E^* (Sneddon) (ABAQUS)	E éch fitté (ABAQUS)	Erreur relative (ABAQUS)	E^* (Sneddon) (AFM)	E éch fitté (AFM)	Erreurrel. (AFM)
∞	108,6	98,8	1,2%	111,8	101,7	1,7%
10	107,2	97,5	2,5%	108,4	98,7	1,3%
3	104,5	95,1	4,9%	108,3	98,6	1,4%

Tableau 3: Erreur commise sur l'évaluation du module d'Young en utilisant la relation de Sneddon suite à une simulation d'indentation dans ABAQUS, avec un indenteur déformable. L'indenteur est ici élastique linéaire isotrope ($E_i = \{\infty, 100\text{GPa}, 300\text{GPa}\}$, $\nu_i = 0,3$) ainsi que le matériau indenté ($E_m = 100$, $\nu_m = 0,3$). Deux méthodes de calcul de l'aire de contact sont mises en œuvre (ABAQUS et AFM).

Les Figure 31 et Figure 32 montrent respectivement les courbes force en fonction du déplacement de l'indenteur et les courbes de rigidités dans le cas d'un échantillon modélisé par un matériau élastique anisotrope. Les mêmes méthodes s'appliquent, les mêmes tendances se retrouvent. Il faut noter que la valeur du module identifié dans ce cas dépend de l'orientation de la surface.

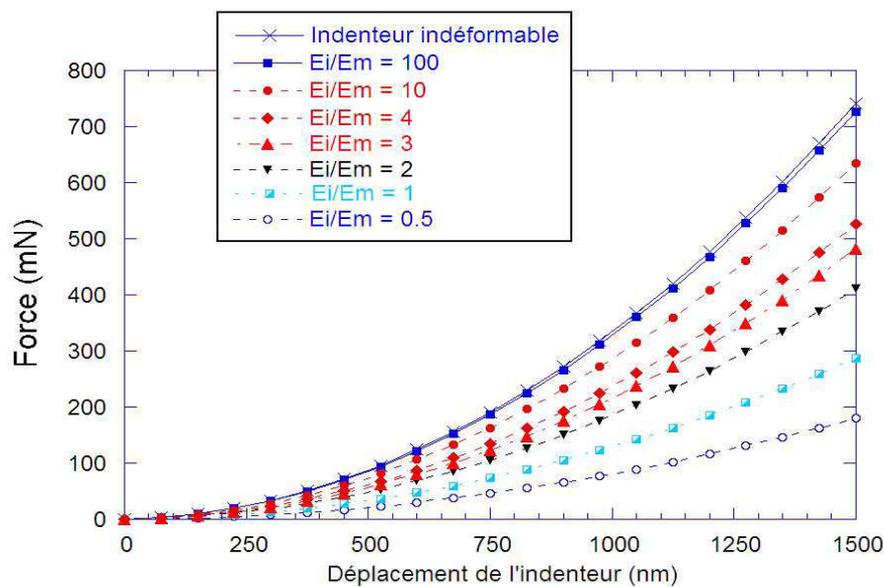


Figure 31: Evolution de la force en fonction du déplacement de l'indenteur, pour différents rapports de modules d'élasticité E_i/E_m dans le cas de matériaux élastiques anisotropes.

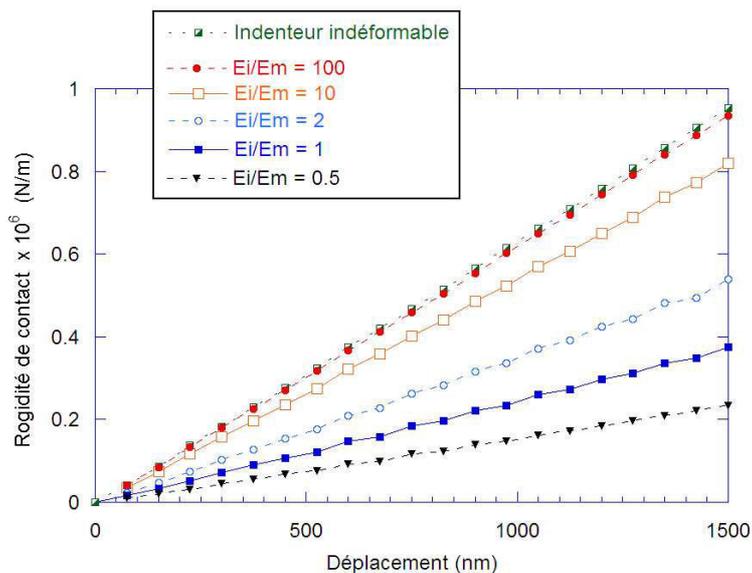


Figure 32: Evolution de la rigidité de contact pour un échantillon élastique anisotrope dans le cas d'un indenteur déformable, pour différents rapports E_i/E_m

Pour terminer cette section, on examine au travers d'un calcul le cas d'un matériau élasto-plastique cristallin CFC (anisotropie élastique et anisotropie plastique avec pour variable interne la densité initiale de dislocations sur chaque système) indenté d'une part par un indenteur indéformable, d'autre part par un indenteur déformable. On compare plusieurs densités initiales de dislocations. Les résultats sont reportés *Figure 33*. On a pris ici les données du cuivre orienté (111) avec une loi TaylorNormal. L'indenteur modélisé ici est celui de géométrie 72R500, avec les propriétés du saphir ($E_i/E_m=3$) dans le cas déformable. On peut voir que la différence entre indenteur déformable et indenteur indéformable ne se ressent pas sur la courbe de charge, alors qu'il y a une réelle influence sur la courbe de rigidité, qu'on ne peut pas négliger si on veut évaluer le module élastique ! Cette observation est typique d'un régime où la déformation est essentiellement plastique (cas de la courbe force vs pénétration).

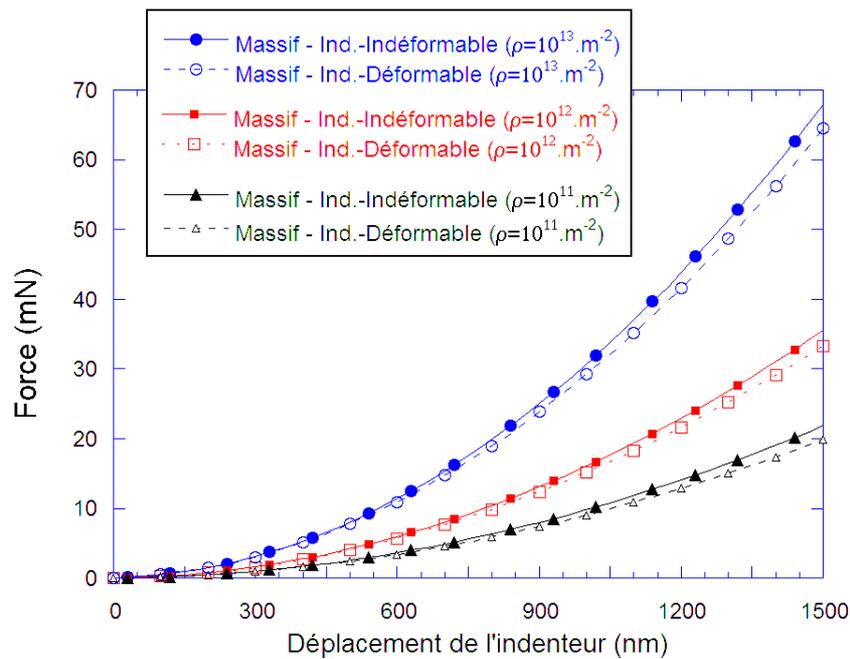


Figure 33: Simulations explorant l'influence de la rigidité relative de l'indenteur dans le cas d'un matériau cristallin elasto-plastique (anisotropie élastique et anisotropie plastique) sur la courbe de force en fonction de la profondeur d'indentation, pour différentes densités de dislocations initiales. Indenteur 72R500 - Loi TaylorNormal - Cu (Monocristal-Anisotrope-111)

3.2 Chargement et rigidité de contact dans le cas élasto-plastique

Dans cette section, on explore numériquement le cas de l'indentation de matériaux plastiquement isotrope, avec ou sans écrouissage et élastiquement isotropes ou anisotropes. Le but des calculs est de :

- Vérifier dans quel cadre il est cohérent d'utiliser la formule de Sneddon pour un matériau pouvant se déformer plastiquement de manière isotrope.
- Evaluer l'influence des paramètres des lois de plasticité (limite élastique, écrouissage) sur la dureté.

La loi de plasticité utilisée est une loi puissance de type Hollomon (voir chapitre 1). Le cas plastique parfait est obtenu en choisissant un exposant nul dans la loi puissance ($n=0$).

Tout d'abord, *Figure 34*

Figure 34, on cherche à voir l'influence de l'anisotropie élastique du matériau sur la réponse en force en fonction de la profondeur d'indentation en comparant trois cas : l'élasticité pure, un écrouissage $n=0,3$ et un écrouissage $n=0,5$. Si l'effet de l'anisotropie est claire dans le cas élastique pur (différence de 14% à sur la charge à profondeur maximale d'indentation), il est beaucoup moins sensible dans le cas plastique, où la différence de réponse semble essentiellement pilotée par l'écrouissage. Ici encore, c'est le signe d'un régime où la déformation est essentiellement plastique.

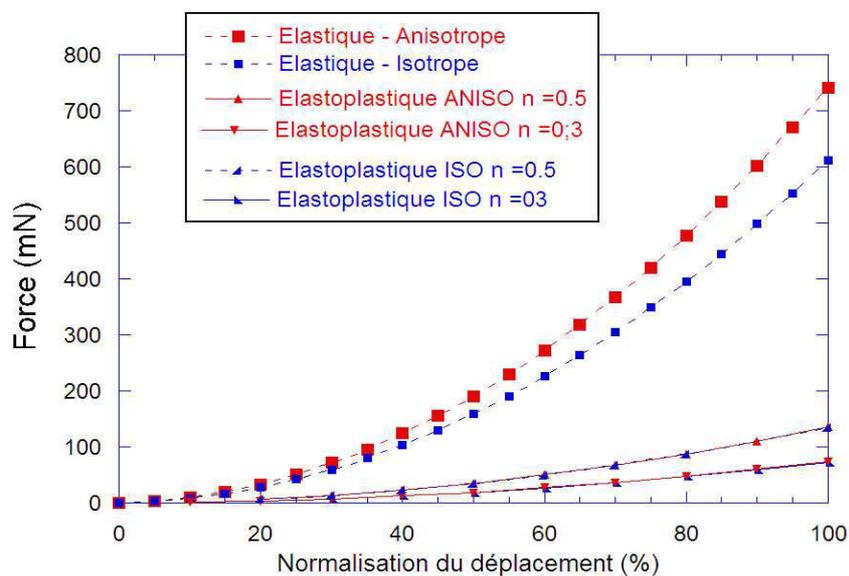


Figure 34: Influence de l'anisotropie élastique du matériau sur la réponse force vs profondeur d'indentation sur trois cas : élasticité pure, écrouissage $n=0,3$, écrouissage $n=0,5$. Indenteur indéformable de demi-angle de 72° , rayon sphérique de 500nm

La *Figure 35* montre la rigidité de contact en fonction de l'aire de contact. Dans la simulation, la rigidité de contact a été obtenue à différents stades d'enfoncement en effectuant des décharges successives. La rigidité ne dépend pas de l'écroutissage, mais uniquement du choix de propriétés élastiques isotropes ou anisotropes (courbes superposées pour des propriétés élastiques données, quel que soit n , aux erreurs numériques près).

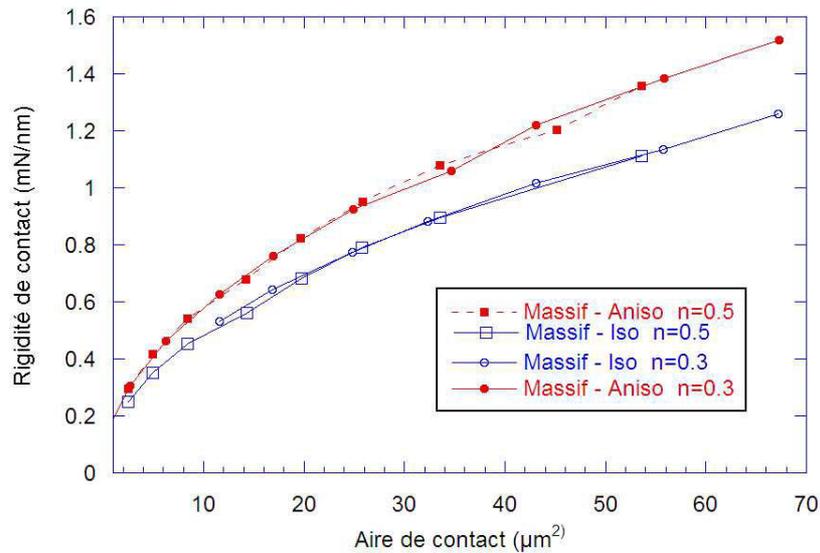


Figure 35: rigidité de contact en fonction de l'aire de contact dans le cas de matériaux massifs isotropes et anisotropes pour différents coefficients d'écroutissage.

Les influences de l'écroutissage et de la limite d'élasticité sur la courbe de force en fonction de la profondeur d'indentation sont explorées la *Figure 36* et la *Figure 37* respectivement. La force qu'il est nécessaire d'appliquer pour un enfoncement donné est une fonction croissante de la limite d'élasticité et du coefficient d'écroutissage.

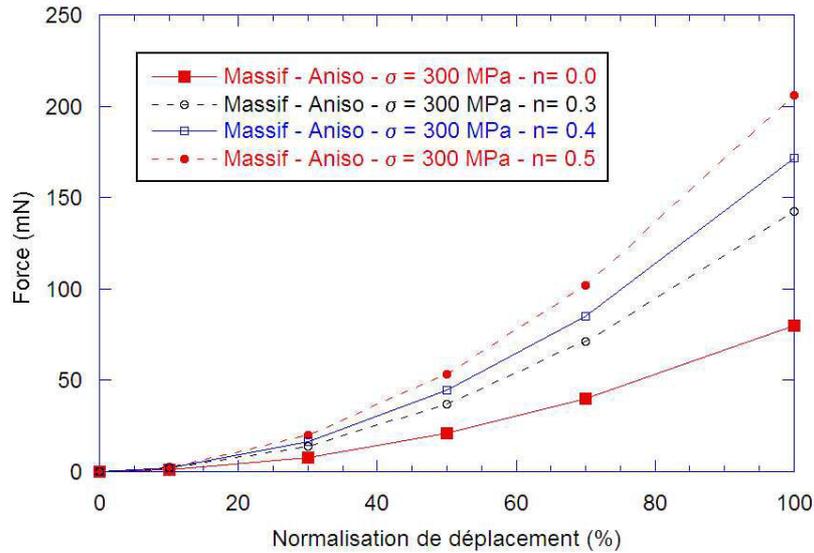


Figure 36: synthèse du comportement de matériaux massifs anisotropes pour différent coefficients d'écroutissage n . La limite d'élasticité est fixée à 300MPa. La sollicitation est effectuée avec un indenteur indéformable 72R500.

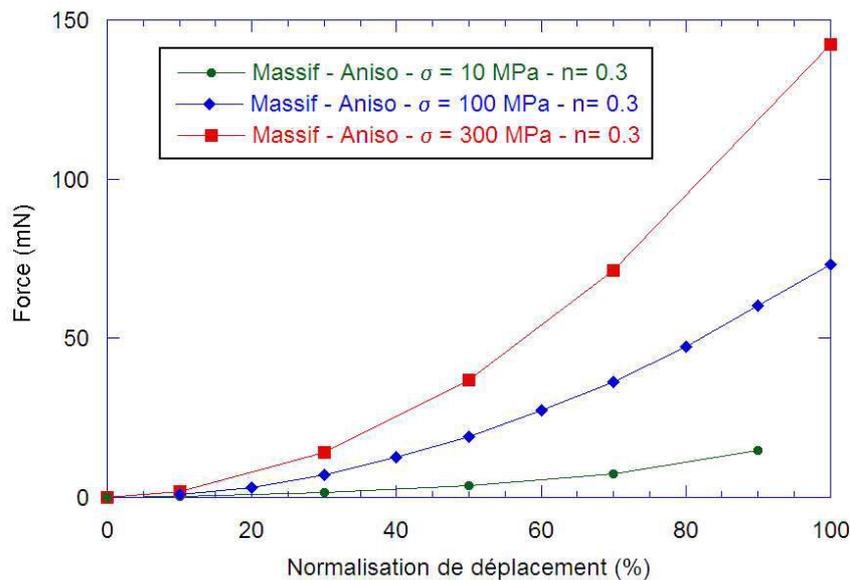


Figure 37: synthèse du comportement des matériaux massifs anisotropes à différentes limites d'élasticité et pour un coefficient d'écroutissage n fixé à 0.3 La sollicitation est effectuée avec un indenteur indéformable 72R500.

La Figure 38 présente la rigidité de contact pour différentes limites élastiques. Là encore on peut dire que la rigidité de contact ne dépend pas de la limite élastique, mais bien uniquement des propriétés élastiques du matériau, comme postulé par la formule de Sneddon. Même si l'écoulement plastique autour de la pointe modifie la géométrie au voisinage de la zone de

contact (dans la mesure où nous sommes en grandes déformations lors du calcul), la rigidité s'exprime toujours de la même manière.

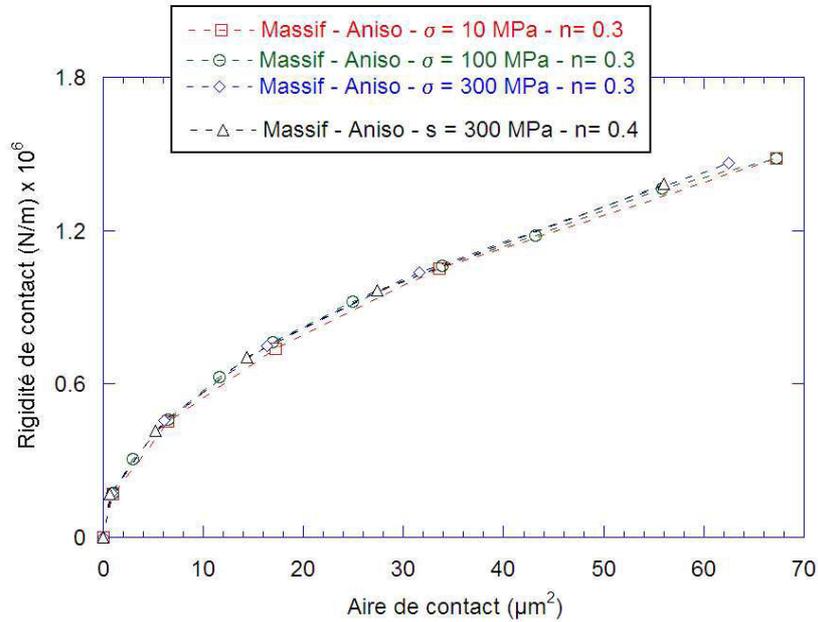


Figure 38: rigidité de contact en fonction de l'aire de contact pour un matériau massif anisotrope, pour différentes limites élastiques.

La dureté $H = F/A_c$ est reportée Figure 39 dans le cas du matériau massif anisotrope élastique, isotrope plastique avec différentes limites élastiques et différents coefficients d'écrouissage. On capture à la fois l'effet de la limite élastique σ_y mais aussi celui de l'écrouissage à travers le coefficient n . On vérifie que la dureté est bien indépendante de la profondeur d'indentation, comme on peut s'y attendre dans le cas du matériau massif, donc de hauteur « infinie » devant la profondeur d'indentation et d'un indenteur conique parfait. Ces deux conditions garantissent en effet une autosimilarité du problème mécanique.

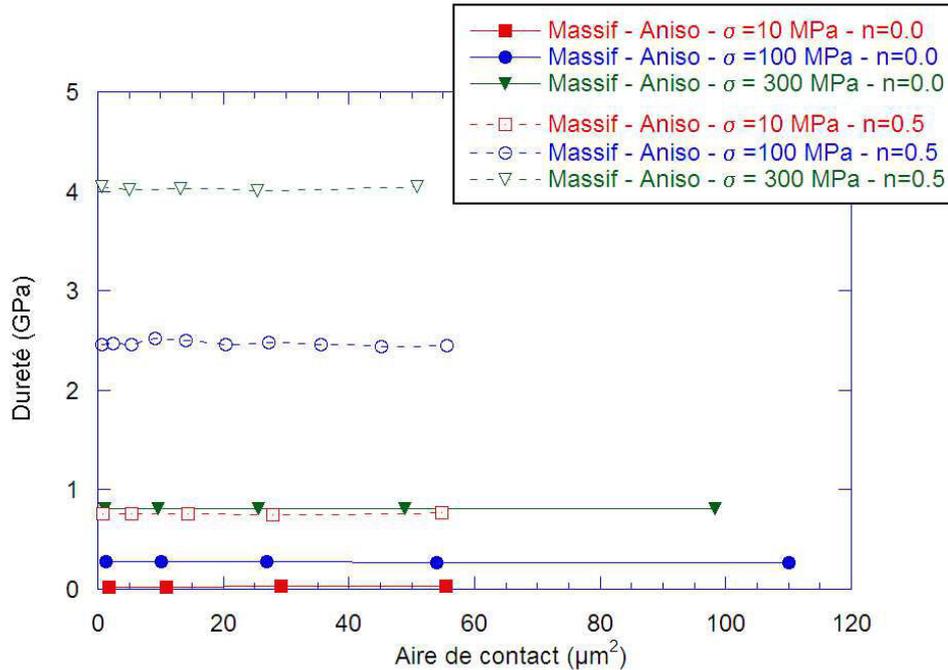


Figure 39: Dureté calculée pour différentes limites élastiques et différents coefficients d'écrouissage dans le cas du matériau élastique anisotrope et plastique isotrope à loi puissance (Hollomon).

3.3 Cas de la plasticité anisotrope (plasticité cristalline)

Dans cette section, on mène la suite de cette étude purement numérique sur le comportement des matériaux elasto-plastiques soumis à l'essai de nano-indentation en examinant le cas d'un matériau cristallin, anisotrope élastiquement et aussi plastiquement. La loi de plasticité choisie est une loi de plasticité cristalline, telle qu'elle a été décrite précédemment. Cette loi comporte une unique variable interne qui est la densité initiale de dislocations sur les différents systèmes de glissement. L'écrouissage dépend ainsi essentiellement de la variation de cette variable interne. On dispose de plusieurs jeu de paramètres d'écrouissage, dont on pourra comparer les résultats. Le Tableau 4 résume les paramètres utilisés pour les calculs.

Une étude systématique des effets des paramètres (α), (a) et K avait été menée précédemment dans la thèse de H.J. Chang [Chang 09].

Nous ne reprendrons ici que deux jeux pertinents qui avaient montré une bonne adéquation avec les expériences:

« Taylor Normal » (TN) :

- Une matrice d'écrouissage avec α constant et fixé à 0.09 pour retrouver le 'classique' Taylor scalaire avec $\alpha=0.3$ [Fivel 07],
- les paramètres (a) proposés par [Fivel 07]

« Hetero-Same » (HS):

- une matrice d'érouissage hétérogène où les valeurs (0.122, 0.122, 0.07, 0.137, 0.122, 0.625) correspondent respectivement à l'effet de jonctions créées par des interactions du type self, coplanaire, orthogonale, glissile, Lomer et colinéaire. Ces valeurs ont été identifiées par des simulations de dynamique de dislocations [Devincre 06][Kubin 08],
- les valeurs similaires $(a)=(\alpha)$ « same » en suivant les hypothèses formulées par Kubin et al. [Kubin 08].

Propriété élastique	C_{11}	168.4 GPa
	C_{12}	121.4 GPa
	C_{44}	75.4 GPa
Propriété d'écoulement	γ_0	0.001/second
	m^s	0.005
Propriété d'érouissage	μ	75.4 GPa
	b	$2.56 \cdot 10^{-10} \text{ m}$
	α_{1-6}	(0.09, 0.09, 0.09, 0.09, 0.09, 0.09,) (TN) (0.122, 0.122, 0.07, 0.137, 0.122, 0.625) (HS)
Propriété de l'évolution des dislocation	a_{1-6}	(0.01, 0.4, 0.4, 0.75, 1.0, 0.4)
	K	36
	y_c	$1.43 \cdot 10^{-9} \text{ m}$
	ρ_0	$1.0 \cdot 10^{11} \sim 10^{13} / \text{ m}^2$

Tableau 4: Données d'entrée du modèle cristallin : tenseur élastique [Simmons 71] du Cu et lois plastique

La conséquence de l'anisotropie plastique est une déformation de surface anisotrope, modélisée par les systèmes de glissement actifs (présence de bourrelets ou « pile up »). La Figure 40 représente une représentation de la déformée de surface au voisinage de l'empreinte pour différentes simulations des orientations cristallographiques de la surface du monocristal.

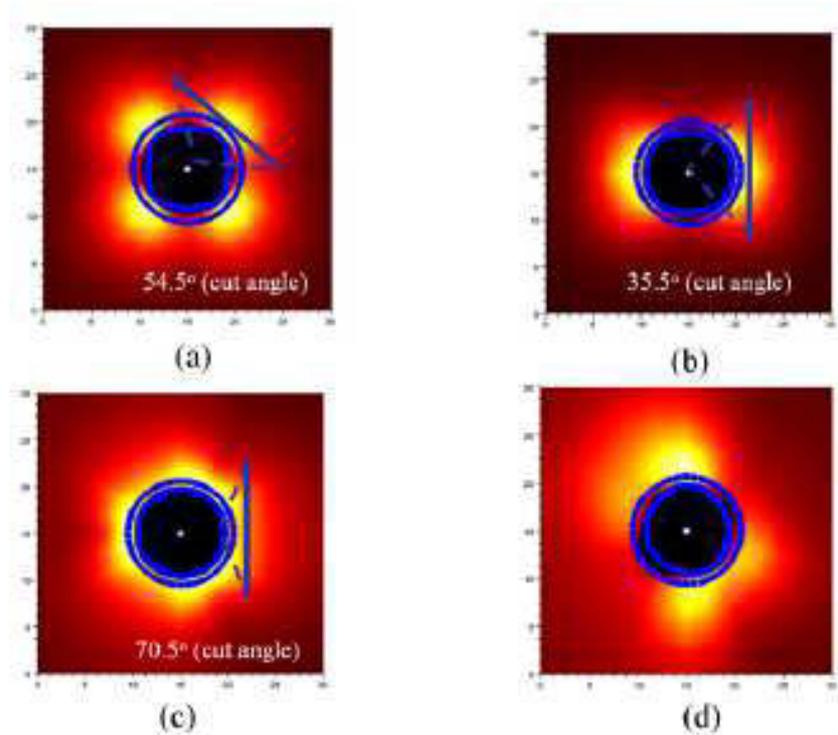


Figure 40: Résultat de la simulation de la morphologie de la surface à différentes orientations : (a) orientation (001), (b) orientation (110), (c) orientation (111), (d) orientation (123)

L'effet de l'anisotropie et celui de la densité initiale de dislocations sur la courbe de charge sont examinés la Figure 41. Les trois surfaces (111), (011) et (001) sont considérées ainsi que deux densités initiales de dislocations (10^{11} m^{-2} et 10^{13} m^{-2}) représentant les extrema typiques pour des monocristaux (plus ou moins bien recuits). L'indenteur modélisé est de géométrie 72R500, indéformable. Le modèle d'écroutissage choisi est de type TaylorNormal. On retrouve la même tendance que dans le cas plastique isotrope : l'influence de la densité initiale de dislocation, domine celle de l'orientation cristalline. L'influence de l'orientation cristallographique se fait tout de même sentir, avec une orientation (001) clairement « moins dure » que les autres. On retrouve ici le caractère tridimensionnel de la sollicitation d'indentation qui ne permet pas de retrouver les stades de glissement simple/double de la traction uniaxiale.

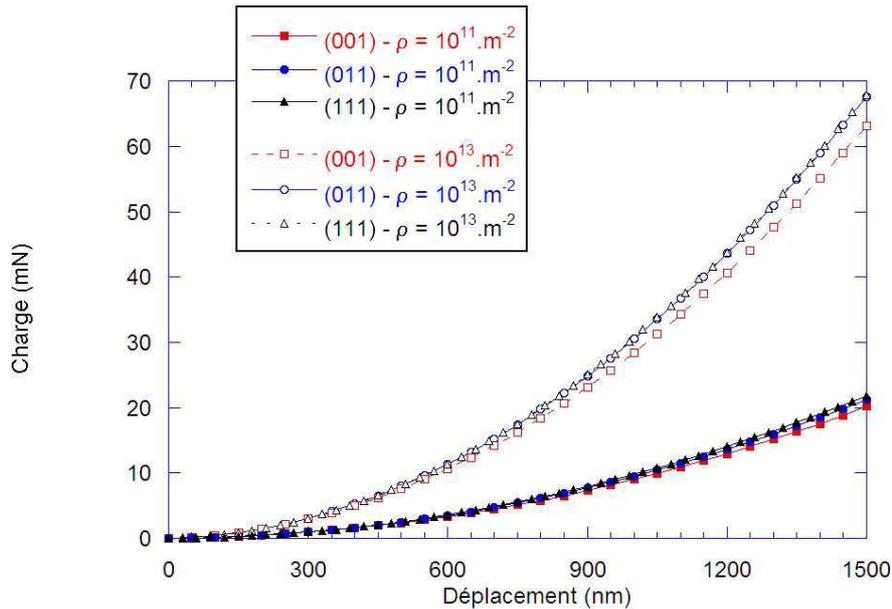


Figure 41: Influence de l'orientation de la surface cristalline – Monocristaux à différentes orientations : (111), (011), (001) et différentes densités initiales de dislocations - Indenteur 72R500 indéformable – Loid'écrouissage TaylorNormal

L'influence de la densité initiale de dislocations a été examinée sur deux calculs effectués avec des géométries de pointes différents : la géométrie 62R500 pour la Figure 42 et la géométrie 72R500 pour la Figure 43. Les résultats numériques sont dans les deux cas comparés aux données expérimentales issues d'essais d'indentation. Pour la première pointe (62°), plus effilée, l'effort à fournir pour pénétrer à une profondeur donnée est moins important que pour la 72°. On a une procédure d'identification de la densité initiale de dislocations par comparaison des résultats expérimentaux et numériques. La densité de dislocations est la seule variable interne de la plasticité, et le seul paramètre à identifier *pour un choix de modèle d'écrouissage donné*. Dans cette idée, il suffit alors de voir pour quel ρ_i la courbe numérique colle au mieux à la courbe expérimentale. Puisque c'est le même cristal qui a été testé avec deux géométries de pointes différentes, on s'attend à trouver le même ρ_i optimal dans les deux cas. On voit qu'en effet on se retrouvés autour de $\rho_i = 5 \times 10^{11} \text{ m}^{-2}$ dans les deux cas. On se propose d'étudier plus en détail la robustesse de cette procédure d'identification dans la section suivante.

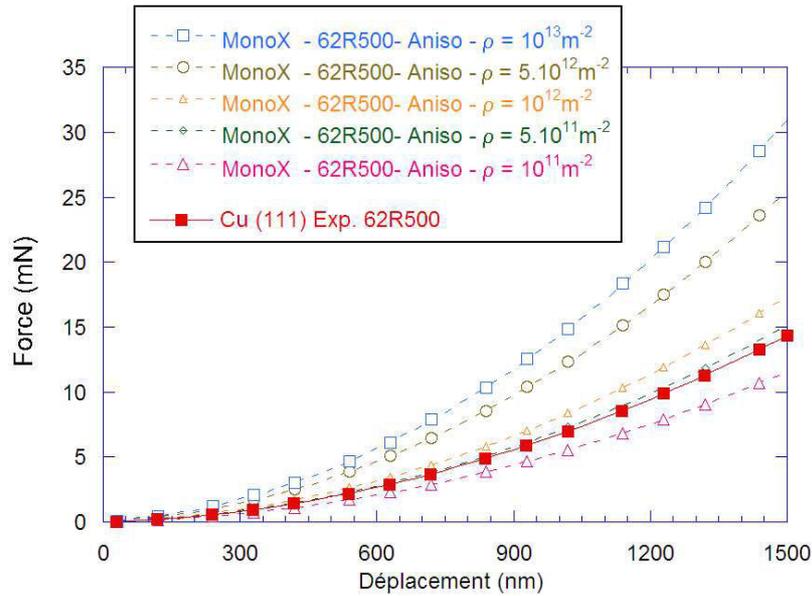


Figure 42: Evolution de charge en fonction de profondeur à différent densité de dislocation initiale - Indenteur indéformable 62R500 - Plasticité cristalline - TaylorNormal

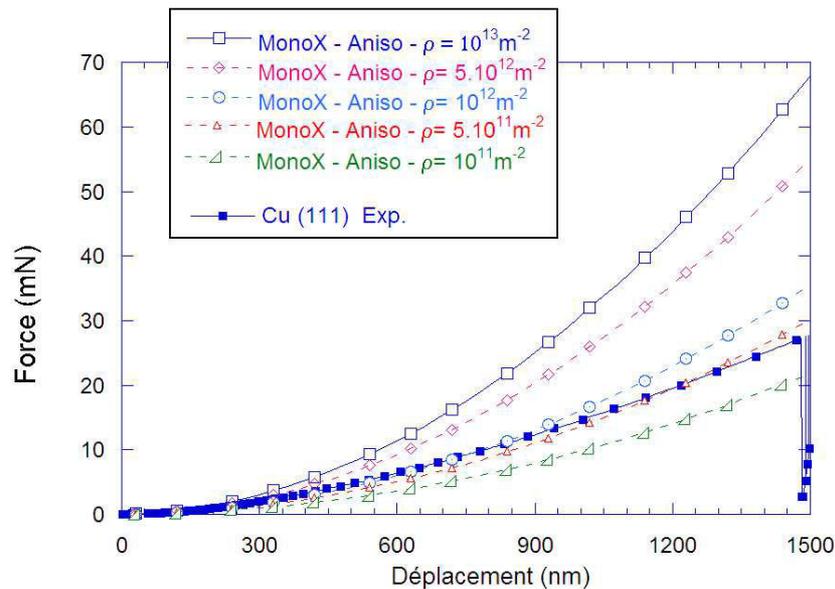


Figure 43: Evolution de charge en fonction de profondeur à différent densité de dislocation initiale - Indenteur indéformable 72R500 - Plasticité cristalline - TaylorNormal

En ce qui concerne l'étude de la rigidité pour différentes densités initiales de dislocations, et pour les différents modèles d'écroutissage, les résultats sont reportés *Figure 44*. Le cas 100% élastique est également représenté. Toutes les courbes sont superposées, attestant une fois de plus de la parfaite indépendance de la rigidité telle que définie par la formule de Sneddon par rapport aux déformations plastiques, dans le cas du test de nano-indentation. A la section

précédente, ce résultat avait été établi dans le cas de la plasticité isotrope. Il est ici confirmé dans le cas de la plasticité anisotrope.

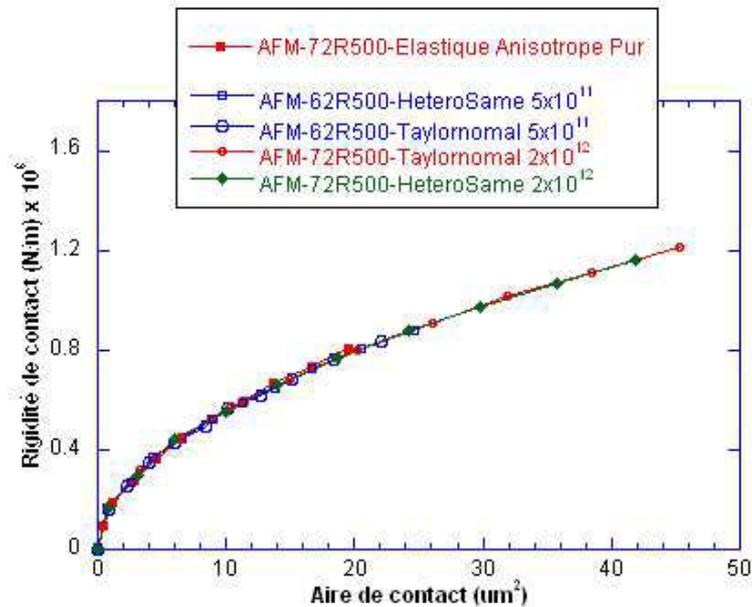


Figure 44: réponse élastique - rigidité de contact en fonction de l'aire de contact des matériaux élastique, cristaux.

3.4 Stratégie d'identification et robustesse du modèle- Cu (111)

Comme évoqué à la fin de la section précédente, on peut établir une méthode d'indentification des paramètres de cristaux réels à partir de données de simulations élasto-plastiques cristallines et des données expérimentales de nanoindentation. Il s'agit de pouvoir reproduire deux signaux expérimentaux :

- à partir de la courbe de la force en fonction de la profondeur d'indentation, identifier la densité initiale de dislocation ρ_i qui ajuste au mieux cette courbe,
- la rigidité S :
 - en fonction de l'aire de contact (calculée ou observée par AFM) permet de vérifier la cohérence des résultats numériques, le tenseur élastique du cristal de Cu étant connu,
 - en fonction de la profondeur d'indentation, permet de valider quantitativement l'écoulement plastique via le rayon de contact.

Expérimentalement, on dispose de deux monocristaux de cuivre, orientés (111) et (001). et de deux pointes sphéro-coniques 62R500 et 72R500. On choisit de tester le cristal (111) avec les deux pointes pour tester la robustesse de la procédure d'identification.

3.4.1 Identification de ρ_i à partir des courbes de charge

L'idée est d'identifier ρ_i à partir d'un test réalisé avec l'une des pointes, puis de vérifier l'adéquation du modèle à partir un essai expérimental effectué avec l'autre pointe, en utilisant la densité ρ_i déterminée par le premier test, sachant qu'on ne dispose alors d'aucun degré de liberté supplémentaire. Autrement dit il n'y a pas d'ajustement pour la deuxième étape ; c'est une mise à l'épreuve.

La *Figure 45* montre une première tentative. L'identification de ρ_i est effectuée à partir de la pointe 62R500 (prise rigide dans le calcul). On peut noter une légère différence de ρ_i identifié suivant le modèle géométrique d'érouissage choisi. Le calcul est alors effectué pour la pointe 72R500 (prise rigide dans le calcul). L'adéquation calcul/expérience avec la pointe 72R500 ne semble pas satisfaisante, la courbure des deux courbes étant relativement différente. Un tel écart de courbure avait été constaté dans les travaux de Chang [Chang 09] avec l'utilisation d'une seule pointe. Cet écart avait été interprété et corrigé semi-analytiquement sur les simulations par un effet lié à la déformation de la pointe saphir, les simulations étant menées avec une pointe indéformable. Or nous venons de montrer que sur les courbes de charge-déplacement, l'effet de déformation de la pointe est surtout visible en comportement élastique mais et est faible avec un comportement élasto-plastique.

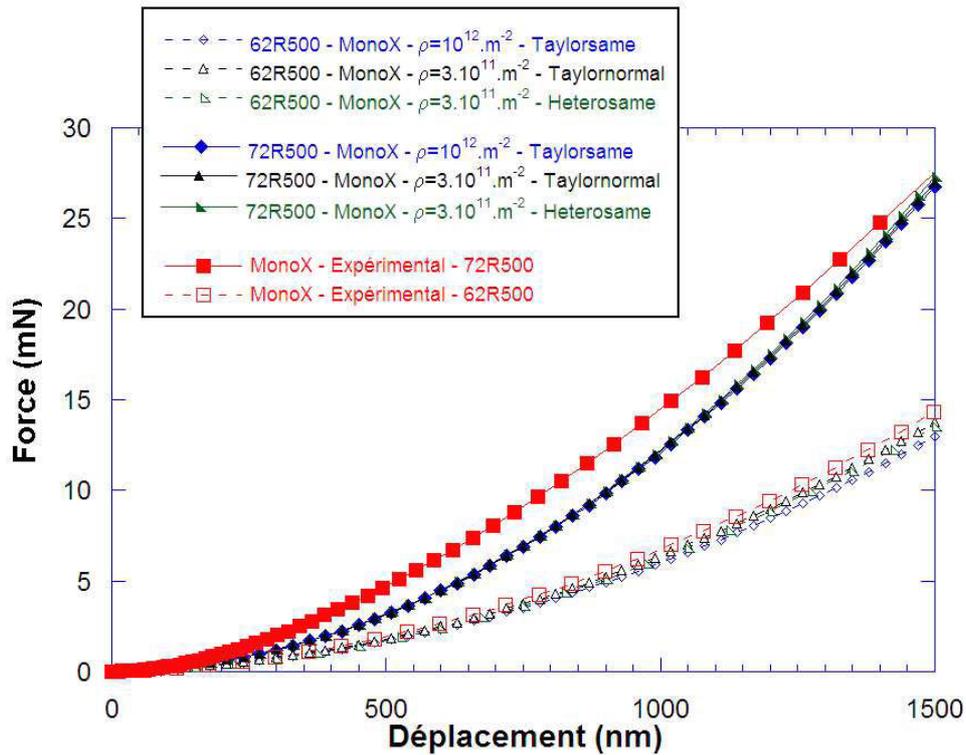


Figure 45: Comparaison des résultats expérimentaux avec modélisations - Indenteur indéformable 72R500 et 62R500

On décide donc de scanner les deux points afin d'avoir une idée précise de leur géométrie, au-delà des données du fournisseur. Les résultats des scans, mis en parallèle avec les géométries utilisées dans la simulation qui étaient basées sur les données du fournisseur, sont reportés *Figure 46* et *Figure 47*. Si la pointe 62R500 modélisée présente une relativement moyenne adéquation avec la réalité dans le domaine d'utilisation ici (jusqu'à $1.5\mu\text{m}$), il s'avère que les données fournies pour la pointe 72R500 étaient très éloignées de la réalité. Dans les deux cas, nous avons implémenté les nouvelles géométries pour les simulations de ces pointes, sachant qu'ultérieurement nous indenterons plus profondément jusqu'à $5\mu\text{m}$.

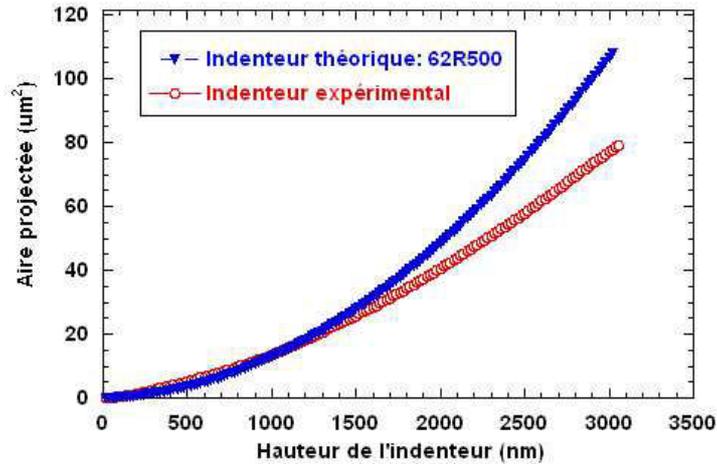


Figure 46: comparaison du profil de l'indenteur théorique et expérimental- 62R500

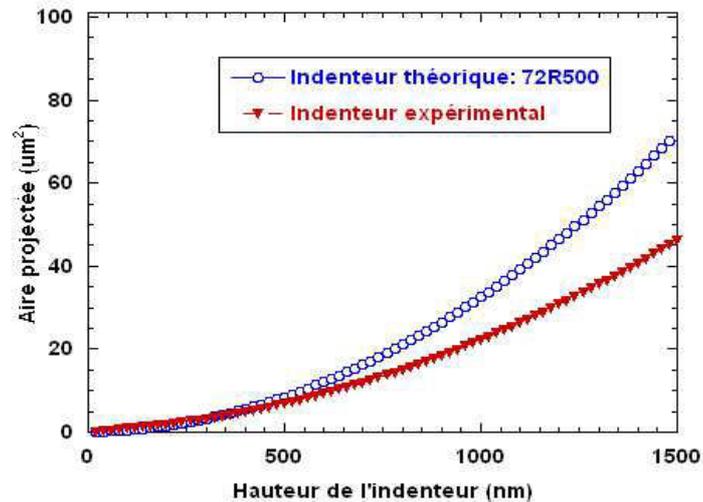


Figure 47: comparaison du profil de l'indenteur théorique et expérimental- 72R500

A partir de là, on peut refaire les simulations concernant les deux pointes avec les géométries appropriées. Les résultats sont reportés *Figure 48* et indiquent cette fois une très bonne adéquation entre expérience et simulation. Cette méthode d'identification est donc très robuste ! Notre expérience montre qu'il est nécessaire de connaître très précisément les données sur le profil de la pointe (champ de déplacement imposé) avant de questionner le modèle.

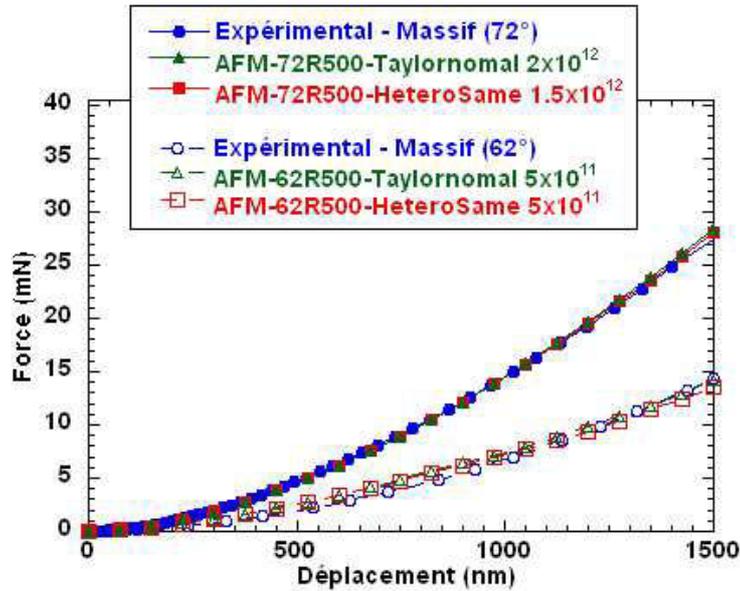


Figure 48: comparaison de la courbe de charge en fonction de déplacement de l'indenteur scanné AFM – Indéformable - avec résultat expérimental - AFM62R500- AFM72R500- Profondeur de l'indentation à 1500nm

3.4.2 Identification des rigidités

Examinons maintenant les données comparées de rigidité de contact S en fonction du déplacement total de l'indenteur entre expérience et calcul numérique dans le cas de la pointe 72R500 (supposée rigide dans le calcul), la Figure 49. Il apparaît que la rigidité évaluée numériquement est trop élevée par rapport à la rigidité issue des données expérimentales. Nous avons vu dans les sections précédentes que l'évaluation de la rigidité était très dépendante de la prise en compte de propriétés élastiques correctes pour l'échantillon, mais aussi pour l'indenteur. Avant de remettre en cause la loi constitutive, il convient de refaire les calculs en considérant un indenteur déformable [Figure 50].

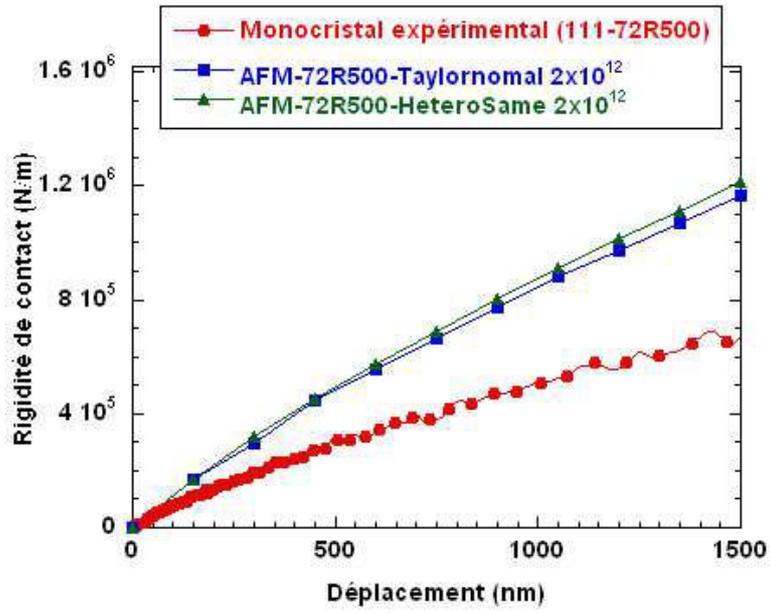


Figure 49: comparaison de la rigidité de contact en fonction du déplacement - Expérimental et Modélisation - AFM-72R500- Indéformable

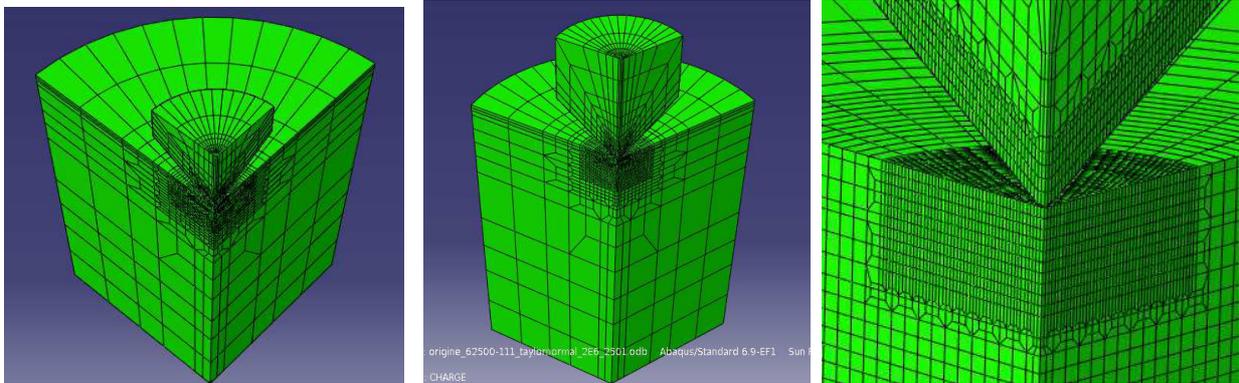


Figure 50 : Maillage éléments finis de la pointe déformable nécessaire pour évaluer une rigidité correcte de l'échantillon.

Avec des modèles d'indenteurs déformables, l'adéquation avec les courbes de charge expérimentales reste très bonne (Figure 51). On remarque que pour la pointe 62R500, la courbe de charge expérimentale est encadrée par les simulations réalisées pour des densités initiales $\rho=6 \times 10^{11}$ et $\rho=10^{12}$. La rigidité de la simulation s'accorde bien avec la rigidité expérimentale (Figure 52 et Figure 53). Le choix du jeu de paramètres d'écroûissage (TaylorNormal versus HeteroSame) ne semble pas déterminant à ce stade, ce qui semble surprenant. A notre connaissance un tel accord entre l'expérimental et un modèle numérique pour des courbes de rigidité de contact *en fonction de l'enfoncement total* n'a jamais été reporté dans la littérature. Cette correspondance est remarquable dans la mesure où des mécanismes de déformation à la fois élastiques et plastiques entrent en jeu (contrairement à $S=f(A_c)$ qui est donné par la relation de Sneddon).

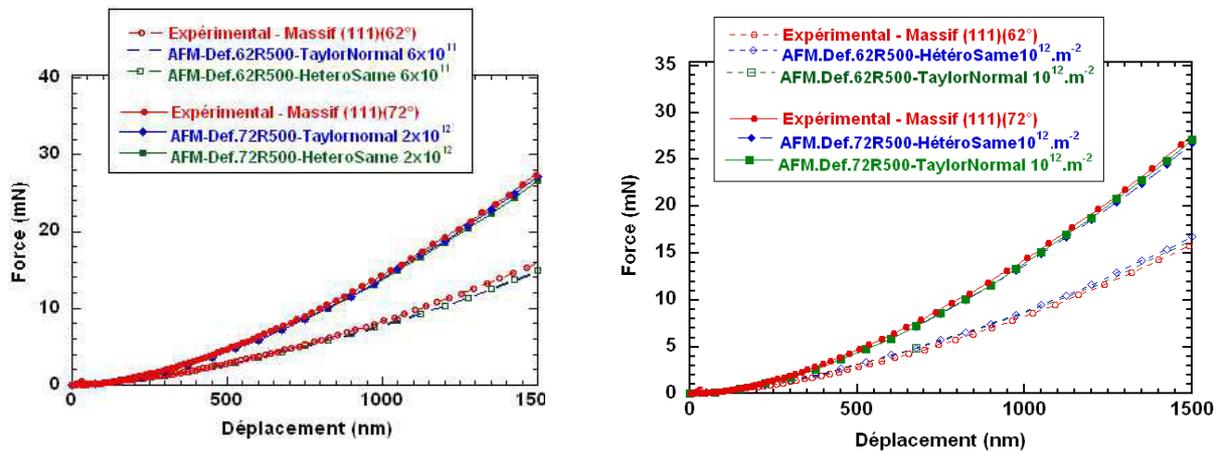


Figure 51: Comparaison de la charge en fonction du déplacement pour l'orientation (001), pour les deux pointes 62R500 et 72R500, résultats expérimentaux et résultats de modélisation. (a)- Profondeur 1500nm, $\rho=6 \times 10^{11} \text{ m}^{-2}$ et $\rho=2 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}$ (b)-profondeur 1500nm, $\rho=10^{12} \text{ m}^{-2}$.

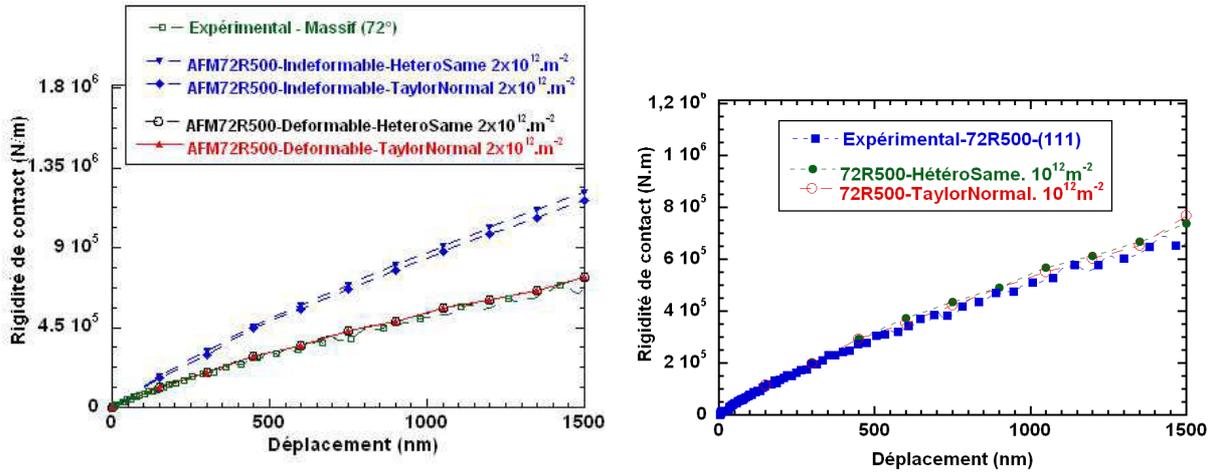


Figure 52: Rigidity de contact en fonction du déplacement-Monocristaux (111). (a)-Indenteur 72R500- (Déformable et Indéformable)-Profondeur 1500nm, $\rho=2 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}$. (b) Indenteur 72R500 déformable, profondeur 1500nm, 10^{12} m^{-2} .

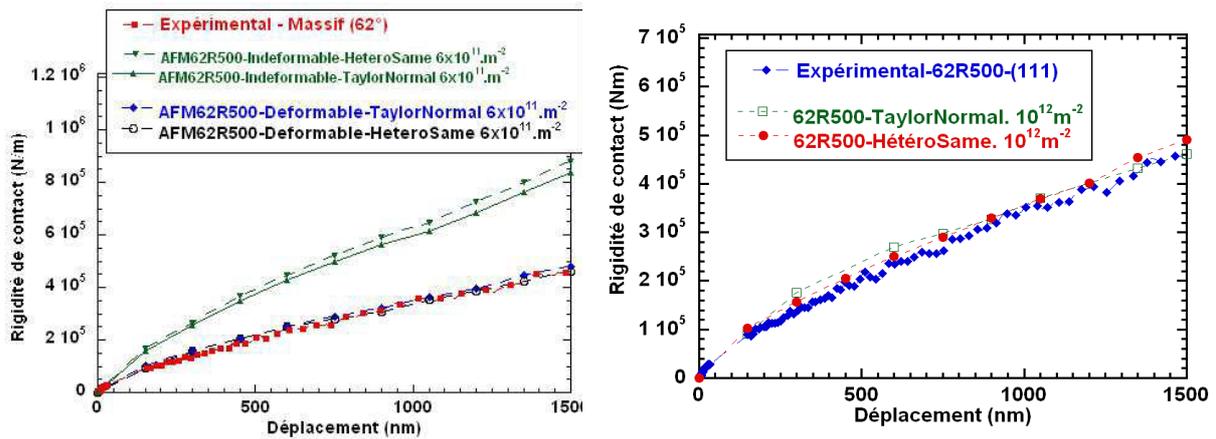


Figure 53: Rigidity de contact en fonction du déplacement-Monocristaux (111). (a)-Indenteur 62R500- (Déformable et Indéformable)-Profondeur 1500nm, $\rho=6 \times 10^{11} \text{ m}^{-2}$. (b) Indenteur 62R500 déformable, profondeur 1500nm, $\rho=10^{12} \text{ m}^{-2}$.

3.4.3 Sensibilité des déformées de surface par rapport aux modèles d'écroissage

Il serait aussi très intéressant de pouvoir identifier le modèle d'écroissage le plus pertinent. On dispose pour cela d'une information supplémentaire qui est la déformée de surface. La Figure 54 compare les déformées de surface du modèle pour a) la loi TaylorNormal, b) la loi HétéroSame et c) la déformée expérimentale, toujours dans le cas du monocristal (111) et pour l'indenteur 62R500.

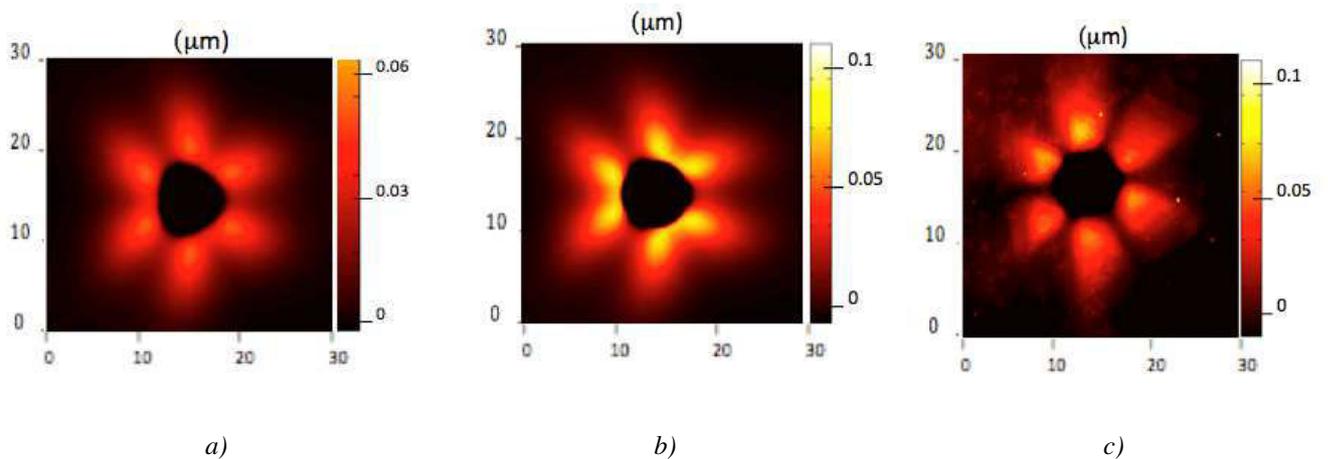


Figure 54: Déplacement de la surface AFM -Profondeur 1500nm- Indenteur 62R500- Monocristaux (111) - a) TaylorNormal - b) HétéroSame - c) Expérimental

Pour être quantitatif, on effectue un balayage radial à partir de l'axe de l'indenteur, pour $\theta \in [0, 2\pi]$. Pour chaque valeur de θ , on retient le déplacement de plus grande amplitude dans la direction normale à la surface initiale. Le résultat est reporté **Figure 55**. Il est difficile de conclure sur le modèle qui représente le mieux la déformée de surface expérimentale. Il semble que le modèle HétéroSame représente mieux l'amplitude réelle au niveau des pics.

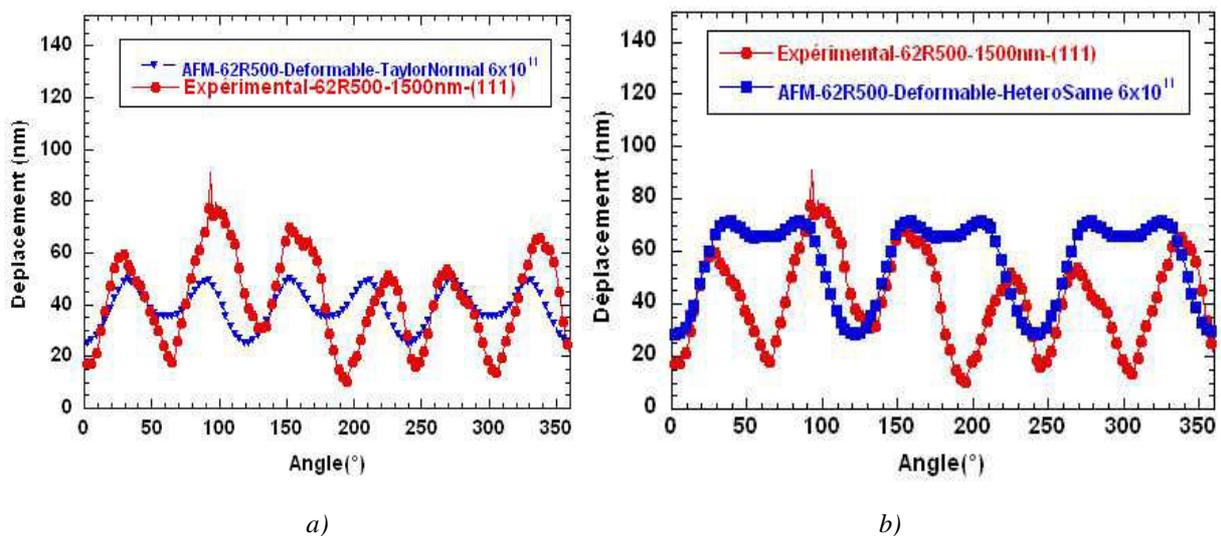


Figure 55: Profil de maxi de déplacement à la surface en fonction de l'angle rotation -Profondeur 1500nm- Indenteur 62R500 - a) TaylorNormal - b) HétéroSame

Enfin on calcule la dureté pour les deux modèles d'écrouissage et on compare à la dureté évaluée expérimentalement, toujours dans le cas de la pointe 62R500 et du cristal (111), pour

un enfoncement de 1500nm, **Figure 56**. La dureté est constante en fonction de l'épaisseur, comme on peut s'y attendre dans le cas d'un matériau massif.. L'accord avec l'expérience est très bon.

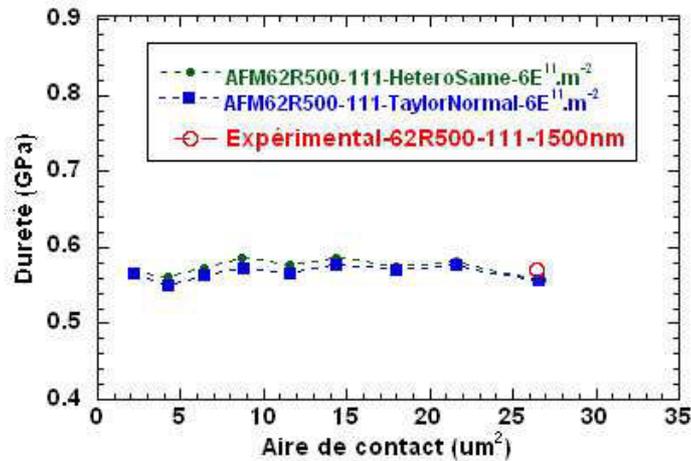


Figure 56: Dureté - AFM62R500- (111)-Modélisation-Expérimental-1500nm

De la même manière, on examine le cas de l'indentation par la pointe 72R500 sur le même cristal d'orientation (111). Les résultats sont présentés sur la **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**, la **Figure 58** et la **Figure 59**. Les conclusions rejoignent globalement celles de l'analyse précédente. Les paramètres HétéroSame produisent des motifs (hauteur et largeur des lobes) plus proches de l'observation expérimentale.

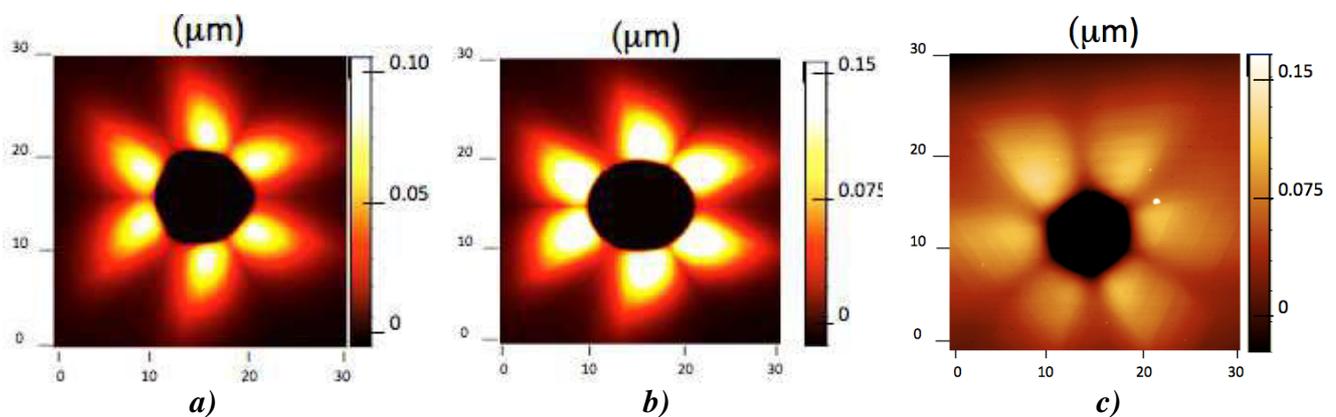


Figure 57: Déplacement de la surface AFM -Profondeur 1500nm- Indenteur 72R500- Monocristaux (111) - a) TaylorNormal - b) HétéorSame - c) Expérimental.

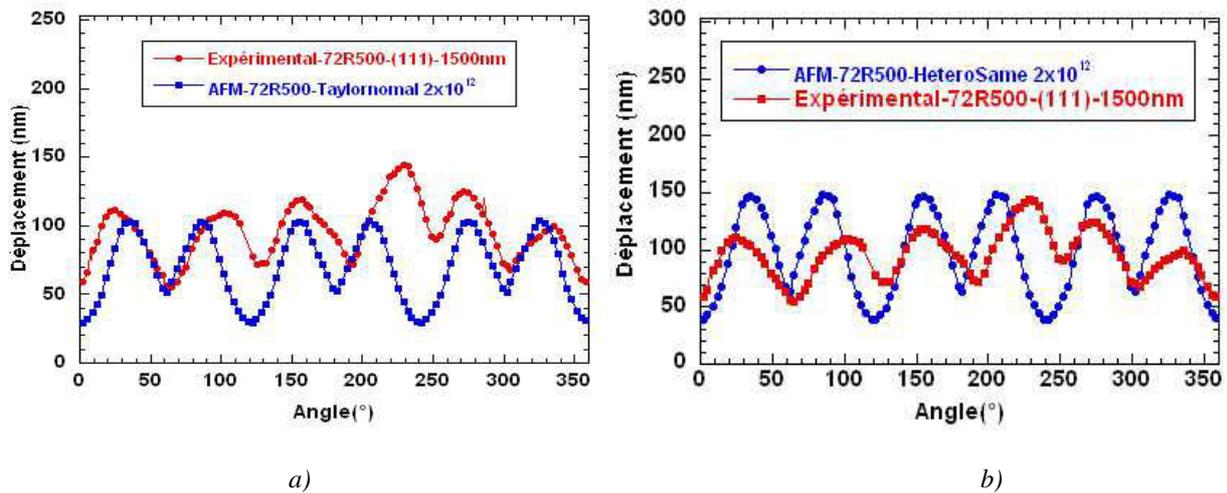


Figure 58: Déplacement de la surface AFM en fonction de l'angle de rotation - Profondeur 1500nm- Indenteur 72R500- Monocristaux (111) - a) TaylorNormal - b) HétéroSame

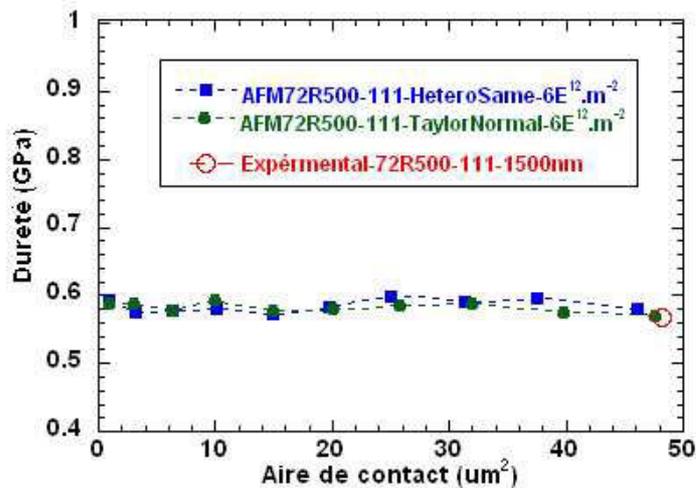


Figure 59: Comparaison - Dureté - AFM72R500-111-Modélisation-Expérimental (indentation jusqu'à 1,5µm).

3.5 Application au cas du Cu (001)

Dans cette partie on souhaite appliquer la procédure d'identification à un échantillon monocristallin de cuivre d'orientation (001). La Figure 60 montre la courbe de force en fonction de la profondeur d'indentation. Les résultats numériques pour les deux jeux de paramètres d'érouissage HeteroSame et Taylornormal sont comparés aux résultats expérimentaux pour chaque géométrie de pointe (62R500 et 72R1500). La convergence des données expérimentales et numériques s'effectue pour une densité initiale ρ_i de $6 \times 10^{11} \text{ m}^{-2}$, pour les deux géométries de pointe, ce qui confirme la robustesse de la procédure.

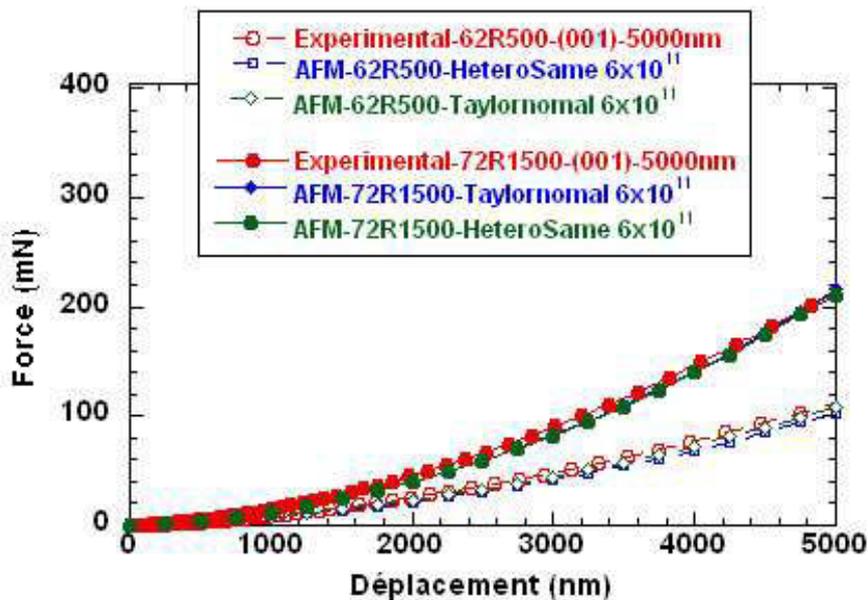


Figure 60: Comparaison - charge en fonction de déplacement -Monocristaux (001)-Profondeur 5000nm- Indenteur AFM-62R500-72R1500-Expérimental-Modélisation

La rigidité de contact S tracée en fonction de l'enfoncement total est également comparée entre données expérimentales et résultats des calculs. Un très bon accord est observé entre simulations et expérience.

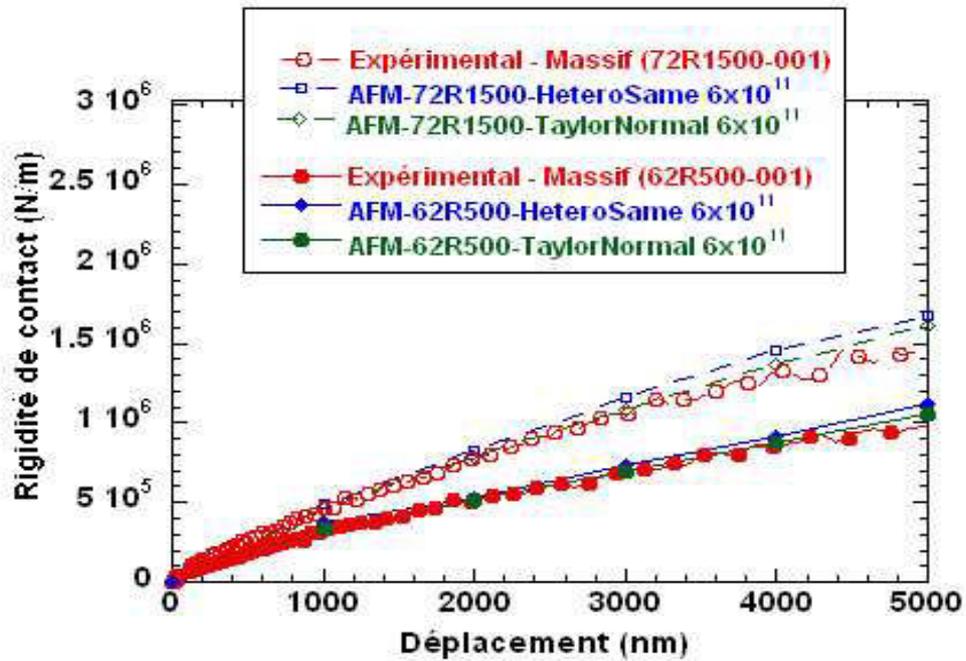


Figure 61: Rigidité de contact en fonction de déplacement - Indenteur 62R500-72R1500-Profondeur 5000nm-
Modélisation-Expérimental

Les valeurs de dureté obtenues par le calcul numérique et par la mesure par nano-indentation sont comparées dans le cas de la pointe 62R500 (Figure 62) et de la pointe 72R1500 (Figure 63). La dureté prévue par l'écroutissage TaylorNormal est de 10% plus élevée que celui prévu par HeteroSame. La dureté expérimentale semble se trouver plus près du résultat prévu par le modèle avec l'écroutissage HétéroSame.

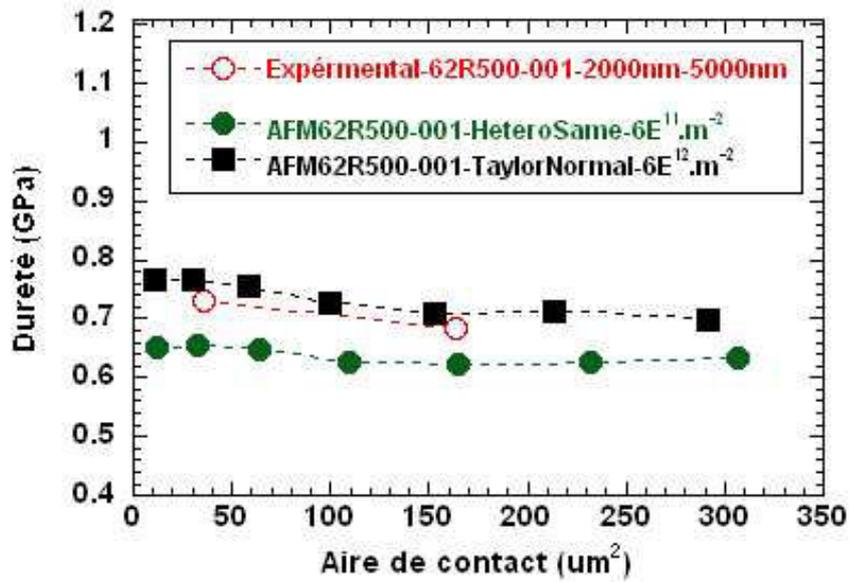


Figure 62: Dureté - Indenteur 62R500 - Profondeur 5000nm - Expérimental et modélisation

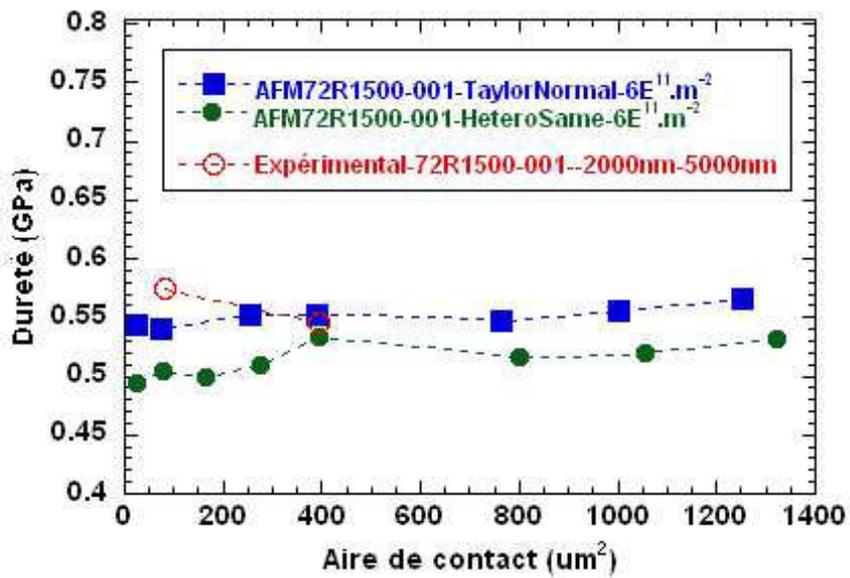


Figure 63: Dureté - Indenteur 72R1500 - Profondeur 2000-5000nm - Expérimental et modélisation

On effectue finalement des comparaisons entre les déformées de surfaces expérimentales et numériques, indentées avec la pointe 72R1500, pour deux profondeurs : 2000 nm puis 5000 nm. Les figures *Figure 64* (déformée de surface pour une pénétration de 5000nm) et *Figure 66* (déformée de surface pour une pénétration de 2000nm) présentent une auto-similarité comme on s’y attend naturellement pour l’indentation d’un échantillon massif.

Les maxima de hauteurs obtenus lors d’un balayage radial sont reportés *Figure 65* (profondeur d’indentation de 5000nm) et *Figure 67* (profondeur d’indentation de 2000nm). Les hauteurs de pics et de vallées semblent mieux reproduites pour une profondeur de 2000nm. Cependant, rien ne discrimine vraiment l’une ou l’autre des lois d’érouissage.

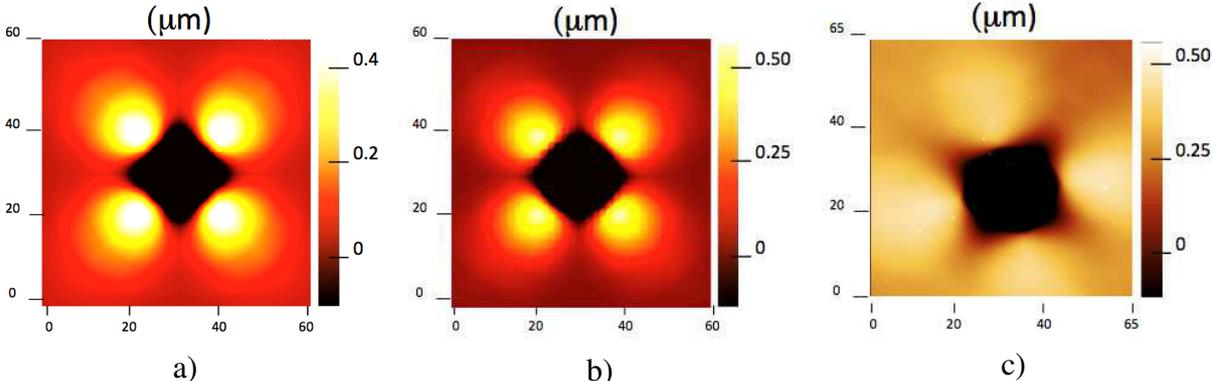


Figure 64: Déplacement de la surface AFM -Profondeur 5000nm- Indenteur 72R1500- Monocristaux (001) - a) TaylorNormal - b) HetérSame - c) Expérimental

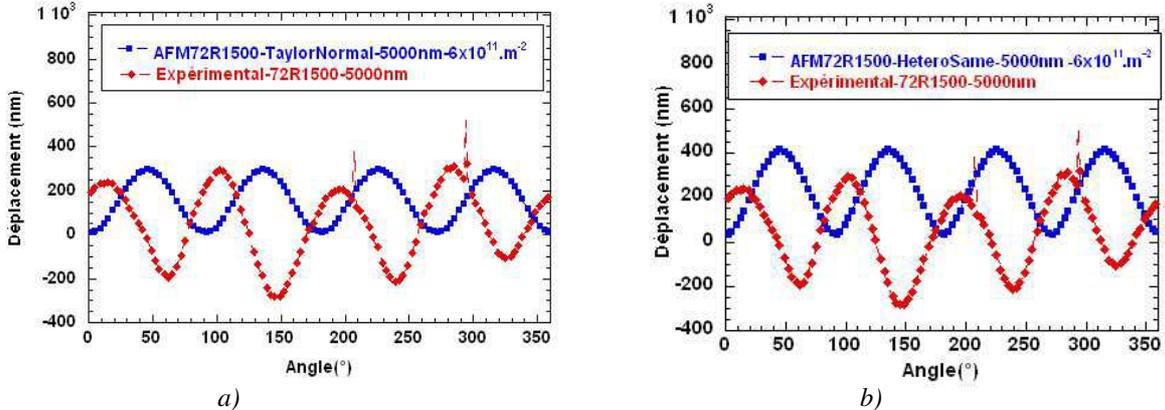


Figure 65: Déplacement de la surface AFM en fonction de l’angle de rotation - Profondeur 5000nm- Indenteur 72R1500- Monocristaux (111) - a) TaylorNormal - b) HetérSame

Comparaison du déplacement de la surface orientation (001) - AFM 72R1500 – Profondeur de l'indentation 2000nm

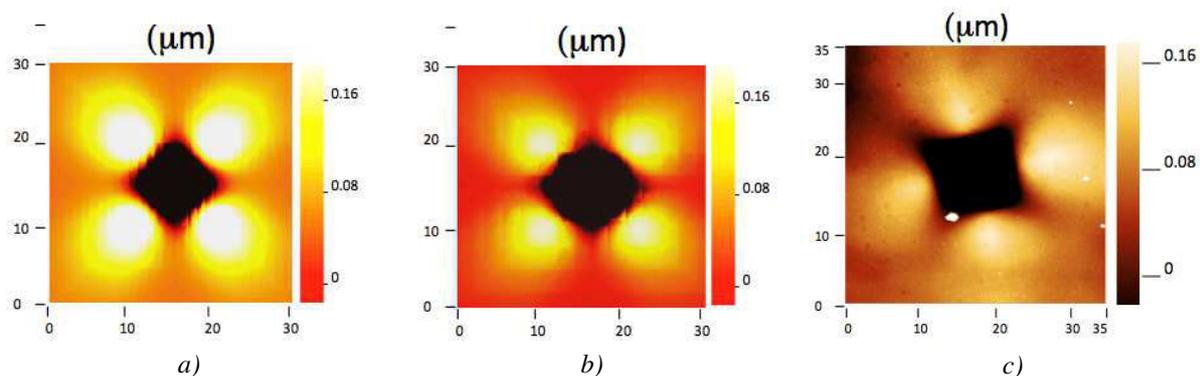


Figure 66: Déplacement de la surface AFM -Profondeur 2000nm- Indenteur 72R5000- Monocristaux (001) - a) TaylorNormal - b) HetérSame - c) Expérimental

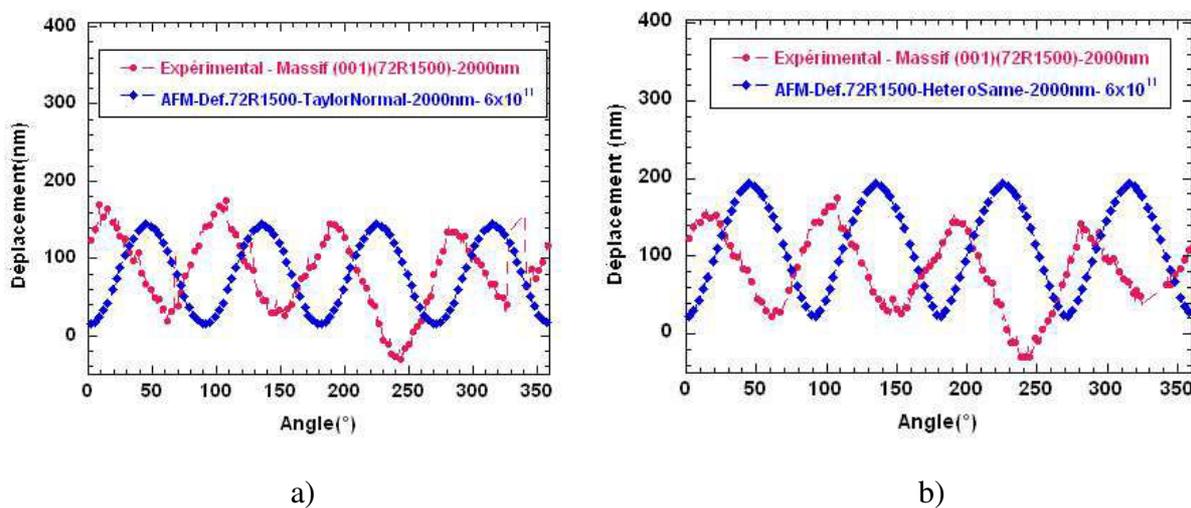


Figure 67: Déplacement de la surface AFM en fonction de l'angle de rotation - Profondeur 2000nm- Indenteur 72R1500- Monocristaux (111) - a) TaylorNormal - b) HetérSame

3.6 Bilan de l'analyse

On a pu reproduire quantitativement la courbe de charge expérimentale (force F en fonction de l'enfoncement h) avec une précision satisfaisante, en utilisant comme seul paramètre d'ajustement la densité de dislocations initiale ρ . La bonne courbure de la courbe $F(h)$ ne peut être correcte que si le déplacement imposé par le contact respecte bien la forme de la pointe. Pour $F(h)$, la prise en compte de la déformation de la pointe ou non n'a que très peu d'influence (régime de déformation dominée par la déformation plastique). Les valeurs de ρ trouvées sont d'un bon ordre de grandeur physique pour des monocristaux recuits.

La relation de Sneddon donnant la rigidité de contact S en fonction de l'aire de contact A_c a été vérifiée pour un matériaux anisotrope (élasticité anisotrope et/ou plasticité anisotrope). De plus la rigidité S en fonction de l'enfoncement h est reproduite quantitativement de manière très satisfaisante, à notre connaissance pour la première fois. Cet accord entre expérimental et numérique n'est possible que si la déformation de la pointe est prise en compte.

La robustesse de la procédure d'identification a été mise à l'épreuve en utilisant expérimentalement deux pointes d'angle différent (62R500 et 72R500). L'identification de la densité initiale de dislocations ρ a été faite avec la pointe 72R500 (qui génère moins de plasticité) et le ρ optimal a été introduit dans la simulation avec la pointe plus fine 62R500, les résultats étant directement comparés au test d'indentation correspondant. Cette procédure a révélé un bon accord expérimental/numérique pour la pointe plus fine.

En ce qui concerne la sensibilité de la procédure par rapport aux paramètres de la loi plastique cristalline, on peut noter que pour les deux jeux de paramètres d'écrouissage différents (Taylor Normal et HétéroSame), les mêmes densités « optimales » de dislocations sont identifiées et les mêmes courbes $F(h)$ et $S(h)$ sont trouvées. Les effets du choix des jeux de paramètres pour l'écrouissage sont illustrés sur les figures ci-dessous. La Figure 68 présente la courbe de traction simulée pour une éprouvette libre de tourner autour de l'axe de traction, dans le cas des deux jeux de paramètre d'écrouissage (HétéroSame et TaylorNormal). La traction est effectuée dans la direction (111), la densité initiale de dislocations est $\rho=3 \times 10^{12} \text{m}^{-2}$. Le glissement étant multiple dès le départ, on ne distingue pas le stade I et stade II que l'on observerait pour un unique système active. Pour parler en terme permettant une analogie avec le cas des lois puissance, on voit que TaylorNormal présente un σ_y plus bas mais un écrouissage plus fort que HétéroSame. La Figure 69 présente la scission résolue sur le système de glissement dans le cas de tractions suivant [111] et [001]. On distingue peu de différence pour les niveaux de déformation considérés. Sur la Figure 70, on examine l'effet de la densité initiale de dislocations. Dans la gamme de déformations explorée, la densité initiale ne semble avoir d'effet que sur le seuil de plasticité, pas sur l'écrouissage. A noter l'existence d'un croisement entre les deux courbes, au voisinage duquel le choix d'un jeu de paramètre d'écrouissage ou l'autre aura peu d'effet.

L'effet du choix des paramètres d'écrouissage se ressent en revanche lors de l'observation de la surface. Cet observation est en faveur des paramètres HétéroSame (calcul DDD des paramètres d'écrouissage).

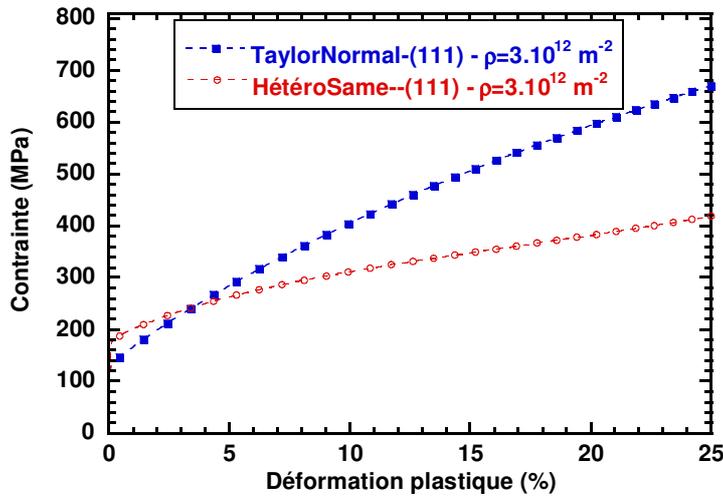


Figure 68 Courbe de traction simulée pour une éprouvette libre de tourner autour de l'axe de traction, dans le cas des deux jeux de paramètre d'érouissage (HétéroSame et TaylorNormal). La traction est effectuée dans la direction (111), la densité initiale de dislocations est $\rho = 3 \times 10^{12} \text{ m}^{-2}$.

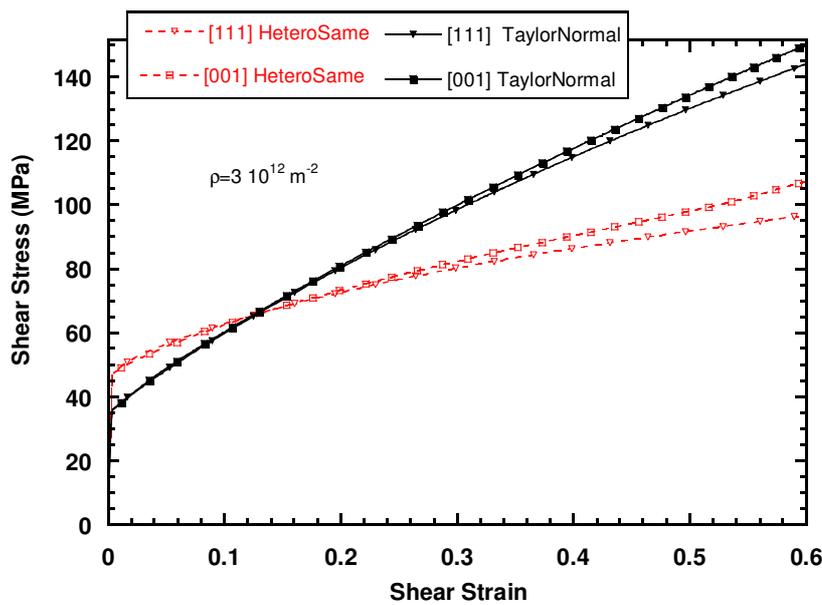


Figure 69 Courbe de scission résolue sur le système de glissement issue de la simulation de traction pour une éprouvette libre de tourner autour de l'axe de traction, dans le cas des deux jeux de paramètre d'érouissage (HétéroSame et TaylorNormal). La traction est effectuée dans la direction [111] ou bien [001], la densité initiale de dislocations est $\rho = 3 \times 10^{12} \text{ m}^{-2}$.

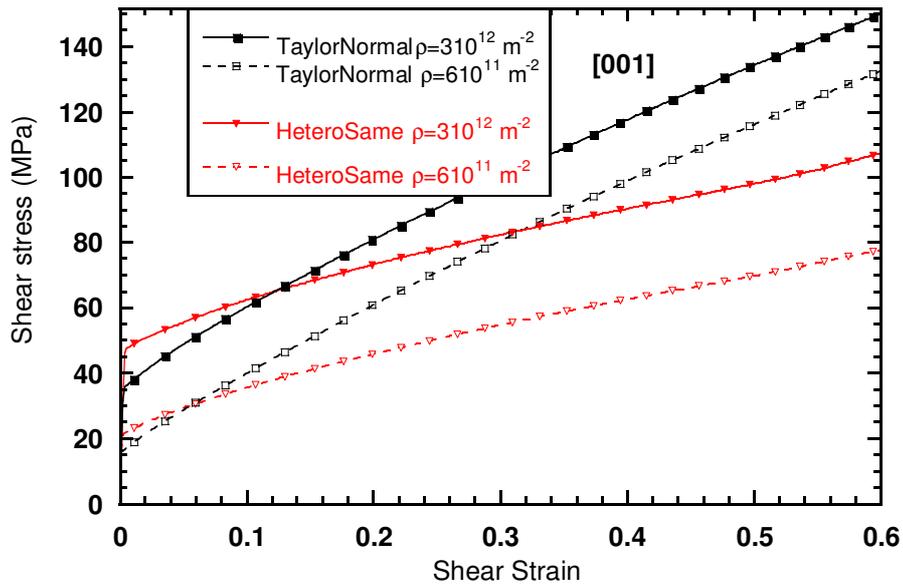


Figure 70 Courbe de scission résolue sur le système de glissement issue de la simulation de traction pour une éprouvette libre de tourner autour de l'axe de traction, dans le cas des deux jeux de paramètre d'écrouissage (HétéroSame et TaylorNormal). La traction est effectuée dans la direction [001], les densités initiales de dislocations sont $\rho=3 \times 10^{12} \text{ m}^{-2}$ et $\rho=6 \times 10^{11} \text{ m}^{-2}$.

4 Film sur substrat

4.1 Cadre du chapitre

Les propriétés des films sont généralement inconnues car très liés aux paramètres d'élaboration. Les densités, compositions chimiques, texture cristallographique, taille de grains, densité de défauts et contraintes résiduelles sont très variables, mal connues et surtout différentes d'échantillons massifs [Ohring 91]. Aussi, en accompagnement aux développements technologiques des dépôts planaires, la caractérisation par indentation instrumentée des films sur substrat s'est essentiellement concentrée sur l'établissement de la mesure du module d'indentation du film [Nix 05][Louet b06]. Grâce à des approches élastiques intégrales impliquant une résolution numérique [Liu 08][Periot 03] il est possible d'obtenir l'évolution quantitative de la rigidité de contact en fonction de l'aire de contact relatif (a_c/t où a_c est le rayon de contact et t l'épaisseur du film).

L'introduction d'une échelle de longueur, l'épaisseur du film, est ainsi quantitativement bien maîtrisée pour les mesures élastiques mais repose sur la validité de la relation de Sneddon lors de la pénétration de la pointe dans le composite film-substrat pour obtenir de la rigidité de contact, le module du film.

L'analyse dimensionnelle de l'essai d'indentation instrumenté [Cheng 02] montre qu'à partir des étapes de charge et décharge de la courbe de force-déplacement, seulement deux paramètres peuvent être identifiés avec une pointe auto-similaire. Une étude paramétrique de la géométrie film sur substrat nécessite au minimum quatre paramètres de lois de comportement dans le cas le plus simple de lois élastique isotrope-plastique parfait : soit deux modules d'indentation $E/(1-\nu^2)$ pour respectivement le film et le substrat et deux limites d'élasticité σ_y . Ce type d'étude numérique paramétrique a été mené par Chen et Vlassak [Chen 01] en utilisant la méthode des éléments finis, en particulier pour identifier l'effet du contraste élastique film sur substrat. Un résultat très important de cette étude a permis de prouver numériquement l'applicabilité de la relation de Sneddon dans la géométrie film-substrat quelle que soit la loi de comportement considérée dans leur étude: élastique/élastique-plastique parfait.

Seule l'aire de contact demeure inconnue car dépendante du comportement irréversible du film et/ou du substrat : elle peut être estimée à partir de l'hypothèse de Oliver et Pharr reliant le déplacement total à la hauteur de contact [Li 09]. Cependant comme Barthel l'a bien montré [Perriot 04] cette relation peut être invalide et entraîner des erreurs importantes même en comportement élastique pur : le confinement d'un film plus compliant que le substrat entraîne par exemple un champ de déformation très différent du massif équivalent et viole ainsi l'hypothèse d'aire de contact en enfoncement (sink-in) qui est une hypothèse de base de la relation d'Oliver et Pharr. Il reste pour identifier correctement les propriétés élastiques d'un film de mesurer avec une technique complémentaire, l'aire de contact à une pénétration donnée (par AFM par exemple) pour identifier correctement la courbe rigidité-aire de contact numérique avec les données expérimentales.

En ce qui concerne l'effet de confinement (film/substrat) sur les propriétés plastiques, peu d'études paramétriques dans la littérature ont été menées. C'est ce que nous proposons de compléter dans un cas simplifié qui correspond à l'étude d'un film élastique-plastique sur un substrat au comportement élastique pur. C'est par exemple la quasi-majorité des cas d'études technologiques des films déposés sur substrat Silicium. Nous développons dans ce chapitre trois questionnements :

- Extension de la validité de la formule de la rigidité de contact fonction d'un module apparent variable avec la profondeur et le rayon de contact [Sneddon 65] ? En particulier pour des caractères isotropes/anisotropes des lois de comportement en régime élastique et plastique.
- Quel effet du changement de chemin de déformation peut-on observer entre la géométrie de référence du semi-infini par rapport à l'introduction d'une échelle de longueur « obstacle » dans le cas du film sur substrat élastique ? En particulier, on s'intéressera à l'effet du durcissement d'écrouissage en plasticité isotrope pour compléter les travaux de Chen et Vlassak [Chen 01].
- Enfin, comment dans le contexte d'un confinement géométrique se comportent vis à vis de mesures expérimentales les lois de plasticité cristalline à base de densité de dislocations que nous avons validées au chapitre précédent ?

4.2 Comportement film élastique-plastique isotrope sur substrat élastique

Pour s'abstraire de l'influence du contraste élastique entre le film et le substrat et focaliser l'étude sur l'effet de confinement lié au substrat, nous avons choisi de simuler numériquement le cas d'un film élasto-plastique sur un substrat élastique de même réponse élastique que le film : « Cu sur Cu ». En pratique, nous avons utilisé le tenseur élastique du Cu (cf. chapitre 3) et dans un premier temps le comportement plastique suit une loi puissance de type Hollomon (cf. chapitre 2) définie en régime plastique par une limite d'élasticité σ_y (variée entre 10 et 300MPa) et un coefficient puissance n (varié entre 0, le cas élastique parfait et 0.5). Les courbes d'indentation sont menées jusqu'à une profondeur équivalente de 50% de l'épaisseur du film (3 microns), en utilisant des décharges intermédiaires pour évaluer la rigidité de contact et l'aire de contact réelle A_c sous charge à l'aide de l'étude de la déformée de surface. Une pointe sphéro-conique indéformable d'angle 72° et de rayon $0.5 \mu\text{m}$ est utilisée. Les résultats sont présentés et discutés à partir des courbes force-déplacement total $F(h)$, rigidité-aire de contact $S(A_c)$ et enfin pression d'écoulement (dureté)-aire de contact $H(A_c)$.

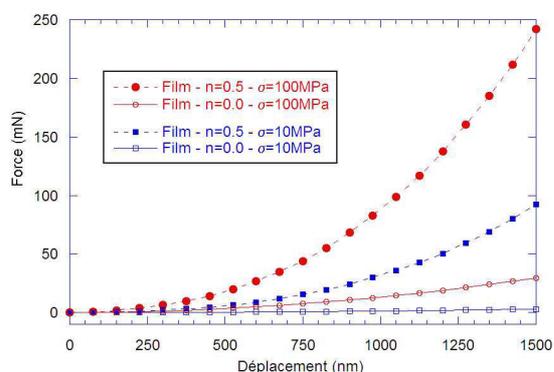


Figure 71: Evolution de la force appliquée en fonction du déplacement de l'indenteur. Film de 3 microns sur substrat élastique, pénétration max. de 50% du film.

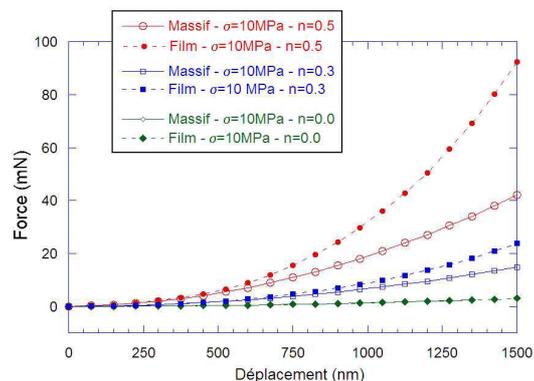


Figure 72: Comparaison force/déplacement en géométrie film/substrat et semi-infini « Cu ». Effet du durcissement d'écrouissage

La Figure 71 présente les variations typiques d'effort à l'enfoncement liées aux effets de la limite d'élasticité et de l'écrouissage : une augmentation de la limite d'élasticité ou de l'écrouissage conduit à des efforts croissants pour une profondeur donnée. Pour comparer avec le comportement du massif, les courbes $F(h)$ sont reportées sur la Figure 72 à limite d'élasticité constante pour trois valeurs de durcissement d'écrouissage 0, 0.3 et 0.5. Il apparaît

que l'écroutissement joue un rôle prédominant sur l'effet de confinement : en effet, rien ne distingue les courbes de charge $F(h)$ en géométrie film/substrat par rapport au semi-infini. Par contre, avec l'introduction d'un durcissement d'écroutissement, un accroissement d'effort important apparaît pour atteindre une même profondeur de pénétration : ceci indique une modification du chemin de déformation conduisant à une augmentation de la déformation équivalente de l'essai d'indentation en géométrie confinée. Nous reviendrons sur ce point crucial lors de l'étude de la variation de la pression d'écoulement de ces essais numériques, Figure 74. Mais auparavant, il convient de vérifier si la rigidité de contact suit toujours la loi de Sneddon, permettant ainsi à l'analyse des données expérimentales d'accéder à l'aire de contact :

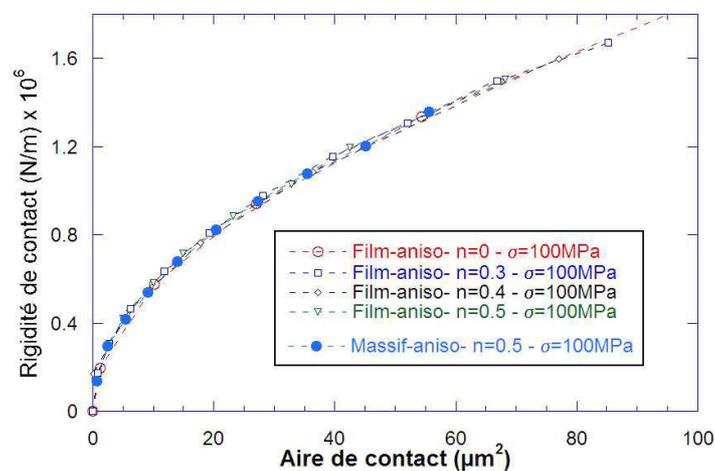


Figure 73: Rigidité de contact en fonction de l'aire de contact, élasticité anisotrope, plasticité Hollomon, géométries film/substrat et massif.

On constate que la relation de Sneddon est validée et est montrée indépendante à la fois du mode de déformation et de la géométrie (massif versus film sur substrat) pour une plasticité isotrope. La Figure 73 illustre l'unicité de cette relation pour des comportements allant du plastique parfait au fort écroutissement en géométrie film/substrat. La rigidité de contact est reportée aussi pour le cas d'un échantillon massif à fort écroutissement ($n=0.5$). On rappelle qu'ici le film/substrat ont le même comportement élastique en géométrie « Cu/Cu », seul le film se déforme plastiquement : son écoulement plastique est confiné par le substrat élastique.

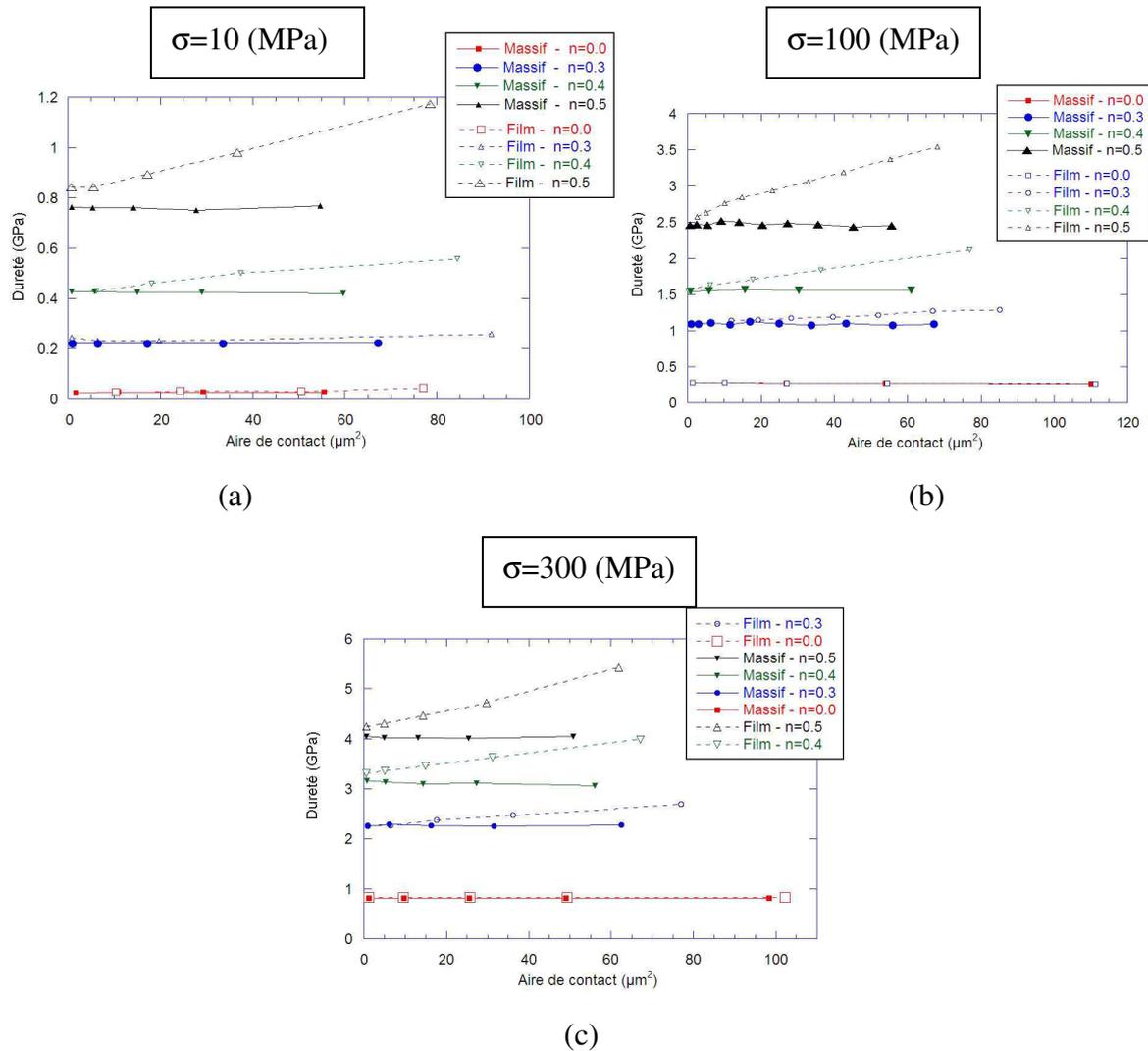


Figure 74: Evolution de la dureté en géométrie film/substrat et massif, $n = [0.0, 0.3, 0.4, 0.5]$ et $\sigma_y = 10$ (MPa) (a), 100 (MPa) (b), 300 (MPa) (c). Indenteur sphéro-conique-Indéformable - 72R500, 50% enfonceement total du film

Sur la Figure 74, les pressions d'écoulement sont calculées à partir de l'aire de contact sous charge (charge/A_c). Elles sont représentées en fonction de A_c . On constate ce que les courbes de charge-déplacement précédentes indiquaient: l'introduction d'un durcissement d'érouissage conduit à une dureté qui n'est plus constante au cours de l'enfoncement (perte d'autosimilarité de l'essai, que nous reverrons avec les lois cristallines). Le confinement de la déformation plastique du film conduit *dès le début de la pénétration* à une augmentation de la dureté par rapport au cas du massif. De plus cette **augmentation de la dureté est linéaire et proportionnelle à l'aire de contact réel**, dans le domaine étudié (0-50% de pénétration relative du film). Elle est enfin constante pour un érouissage donné (n fixé). A notre connaissance il s'agit d'une observation originale de la déformation plastique de film sur substrat élastique.

Le niveau de la dureté est lui classiquement dépendant de la limite d'élasticité et de l'écroutissage, et est identique initialement à celui du matériau en géométrie semi-infini. Enfin, on peut constater que les aires de contact qui sont calculées à intervalle de déplacement total régulier (Figure 71) sont systématiquement plus grandes pour la géométrie film/substrat que pour le massif à même pénétration totale : ceci est une signature d'une hauteur de contact plus importante (c-à-d formation de bourrelet plus prononcé). Une étude paramétrique équivalente a été faite avec la pointe indéformable 62R500 et la même augmentation linéaire de dureté en fonction de l'aire de contact est observée, Figure 75. Pour ces calculs, n est varié entre 0 et 0.5, σ_y est fixé à 100MPa, et la profondeur d'indentation est amenée à 99% de pénétration relative afin d'obtenir la même gamme d'aire de contact que pour la pointe 72R500 (maximum vers $80 \mu\text{m}^2$).

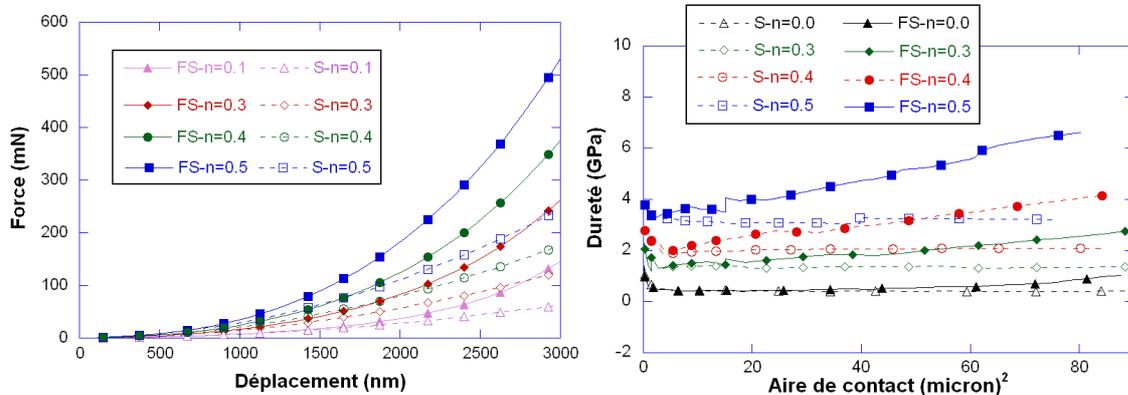


Figure 75 Comparaison des réponses des géométries film/substrat (FS) et massif (S), à gauche courbes de charge, à droite évolution de la dureté en fonction de l'aire de contact avec la pointe 62R500 indéformable, variation de l'écroutissage $n=0$ à 0.5, limite d'élasticité fixée à 100 MPa.

L'effet de l'augmentation de la dureté en écoulement confiné est plus important lorsque la déformation équivalente plastique imposée par la pointe conique augmente : c'est ce qu'indique le calcul de la différence des taux d'augmentation de la dureté en fonction de l'aire de contact dH/dAc (différence des pentes effectuées film/substrat et massif), Figure 76. De plus, la dépendance à l'exposant n de la loi d'écroutissage n'est pas linéaire et dépend fortement de n . On remarque ainsi que l'utilisation d'une pointe entraînant plus de plasticité (cône de demi-angle 62°) va provoquer une augmentation de la dureté égale à celle du cône de 72° pour un écroutissage beaucoup plus fort : $n=0,4$ pour 72° contre $n=0,1$ pour 62° . La sensibilité au durcissement d'écroutissage est ainsi plus élevée en film/substrat avec la pointe plus aigüe (62°). Le même résultat est attendu dans le cas de pointes sphériques sur un film/substrat écroutissable, la sphère étant assimilable à un cône d'angle diminuant avec l'aire de contact.

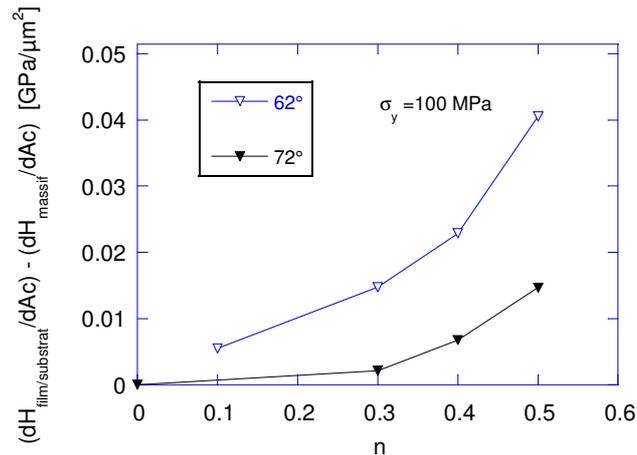


Figure 76 Evolution du taux d'augmentation de la dureté(Ac) en fonction de l'écroutissage pour les deux pointes sphéroconiques 62R500 et 72R00, limite d'élasticité fixée à 100 MPa. Géométrie film/substrat « Cu/Cu »

Cette première étude paramétrique en utilisant des lois plastiques isotropes nous a permis de valider la relation de Sneddon avec l'écroutissage et de « sentir » les effets des paramètres du comportement plastique sur la déformation en géométrie film sur substrat élastique. On constate notamment une signature importante du durcissement d'écroutissage en écoulement confiné. Avant de passer à des comparaisons avec l'expérience, nous vérifions numériquement si les mêmes effets sont reproduits avec les lois cristallines anisotropes étudiées au chapitre 3, toujours dans un cadre idéal de film/substrat « Cu/Cu ».

4.3 Cas du film élastique-plastique anisotrope

Tout comme pour le massif, l'influence de l'orientation de la surface cristallographique est relativement négligeable dans notre domaine d'étude (variation de l'ordre de 8% sur la force maximale), *Figure 77* ce qui avait été constaté aussi par [Casals 09] dans une étude de la déformation plastique de film sur substrat (lois plasticité cristalline).

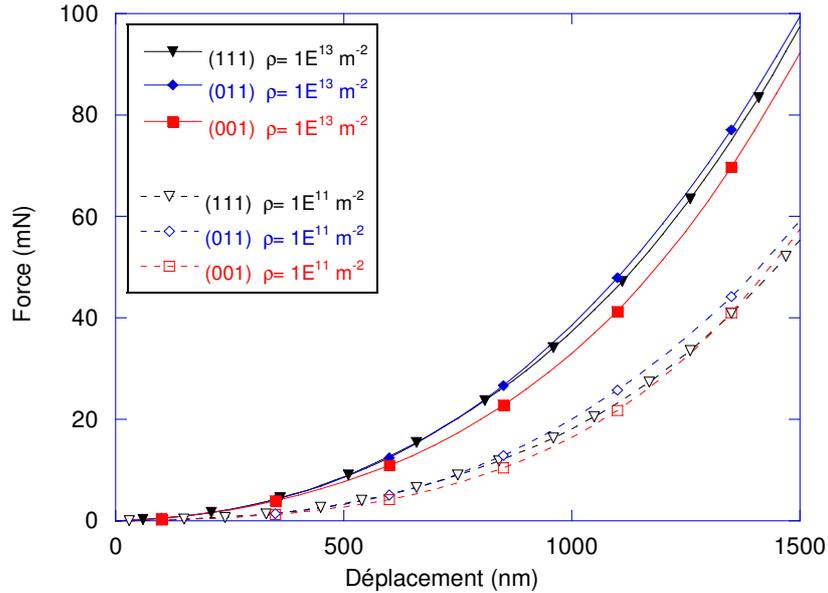


Figure 77 : Effet de l'orientation cristalline du film et de la densité initiale sur les courbes de force-déplacement pointe indéformable 72R500- loi TaylorNormal, déplacement max. correspondant à 50% de l'épaisseur du film

La comparaison à même orientation cristallographique entre les deux géométries film/substrat et massif (courbes du Chapitre 3) indique une forte augmentation de l'effort dans le cas du film Figure 78: très grossièrement il faut pour pénétrer 1.5 μ m avec la même force un film possédant 100 fois moins de densité de dislocation qu'un massif, soit de l'ordre d'un facteur 10 sur la limite d'élasticité (relation de Taylor).

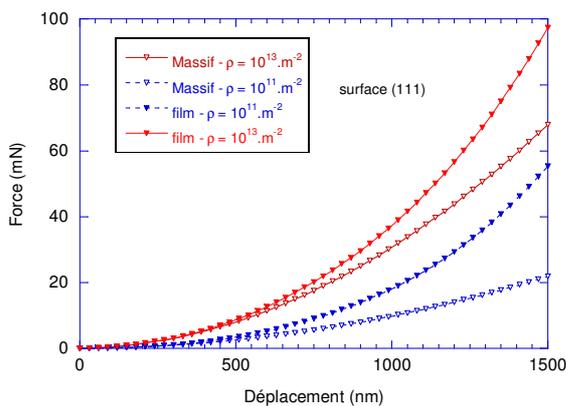


Figure 78 : Effet de la géométrie film/ substrat par rapport au massif sur les courbes de charge-déplacement pour deux densités de dislocations initiales. Pointe indéformable 72R500 – loi Taylor Normal

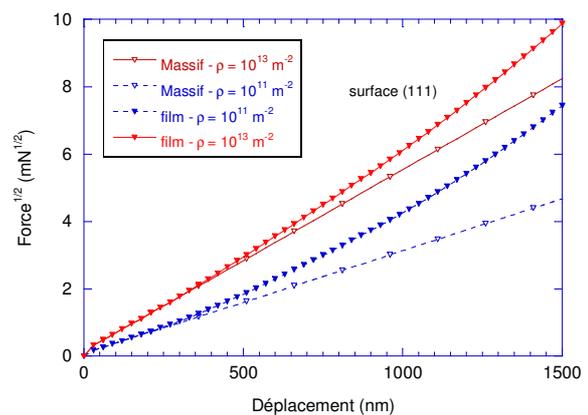


Figure 79 : Courbes Force^{1/2}-déplacement : perte de l'autosimilarité pour la géométrie film-substrat (courbes non linéaires)

La représentation de la *Figure 78* permet d'observer l'effet de confinement par le substrat sur l'écoulement plastique qui conduit à la perte de l'autosimilarité de l'essai avec une pointe conique : en effet, le tracé de la racine carrée de la force appliquée en fonction du déplacement imposé doit être linéaire dans le cas d'une pointe conique [Charleux 09] ce qui correspond à une dureté constante. Ce comportement linéaire est bien retrouvé dans le cas du massif, mise à part la faible contribution initiale du défaut de pointe introduit (pointe 72R500, défaut de rayon de 500nm) conduisant à un léger décalage initial (ordonnée à l'origine non nulle). Par contre, on note un départ à la linéarité et une allure concave pour les essais en film/substrat à partir d'environ 300 nm (10% de l'épaisseur) pour le film « mou » (10^{11}m^{-2}) et pour un film initialement plus « dur » (10^{13}m^{-2}). Ceci traduit le même phénomène d'augmentation de la dureté du film à mesure de sa pénétration comme observé précédemment avec les lois du type Hollomon avec de l'écroutissage.

Sur la *Figure 80*, la rigidité de contact en fonction de l'aire de contact est reportée pour les différentes lois de comportement de la déformation plastique utilisées pour le cuivre ainsi que pour les conditions limites semi-infini (massif) et film/substrat. Nous généralisons ici la relation de Sneddon que cela soit avec un comportement isotrope (lois de type Hollomon) ou anisotrope (plasticité cristalline) dans les deux conditions aux limites. Le comportement élastique anisotrope utilisé est bien sûr le même dans tous ces cas.

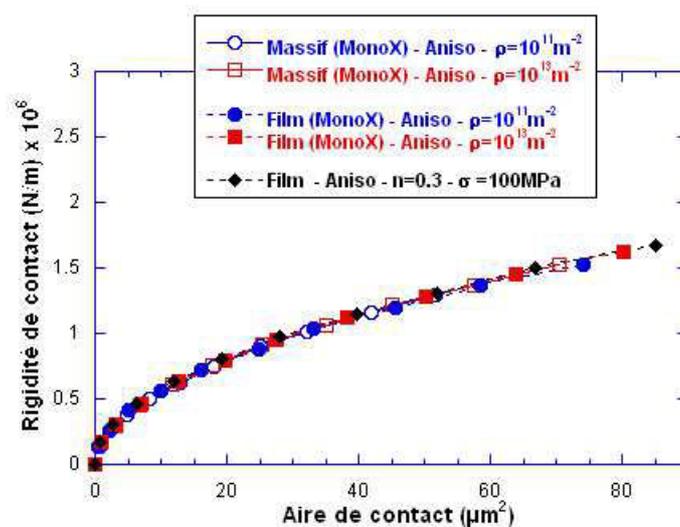


Figure 80: Rigidité de contact en fonction de l'aire de contact à différent loi comportement : élastique et

a) Monocristaux (Cu), Film(Monocristal-Cu/Cu), Film(plastique puissance-Cu/Cu)

L'implémentation des lois cristallines permet de mettre en évidence la modification du chemin de déformation lié au confinement, plus finement que par l'utilisation d'une loi isotrope du type Hollomon. En effet, l'écoulement plastique restreint aux systèmes de glissement permet d'imager les modifications du chemin de déformation à la surface (accessible expérimentalement par AFM) et en coupe (beaucoup plus fastidieux à mettre en œuvre expérimentalement).

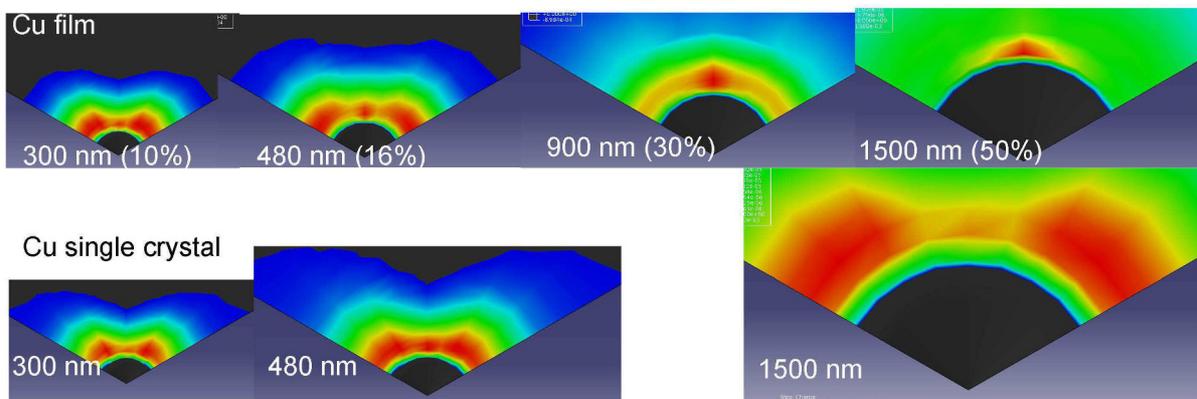


Figure 81 Composantes normales positives du champ de déplacement (u_z) au cours de l'indentation sur une surface (111) en géométrie film/substrat et semi-infini. Les échelles de u_z sont en mis à l'échelle pour chaque cas, les distances dans le plan sont conservées et une symétrie de 120° est appliquée. Film de $3\mu\text{m}$ de Cu sur substrat de Cu, loi Taylor Normal ($\rho=10^{13}\text{m}^{-2}$).

Alors que le motif de déformation du monocristal semi-infini reste auto-similaire quelle que soit la profondeur, on observe une évolution continue pour ce qui concerne le cas du film sur substrat : les bourrelets correspondant aux émergences des systèmes de glissement tendent à former une couronne homogène. Les déplacements verticaux sont par ailleurs fortement accentués dans le cas du film, à 1500nm (50%) de pénétration les maxima et valent 118nm contre 28nm respectivement pour le massif, alors que l'aire projetée de l'empreinte est bien plus large pour le massif (ce qui correspond à une plus faible dureté).

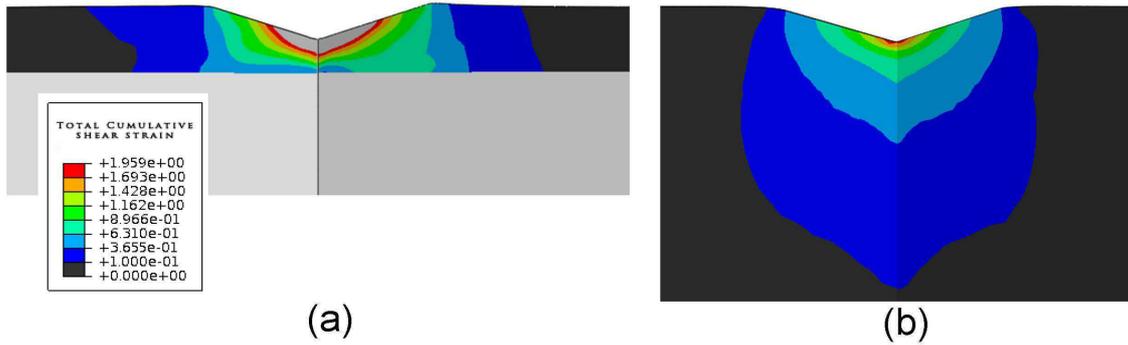


Figure 82 Coupe représentant le champ de glissement cumulé du (a) film/substrat et (b) du massif à 1500nm de pénétration (50% de l'épaisseur du film) correspondant à la Figure 81.

La Figure 82 représente en coupe, le champ de glissement cumulé correspondant aux pénétrations de 1500 nm de la Figure 81. On constate bien une augmentation du niveau de déformation au voisinage de la pointe dans le cas du film/substrat ainsi qu'une extension latérale prononcée. Ces constatations sont générales et se retrouvent pour la surface (001) dans la Figure 83 où le mouvement de matière correspondant aux extensions des bourrelets est clairement mis en évidence dans la coupe et en surface. On retrouve ici les mêmes constatations faites par Casals [Fore09] pour cette orientation de la surface (001).

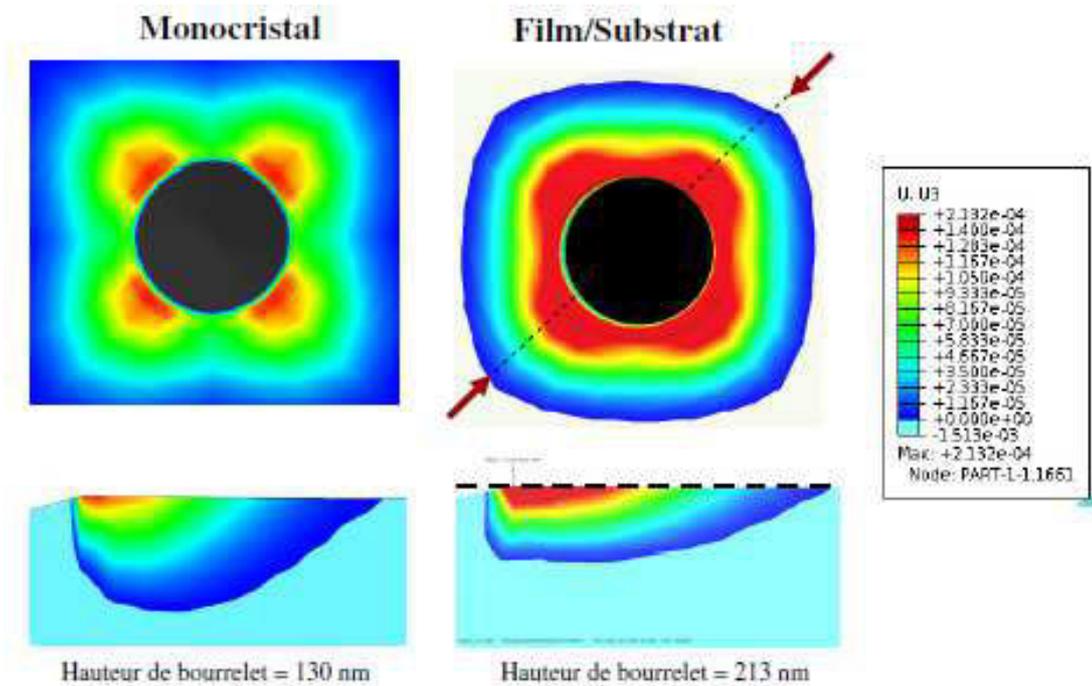


Figure 83 Déformée de surface et coupe surface (001) en semi-infini et film/substrat, les lignes de niveaux correspondent aux déplacements dans la direction normale à la surface, l'unité présentée est le mm

La Figure 84 rassemble les analyses des essais d'indentation menées avec les lois cristallines (jeu de paramètres Taylor-Normal) sur une surface (111) en représentant l'évolution de la dureté en fonction des aires de contact réelles. Les aires de contact ont été calculées à partir des déformées de surfaces sous charge (chapitre III). Tout comme pour les lois plastiques isotropes utilisées précédemment, nous retrouvons une dépendance linéaire de la dureté avec l'aire de contact. L'effet des paramètres d'entrée est plus réduit ici, seules les densités de dislocations initiales des conditions film/substrat sont variées et encadrent les réponses du semi-infini entre 10^{11} et 10^{13}m^{-2} , la loi d'écrouissage est liée aux paramètres Taylor-Normal et ne varie pas. On retrouve ainsi que la limite d'élasticité -variant avec la densité initiale des dislocations- agit principalement sur un décalage de la valeur initiale de la dureté.

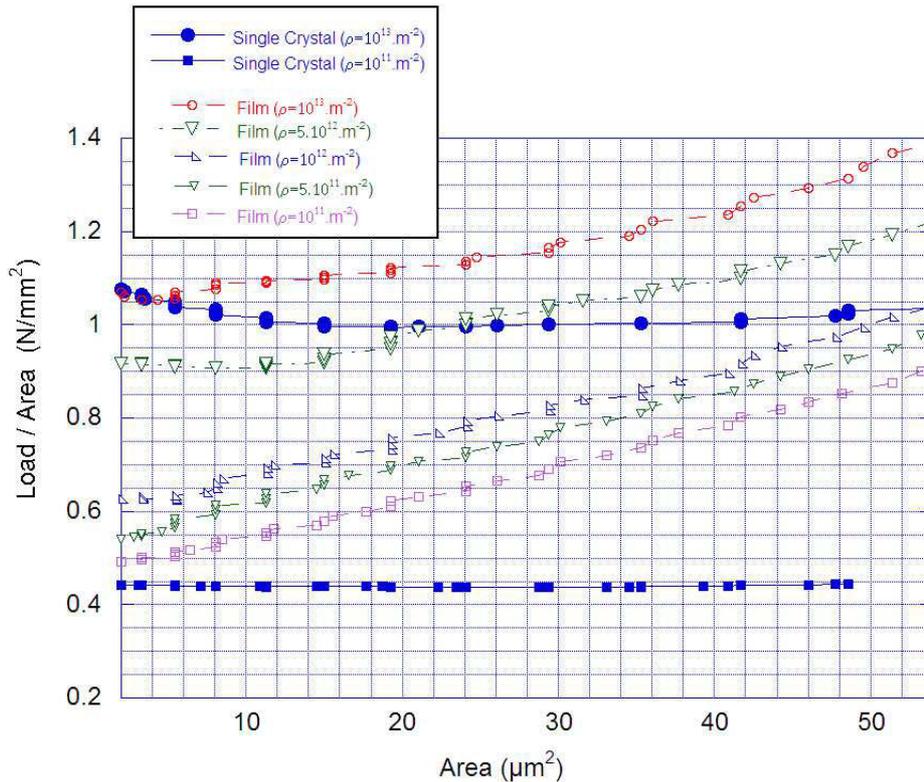


Figure 84 : Evolution de la dureté en fonction de l'aire de contact : surface (001) en géométrie film/substrat et semi-infini, lois de plasticité cristalline Taylor Normal à différentes densité de dislocation initiale, pointe indéformable (pointe 62R500).

Après ces observations et validations issues de calculs paramétriques de l'indentation plastique d'un film sur un substrat élastique, il nous reste à confronter quantitativement les lois cristallines de déformation plastique aux résultats d'expériences.

4.4 Validation expérimentale : film de Cu(001) sur Si(001)

La validation expérimentale de la géométrie film/substrat nécessite de disposer d'un film monocristallin de Cu et d'une épaisseur d'au moins quelques microns pour pouvoir s'affranchir d'éventuelles effets de taille d'indentation. Ceci n'est pas une chose facile à réaliser, cependant grâce à A.Misra au Los Alamos Nat Lab. nous avons eu de tels échantillons. Ils utilisent l'épitaxie du Cu sur Si[001]. et sont déposés par pulvérisation en environnement ultra-vide. L'épaisseur est de 10 μm et l'orientation de la surface (001). La

relation d'orientation entre le Cu et le Si est connue et correspond à une rotation de 45° dans le plan du film : Cu(001)//Si(001) et Cu[110]//Si[100].

Des séries de mesures d'indentation sont menées avec deux pointes saphir sphéro-coniques d'angles différents : 72R1500 et 62R500. La qualité structurale du film est confirmée par la très bonne reproductibilité des courbes d'indentation pour une pointe donnée, un minimum de 7 indents est effectué pour chaque profondeur de pénétration.

La simulation numérique reprend les ingrédients optimisés au chapitre IV : champ de déformation imposé de la pointe correspondant à sa topologie relevée par AFM et prise en compte de la déformation élastique de la pointe. Le substrat correspond au comportement élastique anisotrope du Si monocristallin. Les lois d'écroutissage testées sont TaylorNormal et HéteroSame, et la démarche suivie est identique à celle menée au chapitre 3 et est reproduite à plusieurs profondeurs :

- ajustement unique de la densité initiale de dislocations pour reproduire la force à la pénétration maximale avec la pointe 72R1500 (5 μm correspondant à la charge maximale pouvant être exercé par l'équipement de nanoindentation),
- comparaison des rigidités de contact obtenues et des déformées de surface avec les données expérimentales,
- évolution de la dureté

Les données sont par ailleurs comparées au monocristal d'orientation [001] étudié au chapitre 3, en se remémorant que ce cristal est recuit dans des conditions idéales ce qui ne peut être effectué pour le film sur Si qui est brut d'élaboration (un recuit entraînerait une transformation de phase entre le Cu et le Si par formation de siliciures).

Cette série de comparaisons avec les données expérimentales est ensuite reproduite avec la pointe 62R500, sans modifier bien sûr la densité de dislocation initiale ajustée précédemment avec la pointe 72R1500.

4.4.1 Pointe conique 72°

On constate un très bon ajustement des simulations numériques sur les données des courbes de charge expérimentales du film de Cu(001) sur Si(001), *Figure 85* : les deux jeux de

paramètres d'écroutissage, TaylorNormal et Hétérosame sont utilisées avec une même densité de dislocations initiale, 3.10^{12} m^{-2} . La pointe est comme au chapitre précédent est déformable (élastique) et reproduit la fonction Aire (profondeur) de la pointe expérimentale.

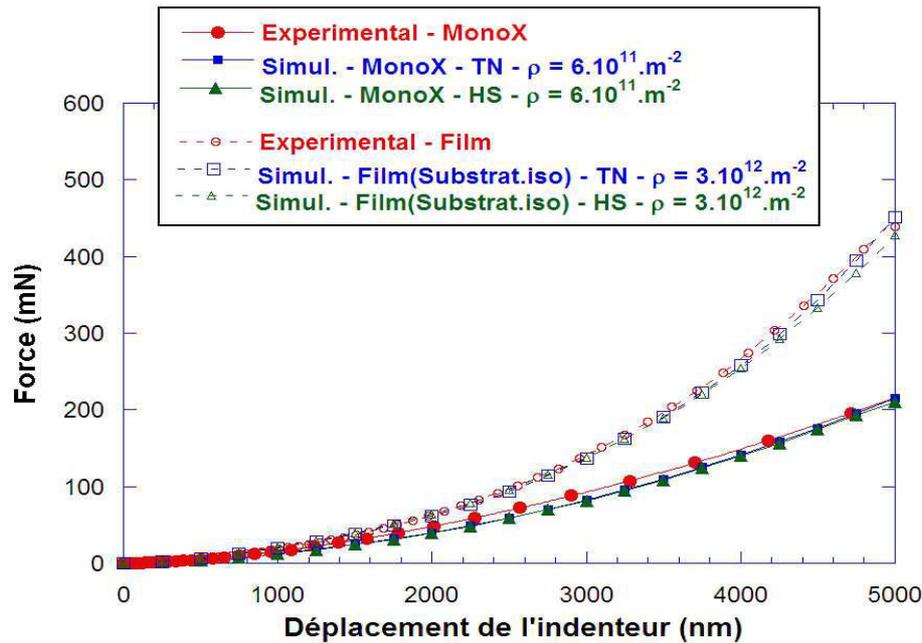


Figure 85: Evolution de force appliqué sur l'indenteur en fonction du déplacement – Indenteur Déformable, pointe 72R1500 – Comparaison (Simulation-Expérimental)-Film (Cu(Monocristal-001-épaisseur 10microns)/Si(Elastique-anisotrope)–Massif (Monocristal-001)- Lois : TaylorNormal (TN)et HétéroSame (HS)

Le substrat est modélisé avec les paramètres d'élasticité anisotrope du Si, tourné de 45° dans le plan x-y par rapport au film de Cu. A titre de comparaison, les données expérimentales issues de l'indentation du monocristal semi-infini de surface (001) à une même profondeur sont représentées : l'ajustement pour le film est d'aussi bonne qualité que pour le massif.

Comme nous l'avons vérifié sur la Figure 80, la relation de Sneddon est aussi vérifiée avec les lois de plasticité cristalline en condition film/substrat. Sur les Figure 86, nous nous sommes intéressés à l'influence du comportement élastique du substrat de Si. Le film est modélisé en plasticité cristalline avec le jeu de paramètre HétéroSame. On ne constate pas d'effet sur les courbes de force-déplacement. La rigidité conserve la même allure mais est légèrement supérieure dans le cas du silicium isotrope aux fortes valeurs de rigidité : l'aire de contact est calculée à partir des déformées de surface pour un incrément de $1\mu\text{m}$ de la profondeur de pénétration. On constate une légère déviation à partir de $3\mu\text{m}$ (30% de

pénétration relative du film soit) : nous attribuons cet effet au choix de l'approximation des paramètres élastique isotrope utilisés pour le Si, qui conduisent à un module d'indentation légèrement supérieur au tenseur anisotrope. Par la suite, nous ne considérerons que le comportement du substrat Si anisotrope n'ayant pu identifier plus finement le bon choix des paramètres élastique isotrope pour le Si.

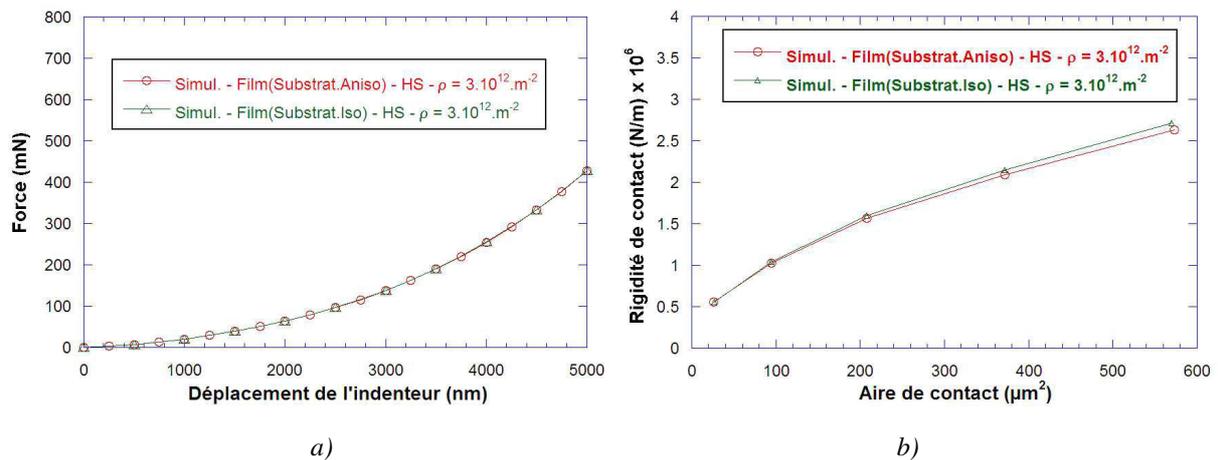
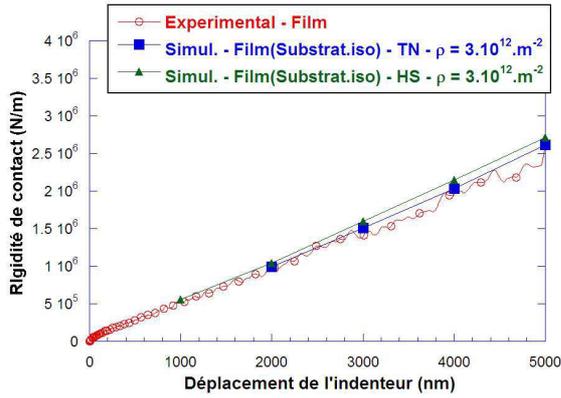
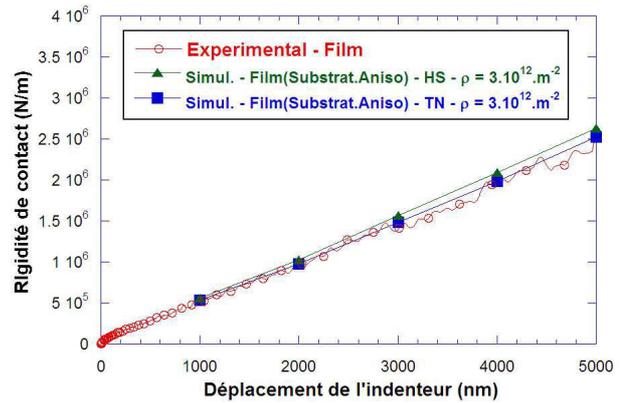


Figure 86: Influence de comportement du substrat de Si : (a) élastique isotrope et anisotrope sur : a) la courbe de force en fonction de profondeur d'indentation –film avec plasticité cristalline Hétérosame, b) rigidité de contact en fonction l'aire de contact. L'aire de contact est établie à chaque incrément de $1\mu m$ du déplacement imposé

La Figure 87 illustre la très bonne adéquation de notre modélisation aux données expérimentales d'indentation instrumentée (signaux bruts de charge, déplacement total et rigidité de contact): la rigidité de contact expérimentale (mesurée ici par détection synchrone à 45Hz sur une oscillation de 2nm) est comparée aux simulations *en fonction du déplacement total*. La relation de Sneddon couple en effet le comportement élastique (ici le composite Cu/Si) et plastique (le film de Cu) via le rayon de contact. Elle présente ainsi une signature de la rhéologie de l'écoulement et constitue un 'benchmark' idéal de la mesure du module et de la dureté. Le signal expérimental de rigidité de contact est légèrement oscillant car l'amplitude forcée de 2nm est ajustée au cours de la pénétration par une boucle de rétroaction sur la force. Nos simulations reproduisent très bien les mesures et à notre connaissance nous ne connaissons pas d'étude précédente rapportant un tel accord, tout comme pour le massif.



(a)



(b)

Figure 87 Comparaison de la rigidité de contact expérimentale et simulée en fonction du déplacement total avec (a) un comportement de substrat de Si élastique isotrope, (b) anisotrope.

Les courbes présentent une allure non linéaire (légèrement concave), due à la présence de l'effet élastique du substrat, et l'approximation du substrat en comportement élastique isotrope reproduit la légère majoration constatée sur la Figure 86. L'effet du contraste élastique lié au substrat de Si est clairement visible sur la Figure 88 où sont reportées les évolutions de la rigidité de contact entre le Cu/Si et le massif de surface de même orientation (001) :

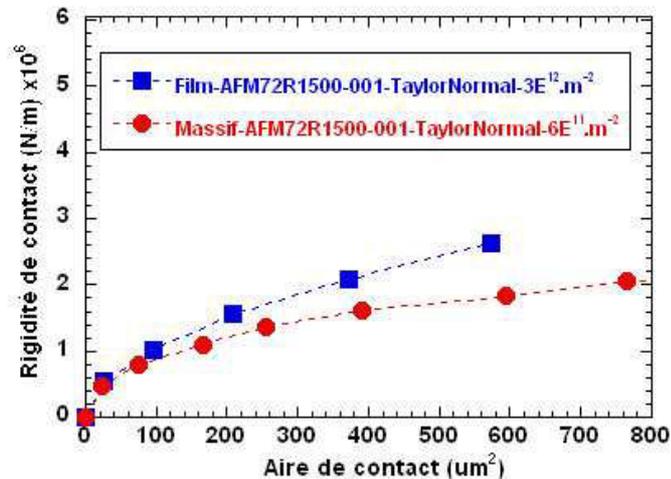


Figure 88 Comparaison de la courbe de rigidité film (10 μm) de Cu(001) sur Si et Cu (001) massif en fonction de l'aire de contact. Les aires de contact calculées sur le film/substrat sont établies par intervalle de 1 μm .

Initialement, les rigidités de contact peuvent être assimilées comme équivalentes (en deçà de 1 μm dans le film, soit 10% de pénétration), le module mesuré du système film/substrat

composite étant principalement le film de Cu. Cette comparaison ne peut être établie quelle que soit la rhéologie du Cu.

Les cartographies du déplacement normal à la surface sont reportées pour différentes profondeurs d'indentation sur la Figure 89, à la fois pour les simulations et les mesures d'AFM expérimentales. Les ordres de grandeur des amplitudes maximales sont bien retrouvées et varient entre 0.1 μm pour 10% de pénétration à presque 1.4 μm à 50%. Les effets de confinement sur l'écoulement plastique par le substrat se retrouvent bien dans les observations expérimentales et les simulations : la formation des bourrelets s'étend et s'établit sous forme de couronne autour de l'empreinte. Ceci peut être aussi remarquée sur la forme de l'empreinte qui d'une forme facettée en losange devient plus arrondie. La distinction entre les deux jeux de paramètres d'écrouissage est plus subtile : TaylorNormal semble présenter des lobes plus marqués à même profondeur d'indentation que HétéroSame, de même qu'une empreinte 'plus facettée'. C'est ce que l'on peut constater sur la

Figure 90 où sont représentés les maxima de déplacement en fonction de l'angle de rotation autour de l'empreinte. Les directions cristallographiques dans le plan entre les simulations et les expériences ne sont pas alignées pour permettre un décalage pour une meilleure lecture des graphiques, de même que le niveau 0 des surfaces. Le jeu de paramètres HétéroSame est le plus proche des amplitudes et largeurs expérimentales jusqu'à une profondeur inférieure à 50%. A 50%, les simulations présentent des amplitudes maximales inférieures à l'expérimental quel que soit le jeu de paramètres utilisé. Les surfaces déformées obtenues avec les paramètres TaylorNormal présentent un « retard » en terme de profondeur relative par rapport à celles obtenues avec les paramètres HétéroSame et à l'expérimental.

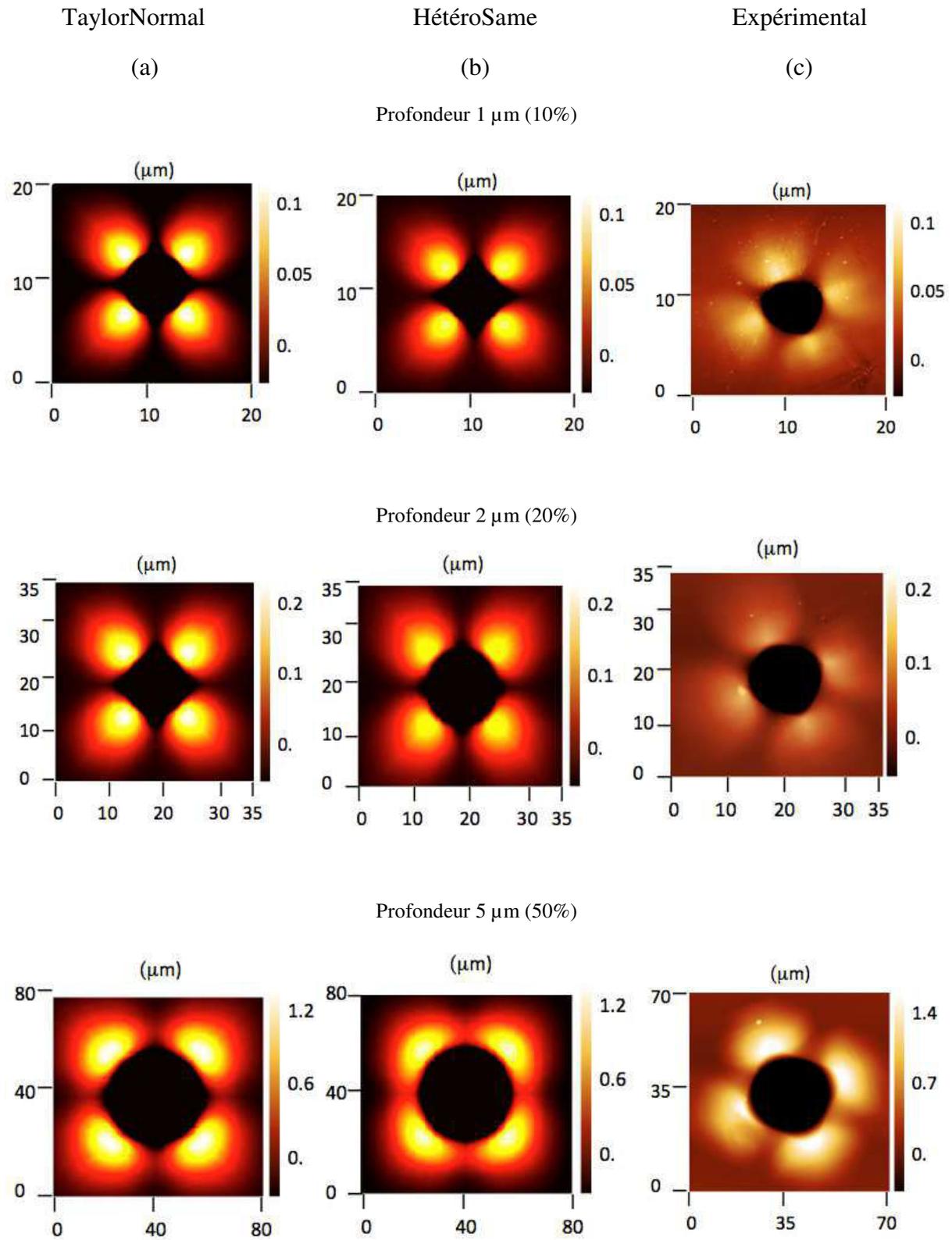


Figure 89 : Projection de maximal déplacement de l'interface – Indenteur déformable 72R1500 – Film 10 microns – Profondeur d'indentation : 1 micron – a) TaylorNormal - b) HétéroSame – c) Expérimental

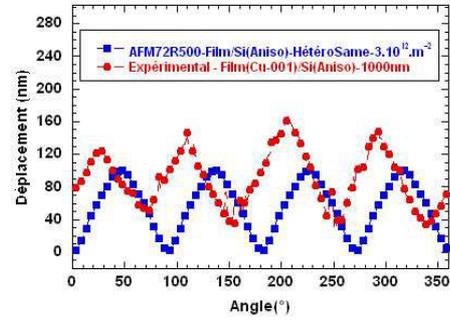
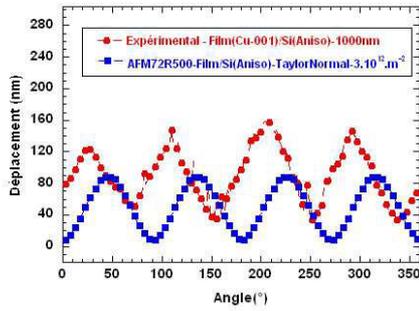
TaylorNormal

HétéroSame

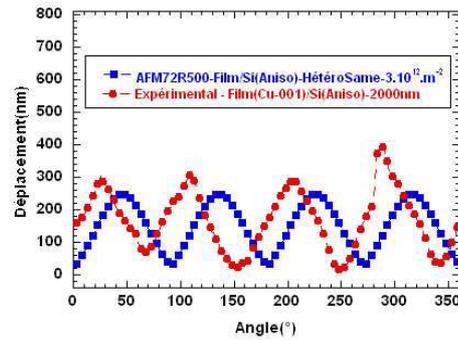
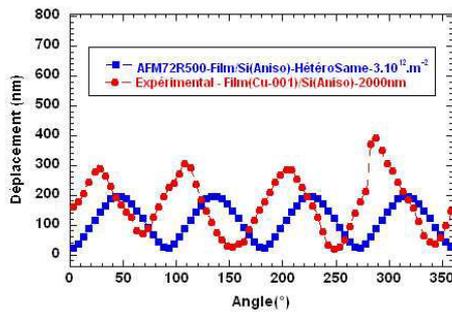
(a)

(b)

Profondeur 1 μm (10%)



Profondeur 2 μm (20%)



Profondeur 5 μm (50%)

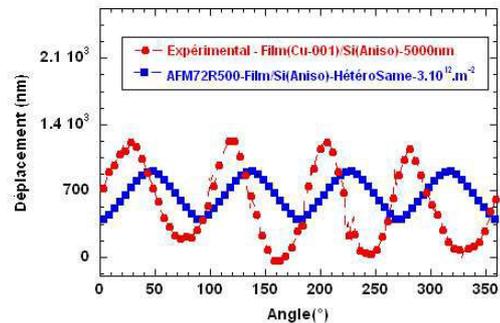
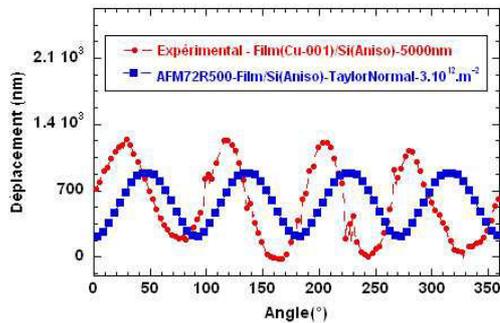


Figure 90 : Maximal de déplacement de l'interface en fonction de l'angle de rotation - Indenteur déformable 72R1500 – Film 10 microns à différentes profondeur d'indentation.- Comparaisons de modélisation et expérimental – a) TaylorNormal - b) HétéroSame.

Finalement les courbes de dureté en fonction des profondeurs d'indentation sont comparées sur la *Figure 91* aux données expérimentales. Les simulations reproduisent bien l'augmentation de la dureté liée au confinement du substrat ce qui confirme la bonne adéquation des quantités physiques que sont la force et l'aire de contact, alors que dans le cas du monocristal massif, celle-ci demeure relativement constante.

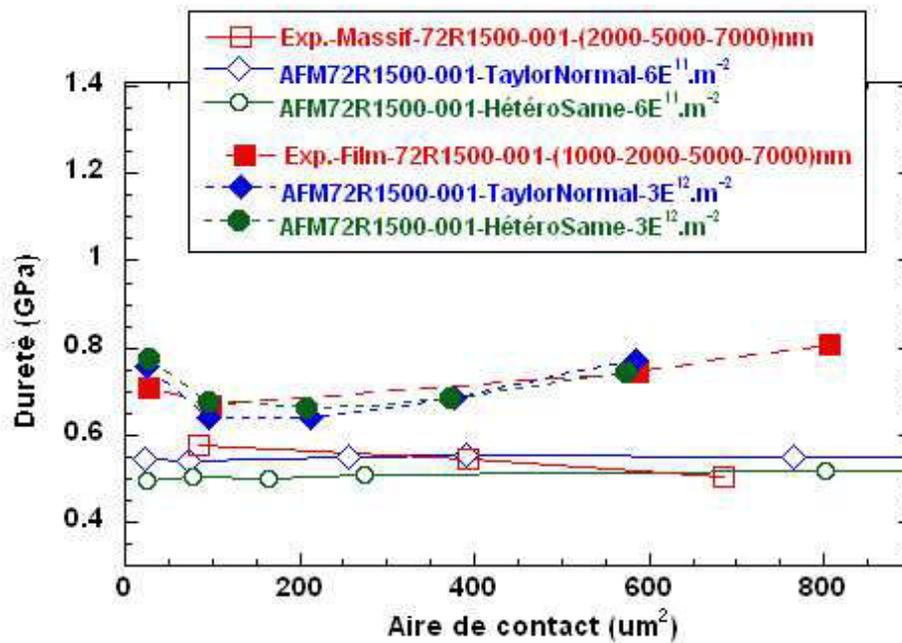


Figure 91: Evolution de la dureté en fonction de l'aire de contact – Indenteur déformable 72R1500-FilmCu(monocristal-anisotrope-épaisseur 10 microns) sur substrat Si (anisotrope-Elastique) – Massif (Cu-monocristal-anisotrope) – Profondeur d'indentation 5000nm – Comparaison modélisation-expérimentale – Lois TaylorNormal-HétéroSame

Nous interprétons la baisse initiale de dureté du film/substrat au défaut de pointe pseudo-sphérique conjugué à une limite d'élasticité plus élevée que le monocristal recuit. Il n'en demeure pas moins que l'effet d'augmentation quasi-linéaire de la dureté en fonction de l'aire de contact est aussi observé avec la même pente sur les données expérimentales, confirmation que les paramètres de durcissement d'écrouissage des simulations sont proches de celles du film de Cu expérimental.

4.4.2 Pointe conique 62°

Le test de robustesse des simulations consiste, comme au chapitre précédent, à les comparer aux résultats expérimentaux sur le même échantillon, sans en modifier le paramètre d'entrée à savoir la densité de dislocations. Rappelons que le demi-angle de la pointe conique 62R500 est de 62° qui est plus aigu que la pointe 72R1500 ce qui à même profondeur induit plus de déformation plastique équivalente. L'effort de pénétration est bien sûr plus faible.

La comparaison des courbes de force-déplacement avec les données expérimentales est reportée sur la *Figure 92* et l'accord est très bon avec les deux jeux de paramètres d'écroutissage et la même densité de dislocations initiale que celle obtenue avec la pointe 72R1500 soit 3.10^{12} m^{-2} . Le niveau de force à la pénétration finale de 5µm est légèrement inférieur à la charge expérimentale, moins de 5%. De la même façon, nous avons reporté les courbes obtenues sur l'échantillon monocristallin massif avec cette même pointe et la densité de dislocations obtenues avec la 72R1500 : les écarts sont du même ordre de grandeur.

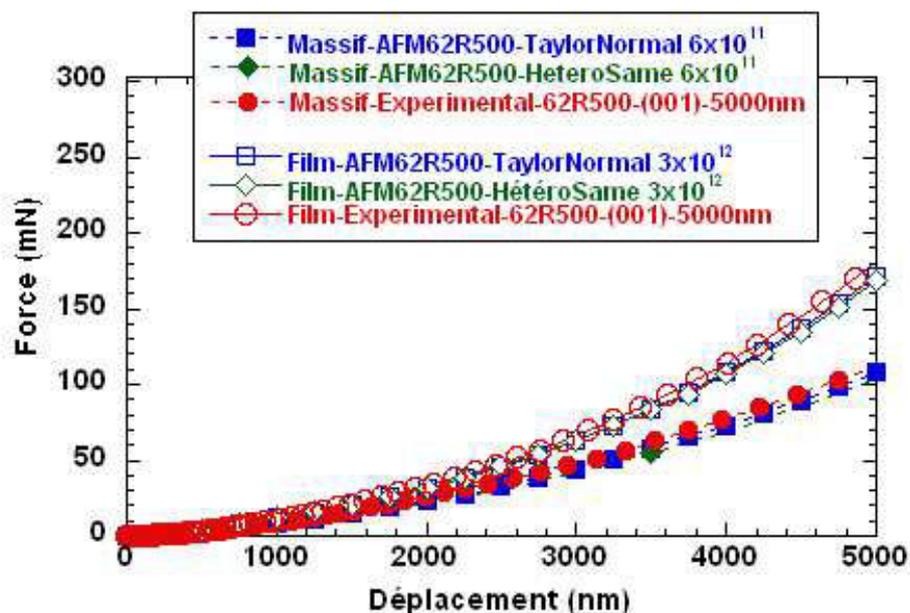


Figure 92: Evolution de la force appliquée sur l'indenteur en fonction du déplacement – Indenteur Déformable-AFM62R500 – Déplacement à 5000nm – Comparaison (Simulation-Expérimental)-Film (Cu(Monocristal-001-épaisseur 10microns)/Si(Elastique-anisotrope)-Massif (Monocristal-001)- Lois : TaylorNormal et HétéroSame – Profondeur d'indentation 5000nm

La rigidité de contact en fonction du déplacement total est très bien reproduite par les simulations, voire mieux qu'en ce qui concerne le monocristal massif où les rigidités de contact sont supérieures à partir de 4 microns d'enfoncement par rapport à l'expérimental, *Figure 93*.

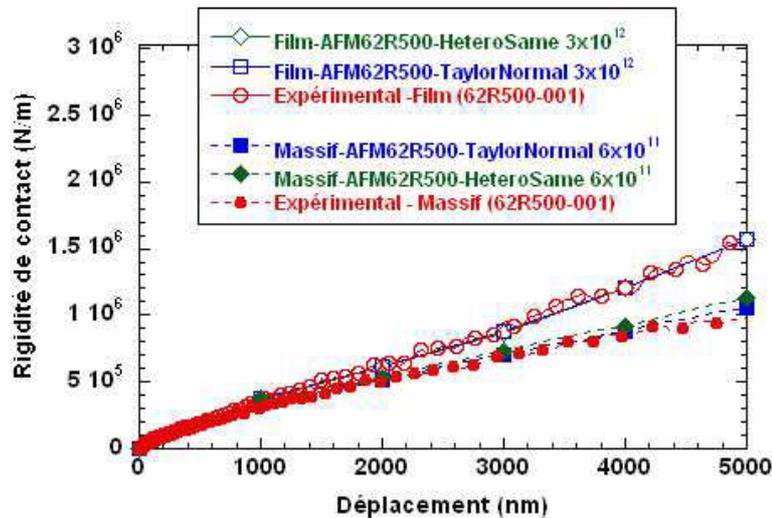


Figure 93 : Rigidité de contact en fonction du déplacement de l'indenteur dans le cas Film(Monocristal-001-10 microns)/ Substrat(Elastique-aisotrope)- Profondeur d'indentation : 5000nm- Lois : TaylorNormal et HétéroSame – Comparaison : modélisation et expérimental. Indenteur Déformable 62R500.

Enfin, les comparaisons avec les expériences du champ de déplacement normal à la surface sont reportées *Figure 94* et *Figure 95*. On constate, de la même façon qu'avec la pointe 72R1500 que le jeu de paramètre HétéroSame reproduit plus fidèlement le motif des bourrelets et de manière plus prononcée: l'évolution des empreintes facettées losange en trous plus circulaires est mieux respectée en fonction de la profondeur d'indentation pour la loi HétéroSame que TaylorNormal : à 50% de pénétration, l'empreinte est quasi-circulaire dans le cas expérimental et HétéroSame et demeure légèrement facetté pour la loi TaylorNormal. Les amplitudes des maxima des bourrelets en fonction de l'angle de rotation autour de l'empreinte sont du même ordre de grandeur que les données expérimentales. Il est à noter que les figures expérimentales indiquent des lobes moins réguliers que pour la pointe 721500 : deux maxima sont observés *Figure 95* respectivement à 110° et 290° et sont visibles sur les lobes correspondants des courbes de niveaux de la *Figure 94*. Cela ne peut provenir d'un désalignement cristallographique du film ou du montage car il aurait été constaté avec la pointe 72R1500. Comme l'indique la déformée de surface expérimentale à 10%, nous

pensons que la section de la pointe est plus asymétrique (elliptique) : ceci n'est pas reproduit dans nos simulations, car nous avons maillé la fonction d'aire de la pointe expérimentale, avec donc une hypothèse de symétrie de révolution et non la forme 3D de la pointe expérimentale. Il est intéressant que ce défaut s'estompe avec la profondeur d'indentation, en parallèle avec l'effet d'homogénéisation de la déformation plastique du film/substrat.

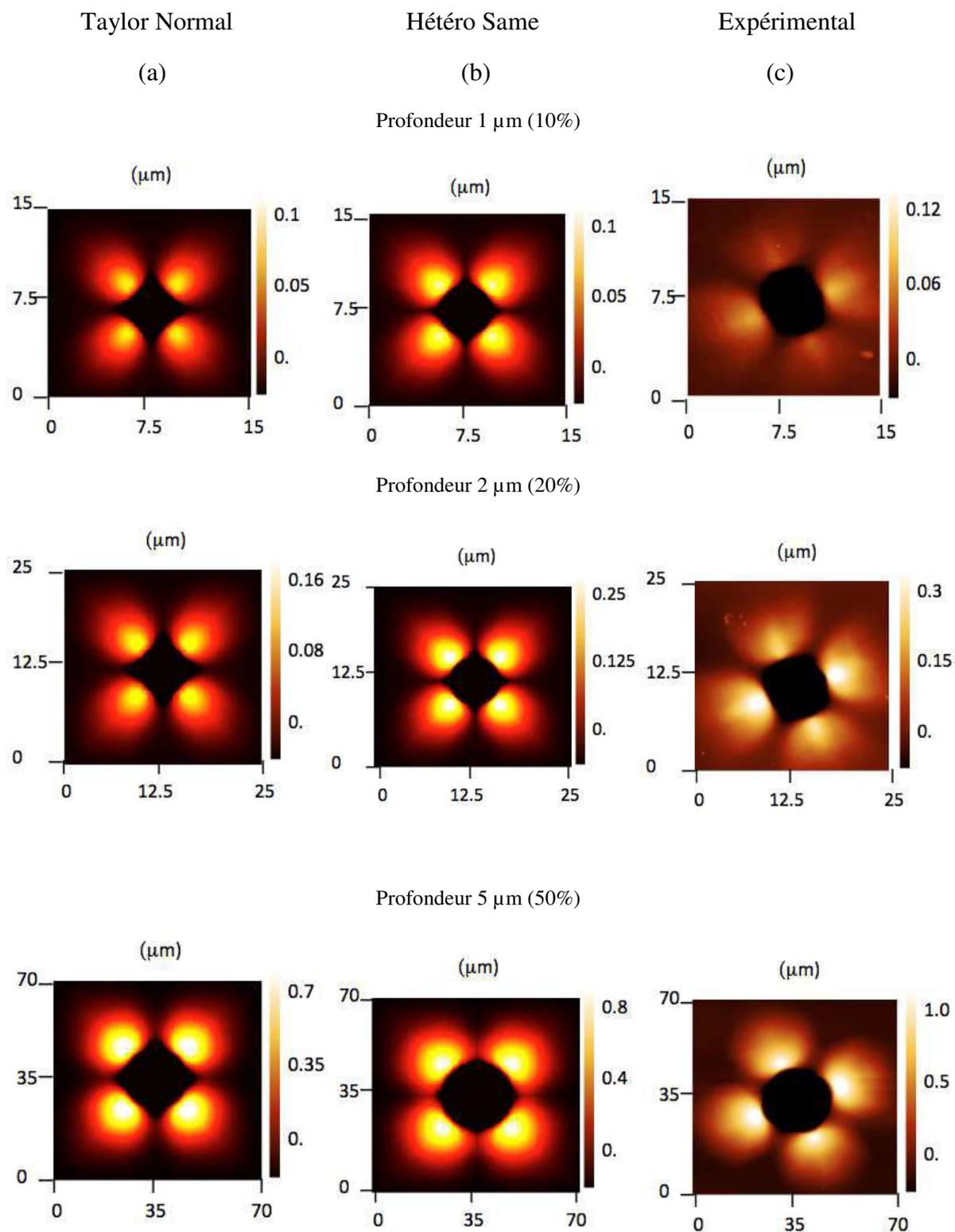
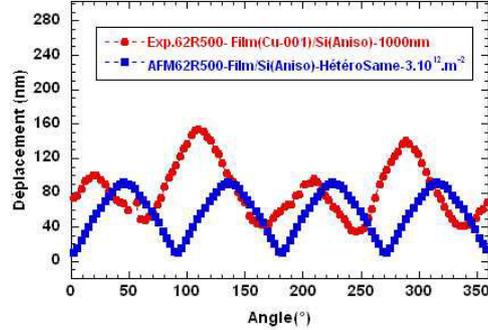
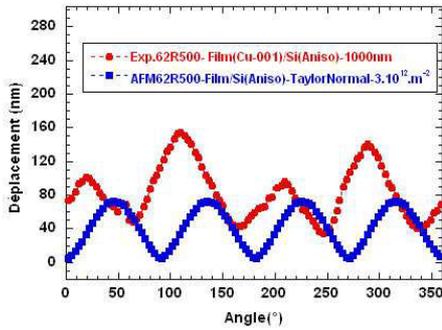


Figure 94 : Projection de maximal déplacement de l'interface – Indenteur déformable 62R500 – Film 10 microns – Profondeur d'indentation : 1 microns – a) TaylorNormal - b) HétéroSame – c) Expérimental

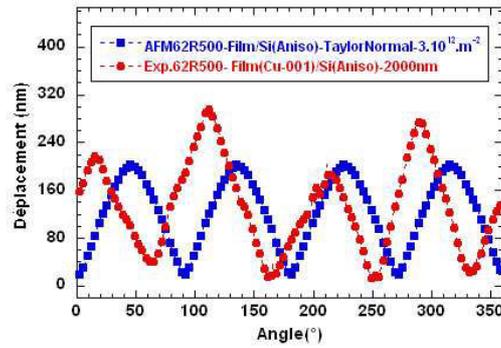
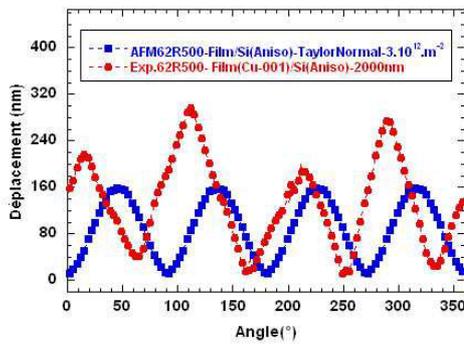
Taylor Normal
(a)

HétéroSame
(b)

Profondeur 1 μm (10%)



Profondeur 2 μm (20%)



Profondeur 5 μm (50%)

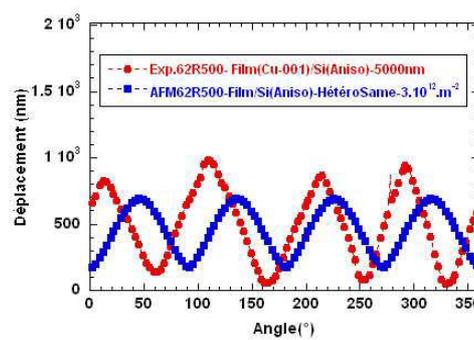
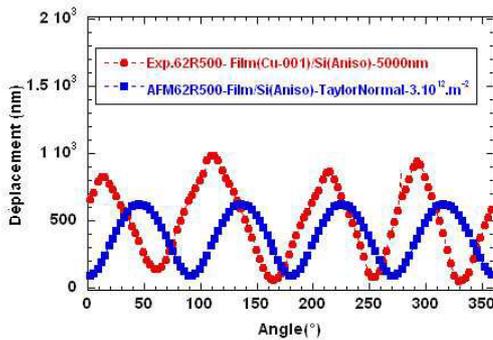


Figure 95 : Maximum de déplacement de l'interface en fonction de l'angle de rotation - Indenteur déformable 62R500 – Film 10 microns – Profondeur d'indentation : 1 microns- Comparaison de modélisation et expérimental – a) TaylorNormal - b) HétéroSame

L'évolution de la dureté avec l'aire de contact est reportée *Figure 96* : les données expérimentales sont obtenues aux profondeurs de 1,2 et 5 microns, les données simulées tous les microns. La dureté diminue d'abord avant de croître linéairement avec l'aire de contact, comme dans le cas expérimental. Ceci peut être attribué à une décroissance de l'angle effectif de la partie en contact (passage de la pointe sphérique vers le cône).

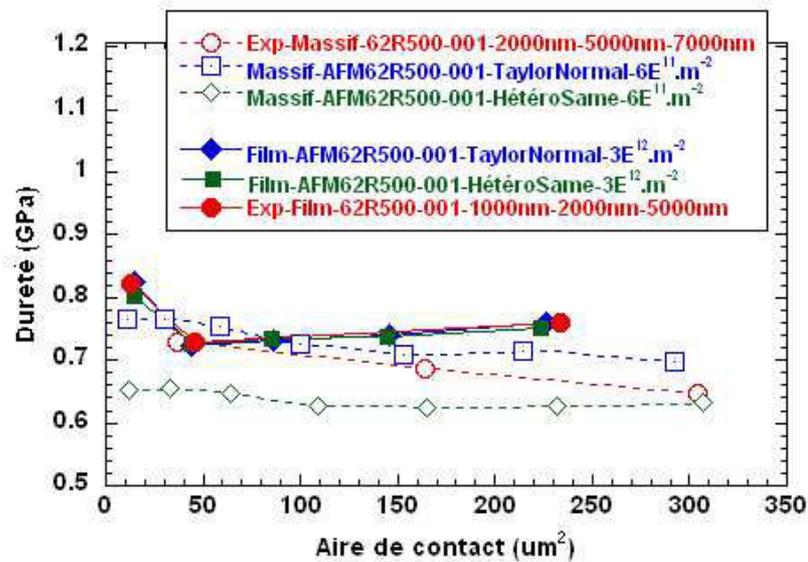


Figure 96: Evolution de dureté en fonction de l'aire de contact – Indenteur déformable 62R500-FilmCu(monocristal-anisotrope-épaisseur 10 microns) sur substrat Si (anisotrope-Elastique) – Massif (Cu-monocristal-anisotrope) – Profondeur d'indentation 5000nm – Comparaison modélisation-expérimentale – Lois TaylorNormal-HétéroSame

4.5 Conclusions

Dans le cas de l'indentation de films sur substrats, l'effet de l'écroutissage a pu être mis en évidence. La dureté H augmente au cours du chargement, que ce soit avec le modèle d'écroutissage isotrope en loi puissance ou le modèle de plasticité cristalline. La dureté varie proportionnellement à l'aire de contact dans les deux cas. La procédure d'identification donne de bons résultats. La pointe plus aigüe (62R500) amplifie la sensibilité à la procédure d'identification en créant plus de déformation plastique. Il est donc préférable de l'utiliser pour identifier les paramètres et les lois d'écroutissage plutôt que la 72R500.

Les lois de plasticité cristalline reproduisent très bien les courbes de charges $F(h)$.

La loi de Sneddon est validée dans le cas du film sur substrat, et l'évolution de la rigidité de contact en fonction de l'enfoncement $S(h)$ est aussi très bien reproduite.

En ce qui concerne l'identification du jeu de paramètres d'érouissage, les courbes $F(h)$ et $S(h)$ ne sont pas plus discriminantes que dans le cas du massif, et il faut s'appuyer sur la déformation de surface pour trouver une meilleur représentation par HétéroSame.

5 Îlot sur substrat

5.1 Contexte de l'étude

Cette partie de la thèse s'inscrit dans un contexte plus global concernant l'étude de la plasticité cristalline en fonction de la taille de l'objet en utilisant en particulier la diffraction des rayons X cohérents comme sonde de mesure 3D du champ de déplacement d'un essai d'indentation in-situ. Ces expériences développées au synchrotron ESRF dans un premier temps par M. de Boissieu et M. Verdier au cours de ma thèse, s'appuient sur l'arrivée de G. Beutier (CNRS 2010) et se déroulent désormais dans le cadre d'une ANR Blanche débutée en 2011.

L'intérêt des calculs par la méthode des éléments finis dans ce cadre réside dans un premier temps sur la résolution des conditions limites de la stabilité thermomécanique de l'objet élaboré qui est ici un micro-cristallite de Cu obtenu par démouillage en phase solide sur un substrat monocristallin de Ta. Le champ de déplacement dans l'îlot correspondant à la différence de dilatation thermique entre le Cu et Ta est évalué et directement comparé aux mesures obtenues par la diffraction aux rayons X cohérents [Beutier 13]. Dans un deuxième temps, bien que la longueur d'échelle adressée soit sub-micrométrique, nous avons calculé avec les lois de plasticité cristalline continue, l'effet d'une indentation au centre de cet îlot en parallèle d'expériences de nanoindentation en cours.

5.2 Sollicitation thermo-élastique et diffraction X cohérents

5.2.1 Résultats expérimentaux Cu/Ta

Des microcristallites de Cu sur un substrat Ta sont obtenus par un procédé de démouillage de Cu sur la surface Ta sous ultravide. Suite aux différences d'énergie de surface entre le Cu et le Ta, le film de Cu déposé à température ambiante est métastable et après chauffage conduit à la formation d'îlots de Cu sur Ta. Le démouillage est effectué à partir d'une couche de Cu d'épaisseur 5 nm à température ambiante puis chauffée à 1200K pendant 3 minutes. La Figure 97 montre la forme typique facettée des îlots de Cu sur Ta. Les facettes du côté sont orientées $\langle 111 \rangle$ et la facette au-dessus de l'orientation $\langle 001 \rangle$. Les dimensions des îlots sont de l'ordre de $800 \times 800 \text{ nm}^2$ et la hauteur est comprise entre 100 à 400 nm.

L'orientation cristallographique entre les îlots et le substrat est unique et est déterminée en EBSP (Electron Back Scattering Pattern au MEB) par les relations d'orientation cristallographique : $\text{Cu}(001)/\text{Ta}(001)$ et $\text{Cu}[110]/\text{Ta}[001]$.

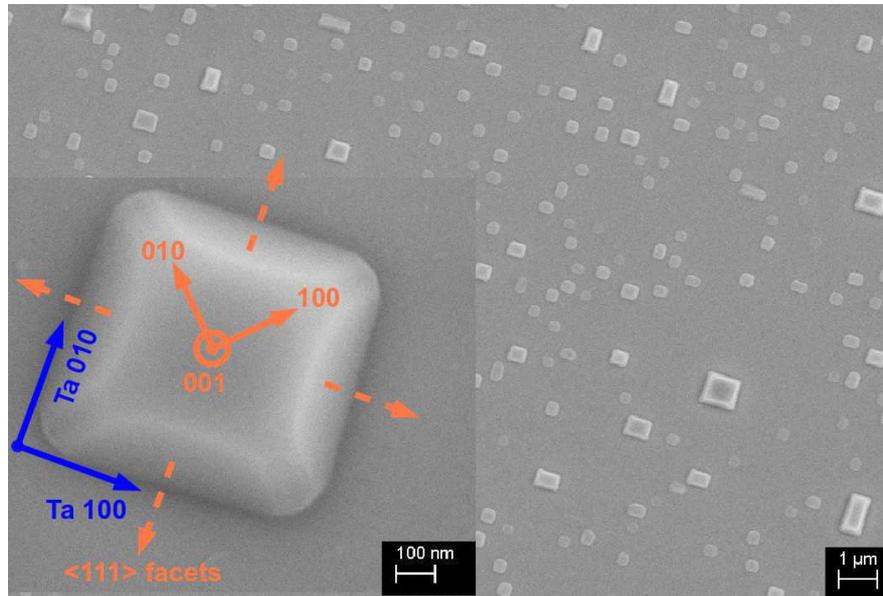


Figure 97 : Micrographie en microscopie électronique à balayage des îlots de Cu, en insert les directions cristallographiques des normales des facettes -d'après [Beutier 13].

Cette relation est confirmée aux rayons X et la mesure du paramètre de maille moyen du Cu est d'environ 0.65% plus faible que la valeur attendue du massif. Une déformation résiduelle de l'ordre de $\epsilon = \Delta\alpha \cdot \Delta T = 0.8\%$ est attendue si l'on considère un état relaxé des îlots à 800°C avec une approximation de film mince Cu/Ta (sans prendre en compte la géométrie des îlots). Des mesures de diffraction par rayon X cohérents (CXD) ont été effectuées sur la ligne ID01 de l'ESRF avec un faisceau microfocalisé sur les îlots, en étudiant le volume de Bragg 002, Figure 98.

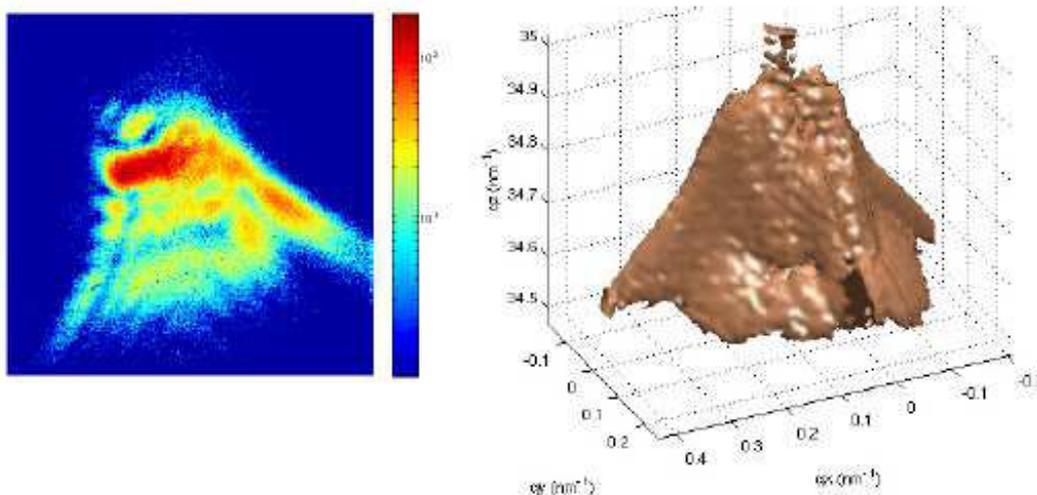


Figure 98 Coupe 2D dans l'espace réciproque de la diffraction d'un îlot carré, à droite isosurface 3D de la réflexion 002.

Le volume 3D de la réflexion 002 ne correspond pas à la figure de diffraction attendue à partir de la seule forme de l'objet (qui seraient des franges d'interférence perpendiculaires aux directions des facettes cristallographiques), mais est très anisotrope et très élargie : un champ de déformation inhomogène domine le signal de diffraction (Figure 103).

5.2.2 Simulations en élastique anisotrope

Pour évaluer le champ de déformation, nous avons procédé à une simulation thermo-élastique anisotrope d'îlots de forme variable et de rapport hauteur sur diamètre à la base variable. En effet, outre les îlots de Cu, des fils épitaxiés sur un substrat seront aussi étudiés dans le cadre du projet. Dans un premier temps, nous avons étudié l'effet de forme sur l'hétérogénéité des contraintes différentielles d'interface objet/substrat. En particulier, le rapport hauteur/diamètre pour des géométries cylindrique et cubique :

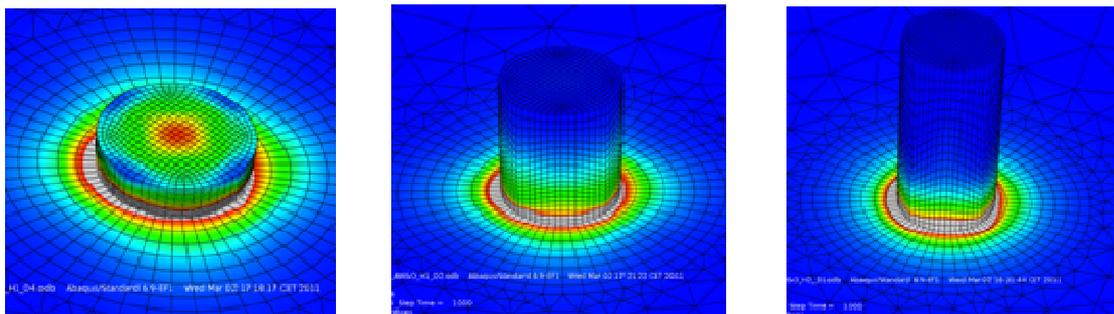


Figure 99 : contraintes de VonMises, déformation de dilatation différentielle imposée de 3%, $h/d=1/4,1,4$, Cu/Ta (001),

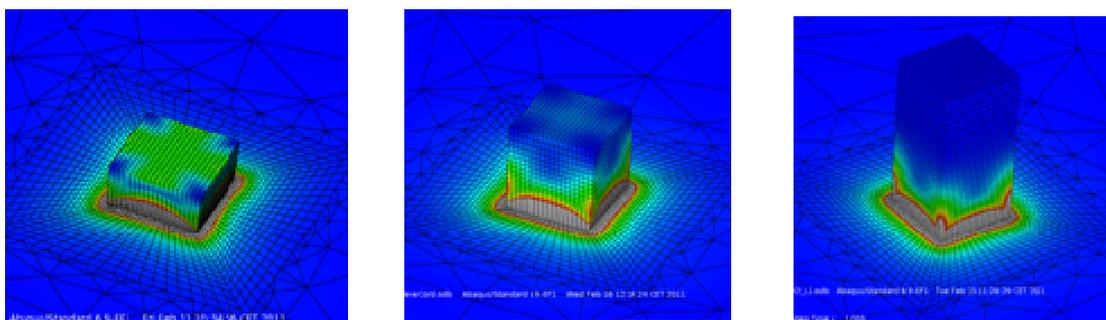


Figure 100 contraintes de Von Mises, déformation de dilatation différentielle imposée de 3%, îlot de base carrée de longueur c : $h/c=1/2,1,2$, Cu/Ta (001)

On vérifie que l'effet de dilatation différentiel produit à l'interface exerce un champ fortement hétérogène sur une distance de l'ordre de la taille de la base. On retrouve par ailleurs l'effet de l'anisotropie élastique par exemple sur le cas de la pour $h/d=1/4$, ou $h/c=1/2$ sur les distributions avec 2 plans de symétrie sur la distribution des contraintes de Von Mises.

Les dimensions des îlots obtenu par démouillage de Cu/Ta correspondent à des rapports de forme inférieurs à 1/2 : l'îlot typique dont la diffraction est donnée Figure 98 a une dimension 1µx1µm à la base et une hauteur de 400 nm. Les relations d'orientation cristallographique entre le Cu et le Ta sont respectées. Le maillage est constitué d'environ 60000 éléments, à 8 nœuds et bien raffinés au sein de l'îlot, l'interface est constitué d'éléments triangulaires à 4 nœuds, Figure 101.

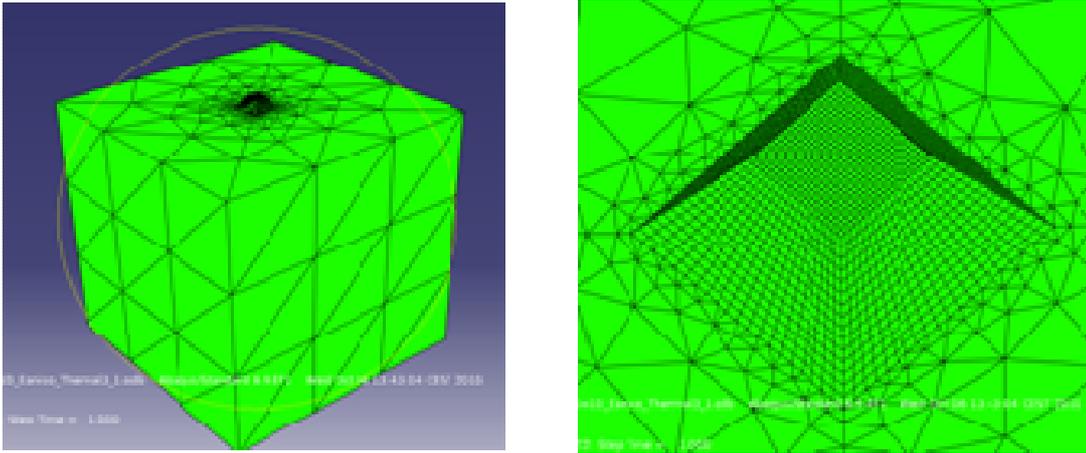


Figure 101 Vues du maillage îlot sur substrat utilisé

De cette simulation, le champ de déplacement \mathbf{r} est interpolé sur une grille 3D régulière grâce à un script Python sous Abaqus. L'intensité I de la diffraction par rayons X cohérents est simulée en calculant le module au carré de la transformée de fourrier (FT) de ce champ [Beutier 13]:

$$I(\mathbf{q}) \propto \left| \int \rho(\vec{r}) e^{i\vec{q}\vec{r}} d\vec{r} \right|^2 \approx \left| FT \left[e^{i\vec{q}\vec{r}} \rho(\vec{r}) \right] \right|^2 \quad \text{Équation 45}$$

Avec $\rho(\mathbf{r})$ est la densité électronique, prise à 1 dans l'îlot et 0 à l'extérieur, \mathbf{q} est le vecteur de diffusion et \mathbf{Q} le vecteur de diffusion à la position de Bragg, ici 002 qui prennent bien en compte les composantes de déplacement de suivant z .

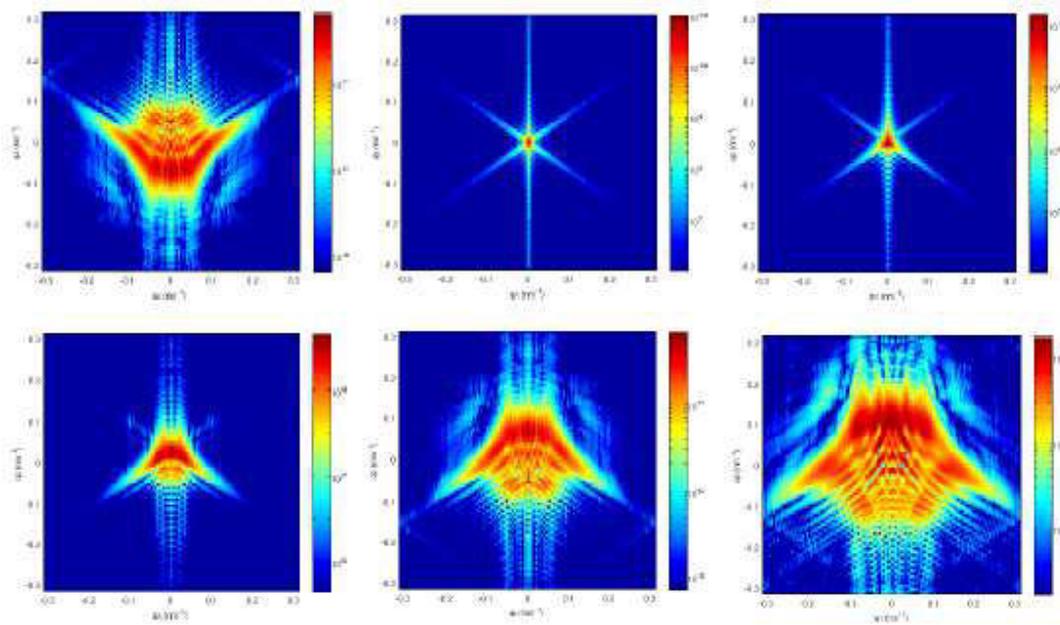


Figure 102 : coupe des réflexions 002 simulées pour différentes dilatations entre l'îlot de Cu et le substrat de Ta. a) $\epsilon = -0.1\%$, b) $\epsilon = 0\%$, c) $\epsilon = 0.1\%$, d) $\epsilon = 0.33\%$, e) $\epsilon = 0.65\%$, f) $\epsilon = 1\%$

On constate la domination du champ de déformation sur la forme de l'objet (cas $\epsilon = 0\%$), le cas $\epsilon = 0.65\%$ est en très bon accord avec les acquisitions expérimentales, Figure 103.

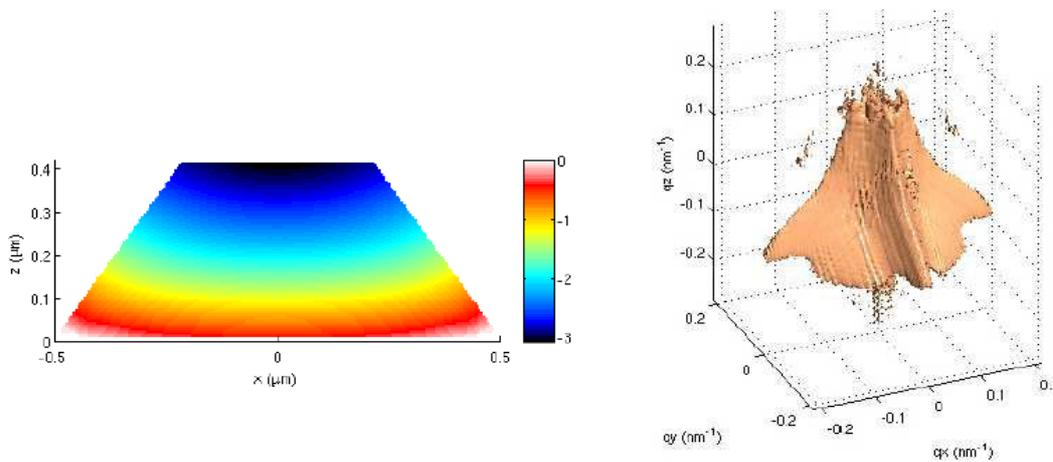


Figure 103 à gauche, coupe du champ de déplacement u_z obtenu pour $\epsilon = 0.65\%$, l'échelle est en Å. et à droite isosurface du volume de la réflexion 002 calculée à partir de ce champ.

5.3 Indentation sur îlot Cu/Ta

A partir de l'état précédent, les résultats préliminaires d'un essai d'indentation sont présentés. Il est réalisé à 5% de profondeur relative (20 nm d'enfoncement) avec une pointe 72R500

indéformable en choisissant une loi de plasticité cristalline (jeu de paramètres Taylor Normal) et une densité initiale de dislocations $\rho=10^{13} \text{ m}^{-2}$. Il ne s'agit pas ici de comparer ces calculs quantitativement avec les expériences, mais dans une étude préliminaire, d'observer les effets des surfaces libres sur les champs de déformation et de contrainte.

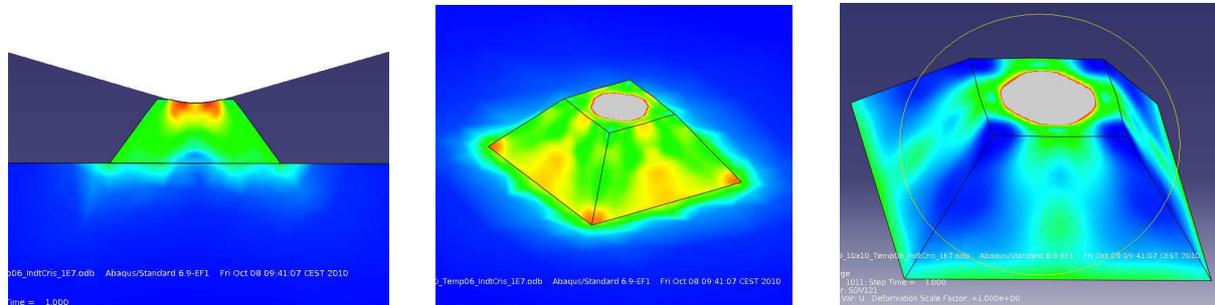


Figure 104 : Coupe du champ de contrainte (VonMises) (a) sous charge, (b) après décharge, (c) déformation plastique résiduelle cumulée dans l'îlot

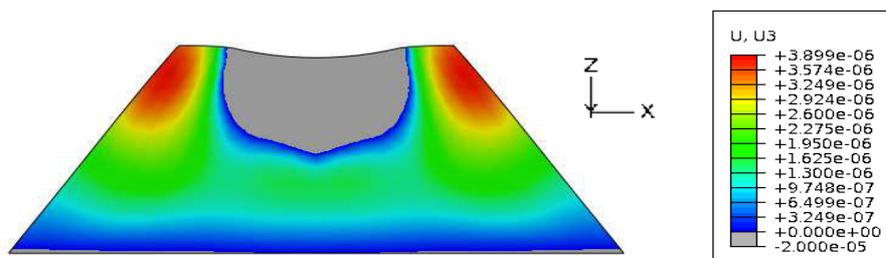


Figure 105 : coupe du déplacement u_z au centre de l'îlot, seules les composantes positives sont indiquées. Le champ est en mm.

Les Figure 104 et Figure 105 illustrent l'effet des surfaces libres suite à la déformation relativement faible de 5% (profondeur/hauteur du plot) : les facettes latérales $\langle 011 \rangle$ sont fortement déplacées suite à l'activation des plans (111) qui sur le semi-infini formait les 4 lobes de l'empreinte. Cet effet se trouve renforcé suite au confinement du plot sur le substrat de Ta qui comme nous l'avons vu pour le confinement film/substrat entraîne un fort déplacement latéral, dont l'extension en hauteur équivaut à la profondeur de la zone plastique ; il faut noter que dans la simulation, le Ta a un comportement élastique, aucun seuil de plasticité n'est entré.

5.4 Conclusions

Les simulations élastiques ont permis de comprendre quantitativement les signaux de diffraction cohérentes sur les cristallites Cu/Ta. Des observations expérimentales de

microscopie à transmission montrent que les îlots sont vierges de défauts cristallins en volume et conforte le cadre purement élastique du calcul. De plus, le niveau de déformation dans les cristallites de Cu est beaucoup plus élevé que dans les objets étudiés habituellement en CXD et conforte la sensibilité de cette technique. Les simulations en plasticité cristalline nous ouvre la perspective de pouvoir exploiter au premier ordre les volumes diffractés de cristallites faiblement déformés in-situ en utilisant les champs élastiques de déformation résiduelles et les rotations cristallines associées, soit l'enveloppe du volume de la réflexion de Bragg.

6 Conclusions et perspectives

En conclusion, la loi de Sneddon a pu être étendue au cas de matériaux présentant des comportements élastiques et/ou plastiques anisotropes, et surtout au cas des films sur substrat. La rigidité de contact en fonction de la profondeur d'enfoncement a pu être ajustée pour la première fois aux résultats de l'expérience. L'effet de l'écroutissage sur les courbes de charge et la dureté est bien capturé. Globalement la procédure d'identification des paramètres est très robuste (paramètres identifiés sur une géométrie de pointe, confirmés sur une autre géométrie).

Le choix des paramètres d'écroutissage (HétéroSame ou TaylorNormal) est plus difficile à discriminer. On peut s'aider de la déformée de surface qui favorise HétéroSame dans le cas du massif et du film sur substrat (avec une sensibilité accrue dans ce deuxième cas). Des travaux récents de l'équipe de D. Raabe [Zambaldi 11] présentent une tentative d'identifier la matrice d'écroutissage dans le cas du Titane à partir de la déformée de surface libre (optimisation paramétrique).

Les très bons résultats de la procédure d'identification mise en œuvre au cours de ce travail nous encouragent à entreprendre divers projets.

On peut par exemple effectuer successivement un essai de traction sur une éprouvette suivi d'une indentation. Ainsi on part pour l'indentation d'un état initial où les systèmes de glissement sont peuplés de manière hétérogène en termes de densités de dislocations. D'un point de vue expérimental, il est alors intéressant de pouvoir corréler des mesures de diffraction de Rayons X (RX) aux densités de dislocations.

La faible dépendance par rapport à l'orientation cristalline encourage à identifier des paramètres dans le cas de multicristaux voir de polycristaux. Des calculs préliminaires ont été réalisés sur des films polycristallins de Cu avec des grains d'une taille de l'ordre de quelques microns. Les résultats sont prometteurs.

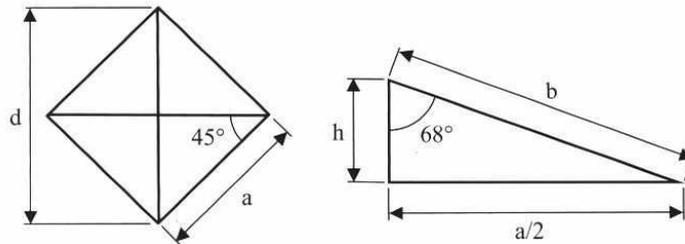
Pour la poursuite de la compréhension de la déformation dans les petits objets, cette procédure peut s'avérer très utile. C'est l'objet d'étude de l'ANR MECANIX, indentation de plots d'épaisseur sub-micronique et de diamètres de l'ordre de plusieurs microns.

Enfin, les effets de la vitesse de déformation et de la température peuvent être étudiés, l'extension à des structures cristallines cubique centrées est à entreprendre.

7 ANNEXES

7.1 Géométrie des indenteurs classiques

Vickers Indenter



Projected area

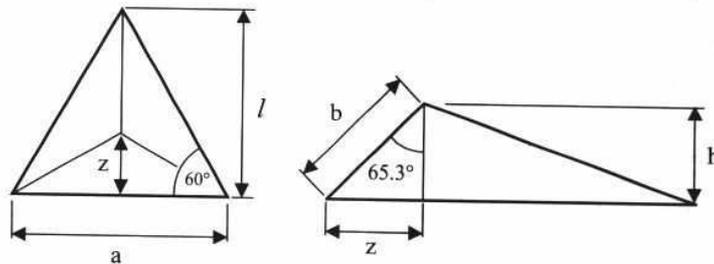
$$\begin{aligned}\sin 45 &= \frac{d}{2a} \\ a &= \frac{d}{\sqrt{2}} \\ A_{\text{proj}} &= a^2 \\ &= \frac{d^2}{2} \\ \tan 68 &= \frac{a}{2h} \\ a &= 2h \tan 68 \\ A_{\text{proj}} &= a^2 \\ &= 4h^2 \tan^2 68 \\ &\approx 24.504h^2\end{aligned}$$

Surface area

$$\begin{aligned}A_{\text{surf}} &= 4 \frac{ab}{2} \\ \sin 68 &= \frac{a}{2b} \\ b &= \frac{a}{2 \sin 68} \\ A_{\text{surf}} &= \frac{a^2}{\sin 68} \\ &= \frac{4h^2 \tan^2 68}{\sin 68} \\ &\approx 26.429h^2\end{aligned}$$

Equivalent
cone angle:
70.3°

Berkovich Indenter



Projected area

$$\begin{aligned}\tan 60 &= \frac{l}{a/2} \\ l &= \frac{\sqrt{3}}{2} a \\ A_{\text{proj}} &= \frac{al}{2} \\ &= \frac{\sqrt{3}}{4} a^2 \approx 0.433a^2 \\ \cos 65.27 &= \frac{h}{b} \\ h &= \frac{a \cos 65.27}{2\sqrt{3} \sin 65.27} \\ &= \frac{a}{2\sqrt{3} \tan 65.27} \\ a &= 2\sqrt{3} h \tan 65.27 \\ A_{\text{proj}} &= 3\sqrt{3} h^2 \tan^2 65.27 \\ &= 24.49h^2\end{aligned}$$

Surface area

$$\begin{aligned}A_{\text{surf}} &= 3 \frac{ab}{2} \\ \sin 65.27 &= \frac{z}{b} \\ z &= \frac{a}{2} \tan 30 \\ &= \frac{a}{2\sqrt{3}} \\ b &= \frac{a}{2\sqrt{3} \sin 65.27} \\ A_{\text{surf}} &= 3 \frac{a^2}{4\sqrt{3} \sin 65.27} \\ &\approx 0.477a^2 \\ a &= 2\sqrt{3} h \tan 65.27 \\ A_{\text{surf}} &\approx 26.98h^2\end{aligned}$$

Equivalent
cone angle:
70.3°

For cube corner,
replace 65.27° with
35.264°
Equivalent cone
angle: 42.28°

For original
Berkovich indenter,
65.0333°
 $A_{\text{proj}} = 23.97h^2$
 $A_{\text{surf}} = 26.40h^2$

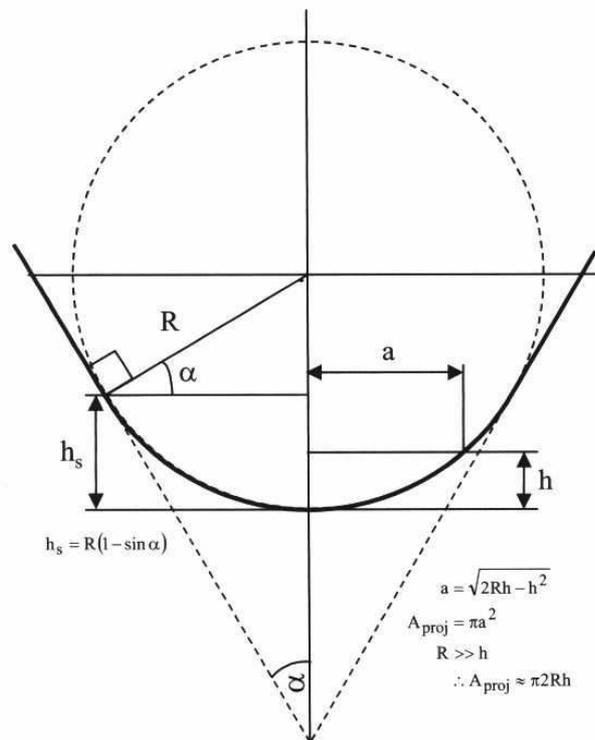


Figure 106 Géométries des principaux indenteurs d'après [Fisher-Cripps 04]

7.2 Scripts matlab

7.3 Film de verre métallique ZrNi/Si

En support de la thèse au laboratoire d'Antoine Volland [Volland 12] concernant le comportement mécanique de films de verres métalliques ZrNi sur Si, nous avons procédé à l'exploitation des données expérimentales menées par M. Verdier de nanoindentation et d'AFM sur ces films. L'un des objectifs de la thèse était d'élaborer des verres métalliques de composition simple en couches minces sur Si ; les épaisseurs déposées sont les suivantes : 165, 340, 400, 585, 828 et 1435 nm . La motivation de cette étude d'A.Volland (ANR Mégaprose) concerne en particulier l'existence ou non d'un effet de taille sur les propriétés mécaniques des verres métalliques. La géométrie film/substrat permet d'introduire naturellement une échelle de longueur de confinement. Ce matériau n'existant pas sous forme massive, notre étude a surtout concerné la détermination du module élastique de ces films, en appliquant la méthode exposée précédemment pour le calcul exacte de la contribution du substrat : générer des courbes de charge en élasticité pure par la méthode des éléments finis pour en déduire par dérivation la rigidité en fonction de l'aire de contact. Différentes valeurs du module d'indentation de la couche sont utilisées et comparées à l'expérience (mesure AFM de A_c) pour en déduire la valeur du module du film correspondant.

7.3.1 Identification du module d'élasticité

Le comportement élastique des verres métalliques est intrinsèquement élastique isotrope, les simulations numériques sont malgré tout réalisées en 3D pour prendre en compte la pointe utilisée, un diamant Berkovich. Ce dernier est considéré indéformable et parfait (cf. géométrie donnée dans l'annexe). La reproductibilité des courbes expérimentales d'indentation est très bonne pour toutes les épaisseurs, confirmant la bonne homogénéité des films et leur faible rugosité (<1nm RMS). Un exemple est donné Figure 107, où pour chaque profondeur (4 décharges ici), 6 essais sont réalisés, soit un total de 24 courbes.

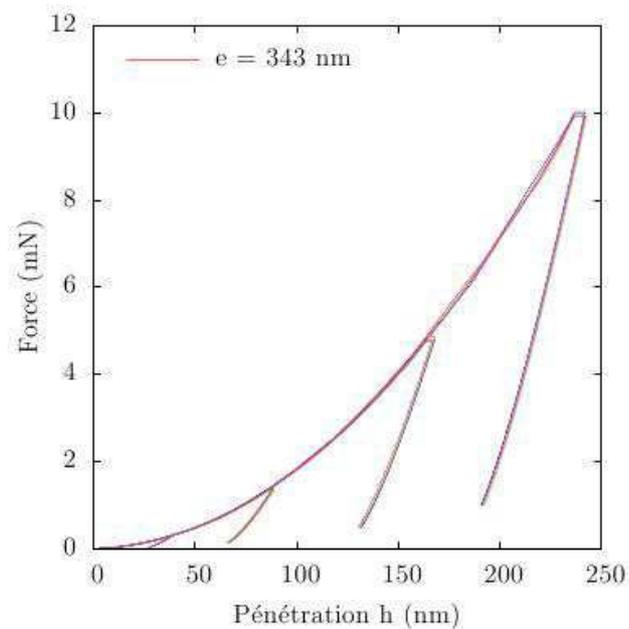
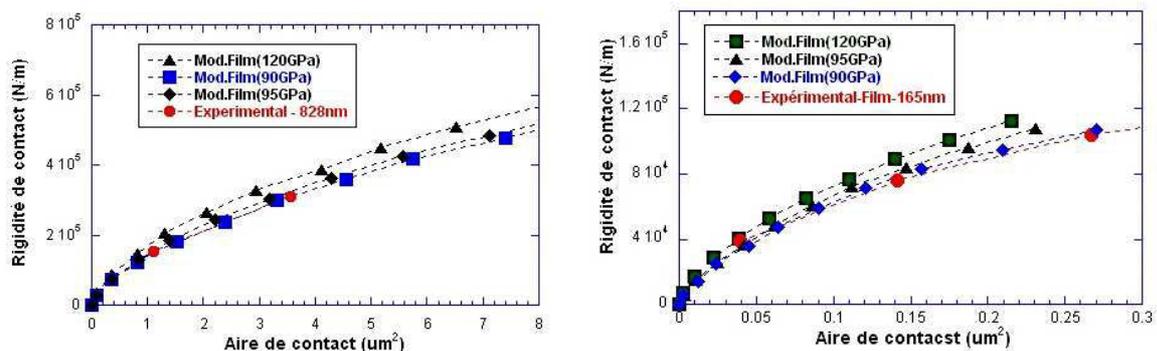


Figure 107 Exemple de la bonne reproductibilité des courbes expérimentales, matrices de 4 profondeurs \times 6 essais sur le film ZrNi/Si d'épaisseur 343nm.

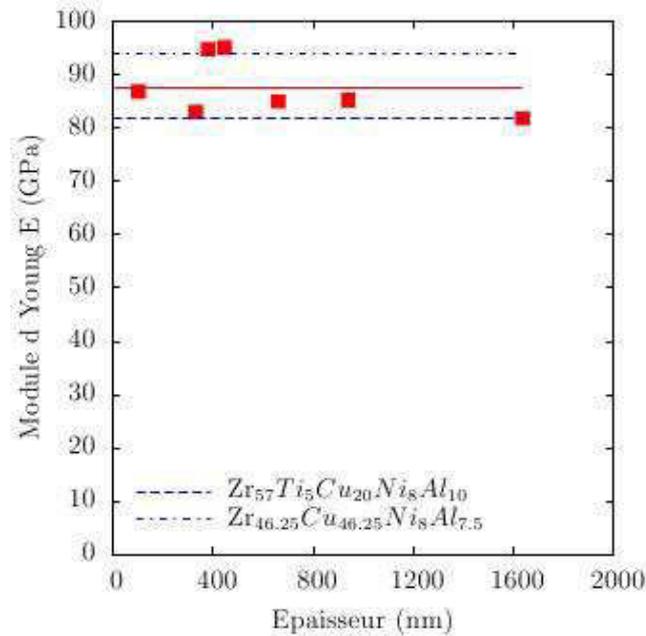
Pour établir la valeur du module, nous avons fait varier le module d'un film sur un substrat Si en entre 90GPa à 120GPa et comparant avec des données expérimentales pour plusieurs épaisseurs.



a) b)

Figure 108 Evolution de rigidité de contact en fonction d'aire de contact en différente module d'élasticité de film de verre entre [90-95-120]GPa - Loi comportement élastique pur - Indenteur Berkovich parfait - Comparaison expérimentale-modélisation ; a) Epaisseur de film : 828nm – 2 points expérimentaux b) Epaisseur de film 165nm, 3 points expérimentaux.

La Figure 108 représente la comparaison des résultats entre la relation de Sneddon calculée et les données expérimentales issues de la nanoindentation et des aires AFM pour deux épaisseurs de film, un bon accord est obtenu pour une valeur du module d'Young de l'ordre de 90 GPa, le seul paramètre d'entrée réside dans l'épaisseur du film.



Epaisseur(nm)	Δt (ps)	C44(GPa)	C11 (GPa)	C12(GPa)
100	43	31.5	170	116
330	128	29.5	160	104
380	161	34.5	160	94
450	205	36	168	101
660	296	31.5	153	95
940	423	31.5	139	90
1640	787	30	155	99

Figure 109 Résultats des mesures élastiques par spectroscopie Brillouin –Figure et Table d'après [Volland 12]

Dans le cadre de la thèse de A.Volland, des mesures de spectroscopie Brillouin ont été effectuées : il s'agit d'une mesure de vitesse de la propagation des ondes acoustiques de la surface, le paramètre d'entrée est ici la densité du film qui a été estimée pour ces films de $Zr_{70}Ni_{30}$ à 7030 kg/m³. Une valeur moyenne du module d'Young a été déduite à 87.5 GPa, Figure 109 Résultats des mesures élastiques par spectroscopie Brillouin –Figure et Table d'après [Volland 12] Figure 109 en bon accord avec notre méthode.

7.3.2 Identification à une loi d'Hollomon

La plasticité des verres métalliques n'est pas encore bien décrite par une loi physique établie. Ces verres se caractérisent par une déformation localisée en bande de cisaillement –suivant l'échelle de la déformation, comme l'illustre l'ensemble des observations des empreintes de nos expériences. A faible profondeur, l'empreinte résiduelle présente un bourrelet sans présence de discontinuités observables qui se manifestent sur les fortes profondeurs.

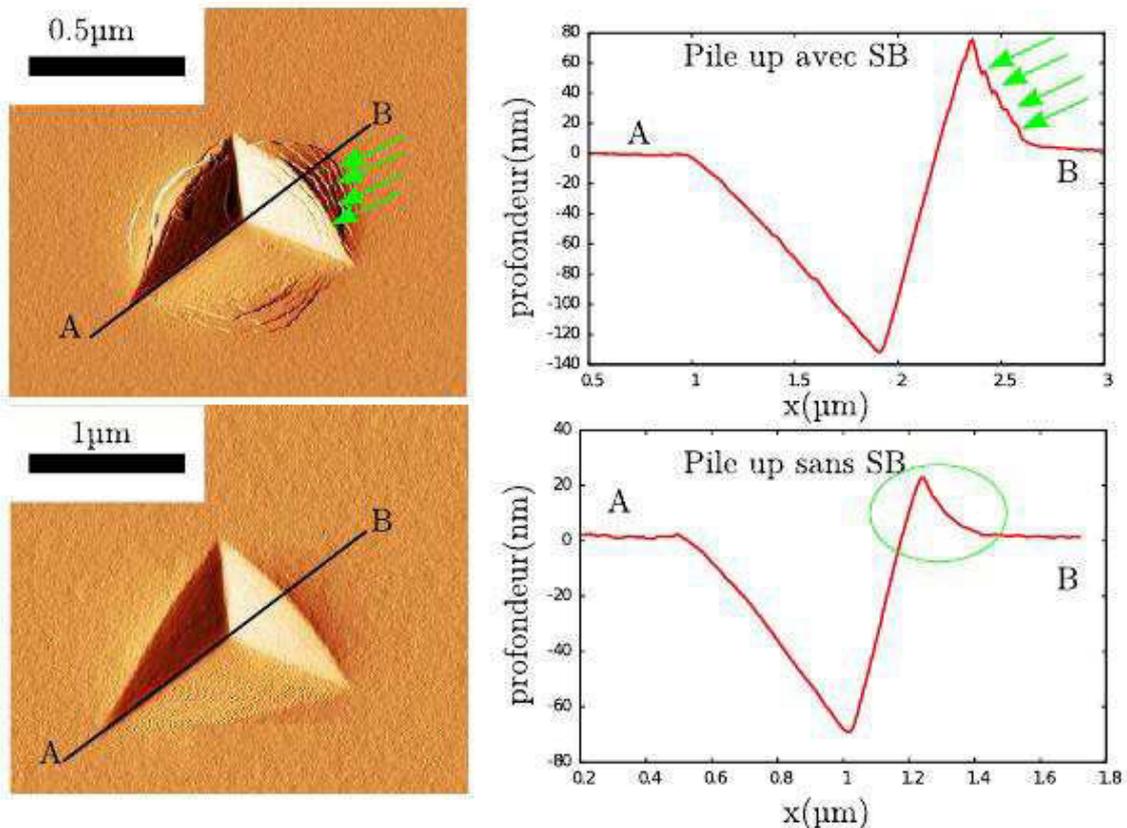


Figure 110 : Indents et profils selon les diagonales des empreintes pour un film de 340 nm, correspondant à des rapports enfoncements de 25% (en bas) présentant une déformation homogène sans bande tandis qu'à 50 % (en haut), l'empreinte présente des bandes de cisaillement (SB). Dans les deux cas, les empreintes présentent des bourrelets situés au dessus du plan moyen du film (0 nm).

A ce mode de déformation en cisaillement particulier, se rajoute un terme de densification (relativement limité car le coefficient de poisson est supérieur à 0.3) [Charleux 09]. Nous avons cependant tenté d'identifier les comportements mécaniques en indentation avec une loi élasto-plastique pour en évaluer la présence ou non d'un terme d'écroutissage (loi Hollomon).

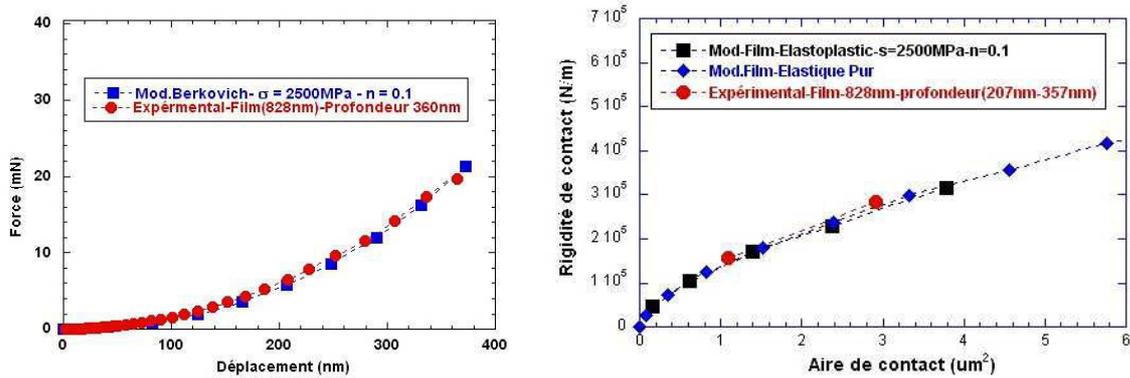


Figure 111 à gauche courbe de charge - Comparaison de courbe de charge en fonction du déplacement de l'indenteur - Modélisation et expérimental - Indenteur Berkovich parfait rigide - Modélisation élastoplastique $\sigma=2500\text{MPa}$, $n = 0.1$ - Epaisseur de film 828nm - Profondeur d'indentation 360nm ; à droite courbes de rigidité en fonction de l'aire de contact.

Les calculs sont menés sur un domaine de limite d'élasticité et d'érouissage entre σ_y (1500MPa, 2000MPa et 2500MPa) et n (0, 0.1,0.2). La Figure 111 représente la comparaison de la courbe de force en fonction du déplacement de l'indenteur entre expérimental et modélisation avec un indenteur Berkovich parfait. La loi de comportement du film s'ajustant au mieux avec la courbe de charge correspond à une limite d'élasticité de 2500MPa et un coefficient d'érouissage $n = 0.1$. La relation de Sneddon est indiquée sur la figure de droite en reprenant le module élastique de 90 GPa. Une comparaison du déplacement maximal autour des empreintes est donné Figure 112 : on constate un fort désaccord (130 nm en moyenne pour l'expérimental contre 40 nm en modélisation). Cela correspond à une localisation des bourrelets liée aux bandes de cisaillement et à la mauvaise adéquation de la loi de comportement simulée ; l'extension des bourrelets dans le plan de la surface est plus grand dans le cas simulé.

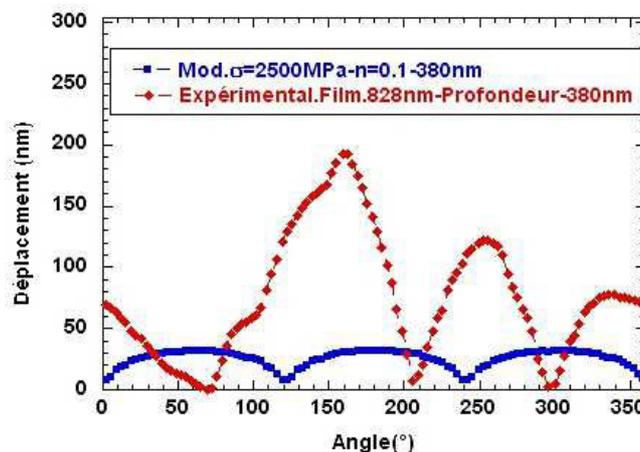


Figure 112 Déplacement maximal de la surface en fonction de l'angle de rotation autour de centre de l'empreinte de l'indentation - Comparaison - Modélisation - Expérimental - Film 828nm - $\sigma=2500\text{MPa}$, $n = 0.1$

En ce qui concerne l'évolution de la dureté, Figure 113, on constate qu'elle est similaire (5% de différence) en fonction de la profondeur d'indentation : il s'agit du but principal de notre calcul élasto-plastique, à savoir que la prise en compte d'un faible écrouissage ($n=0.1$) permet d'expliquer par le confinement de l'écoulement plastique l'augmentation apparente de la dureté dans le cas expérimental.

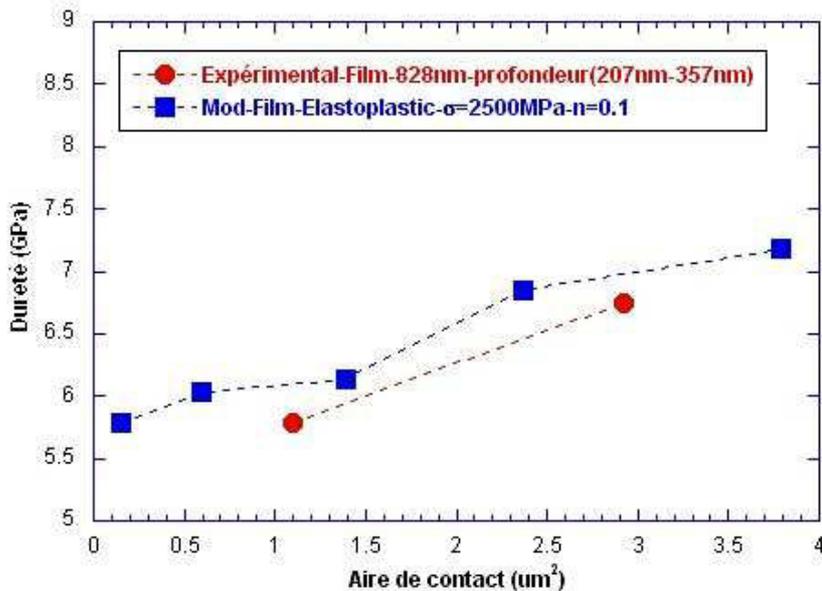


Figure 113 Comparaison de dureté entre expérimental et modélisation - Indenteur Berkovich - Film de verre métallique - Epaisseur 828nm - Loi comportement: $\sigma=2500\text{MPa}$, $n=0.1$

Ainsi, les démarches que nous avons mises en œuvre pour caractériser la déformation de films sur substrat élastique ont permis d'obtenir une mesure expérimentale validée du module élastique des verres métalliques par une technique indépendante. De plus en prenant en compte la contribution du substrat dans le cadre d'un écoulement plastique du film par cisaillement, on a pu montrer la présence d'un durcissement d'écrouissage dans ces verres métalliques.

8 BIBLIOGRAPHIE

- [Abaqus 09] ABAQUS version 6.10, Analysis User's Manual, Hibbitt, Karlsson and Sorensen, Pawtucket, RI (2009)
- [Bec 96] S.Bec, A.Tonck, JM.Georges, JL Loubet, *Philosoph. Mag. A* **74**, 1061 (1996)
- [Bec 06] S. Bec, A. Tonck, J. L. Loubet, *Philosoph. Mag.* **86**, 5347-5358 (2006)
- [Beutier 13] G.Beutier, M.Verdier, G.Parry, B.Gilles, S.Vu Hoang, P.Lory, M.de Boissieu, F.Livet, S.Labat, M.Richard, O.Thomas, *Thin Sol. Films*, **530**, 120-124 (2013)
- [Bhattacharya 88] A.Bhattacharya and W.Nix, *Int. J.Solids Struct.* **24**, p1287 (1988)
- [Boussinesq 85] J.Boussinesq, Application des potentiels à l'étude de l'équilibre et du mouvement des solides élastiques, Gauthier-Villard, Paris (1885)
- [Bulychev 87] S.I. Bulychev, V.P. Alekin, *Zavod Lab.*, **53** (1987)
- [Bucaille 02] JL Bucaille, S.Stauss, E.Felder, J.Michler, *Acta Mater.* **51** (2002)
- [Burnett 87] P.J.Burnett and D.Rickerby, *Thin Sol. Films* **148**, parts I and II pp41-65 (1987)
- [Casals 05] O.Casals and A.Alcala, *Acta Mater.* (2005)
- [Casals 07] O. Casals, J. Ocenasek, J. Alcala, *Acta Mater.*, **55**, 55 (2007)
- [Casals 08] O. Casals, J. Ocenasek, J. Alcala, *Jal Mech. Phys. of Solids* **56**, 3277 (2008)
- [Casals 09] O. Casals, S. Forest, *Computational Materials Science* **45**, 774-782 (2009)
- [Chang 09] HJ. Chang, Thèse de l'INP Grenoble, juin 2009
- [Chang 10] HJ. Chang, M.Fivel, D.Rodney, M.Verdier, *C. R. Physique* **11**, 285 (2010)
- [Chang 10b] H.J.Chang, M.Verdier, M.Fivel, *MRS Proc* 1224, GC02-05 (2010)
- [Charleux 06] L. Charleux, Institut National Polytechnique de Grenoble, Thèse, Déc. 2006
- [Chen 00] X. Chen and J.J. Vlassak, *J. Mater. Res.* **16**, 2974 (2000)
- [Cheng 98] Y. Cheng and C.Cheng, *Phil. Mag Lett.* **78** (1998)
- [Cheng 98] Y.Cheng, C.Cheng, *Jal Applied Phys.* **84** (1998)
- [Cheng 02] Y.Cheng, Z. Li, C.Cheng, *Phil. Mag. A* **82**, 1821 (2002)
- [Chollacoop 03] N.Chollacoop, S.Suresh, M.Dao, *Acta Mater.* **51** (2003)
- [Chaudhri 04] M.M. Chaudhri, Dislocations and Indentations in Dislocations in Solids **12**, eds.F.Nabarro, JP.Hirth, Elsevier (2004)
- [Dao 01] M.Dao, N.Chollacoop, K.Van Vliet, T.Venkatesh, S.Suresh, *Acta Mater.* **49** (2001)
- [Devincre 08] B. Devince, T. Hoc, L Kubin, *Science. A* Vol 320, 1745-1748 (2008)

- [FisherCripps 04] C.Fisher-Cripps, Nanoindentation, Mech. Eng. Series, 2nd Ed. Springer New York (2004)
- [Fivel 97] M.Fivel, Thèse, Institut National Polytechnique de Grenoble (1997)
- [Forest 04] S.Forest, M.Fivel, Techniques de l'ingénieur M 4016 (2004)
- [Friedel 64] J.Friedel, Dislocations, Pergamon Press, Oxford(1964)
- [Gaillard 05] Y.Gaillard, C.Tromas, J.Woircard, *Acta Mater.* **54**, 1409-1417 (2005)
- [Gao 92] H.Gao, C.Chui and J.Lee, *Int. J. Solids Struct.* 29,2471 (1992)
- [Giannakopoulos 94] A.E. Giannakopoulos, P.Larsson, R.Vestergaard, *Int. J. Solids Structures* **31** (1994)
- [Han 05] Han SM, Sahah R, Banerjee R, Viswanathan GB, Clemens BM, Nix WD. *Acta Mater* **53**, 2059 (2005).
- [Han 05b] S. M. Han, R. S. Saha, W. D. Nix, *Acta Materialia* 54 (2006) 1571-1581
- [Hirth 68] J.P.Hirth, J.Lothe, Theory of dislocations, McGraw-Hill, New York (1968)
- [Hochstetter 04] G.Hochstetter, A.Jimenz, JL Loubet, *J. Macromol. Sci. Phys B*, 38 (2004)
- [Hsueh 04] C-H. Hsueh and P. Miranda, *J. Mater. Res.* **9**, 94 (2004).
- [Jauffrès 11] Jauffrès, D.; Yacou, C.; Verdier, M.; Dendievel, R. & Ayrat, A. *Microporous and Mesoporous Materials* 140, 120 – 129 (2011)
- [Johnson 85] K.L. Johnson, Contact mechanics, Cambridge University Press (1985)
- [Jonsson 84] B.Jonsson and S.Hogmark, *Thin Sol. Films* **114** p257-269 (1984)
- [Kermouche 05] G.Kermouche, JL Loubet, JM Bergheau, *C.R.Mécanique*, **333** (2005)
- [Kocks 94] Dislocations'93, p1, Scitec Pub, eds J.Rabier, A.Georges, Y.Bréchet, L.Kubin (1994)
- [Kocks 03] U.F.Kocks, H.Mecking, *Progress in Materials Science* **48**, 171–273 (2003)
- [Kubin 08] L.Kubin, B.Devincre, T.Hoc, *Acta Mater.***56**, 6040–6049 (2008) et B. Devincre, L. Kubin and T. Hoc, *Scripta Mater.*, 54 (2006), 741.
- [Li 09] H. Li, J. J. Vlassak, *J. Mater. Res.*, **24**, #3 (2009)
- [Liu 08] Y.Liu, M.Yoshino, H.Lu, R.Komanduri, *Int. Jal. Plast.* **24** 1990-2015 (2008)
- [Lockett 63] F.Lockett, *Jal of mech. Phys. of solids*, **11** (1963)
- [Mecking 81] H.Mecking, UF. Kocks, *Acta Metall.* **29**, 1865 (1981)

- [Mencik 97] J.Mencik, D.Munz, E.Quandt, E.R.Weppelmann, *J. Mater. Res.* **12**, 2475 (1997)
- [Nix 97] W.D. Nix, *Mat. Sci. and Eng.* **A234-236**, 37-44 (1997)
- [McColm 90] I.McColm, Ceramic Hardness, Plenum Press, New York (1990)
- [Ni 05] W.Ni and Y.Cheng, *J. Mater. Res.* **20**,521 (2005)
- [Ohring 91] M. Ohring, Materials science of thin film, Academic Press (1992)
- [Oliver 92] W.C. Oliver and G.M. Pharr, *J. Mater. Res.* **7**, 1564 (1992).
- [Oliver 04] W.C. Oliver, G.M.Pharr, *J. Mater. Res.*, **19**,3 (2004)
- [Perriot 04] A.Perriot, E.Barthel *J. Mater. Res.* **10**, 600-608 (2004)
- [Pharr 10] G.Pharr, E.Herbert, Y.Gao, *Annu. Rev. Mater. Res.* 40:271–92 (2010)
- [Saha 02] Saha R, Nix WD. *Acta Mater.*, **50**,23 (2002)
- [Sakai 09] M.Sakai, *J. Mater. Res.*, **24**, 831 (2009)
- [Simmons 71] G. Simmons and H. Wang, Single Crystal Elastic Constants and Calculated Aggregate Properties: A Handbook (2nd ed.). MIT Press, Cambridge, MA, 1971
- [Sneddon 48] I.N. Sneddon, *Proc Cambridge Philos. Soc.* **44**, 492-507 (1948)
- [Sneddon 65] I. N. Sneddon, *Int. J. Engng. Sci.* **3**, 47, 1965
- [Tabor 51] D.Tabor, Hardness of metals, Oxford University Press (1951)
- [Tsui 03] T.Tsui, C.Ross, G.Pharr, *J.Mater.Res.* **18**, p1383-1391 (2003)
- [Verdier 08] M.Verdier, HJ.Chang, M.Fivel, *Mat. et Tech.* 96, 53-57 (2008)
- [Vlassak 93] J.Vlassak and W.D.Nix, *Phil Mag A* **67**, 1045-1056 (1993)
- [Volland 12] A.Volland, Thèse de l'Université de Grenoble (2012)
- [Wang 04] Y. Wang, D. Raabe, C. Kluber, F. Roters, *Acta Mater.*,**52** ,229 (2004)
- [Willis 66] J.R. Willis, *J. Mech. Phys. Solids* **14**, 163 (1966) et ibid 15,331 (1967)
- [Xu 04] Z.Xu and D.Rowcliffe, *Thin Sol. Films* **447-448**, 399 (2004)
- [Yu 90] H.Y. Yu, S.C. Sanday, and B.B. Rath, *Mech. Phys. Solids* **38**, 745 (1990)
- [Zaafarani 06] N. Zaafarani, D. Raabe, R. N. Singh, F. Roters, S. Zaefferer, *Acta Mater.*,**54**, 1863 (2006)
- [Zaafarani 08] N. Zaafarani, D. Raabe, F. Roters, S. Zaefferer, *Acta Mater.*, **56**, 31 (2008)
- [Zambaldi 11] C. Zambaldi, Y. Yang, T. R. Bieler, D. Raabe,*J.Mater. Res.*,**27**,356,(2011)

