

## EFFECT OF OPERATING CONDITIONS ON THIN LAYERS OF TITANIUM POSED ON STEEL 100C6 SUBSTRATES WITH PVD METHOD

R. Gheriani<sup>1\*</sup> et R. Halimi<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire des énergies nouvelles et renouvelables, Université de Ouargla, Algérie.

<sup>2</sup>Unité de recherche Physique des Matériaux et Applications, Université de Constantine,  
Algérie.

Received: 22 November 2009 / Accepted: 12 December 2009 / Published online: 31 December 2009

---

### ABSTRACT

We proposed to prepare hard coatings based on titanium carbides by deposition of thin layers of pure Ti by sputtering method on steel substrates 100C6 of 1 %mass carbon. The samples were annealed under vacuum in the temperature range of 400 ° C to 1000 ° C, in order to activate the reaction between the two parts of the system which results the formation of carbides of Ti due to the diffusion of carbon from the substrate towards deposited layers. We therefore note an improvement in mechanical properties such as hardness. To demonstrate the effect of deposition parameters, we have prepared two series, the first one with a high pressure of argon and remarkable energy of extracted atoms, and in the case of the second one the pressure and kinetic energy are relatively less important. The samples of series 2 show features more important: a compact structure and good mechanical properties. The reaction between thin films and substrates is studied by x-ray diffraction (XRD), scanning electron microscopy (SEM). The measurements of microhardness were performed with the Vickers method.

**Key words:** Diffusion, reaction, carbides, microhardness

---

Author Correspondence, e-mail: [ragheriani@yahoo.fr](mailto:ragheriani@yahoo.fr)

ICID: 1040458

## 1. INTRODUCTION

Les conditions opératoires de déposition des couches minces, tel que la vitesse de déposition, la pression, et le bombardement ionique, peuvent entraîner des effets remarquables dans la microstructure et l'état morphologique et par conséquent dans les propriétés physiques et surtout mécaniques des couches minces obtenues [1]. Les grandes vitesses et les hautes pressions peuvent donner des structures ouvertes avec faibles joints des grains, résultant des faibles duretés dans les composés réfractaires.

Dans ce travail, on se propose d'élaborer des films minces de carbures de titane par dépôt des couches minces de Ti purs par la méthode de la pulvérisation cathodique sur des substrats en acier 100C6 de 1% mass en carbone, puis par recuit de l'ensemble sous vide dans l'intervalle de température 400°C à 1000°C, il se forme des carbures de Ti. On s'attend donc à une amélioration des caractéristiques mécaniques telles que la dureté et l'adhérence.

Pour montrer l'effet des paramètres de déposition on a préparé deux séries, la première avec une haute pression d'argon et une énergie remarquable des atomes arrachés, dans le cas de la deuxième série la pression et l'énergie cinétique sont relativement moins importantes. Les échantillons de la série 2 donnent des caractéristiques plus utiles : une structure compacte et propriétés mécaniques intéressantes.

La réaction entre les couches minces et les substrats est étudiée par la diffraction des rayons x (DRX), et Microscopie électronique à balayage (MEB).

## 2. MATERIEL ET METHODES

- **Déposition des couches minces.**

Après la préparation des substrats sous forme des disques de 1 cm de diamètre et 1 mm d'épaisseur, On a déposé des couches minces de titane de pureté 99.99%, par la méthode de pulvérisation cathodique. Afin d'enlever les traces des opérations de préparation précédentes (polissage, nettoyage chimique) les substrats ont subi un nettoyage ionique par bombardement ionique d'Ar<sup>+</sup>, dans l'enceinte de déposition juste avant l'opération de dépôt pendant 10 minutes. Les conditions de déposition sont données dans le tableau 1. Pour mesurer l'épaisseur de la couche mince on a utilisé la méthode de palpeur mécanique, l'épaisseur moyenne mesurée de cinq mesures est de l'ordre de 0.3  $\mu$ . Des traitements thermiques sous vide ( $10^{-5}$ mb) dans l'intervalle de

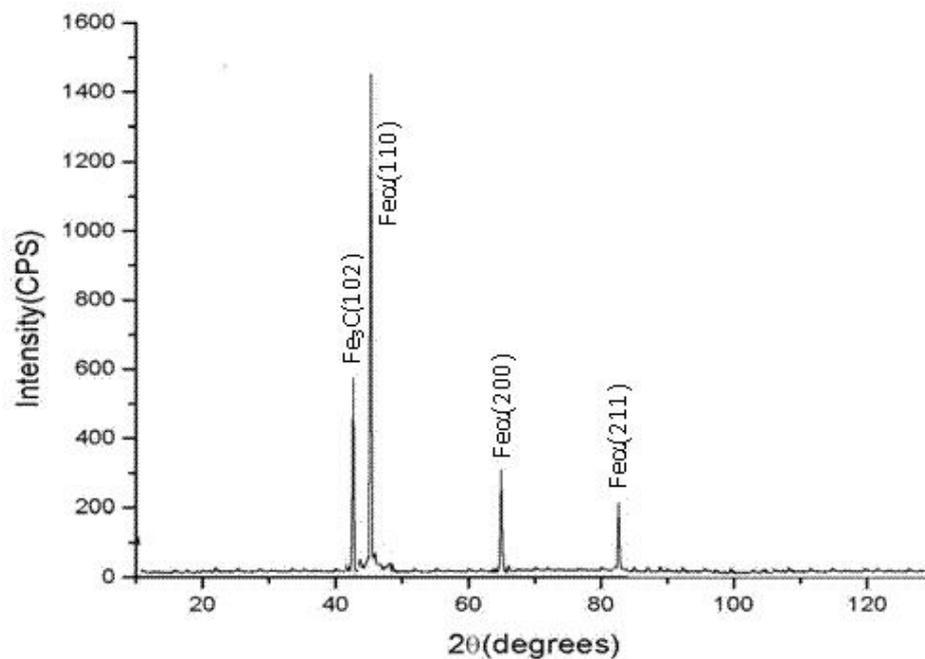
température 400 à 1000°C pendant une heure ont été effectués pour les échantillons des deux séries.

**Tableau 1.** Les conditions de Déposition.

Conditions	Pression d'Argon (mbr)	Tension (V)	Intensité (A)	Vide (mbr)	Température de substrat (C°)	Temps de dépôt (min)
100C6/Ti (Série 1)	$5 \times 10^{-3}$	300	1	$10^{-6}$	200	30
100C6/Ti (Série 2)	$3.5 \times 10^{-3}$	200	1	$10^{-6}$	200	30

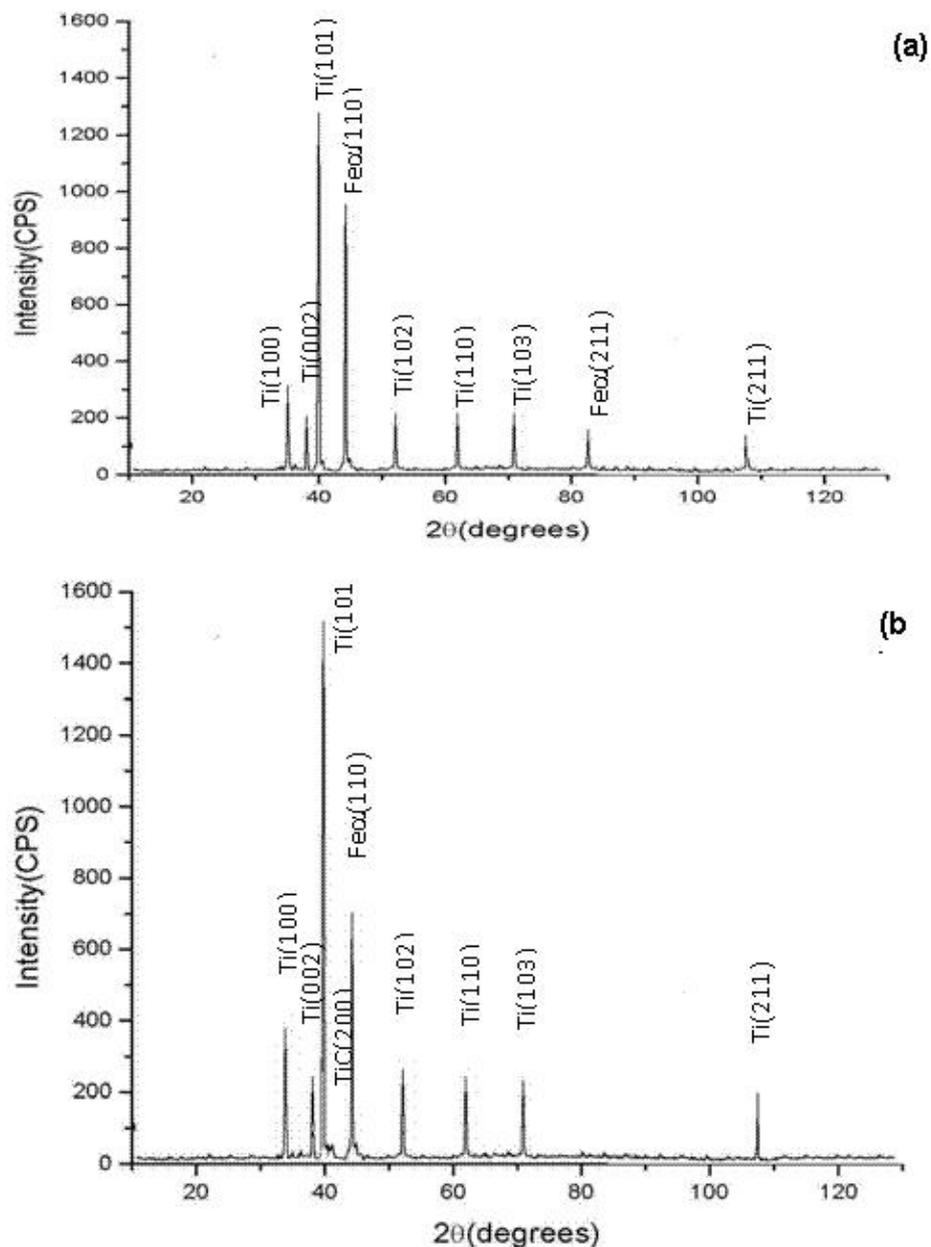
- **Analyse par diffraction des rayons x**

Le diffractomètre utilisé est de type Siemens D500, équipé d'un filtre en Ni et d'une anticathode de cuivre utilisant la radiation K de longueur d'onde  $\lambda_K = 1.5406 \text{ \AA}$ . La figure 1 montre le spectre de diffraction des rayons x du substrat 100C6 non recuit qui est constitué principalement des pics de la ferrite (Fe) et du cémentite (Fe<sub>3</sub>C).

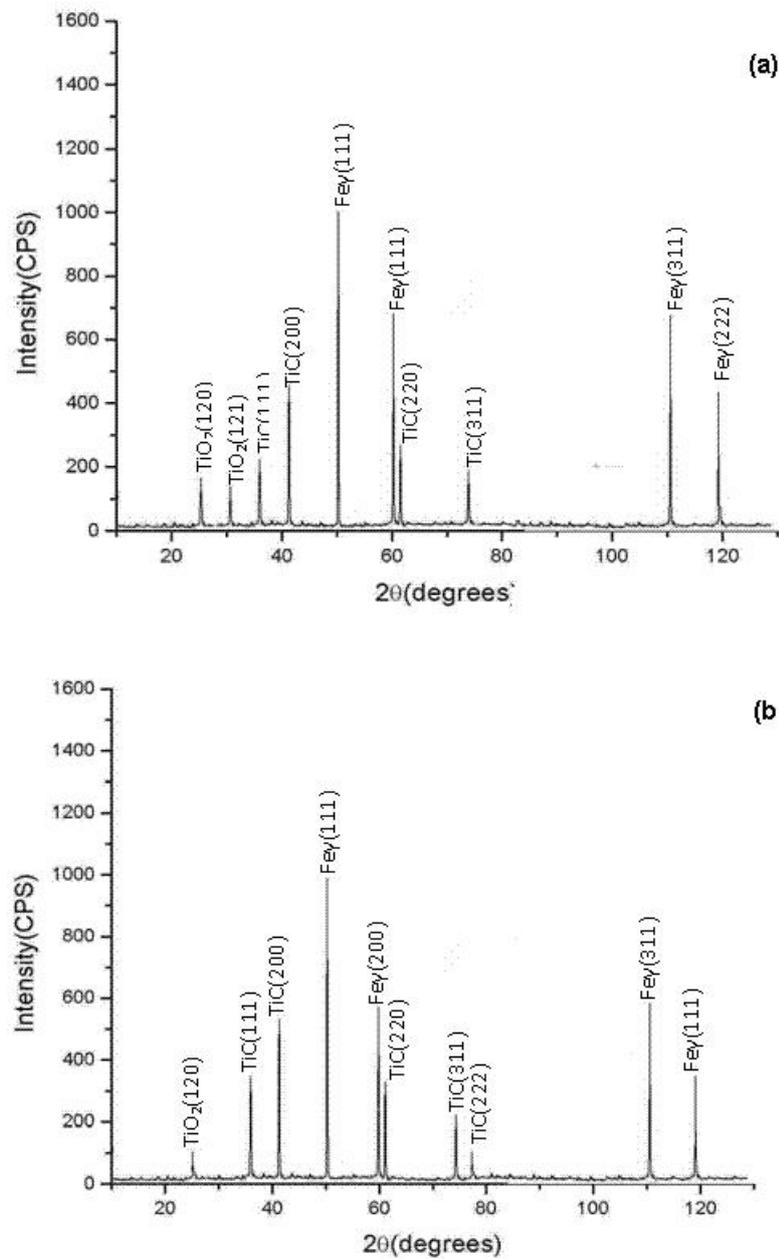


**Fig.1.** Spectre DRX des substrats 100C6, non recuits.

Dans le cas des échantillons 100C6/Ti ; série 1, échantillons revêtus avec des couches minces de titane et non recuits, en plus des pics de substrats avec des intensités moins importantes que celles des substrats sans couches minces, on signale l'apparition des pics caractéristiques de Ti. Cela nous confirme que les films déposés sont constitués de titane pur.



**Fig.2.** Spectres DRX des échantillons 100C6/Ti non recuits ; (a) série 1, (b) série 2.



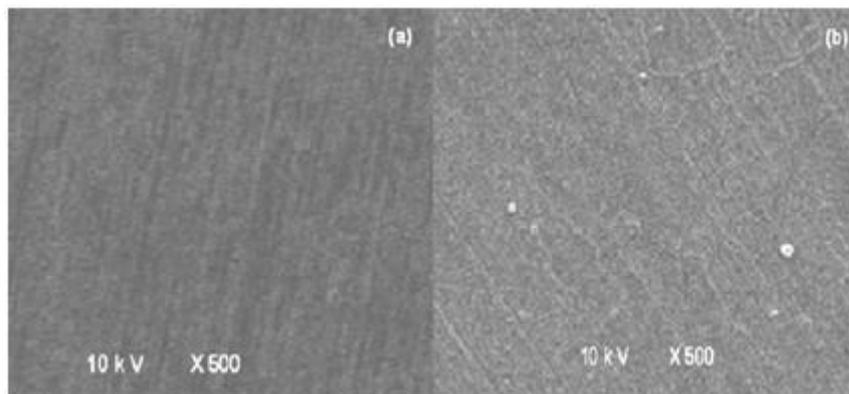
**Fig.3.** Spectres DRX des échantillons 100C6/Ti, recuits à 1000°C pendant 1h ;  
(a) série 1, (b) série 2.

Le spectre des échantillons de la série 2 non traités, montre la dominance des pics de Ti par une augmentation remarquable de leurs intensités par contre une réduction dans le nombre et l'intensité des pics du substrat par rapport aux échantillons de la série 1, en plus on remarque l'apparition d'un pic de carbure de titane TiC(200), figure 2.

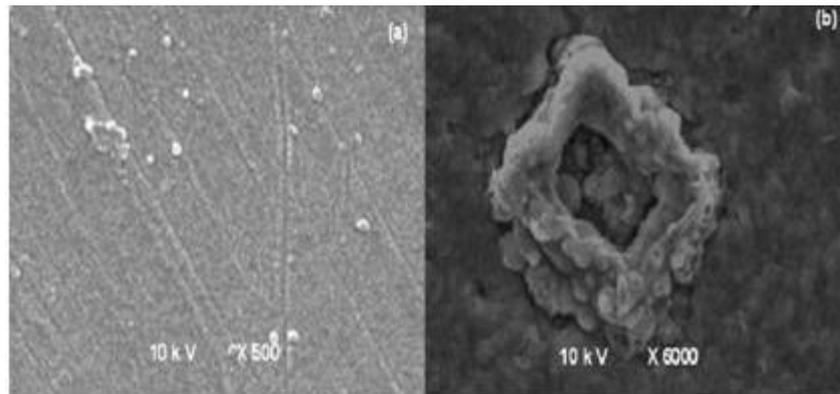
Les diffractogrammes des échantillons traités dans l'intervalle de température de 400 à 1000°C pendant une heure, série 1, montrent la réduction progressive des intensités, de nombre de pics de titane et de l'autre côté une augmentation progressive des intensités et de nombre des pics de carbure binaire du titane (TiC). Cette phase n'a aucune orientation préférentielle. Les spectres montrent aussi la diffusion progressive de fer vers les couches extérieures et la transformation de Fe au Fe dans l'échantillon traité à 1000°C. Nous remarquons aussi l'apparition d'oxyde du titane dans les échantillons traités à hautes températures, figures 3. On remarque les mêmes aspects dans les échantillons de la série 2 traités dans le même intervalle de température mais avec des vitesses plus importantes de la consommation de titane et de la formation de carbure de titane TiC que celles observées dans les échantillons de la première série.

- **Analyse morphologique avec microscope électronique à balayage**

La micrographie des échantillons revêtus et non traités de la série 2 montre une surface lisse avec une couleur grise, figure 4a. Les échantillons de la série 1 montre une surface plus claire avec des taches blanches réparties aléatoirement, l'analyse qualitative de ces taches avec EDS montre qu'ils sont riches en manganèse figure 4b. La figure 5a montre l'état de la surface de l'échantillon 100C6/Ti de la première série recuit à 400°C pendant une heure, on remarque l'augmentation de la concentration des taches de manganèse, justifiant la diffusion des éléments de substrat vers la surface. Dans le cas des échantillons 100C6/Ti recuits à 800°C pendant une heure, série 1, on observe l'accumulation du manganèse diffusé et la structure devient plus fragile près les taches du manganèse figure 5b.



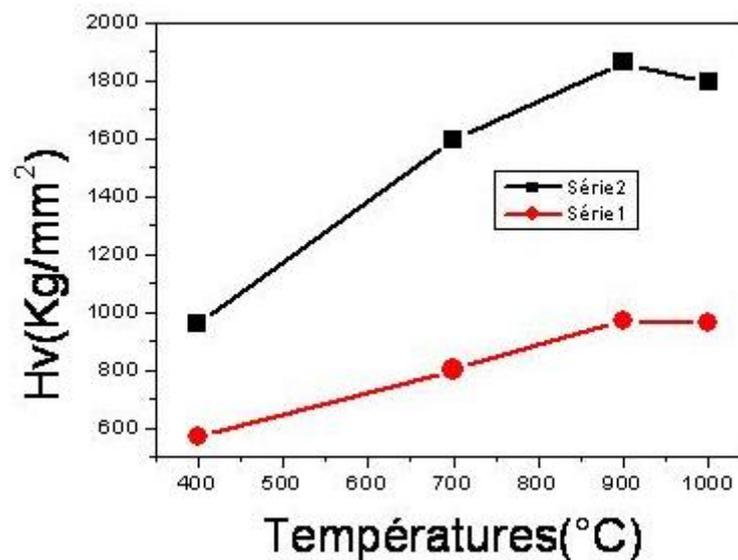
**Fig.4.** Micrographie SEM des échantillons 100C6 /Ti non recuits : (a) série 2 ; (b) série 1.



**Fig.5.** Micrographie SEM des échantillons 100C6 /Ti série 1 recuits pendant 1h à : (a) 400°C ; (b) 800°C.

- **Mesure de la microdureté**

Pour montrer l'effet des paramètres de déposition sur les propriétés mécaniques des couches minces obtenus des mesures de la microdureté sur les deux séries sont effectuées avec la méthode Vickers. La figure 6 représente les variations de la microdureté en fonction de la température de recuit pour les deux séries. On remarque pour la courbe représentant la première série une augmentation de la microdureté jusqu'à une valeur maximale 800.52 Kg/mm<sup>2</sup> puis un décroissement relativement doux. Cependant les valeurs de la microdureté des échantillons de la deuxième série sont plus importantes et atteignent leur maximum 1900.23 Kg/mm<sup>2</sup> à 900°C puis commence à décroître.



**Fig.6.** Variations de la microdureté avec la température de recuit

### 3. RESULTATS

La formation et la croissance de la phase TiC est dû à la réaction du titane avec le carbone du substrat diffusé vers les couches extérieures [2,3] résultant la consommation de la couche du titane à partir de l'interface vers la surface libre des échantillons qui est traduite par une réduction en nombre et intensité des pics correspondants ou titane. De l'autre côté nous constatons que l'augmentation de nombre et d'intensité des pics du carbure de titane (quantité de carbure formée) dépend de la nature de couche du titane déposée [4].

Les conditions opératoires de la déposition des couches minces dans le cas de la première série résultent une structure ouverte et moins compacte que dans le cas de la deuxième série ce qui limite la quantité de titane réagie avec le carbone diffusé par conséquence la quantité de carbure de titane formée.

L'apparition des oxydes du titane  $TiO_2$ , est due probablement aux conditions opératoires insuffisantes pendant les traitements thermiques (vide insuffisant) dans les températures élevées, et la diffusion d'oxygène adsorbé dans les substrats pendant le polissage mécanique dans les échantillons traitées à hautes températures [5]. A. Mitsuo, S. Uchidas et leurs collaborateurs ont trouvé que le carbure du titane, TiC, commence à s'oxyder au-dessus de température  $723^{\circ}K$  [6]. Ceci résulte que les échantillons de la série 1 commencent à s'oxyder à  $800^{\circ}C$ , cependant on remarque la formation de  $TiO_2$  qu'à partir  $1000^{\circ}C$  dans les échantillons de la deuxième série.

La structure plus compacte (plus dense) assure une microdureté élevée. La diminution de la microdureté après la valeur maximale est dû probablement à la diffusion de fer et de la formation des oxydes  $Fe_2O_3$  et  $TiO_2$  les moins dur que TiC. L'effet des substrats est improbable ou très faible, compte tenu de la charge utilisée  $P = 40g$  qui est assez petite. La cause la plus importante, c'est qu'après la diffusion du carbone vers le film et la formation de TiC, ceci résulte la formation d'une zone fragile entre le revêtement et le substrat ou une ferrite douce. Donc, quand la couche du TiC dure posée sur la ferrite douce, pendant les mesures de la microdureté.

**4. REFERENCES**

- [1] Gheriani R. (1994). Etude des carbures de Chrome par déposition des couches minces de Cr sur des substrats en acier, Thèse de Magister, Université de Constantine, 3p.
- [2] Toth L. E. 1971. Transition Metal Carbide and Nitrides, Academic Press, New York.
- [3] Storms E. K. The Refractory Carbides. Academic Press. New York, 1967, 1.
- [4] Golikova O. A., Dzhafarov E. A., Avgustinik A. I. Heat Transfer-Soviet Res. 1973, 5 (2), 1-11.
- [5] Gheriani R. (2005). Influence de la proportion de phase dans le domaine (400-1000°C) sur des films De Ti Et de Cr déposés sur des substrats en aciers, Thèse de Doctorat, Université de Constantine, 123p.
- [6] Mitsuo A., Uchida S. Thin Solid Films. 1990, 190, 265-277.

---

## EFFET DES CONDITIONS OPERATOIRES SUR DES COUCHES MINCES DE TITANE DEPOSEES SUR DES SUBSTRATS EN ACIER 100C6 AVEC LA METHODE PVD

### RESUME

Nous avons proposé de préparer des revêtements durs à base de carbures de titane par dépôt des couches minces de Ti purs par la méthode de la pulvérisation cathodique sur des substrats en acier 100C6 de 1% mass en carbone. Le recuit des échantillons sous vide dans l'intervalle de température de 400°C à 1000°C a activé la réaction entre les deux parties du système ce qui résulte la formation des carbures de Ti suite à la diffusion du carbone de substrats vers les couches déposés. On s'attend donc à une amélioration des caractéristiques mécaniques telles que la dureté. Pour montrer l'effet des paramètres de déposition on a préparé deux séries, la première avec une haute pression d'argon et une énergie remarquable des atomes arrachés, dans le cas de la deuxième série la pression et l'énergie cinétique sont relativement moins importantes. Les échantillons de la série 2 donnent des caractéristiques plus utiles : une structure compacte et propriétés mécaniques intéressantes. La réaction entre les couches minces et les substrats est étudiée par la diffraction des rayons x (DRX), Microscopie électronique à balayage (MEB), les mesures de la microdureté ont été réalisées avec la méthode Vickers.

**Mots clés :** Diffusion, réaction, carbures, microdureté

### How to cite this article

Gheriani R and Halimi R. Effect of operating conditions on thin layers of titanium posed on steel 100C6 substrates with PVD method. J Fundam Appl Sci. 2009, 1(2), 72-81.