



HAL
open science

Etude expérimentale du fluage d'irradiation dans les métaux et alliages grâce au couplage de la technologie MEMS et d'irradiations aux particules chargées

Pierre Lapouge

► **To cite this version:**

Pierre Lapouge. Etude expérimentale du fluage d'irradiation dans les métaux et alliages grâce au couplage de la technologie MEMS et d'irradiations aux particules chargées. Matériaux. Université Grenoble Alpes, 2016. Français. NNT : 2016GREAI082 . tel-01868188

HAL Id: tel-01868188

<https://theses.hal.science/tel-01868188>

Submitted on 5 Sep 2018

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.

THÈSE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE LA COMMUNAUTE UNIVERSITE GRENOBLE ALPES

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

Arrêté ministériel : 7 août 2006

Présentée par

Pierre LAPOUGE

Thèse dirigée par **Yves BRECHET**

préparée au sein du **CEA/DEN/SRMA**
dans l'**École Doctorale "Ingénierie - Matériaux, Mécanique,
Environnement, Energétique, Procédés, Production"**

Etude expérimentale du fluage d'irradiation dans les métaux et alliages grâce au couplage de la technologie MEMS et d'irradiations aux particules chargées

Thèse soutenue publiquement le **28 octobre 2016**
devant le jury composé de :

Dr Robin SCHÄUBLIN

Eidgenössische Technische Hochschule, Président

Dr Frédéric MOMPIOU

Centre d'Élaboration de Matériaux et d'Études Structurales, Rapporteur

Pr Helena VAN SWYGENHOVEN

Paul Scherrer Institute, Rapporteur

Pr Thomas PARDOEN

Université Catholique de Louvain, Encadrant

Pr Jean-Pierre RASKIN

Université Catholique de Louvain, Encadrant

Dr Fabien ONIMUS

Commissariat à l'Énergie Atomique de Saclay, Encadrant

Pr Yves BRECHET

Institut Polytechnique de Grenoble et haut-commissaire à l'énergie
atomique, Directeur de thèse



Dans la nature, tout a toujours une raison. Si tu comprends cette raison, tu n'as plus besoin de l'expérience.

Léonard de Vinci

Remerciements

Avant de commencer, je voudrais remercier les personnes sans qui cette thèse n'auraient pas été possible et sans qui je ne serai peut-être pas aujourd'hui docteur : mon directeur de thèse, Yves Bréchet et mes encadrants, Fabien Onimus, côté CEA et Thomas Pardoën et Jean-Pierre Raskin, côté UCL. Ils ont su me laisser mon autonomie tout en apportant des remarques ou des conseils clés permettant de franchir plus rapidement certains obstacles. J'ai tout particulièrement apprécié les petits déjeunés avec Yves Bréchet au Cercle. Quoi de mieux avant de commencer une journée de travail que des discussions enrichissantes sur les travaux effectués et les nouvelles possibilités qu'offrent cette thèse. J'ai les remercie pour leur optimisme qui a toujours su me garder motivé.

Je voudrais également remercier mon jury de thèse : Robin Schäublin, Frédéric Mompiau et Hélène Van Swygenhoven pour avoir lu avec attention mon manuscrit de thèse et conduit des discussions intéressantes durant la soutenance.

J'ai une pensée toute particulière pour Renaud qui a partagé avec moi les galères de fabrication des toutes premières micromachines de cuivre. Merci de t'être investi autant dans le process de ces micromachines. Sans toi, les premiers échantillons ne seraient apparus qu'encore bien plus tard.

Je remercie également les équipes de l'UCL pour m'avoir accueilli dans la bonne humeur lors de mes (trop) courtes missions en Belgique. Je pense entre autres à Ester, Christian, Sébastien, André et aux doctorants Romain, Gueric et Benjamin avec qui j'ai pu partager les joies des conférences aux Etats-Unis. Je remercie également tout particulièrement Michaël pour m'avoir assisté avec un grand taux de réussite sur les derniers process en salle blanche et d'avoir su réaliser avec moi les premières structures MET sur cuivre recuit avec un succès plus relatif.

Je remercie chaleureusement l'ensemble du LA2M où j'ai passé la majorité de mon temps sur les presque 4 dernières années. Ce fut 4 belles années. C'est avec regret que je quitte ce labo où j'ai pu évoluer scientifiquement et professionnellement.

Enfin je voudrais finir avec les thésards et post docs qui ont partagé mon quotidien sur ces dernières années. Les galères sont toujours moins pénibles lorsqu'elles sont partagées avec d'autres personnes. Merci à Emma, Isabelle, Gilles, Sylvain, Camille, Nesrine, Michaël, Olivier (x2), Baptiste, Bertrand, Emilie, Vianney, Benjamin, Marine, Alexia, Esther, Georges et les petits derniers Adrien et Amal. On a pu partager de beaux moments et j'espère que la bière pourra continuer de couler entre nous.

Merci à tous. Vraiment.

Table des matières

Chapitre I Contexte et Enjeux de l'étude	1
I.1 Le fluage d'irradiation dans une centrale nucléaire.....	1
I.1.1 Matériaux concernés	1
I.1.2 Lois de fluage	4
I.1.2.1 Dépendance au flux	4
I.1.2.2 Dépendance à la contrainte.....	4
I.1.2.3 Dépendance à la température	5
I.1.3 Mécanismes de déformation	6
I.1.3.1 Nucléation préférentielle des boucles induite par la contrainte (SIPN).....	6
I.1.3.2 Absorption préférentielle induite par la contrainte (SIPA).....	7
I.1.3.3 Mécanismes de glissement assisté par la montée.....	8
I.1.3.4 Déplacements des joints de grain.....	9
I.1.4 Techniques de caractérisation du fluage d'irradiation hors réacteur.....	10
I.1.4.1 Dispositifs sous faisceau de protons et deutérons	11
I.1.4.2 Dispositif sous faisceau d'ions lourds	12
I.2 Objectifs de l'étude	13
Chapitre II Caractérisation microstructurale après irradiation hors contrainte	17
II.1 Dommage d'irradiation dans le cuivre	17
II.1.1 Interaction particule-matière.....	17
II.1.2 Formation d'amas	19
II.1.3 Amas observés dans le cuivre	24
II.2 Dommage d'irradiation dans les films de cuivre.....	28
II.2.1 Protocole expérimental.....	28
II.2.2 Préparation des échantillons	29
II.2.3 Observations des dommages d'irradiation dans le cuivre.....	30
II.2.4 Irradiations <i>in situ</i>	34
II.3 Conclusion	36
Chapitre III " Lab-on-chips " nanomécaniques	41
III.1 Le principe des " lab-on-chips "	41
III.2 Procédés de fabrication du lab-on-chip	44
III.2.1 Etapes de fabrication	44
III.2.2 La couche sacrificielle.....	46
III.2.3 L'actuateur	46
III.2.4 Le film métallique.....	47
III.3 Description des configurations de micromachines.....	48
III.3.1 Séries B/BT	49
III.3.2 Séries T/TT.....	49
III.3.3 Extraction des contraintes internes	50
III.3.4 Echantillons MET.....	52
III.4 Adaptation aux conditions d'irradiations.....	53
III.4.1 Relaxation des contraintes dans le nitrure de silicium	53
III.4.2 Protection de l'actuateur sous irradiation	56
III.4.3 Echantillons placés sous irradiation.....	58
III.5 Traitement des données	59
III.6 Conclusion	63

Chapitre IV Caractérisation des films non irradiés.....	65
IV.1 Microstructure des films.....	65
IV.1.1 Film de 200 nm d'épaisseur.....	65
IV.1.2 Film de 500 nm d'épaisseur.....	68
IV.2 Contraintes internes.....	69
IV.3 Comportement en traction.....	70
IV.3.1 Film de 200 nm d'épaisseur.....	71
IV.3.2 Film de 500 nm d'épaisseur.....	74
IV.4 Fluage hors irradiation.....	76
IV.4.1 Volume d'activation et exposant de sensibilité.....	76
IV.4.2 Film de 200 nm d'épaisseur non recuit.....	78
IV.4.3 Film de 200 nm d'épaisseur recuit.....	81
IV.4.4 Film de 500 nm d'épaisseur recuit.....	84
IV.5 Synthèse.....	88
Chapitre V Caractérisation du comportement mécanique du cuivre irradié.....	93
V.1 Fluage post irradiation.....	93
V.2 Fluage sous irradiation.....	98
V.2.1 Etude de faisabilité.....	98
V.2.2 Artefacts de mesure.....	100
V.2.2.1 Adhésion de l'actuateur sur le substrat.....	100
V.2.2.2 Calibration des MEB.....	102
V.2.2.3 Vibrations lors du transport.....	103
V.2.3 Irradiation complète des éprouvettes.....	104
V.2.4 Protection totale de l'actuateur.....	109
V.2.5 Reproductibilité et validation du comportement sous flux.....	111
V.3 Conclusion.....	115
Chapitre VI Mécanismes de déformation sous irradiation.....	118
VI.1 Origine de la déformation plastique sous flux.....	118
VI.1.1 Elévation de température sous le faisceau.....	118
VI.1.2 Implantation d'atomes de cuivre.....	120
VI.2 Comparaison avec la littérature.....	121
VI.3 Observations <i>in situ</i> sur cuivre OFHC.....	123
VI.4 Observations <i>post</i> fluage irradiation sur les micromachines.....	127
VI.4.1 A la surface des éprouvettes.....	127
VI.4.2 Au cœur des éprouvettes.....	129
VI.5 Rôle des défauts ponctuels.....	131
VI.6 Conclusions.....	134
Conclusions.....	137
Table des figures.....	139
ANNEXE A1 : Essais de nanoindentation.....	A1
ANNEXE A2 : Irradiation au MET THT.....	A4
ANNEXE A3 : Essais de flexion sous irradiation.....	A6
ANNEXE A4 : Paramètres pour le calcul des flux de défauts ponctuels vers les puits.....	A7
ANNEXE A5 : Expérience <i>in situ</i>. Observations MET des micromachines sous irradiation ..	A8
ANNEXE A6 : Article méthode.....	A9

Chapitre I

Contexte et Enjeux de l'étude

I.1 Le fluage d'irradiation dans une centrale nucléaire	
I.1.1 Matériaux concernés	
I.1.2 Lois de fluage	
I.1.2.1 Dépendance au flux	
I.1.2.2 Dépendance à la contrainte	
I.1.2.3 Dépendance à la température	
I.1.3 Mécanismes de déformation	
I.1.3.1 Nucléation préférentielle des boucles induite par la contrainte (SIPN)	
I.1.3.2 Absorption préférentielle induite par la contrainte (SIPA)	
I.1.3.3 Mécanismes de glissement assisté par la montée	
I.1.3.4 Déplacements des joints de grain	
I.1.4 Techniques de caractérisation du fluage d'irradiation hors réacteur	1
I.1.4.1 Dispositifs sous faisceau de protons et deutérons	1
I.1.4.2 Dispositif sous faisceau d'ions lourds	1
I.2 Objectifs de l'étude	1

L'irradiation, c'est-à-dire l'exposition à un flux de neutrons, est connue pour détériorer les propriétés mécaniques des matériaux. Ces effets vont de modifications microstructurales (formations d'amas sous irradiation, changement de composition d'amas) à l'amplification ou à l'apparition de nouveaux phénomènes physiques non présents hors réacteur (gonflement, croissance, fluage, fragilisation). L'étude présentée dans ce mémoire se focalise sur un seul de ces phénomènes, le fluage d'irradiation. Son étude est aussi vieille que les premières centrales nucléaires [1], [2]. Néanmoins la compréhension du phénomène reste toujours imparfaite.

Les objectifs de ce chapitre sont de présenter dans les grandes lignes les caractéristiques de ce fluage et d'introduire la problématique de ce travail de thèse.

I.1 Le fluage d'irradiation dans une centrale nucléaire

I.1.1 Matériaux concernés

Le fluage d'irradiation est un phénomène au cours duquel un matériau se déforme sous une contrainte appliquée constante et sous un flux de particules "endommageantes". Il peut se produire à une température à laquelle le fluage "thermique" est négligeable. Il concerne donc des éléments de structures des cœurs des centrales nucléaires de type REP (Réacteur à Eau Pressurisée) exposés à la fois à une contrainte et à un flux de neutron rapide ($E > 1$ MeV). La Figure I. 1 présente un schéma du cœur d'une centrale nucléaire où se produisent les réactions de fissions nucléaires. Sur ce

schéma, on peut voir que sont exposés aux neutrons les structures internes et les assemblages combustibles. La paroi de la cuve n'est quant à elle que très faiblement irradiée.

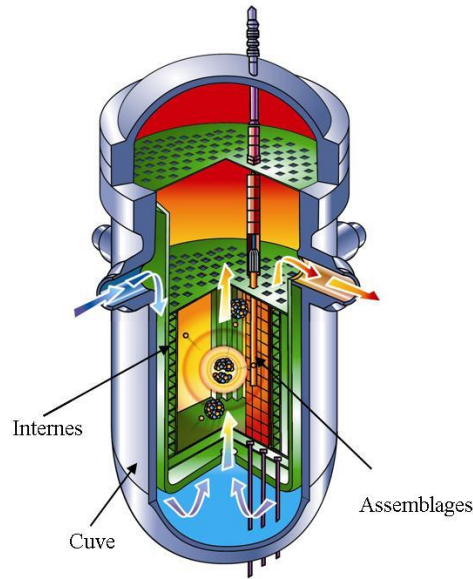


Figure I. 1 : Représentation schématique d'une cuve de réacteur.

La Figure I. 2 présente une vue simplifiée des internes de cuve. Ces structures permettent la canalisation de l'eau du circuit primaire ainsi que le maintien des assemblages combustibles. Elles sont composées d'une enveloppe de cœur cylindrique (non représentée sur les figures), de cloisons verticales, de renforts horizontaux et de 960 vis. L'ensemble de ces pièces est en acier austénitique 304 L ou 316. La température d'entrée de l'eau est de 280 °C et 320 °C en sortie. La température moyenne de fonctionnement des internes est aux alentours de 330 °C. En 40 ans de service, les pièces peuvent subir jusqu'à 10 déplacements par atome (dpa) pour l'enveloppe et jusqu'à 80 dpa pour les cloisons.

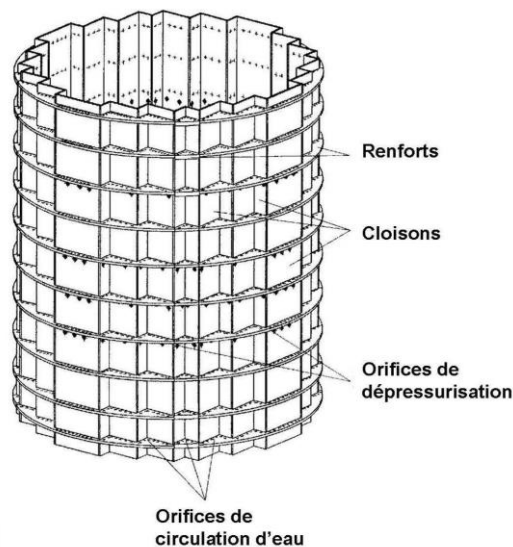


Figure I. 2 : Représentation schématique des internes de cuve.

Les assemblages combustibles sont constitués de gaines en alliages zirconium, de tubes guides et de grilles et ressorts en alliages nickel ou zirconium. Ces assemblages restent entre trois et cinq ans en réacteur. Ils sont exposés à une dizaine de dpa sur cette durée.

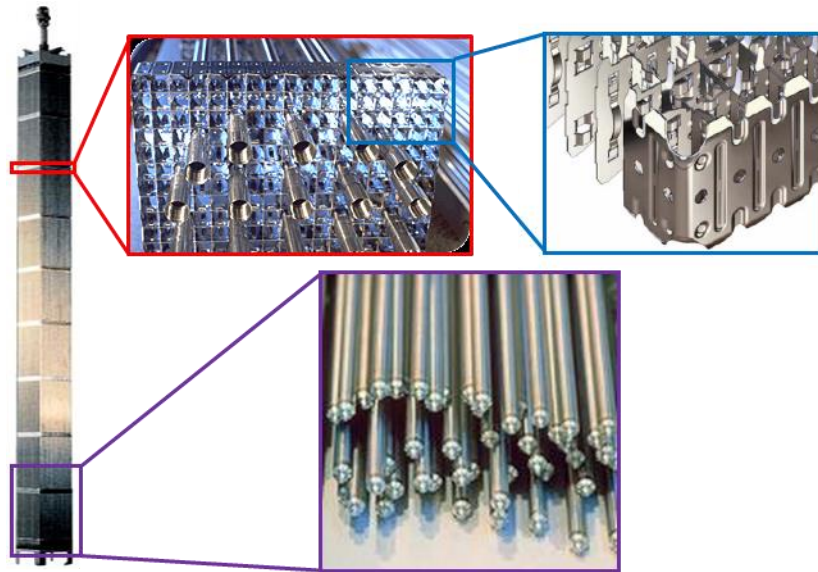


Figure I. 3 : Assemblage combustible avec une vue d'une grille, un agrandissement sur les ressorts et une photographie de gaines.

Ces trois types de matériaux présentent un accroissement de leur vitesse de fluage lorsqu'ils sont exposés à un flux de particules endommageant (neutrons, protons, ions), Figure I. 4. On peut remarquer deux phases de fluage sur les courbes :

- un fluage primaire, un fluage transitoire souvent mal caractérisé. Il est généralement plus rapide que le régime stationnaire comme sur la Figure I. 4 (a). Il peut aussi ne pas être présent comme sur la Figure I. 4 (c)
- un fluage secondaire, un régime stationnaire à vitesse de fluage constante. Seul, il est souvent considéré comme peu endommageant pour le matériau [3]. Néanmoins des pertes fonctionnelles, comme par exemple une diminution du couple de serrage des vis, sont possibles.

Un troisième régime de fluage, le fluage tertiaire, non présent sur les Figure I. 4 peut intervenir après le fluage secondaire. Ce régime se caractérise par l'accélération de la vitesse de fluage jusqu'à rupture de la pièce.

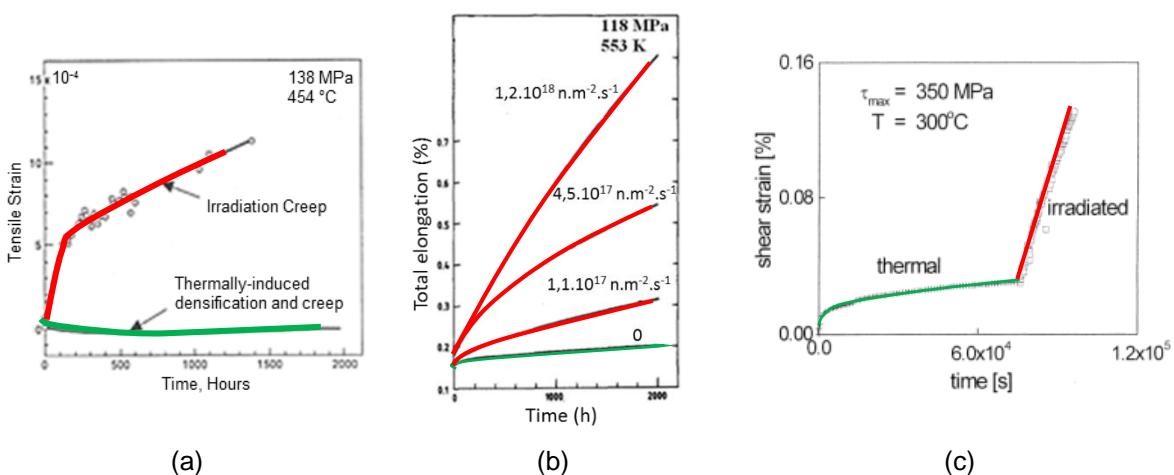


Figure I. 4 : Comparaison des vitesses de fluages sous irradiation, en rouge, et hors irradiation, en vert, sur (a) un acier 316 irradié aux neutrons [4], (b) sur un zircalloy 2 irradié aux neutrons [5] et (c) un inconel irradié aux protons [6].

Dans la suite de cette thèse on se focalisera essentiellement sur le régime stationnaire du fluage d'irradiation : le fluage secondaire.

La relaxation sous irradiation, l'évolution de la contrainte sous flux à déformation constante est intimement liée au fluage d'irradiation [7]. C'est d'ailleurs ce phénomène qui conduit au "desserrage des vis". En fluage comme en relaxation, les mécanismes de déformation conduisent à la création de déformation plastique sous irradiation. Les expériences de relaxation sont d'ailleurs plus simples à mettre en place pour déterminer les paramètres fondamentaux. Des languettes en flexion suffisent à caractériser le phénomène, Figure I. 5. De nombreuses languettes peuvent être placées dans un espace réduit en réacteur permettant ainsi un grand nombre d'expériences simultanées [8].

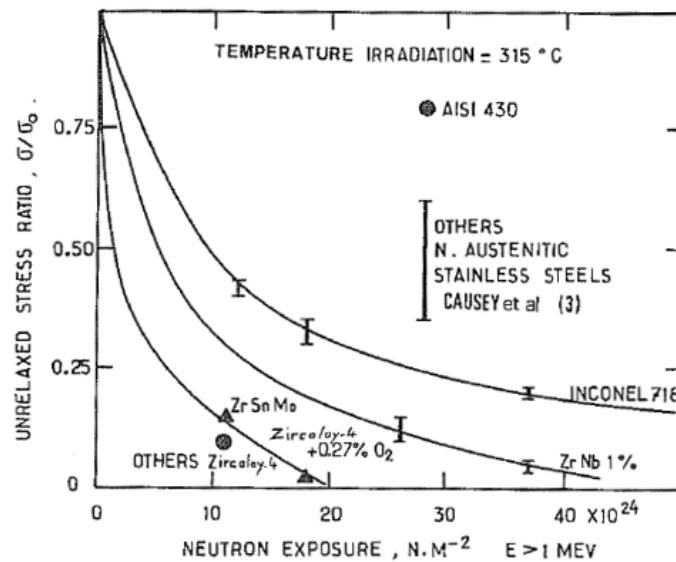


Figure I. 5 : Relaxation de languettes sous irradiation de différents matériaux [9].

Par abus de langage, tous les phénomènes liés à la création de déformation plastique observée sous flux et sous contrainte seront regroupés sous l'appellation fluage d'irradiation dans cette thèse.

I.1.2 Lois de fluage

I.1.2.1 Dépendance au flux

La Figure I. 4 montre que la vitesse de fluage secondaire est constante au cours du temps. Cela revient à dire que la vitesse de fluage n'est pas dépendante de la dose (dpa). Par contre, comme on peut l'observer sur la Figure I. 4 (b), le flux, nombre de particules frappant la cible par seconde et unité de surface, affecte la vitesse de fluage.

Il est généralement reconnu que la vitesse de fluage est linéaire en flux [5], [10], [11].

I.1.2.2 Dépendance à la contrainte

La vitesse de fluage suit une loi de puissance en contrainte, $\dot{\epsilon} \propto \sigma^n$. La valeur de l'exposant n semble dépendre elle-même de la contrainte [5]. En dessous de la limite d'élasticité du matériau, ce qui est le cas le plus courant pour l'étude du fluage d'irradiation, le fluage est linéaire en contrainte [7], [12], [13]. A plus forte contrainte, des valeurs du coefficient n de 2 [14], 3 [15], 4 [16], 5 [17], voire même 10 [18] peuvent être observées. L'activation du glissement des dislocations est souvent l'explication avancée pour décrire ce changement.

La Figure I. 6 montre cette transition pour différents métaux purs, de structure cubique à faces centrées, irradiés sous contrainte aux protons. Par exemple, pour le cuivre irradié à 150 °C, la transition apparaît pour une contrainte aux alentours de 60 MPa légèrement au-dessus de la limite d'élasticité à cette température du matériau non irradié, qui est de 40 MPa.

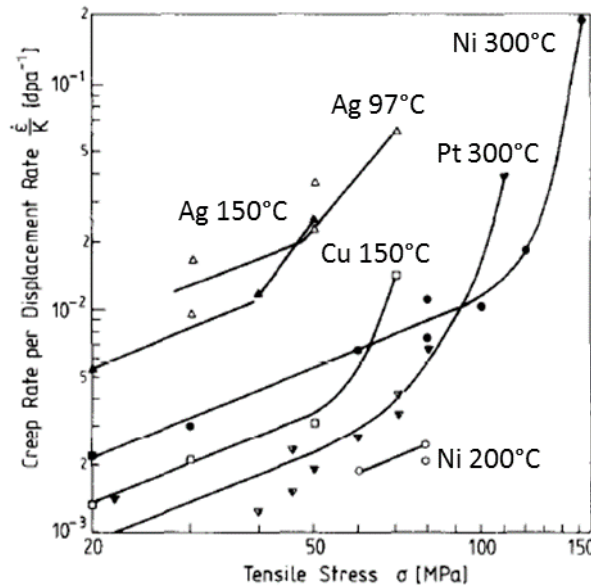


Figure I. 6 : Vitesses de fluage pour différents métaux CFC irradiés aux protons [19].

Etant données les conditions d'utilisation des matériaux en centrale nucléaire, c'est le fluage linéaire en contrainte qui est le plus intéressant à étudier du point de vue industriel.

I.1.2.3 Dépendance à la température

A haute température, au-delà de $0,5 T_m$ (où T_m est la température de fusion), le fluage en réacteur est identique au fluage thermique hors réacteur [20]. Le fluage d'irradiation devient alors négligeable devant le fluage thermique.

A basse température, en dessous de $0,25 T_m$, peu de données sont disponibles. Grossbeck et al. [21] ont observé sur un acier 316 irradié à 60°C un fluage d'irradiation linéaire similaire au fluage à 300 °C. A des températures de quelques dizaines de K, ce fluage continue d'être observé dans des métaux comme le tungstène et le molybdène [22].

Aux températures intermédiaires entre $0,25 T_m$ et $0,5 T_m$, le fluage d'irradiation linéaire présente une faible dépendance avec la température [23], [24]. Lorsque la loi de fluage présente un exposant n plus élevé, la dépendance est plus marquée, Figure I. 7. On peut remarquer sur cette courbe une bonne corrélation entre le fluage en réacteur et la limite d'élasticité du cuivre. Ce point vient appuyer l'importance du rôle du glissement des dislocations dans ce mode de fluage.

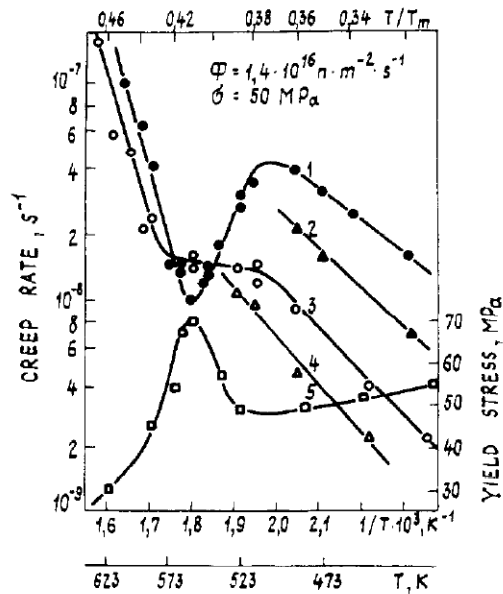


Figure I. 7 : Evolution de la vitesse de fluage du cuivre en réacteur (1,2) et hors réacteur (3,4) et de la limite d'élasticité (5) en fonction de la température. Taille de grain : (1, 3) 35 µm, (2, 4) 50 µm [20].

Une forme générale de la loi de fluage en réacteur [5], [17] permettant de décrire à la fois la composante thermique et d'irradiation peut être exprimée en fonction du flux ϕ de la contrainte σ de la température T et de la contrainte σ sous la forme :

$$\dot{\epsilon} = A \phi \sigma^n \exp\left(-\frac{Q}{kT}\right). \quad (I.1)$$

A et Q sont des constantes caractéristiques du matériau.

I.1.3 Mécanismes de déformation

Dans les conditions usuelles d'utilisation, faible température et sollicitation en dessous de la limite d'élasticité, le fluage d'irradiation observé en centrale est linéaire en contrainte. La grande majorité des mécanismes de déformation sous flux présente donc une dépendance linéaire. Cette sous-partie présente succinctement les mécanismes les plus fréquemment évoqués dans la littérature afin d'illustrer les comportements possibles de la microstructure sous irradiation et sous contrainte.

I.1.3.1 Nucléation préférentielle des boucles induite par la contrainte (SIPN)

Le mécanisme de nucléation préférentielle des boucles induite par la contrainte (Stress Induced Preferential Nucleation, SIPN) prévoit que la contrainte ait une influence sur la formation des amas créés sous irradiation et en particulier sur l'orientation des boucles de dislocation. Les boucles interstitielles auraient alors tendance à germer dans un plan proche du plan orthogonal à la contrainte appliquée et les boucles lacunaires dans les plans proches des plans parallèles à la contrainte [11], Figure I. 8. La cause physique de ce mécanisme repose sur la modification de l'énergie d'activation de germination des boucles de dislocations par l'application d'une contrainte.

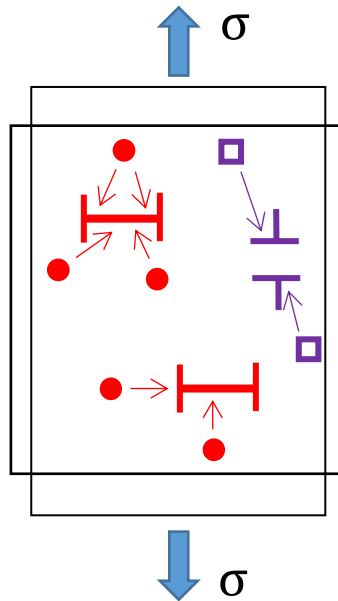


Figure I. 8 : Mécanisme de fluage d'irradiation SIPN. Les interstitiels ● s'agglomèrent préférentiellement dans les plans orthogonaux à la contrainte tandis que les lacunes ◻ s'agglomèrent dans les plans parallèles.

Ce mécanisme de déformation décrit séparément la phase de germination et la phase de croissance de la boucle sous irradiation. Il prédit une vitesse de déformation linéaire en contrainte.

Plusieurs critiques sont venues nuancer la portée de ce modèle. Si quelques études confirment une orientation privilégiée des boucles sous une contrainte de traction [25], il a été montré que la déformation induite par ce mécanisme est dans le cas des aciers austénitiques deux ordres de grandeur plus faibles que les déformations mesurées expérimentalement [10].

De plus, seule la phase de germination est dépendante de la contrainte. Par conséquent, si la contrainte devient nulle, la croissance des boucles continue sous l'effet de l'augmentation de la dose d'irradiation et la déformation devrait se poursuivre [10]. Cela n'a pas été vérifié expérimentalement [25].

I.1.3.2 Absorption préférentielle induite par la contrainte (SIPA)

Le modèle d'absorption préférentielle des défauts ponctuels induite par la contrainte (Stress Induced Preferential Absorption, SIPA) prédit une augmentation du flux de défauts ponctuels créés par l'irradiation sous l'effet d'une contrainte vers les dislocations orientées de manière adéquate. Ce flux préférentiel selon la direction du vecteur de Burgers et de la contrainte, entraîne une montée anisotrope des dislocations provoquant une déformation globale visible macroscopiquement. Si la montée des dislocations par absorption d'interstitiels est isotrope, les probabilités de montée de deux dislocations coins de vecteurs de Burgers perpendiculaires sont identiques. Il n'y a alors pas de déformation macroscopique visible dans une direction donnée. Par conséquent, seuls les mécanismes de montée anisotrope de dislocation peuvent conduire à une déformation macroscopique [10].

Le modèle prévoit en particulier que pour les dislocations coins dont le vecteur de Burgers est parallèle à la direction de la contrainte, une absorption préférentielle des interstitiels se produit tandis que celles dont le vecteur de Burgers est orthogonale à la contrainte absorbe préférentiellement les lacunes, Figure I. 9 a). Sur les boucles de dislocation, la montée des

dislocations se traduit par une croissance des boucles. Contrairement au modèle SIPN, le modèle SIPA influe donc sur la phase de croissance des boucles.

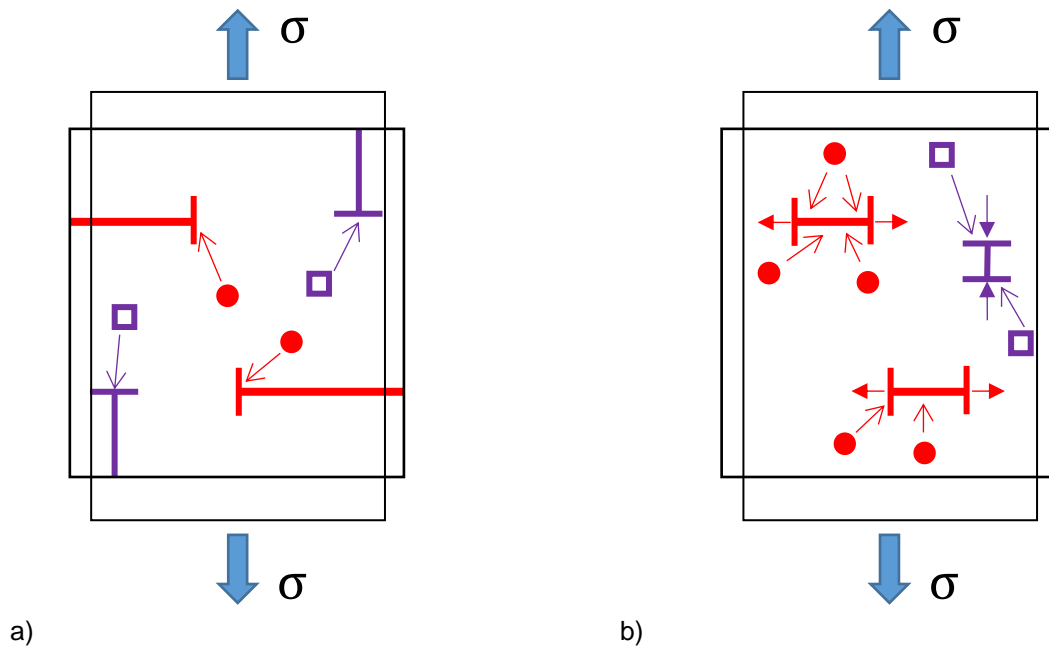


Figure I. 9 : a) Montée anisotrope des dislocations du fait de l'absorption préférentielle des interstitiels (rouges) et des lacunes (bleues). b) Croissance des boucles de dislocation interstitielles

Plusieurs mécanismes sont regroupés sous l'acronyme SIPA [25]. En effet, pour expliquer la modification du flux de défauts vers les dislocations, il est possible que la contrainte altère le champ élastique de déformation autour des dislocations, qu'elle change la forme et le comportement élastique des inclusions (interstitiel, lacune) par rapport à la matrice, qu'elle modifie les coefficients de diffusion de manière anisotrope ou encore qu'elle fasse évoluer les biais d'absorption ou les coefficients de diffusion des défauts ponctuels [25]. La vitesse de fluage reste, dans toutes ces configurations, linéaire en contrainte.

J. Garnier a montré dans ses travaux de thèse [10] que le modèle SIPA comme le modèle SIPN prédit une déformation deux ordres de grandeur inférieurs à celle mesurée pour des aciers inoxydables austénitiques 304L hypertrempe et 316 écroui entre 330 °C et 375 °C. Il montre d'ailleurs que cela est en accord avec la très faible anisotropie de microstructure de boucles effectivement observée.

I.1.3.3 Mécanismes de glissement assisté par la montée

Les mécanismes de glissement assisté par la montée sont basés sur des modèles où la montée des dislocations facilite le glissement pour leur permettre de franchir les obstacles. La cinétique de ces mécanismes est donnée par la montée qui est l'étape lente et l'amplitude de la déformation par le glissement. La montée peut se faire soit grâce au biais naturel des dislocations pour les interstitiels sans influence de la contrainte externe, soit par des mécanismes SIPA.

Weertman [26] a développé un modèle de fluage thermique de glissement assisté par la montée (Figure I. 10). Les dislocations glissent jusqu'à rencontrer des obstacles. Au niveau des

obstacles, un empilement de dislocations se crée et rend immobiles les dislocations. La montée permet aux dislocations de se libérer de cet empilement. Plusieurs auteurs [25] ont essayé d'appliquer ce modèle au fluage d'irradiation. Les vitesses de déformation calculées suivent une loi de puissance en la contrainte avec un exposant variant entre 1,2 et 4.

Ces modèles sont peu probables car les empilements de dislocations sont peu observés lors des essais de fluage sous irradiation [25].

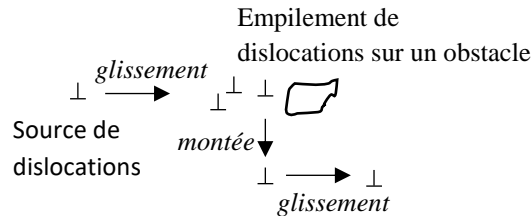


Figure I. 10 : Principe du modèle de Weertman [26].

Le modèle de fluage d'interstitiels (I creep) présente l'avantage de ne pas nécessiter d'empilement de dislocations. Dans ce modèle, les segments de dislocations du réseau se courbent sous l'effet d'une contrainte jusqu'à ce que la tension de ligne soit en équilibre avec la contrainte. Le modèle suppose alors que la montée des dislocations permet aux segments de dislocations de répéter ce processus lorsqu'ils ont parcouru une distance en montée égale à la moitié de la distance entre deux dislocations. Le glissement des dislocations est ainsi réactivé après qu'une certaine distance soit atteinte en montée.

En supposant que la densité de dislocations et la vitesse de montée ne sont déterminées que par les conditions d'irradiation et sont indépendantes de la contrainte de fluage, la vitesse de déformation est linéaire en contrainte.

Une des faiblesses de ce modèle est son inaptitude à suivre l'évolution de la densité de dislocations puisqu'aucun mécanisme de multiplication ou de restauration n'est présent pour décrire l'augmentation de la densité de dislocations avec l'accumulation de déformation.

L'autre catégorie de modèle glissement-montée fait intervenir la montée des dislocations par des mécanismes SIPA. La vitesse de montée est alors contrôlée par les mécanismes d'absorption SIPA et la déformation donnée par le glissement. La vitesse de déformation de ce mécanisme de glissement contrôlée par une absorption préférentielle (PAG) est additive à celle obtenue simplement par montée avec le mécanisme SIPA utilisé. C'est pourquoi ce type de modèle est souvent appelé SIPAG. La vitesse de déformation prédite est quadratique en contrainte.

1.1.3.4 Déplacements des joints de grain

J. Garnier [10] a mis en avant un autre mécanisme de fluage qui prédit un bon ordre de grandeur de déformation pour le fluage d'irradiation d'aciers austénitiques entre 300 et 400 °C. Selon ce mécanisme, la déformation est induite par la différence de flux de défauts ponctuels aux joints de grains entre les joints de grain parallèles et perpendiculaires à la contrainte. Les grains sont alors allongés dans la direction orthogonale à la contrainte et rétrécis dans le sens transverse. La vitesse de déformation est calculée comme proportionnelle au flux de défauts vers les joints de grain et à la contrainte.

Il est toutefois difficile de comprendre le mécanisme physique par lequel le libre parcours d'un défaut ponctuel serait contrôlé par les joints de grains alors qu'une forte densité d'amas est présente à l'intérieur des grains du fait de l'irradiation.

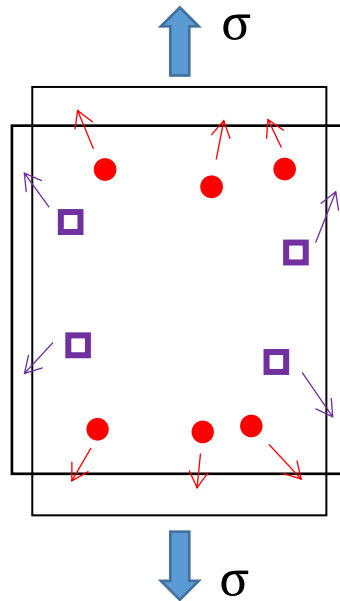


Figure I. 11 : Déplacement des joints de grains par absorption de défauts ponctuels.

Ashkenazy et Averback [27] rapportent des modélisations numériques par dynamique moléculaire du fluage d'irradiation dans un alliage nanocristallin de Cu-W. Le fluage est observé par une relaxation locale des contraintes internes dans les joints de grain après l'introduction de défauts ponctuels. Aucune hypothèse de flux anisotrope des défauts ou d'absorption préférentielle n'est faite. C'est la relaxation locale qui est affectée par la contrainte appliquée. En effet, il est énergétiquement préférable d'avoir une série de relaxation locale en accord avec la contrainte. La vitesse de fluage est également linéaire en contrainte.

Aucun de ces mécanismes n'a pu être confirmé expérimentalement par des observations microstructurales comme le mécanisme à l'origine du fluage d'irradiation.

Pour l'heure il n'y a donc pas de consensus concernant les mécanismes actifs durant le fluage d'irradiation.

I.1.4 Techniques de caractérisation du fluage d'irradiation hors réacteur

Les expériences d'irradiations aux neutrons sont des expériences longues sur plusieurs années. Une fois irradiée, la matière est activée ce qui nécessite la manipulation des échantillons par télémanipulateur en cellules blindées. L'utilisation de particules chargées, en particulier d'ions lourds, permet de réduire considérablement les temps d'expériences et d'analyses des échantillons au détriment d'une épaisseur de matière irradiée plus faible. Par exemple dans le zirconium, l'épaisseur irradiée aux protons est d'environ 30 μm à une énergie de 2 MeV. Aux ions Zr, cette épaisseur atteint seulement 3 μm à une énergie de 12 MeV.

Cette faible épaisseur irradiée couplée aux problématiques d'encombrement et de travail sous vide dans les chambres d'irradiation conduit à l'utilisation de dispositifs expérimentaux d'étude du fluage très spécifiques.

Une liste non exhaustive de ces dispositifs est proposée ci-dessous afin d'illustrer les différentes techniques utilisées.

I.1.4.1 Dispositifs sous faisceau de protons et deutérons

Les irradiations aux protons sont un bon compromis par rapport aux expériences aux neutrons. La création de dommage est rapide tout en gardant une épaisseur irradiée importante de quelques dizaines de microns. Cependant la matière est généralement activée après l'irradiation.

(i) Witzig [28] a utilisé le montage décrit sur la Figure I. 12 pour suivre la déformation d'un fil de cuivre OFHC sous un flux de deutéron. Le fil est mis sous contrainte à l'aide d'un poids et est relié à un extensomètre pour la mesure de déformation. Il traverse un four où il est exposé à un flux de deutérons. L'avantage de cette méthode est de pouvoir suivre en temps réel l'évolution de la déformation en température et sous flux.

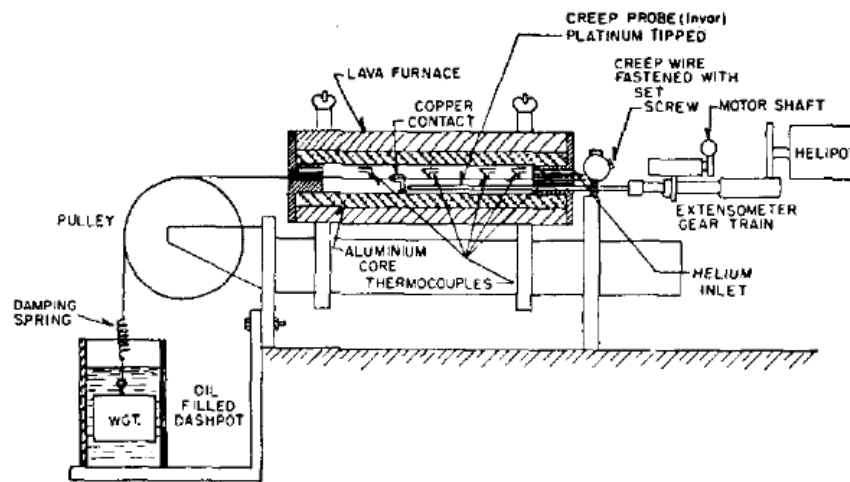


Figure I. 12: Dispositif de Witzig pour l'étude du fluage d'irradiation aux deutérons [28].

(ii) Le dispositif de Jung et al. [29], Figure I. 13, permet de réaliser sous un faisceau de protons et en température des chargements en tension, en compression ou cyclique, sur des feuillets de 50 μm d'épaisseur. Un moteur permet d'appliquer une contrainte qui est mesurée à l'aide d'un ressort en compression. La déformation est mesurée indépendamment. Des lames MET peuvent être découpées une fois les essais effectués pour observer l'évolution de la microstructure.

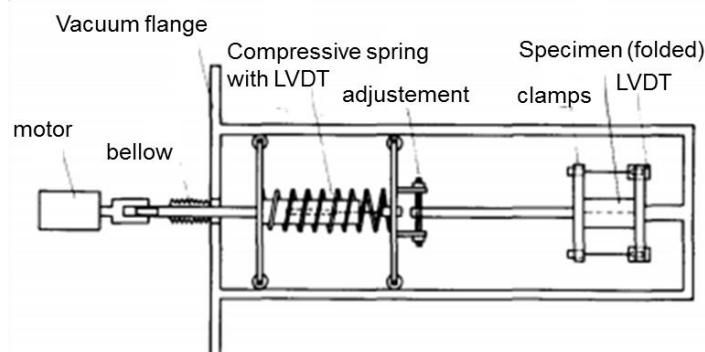


Figure I. 13 : Dispositif de Jung et al. [29] pour l'étude du fluage d'irradiation aux protons.

(iii) Xu et Was [30] ont réalisé leur expérience de fluage d'irradiation aux protons à partir du dispositif montré sur la Figure I. 14. L'échantillon est mis sous contrainte à l'aide d'un poids en

tungstène. Une platine chauffante en contact avec l'échantillon permet de réaliser l'irradiation en température. Une caméra thermique permet de contrôler la température de l'échantillon et la déformation peut être mesurée *in situ* par laser.

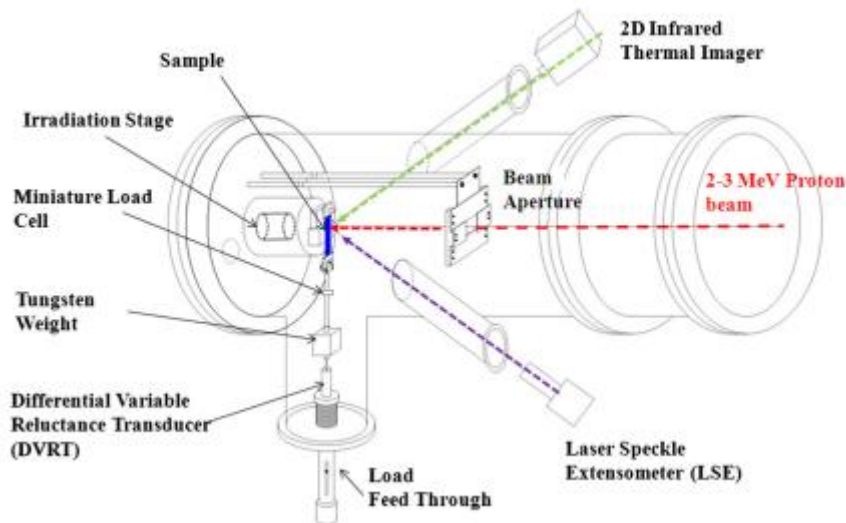


Figure I. 14 : Dispositif de Xu et Was pour l'étude du fluage d'irradiation aux protons [30].

I.1.4.2 Dispositif sous faisceau d'ions lourds

Le principal avantage des irradiations aux ions lourds est de pouvoir créer très rapidement un niveau de dommage important dans la matière. Cependant la très faible épaisseur irradiée est souvent un facteur limitant pour la réalisation d'essais mécaniques sous flux et rend les dispositifs précédents inutilisables.

(i) Le dispositif de Tai et al. [31] permet de mettre sous contrainte des films minces durant une irradiation aux ions lourds tout en mesurant le déplacement à l'aide d'un laser, Figure I. 15. Une pression à l'aide d'un gaz est appliquée d'un côté de la membrane pendant que l'autre face est exposée au flux d'ions. Les contraintes atteintes ne sont pas très importantes (<15 MPa) mais des expériences en température sont possibles. Si le film est suffisamment mince, des observations MET *post fluage* sont possibles sur les échantillons.

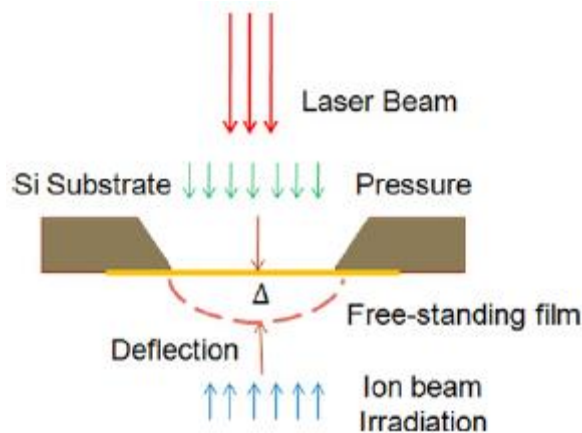


Figure I. 15 : Dispositif de Tai et al. [31] pour l'étude du fluage d'irradiation aux ions.

(ii) Özeriç et al. [32] ont proposé un dispositif permettant de comprimer un micropilier tout en l'irradiant aux ions lourds et en mesurant la déformation à l'aide d'un laser, Figure I. 16. Le

micropilier vient en appui sur une poutre qui est mise en déflexion. L'avantage de cette méthode par rapport à la méthode de Tai et al. est que les piliers peuvent être prélevés dans n'importe quel matériau. Les essais sont donc réalisables sur des alliages complexes.

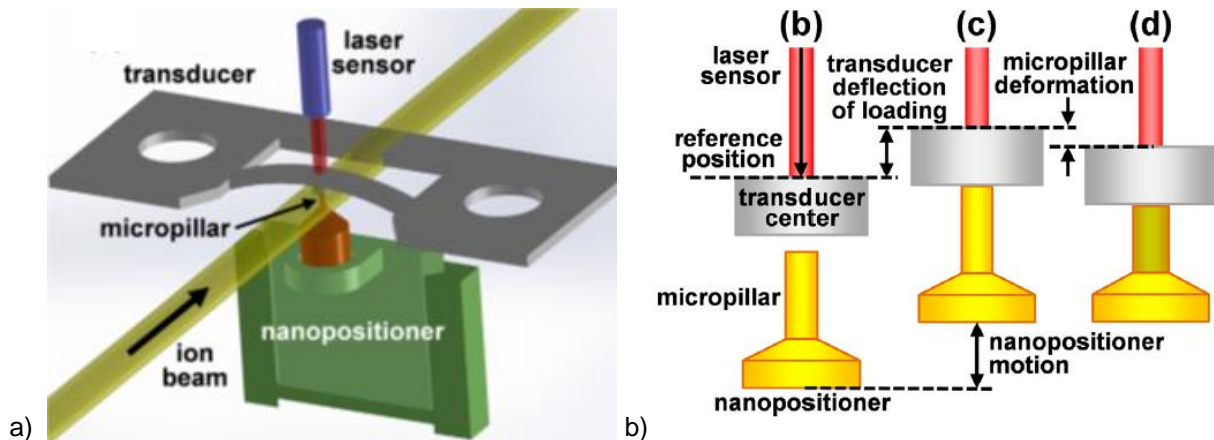


Figure I. 16 : a) Dispositif de Özzerinç et al. [32] pour l'étude du fluage d'irradiation aux ions. b) Principe de mise sous contrainte du micropilier.

Aucune de ces méthodes ne permet de suivi *in situ* de la microstructure dans un MET durant la déformation sous irradiation à contrainte constante. Ces expériences permettent donc au mieux de reproduire plus rapidement et plus facilement des expériences en réacteur mais l'analyse microstructurale reste limitée aux résidus et aux traces laissées par la déformation plastique.

En parallèle de ces expériences, des portes-échantillons permettent d'appliquer une contrainte sur un échantillon dans un MET sous irradiation aux ions sur des plateformes comme celle de JANNUS Orsay [33]. Les observations des mécanismes sont alors possibles mais le suivi du comportement en fluage de l'éprouvette n'est pas possible du fait d'une irradiation seulement partielle de l'échantillon.

I.2 Objectifs de l'étude

L'objectif de cette thèse est de développer une nouvelle méthode expérimentale permettant d'étudier le comportement et les mécanismes de déformation sous flux de métaux et d'alliages. L'irradiation a été choisie aux ions lourds afin de minimiser les temps d'expérience et d'avoir des échantillons non actifs. Ce choix impose de travailler sur des échantillons de plusieurs centaines de nanomètres à quelques micromètres d'épaisseur afin que l'échantillon soit entièrement irradié.

De telles épaisseurs rendent difficiles l'utilisation et le contrôle d'un système de charge externe pour déformer l'échantillon. La décision a été prise de s'orienter vers des systèmes "lab-on-chips" permettant de réaliser sur des substrats de silicium des micro-essais de traction. L'échantillon intègre alors l'éprouvette à déformer et tout le système d'application de la charge et de mesure de la déformation. Ces micromachines ont été conçues à l'Université de Louvain La Neuve par les équipes de Thomas Pardoën et Jean-Pierre Raskin. Elles sont fabriquées selon des procédés de microélectronique parfaitement adaptés aux épaisseurs souhaitées. De plus, les échantillons sont compatibles avec des observations *in situ* sous contrainte dans un microscope électronique en transmission. Une expérience sous irradiation et sous contrainte dans un MET sur un équipement tel que JANNUS Orsay est donc possible.

Pour cette étude innovante, le matériau choisi est le cuivre. Ce métal est facilement utilisable pour la réalisation des micromachines et sa microstructure est proche des alliages de nickel et des

aciers austénitiques (structure CFC) présents dans l'industrie nucléaire. Les effets d'irradiation aux neutrons ou aux ions ont été très largement étudiés. De plus, le cuivre est souvent utilisé comme matériau modèle dans les simulations numériques ce qui permet d'avoir accès facilement à un grand nombre de paramètres fondamentaux.

Le chapitre II présente le comportement du cuivre sous irradiation et hors contrainte. Le chapitre III revient sur la méthode expérimentale des micromachines de traction et son adaptation aux conditions d'irradiation. Le chapitre IV présente l'étude, grâce à cette méthode du comportement mécanique de films de cuivre hors irradiation. Le chapitre V caractérise le fluage sous irradiation aux ions cuivre de ces mêmes films de cuivre. Enfin, le chapitre VI tente d'expliquer les mécanismes intervenant dans le film durant la déformation sous irradiation.

Références Bibliographiques I

- [1] S. T. Konobeevsky, N. F. Pravdyuk, and V. I. Kutaitsev, presented at the First International Conference on Peaceful uses of Atomic Energy, Geneva, 1955, vol. A/CONF. 8, p. 681.
- [2] A. C. Roberts and A. H. Cottrell, "LXXII. Creep of alpha uranium during irradiation with neutrons," *Philos. Mag.*, vol. 1, no. 8, pp. 711–717, Aug. 1956.
- [3] M. L. Grossbeck, K. Ehrlich, and C. Wassilew, "An assessment of tensile, irradiation creep, creep rupture, and fatigue behavior in austenitic stainless steels with emphasis on spectral effects," *J. Nucl. Mater.*, vol. 174, no. 2–3, pp. 264–281, Nov. 1990.
- [4] E. Gilbert, D. Kulitz, J. Holmes, and T. Claudson, "Proc. Conf. irradiation embrittlement and creep in fuel cladding and core components," 1972.
- [5] V. Fidleris, "The irradiation creep and growth phenomena," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 22–42, Oct. 1988.
- [6] R. Scholz and R. Matera, "Proton irradiation creep of Inconel 718 at 300°C," *J. Nucl. Mater.*, vol. 283–287, pp. 414–417, Dec. 2000.
- [7] D. E. Fraser, P. A. Ross-Ross, and A. R. Causey, "The relation between stress-relaxation and creep for some zirconium alloys during neutron irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 46, no. 3, pp. 281–292, Apr. 1973.
- [8] D. G. Franklin, G. E. Lucas, and A. L. Bement, *Creep of zirconium alloys in nuclear reactors*, vol. STP 815. Philadelphia, Pa: American Society for Testing and Materials, 1983.
- [9] P. Morize, J. Baicry, and J. Mardon, "Effect of Irradiation at 588 K on Mechanical Properties and Deformation Behavior of Zirconium Alloy Strip," in *Zirconium in the Nuclear Industry*, R. Adamson and L. Van Swam, Eds. 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959: ASTM International, 1987, pp. 101-101–19.
- [10] J. Garnier, "Déformation sous flux des aciers austénitiques des structures internes des réacteurs a eau pressurisée," INPG, 2007.
- [11] R. Bullough and M. H. Wood, "Mechanisms of radiation induced creep and growth," *J. Nucl. Mater.*, vol. 90, no. 1–3, pp. 1–21, May 1980.
- [12] J. Garnier, Y. Bréchet, M. Delnondedieu, C. Pokor, P. Dubuisson, A. Renault, X. Averty, and J. P. Massoud, "Irradiation creep of SA 304L and CW 316 stainless steels: Mechanical behaviour and microstructural aspects. Part I: Experimental results," *J. Nucl. Mater.*, vol. 413, no. 2, pp. 63–69, Jun. 2011.
- [13] Y. Chen, K. Y. Yu, Y. Liu, S. Shao, H. Wang, M. A. Kirk, J. Wang, and X. Zhang, "Damage-tolerant nanotwinned metals with nanovoids under radiation environments," *Nat. Commun.*, vol. 6, p. 7036, Apr. 2015.
- [14] R. Scholz and R. Mueller, "Irradiation creep-fatigue interaction of type 316L stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 233–237, pp. 169–172, Oct. 1996.
- [15] J. Nagakawa, "Irradiation creep transients in Ni-4 at.% Si," *J. Nucl. Mater.*, vol. 116, no. 1, pp. 10–16, May 1983.
- [16] F. A. Nichols, "On the mechanisms of irradiation creep in zirconium-base alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 37, no. 1, pp. 59–70, Oct. 1970.
- [17] K. Herschbach, "In-Pile creep of the martensite 1.4914: Some fundamental observations," *J. Nucl. Mater.*, vol. 127, no. 2–3, pp. 239–241, Jan. 1985.
- [18] A. R. Causey, "In-reactor creep of zircaloy-2, zircaloy-4 and Zr-1.15 wt % Cr-0.1 wt % Fe at 568 K derived from their stress-relaxation behaviour," *J. Nucl. Mater.*, vol. 54, no. 1, pp. 64–72, Nov. 1974.
- [19] P. Jung and M. I. Ansari, "A correlation between irradiation creep strength and yield stress of FCC metals and alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 138, no. 1, pp. 40–45, Mar. 1986.
- [20] E. S. Aitkhozhin and E. V. Chumakov, "Radiation-induced creep of copper, aluminium and their alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 233–237, pp. 537–541, Oct. 1996.

-
- [21] M. L. Grossbeck, L. K. Mansur, and M. P. Tanaka, "Irradiation Creep in Austenitic Stainless Steels at 60 to 400°C with a Fusion Reactor Helium to dpa Ratio," *ASTM STP 1046*, vol. II, pp. 537–550, 1989.
- [22] P. L. Zupplroli, J. L. Pouchou, A. Francois, J. Leteurtre, and Y. Quere, "Fluage de molybdène sous irradiation par les fragments de fission a 20 K," *Philos. Mag.*, vol. 35, no. 4, pp. 853–870, Apr. 1977.
- [23] K. Tai, R. S. Averback, P. Bellon, Y. Ashkenazy, and B. Stumphy, "Temperature dependence of irradiation-induced creep in dilute nanostructured Cu–W alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 422, no. 1–3, pp. 8–13, Mar. 2012.
- [24] J. Chen, P. Jung, and W. Hoffelner, "Irradiation creep of candidate materials for advanced nuclear plants," *J. Nucl. Mater.*, vol. 441, no. 1–3, pp. 688–694, Oct. 2013.
- [25] J. R. Matthews and M. W. Finnis, "Irradiation creep models — an overview," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 257–285, Oct. 1988.
- [26] J. Weertman, "Theory of Steady-State Creep Based on Dislocation Climb," *J. Appl. Phys.*, vol. 26, no. 10, p. 1213, 1955.
- [27] Y. Ashkenazy and R. S. Averback, "Irradiation Induced Grain Boundary Flow—A New Creep Mechanism at the Nanoscale," *Nano Lett.*, vol. 12, no. 8, pp. 4084–4089, Aug. 2012.
- [28] W. F. Witzig, "Creep of Copper under Deuteron Bombardment," *J. Appl. Phys.*, vol. 23, no. 11, p. 1263, 1952.
- [29] P. Jung, A. Schwarz, and H. K. Sahu, "An apparatus for applying tensile, compressive and cyclic stresses on foil specimens during light ion irradiation," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. Accel. Spectrometers Detect. Assoc. Equip.*, vol. 234, no. 2, pp. 331–334, Feb. 1985.
- [30] C. Xu and G. S. Was, "In situ proton irradiation creep of ferritic–martensitic steel T91," *J. Nucl. Mater.*, vol. 441, no. 1–3, pp. 681–687, Oct. 2013.
- [31] K. Tai, R. S. Averback, P. Bellon, and Y. Ashkenazy, "Irradiation-induced creep in nanostructured Cu alloys," *Scr. Mater.*, vol. 65, no. 2, pp. 163–166, Jul. 2011.
- [32] S. Özeriç, R. S. Averback, and W. P. King, "In situ creep measurements on micropillar samples during heavy ion irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 451, no. 1–3, pp. 104–110, Aug. 2014.
- [33] Y. Serruys, P. Trocellier, S. Miro, E. Bordas, M. O. Ruault, O. Kaitasov, S. Henry, O. Leseigneur, T. Bonnaille, S. Pellegrino, S. Vaubaillon, and D. Uriot, "JANNUS: A multi-irradiation platform for experimental validation at the scale of the atomistic modelling," *J. Nucl. Mater.*, vol. 386–388, pp. 967–970, Apr. 2009.

Chapitre II

Caractérisation microstructurale après irradiation hors contrainte

II.1 Dommage d'irradiation dans le cuivre	1
II.1.1 Interaction particule-matière.....	1
II.1.2 Formation d'amas.....	1
II.1.3 Amas observés dans le cuivre	2
II.2 Dommage d'irradiation dans les films de cuivre.....	2
II.2.1 Protocole expérimental	2
II.2.2 Préparation des échantillons.....	2
II.2.3 Observations des dommages d'irradiation dans le cuivre	3
II.2.4 Irradiations <i>in situ</i>	3
II.3 Conclusion.....	3

L'objectif de ce chapitre est de définir la microstructure du cuivre après irradiation. En particulier, une comparaison entre les microstructures après irradiation d'un film de cuivre et d'un cuivre massif à gros grains est effectuée. Cette comparaison doit permettre d'évaluer la représentativité du film mince comme matériau modèle pour reproduire la microstructure du matériau massif.

II.1 Dommage d'irradiation dans le cuivre

II.1.1 Interaction particule-matière

L'irradiation peut être représentée comme un flux de particules énergétiques sur une cible de matière. Ces particules interagissent alors par des chocs élastiques ou inélastiques avec la matière. Si l'énergie transférée à un atome de la matière est supérieure à une énergie seuil de déplacement (E_d), l'atome est éjecté de son site cristallin créant ainsi une paire lacune/interstitiel appelée paire de Frenkel. Dans le cas d'un cristal, anisotrope par définition, cette énergie seuil dépend fortement de la direction de la vitesse donnée à l'atome par la particule. La Figure II. 1 donne les valeurs des énergies seuil pour le cuivre selon différentes directions cristallographiques. On peut noter que la valeur de l'énergie seuil de déplacement varie entre 18 eV et 61 eV. La valeur moyenne retenue dans le logiciel SRIM (the Stopping and Range of Ions in Matter), utilisé pour le calcul des dommages créés par un flux d'ions sur une cible, est de 25 eV. L'énergie nécessaire pour déplacer un atome est donc grandement surestimée dans la direction [111] et légèrement sous-estimée dans la direction [100].

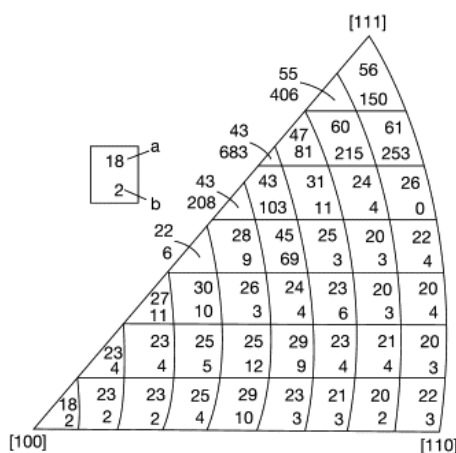


Figure II. 1: Valeur de l'énergie seuil de déplacement (eV) selon la direction de la vitesse de l'atome éjecté comme mesurée par King et al. [1] ; a correspond à la meilleure approximation et b à la sensibilité de l'approximation ; plus b est important et moins a est précis.

Pour des neutrons et une cible métallique, les interactions sont principalement élastiques et la probabilité d'interaction avec un atome peut être écrite comme une interaction avec une sphère dure de rayon R par :

$$\frac{d\sigma}{dT} = \frac{\pi R^2}{T_{max}}, \quad (II.1)$$

où σ est la section efficace, T l'énergie transférée, $\frac{d\sigma}{dT}$ représente donc la probabilité de transfert d'énergie et T_{max} est l'énergie cinétique maximale qu'un neutron peut transmettre à un atome et est donnée par :

$$T_{max} = \frac{4m_n m_a}{(m_n + m_a)} E_c, \quad (II.2)$$

où m_n et m_a sont respectivement la masse du neutron et de l'atome et E_c l'énergie cinétique du neutron.

Pour des ions, deux interactions sont possibles : par chocs " nucléaires " (chocs élastiques) et par perte d'énergie électronique (collisions inélastiques : excitation électronique ou ionisation). A haute vitesse, l'énergie perdue par la particule est principalement due aux pertes d'énergie électronique, les chocs nucléaires étant peu probables. A faible vitesse, l'énergie perdue par des chocs nucléaires augmente mais les pertes d'énergie électronique ne sont que très rarement négligeables du point de vue de la particule. Les deux interactions créent des dommages dans la matière mais les dommages créés par perte d'énergie électronique, s'ils sont observés, ne sont pas encore bien simulés. De plus, du fait de la haute mobilité des électrons dans les métaux, dans la plupart des conditions expérimentales, il n'y a pas de dommage observable dans la microstructure. Pour les céramiques, des dommages structuraux sont possibles par perte d'énergie électronique.

Pour les chocs nucléaires, la création de défauts découlant directement de l'interaction entre l'ion et l'atome cible, les simulations de création de défauts ponctuels sont possibles à l'aide de logiciels comme SRIM. Si l'atome cible reçoit suffisamment d'énergie, il peut à son tour faire éjecter par choc nucléaire un autre atome de la matière qui peut à son tour éjecter un nouvel atome engendrant ainsi une réaction en chaîne. Il se crée alors une cascade de déplacements qui s'arrête quand les énergies transférées deviennent inférieures à l'énergie seuil de déplacement. Pour les métaux, il s'agit de la principale source de création de défauts sous irradiation. La Figure II. 2 présente le type de résultat que peut donner les simulations de trajectoires et de collisions calculées par SRIM en mode "full cascade" dans du cuivre pur pour 10 000 ions Cu à une énergie de 600 keV.

On peut voir sur la première partie des courbes que les ions sont peu déviés et les dommages faibles, le ralentissement des ions étant principalement dû au freinage électronique. En fin de course, quand la vitesse des ions diminue, les déviations de trajectoire deviennent plus importantes et les chocs nucléaires plus probables.

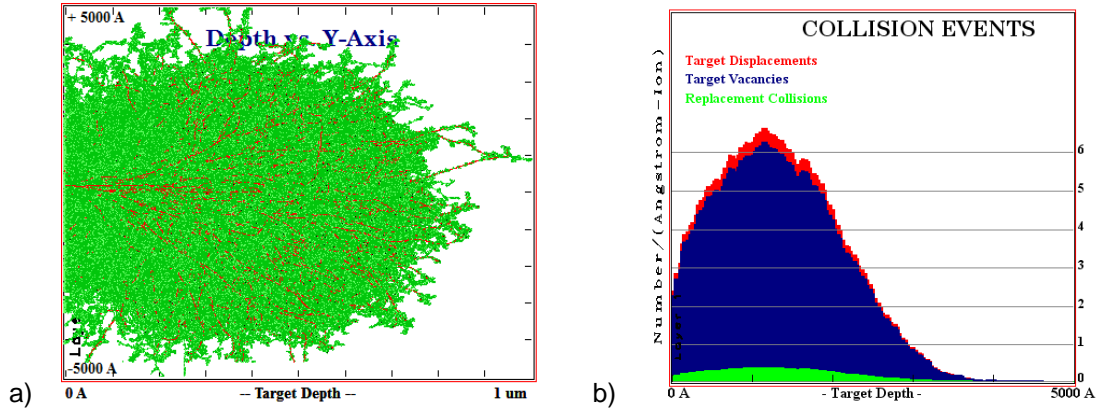


Figure II. 2 : (a) en rouge la trajectoire des ions Cu et en vert la trajectoire des atomes Cu de la cible, (b) les dommages calculés par SRIM.

La probabilité de transfert d'énergie $\frac{d\sigma}{dT}$ pour les ions est donnée par

$$\frac{d\sigma}{dT} = \frac{\pi}{4} b^2 \frac{T_{max}}{T^2}, \quad (II.3)$$

où T est l'énergie transférée, b est la distance d'approche minimale et T_{max} est l'énergie cinétique maximale qu'un ion peut donner à un atome. T_{max} est donnée par l'équation (II.2) en remplaçant la masse du neutron par celle de l'ion. Pour des particules de 1 MeV, la section efficace du cuivre est de 30 barns pour les neutrons, 600 barns pour les électrons et $2 \cdot 10^9$ barns pour les ions cuivre [2].

Les neutrons ont donc une probabilité de transfert d'énergie uniforme, indépendante de T tandis que les ions ont une probabilité de transfert plus importante à basse énergie. Pour reproduire au mieux les irradiations aux neutrons, il convient donc d'utiliser des ions lourds qui peuvent transférer de fortes énergies aux atomes de la matière.

II.1.2 Formation d'amas

Une fois l'atome éjecté de son site cristallin, il se crée une "paire de Frenkel" composée d'une lacune à l'emplacement initialement occupé par l'atome et d'un interstitiel qui correspond à l'atome inséré entre les atomes de la maille. Dans les structures cubiques, les interstitiels de même élément chimique que la matrice, les auto-interstitiels, n'occupent pas les sites interstitiels classiques [3]. Du fait des larges distorsions qu'ils induisent, les atomes auto-interstitiels interagissent élastiquement avec les atomes voisins. Ils partagent alors un nœud de la maille avec un deuxième atome pour former une structure en forme d'haltère. Cette structure d'haltère est alignée selon une direction $\langle 100 \rangle$ dans le cas des structures cubiques à faces centrées (CFC). Le mécanisme de migration est donc un peu plus complexe que dans le cas d'un atome interstitiel seul, il est généralement accepté que le processus se fait par rotation de l'haltère dans la structure comme sur la Figure II. 3.

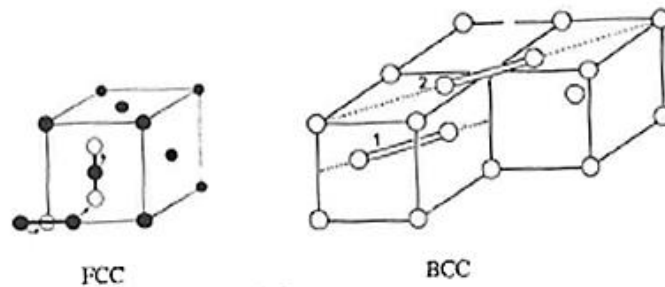


Figure II. 3 : Mécanismes de migration dans les structures cubiques [3].

Les enthalpies de formation des auto-interstitiels et des lacunes dans le cuivre sont respectivement de 3 eV et 1,28 eV. L'enthalpie de migration est de 0,72 eV pour les lacunes et 0,05 eV pour les interstitiels. A 300 K, le cuivre pur, dans l'équilibre thermodynamique et hors irradiation, compte en fraction atomique 10^{-15} % de lacunes et 10^{-65} % d'auto-interstitiels [4].

Les défauts ponctuels créés durant l'irradiation peuvent i) se recombiner, si l'interstitiel est dans un rayon de quelques centaines d'atomes autour d'une lacune, ii) se regrouper sous forme d'amas avec d'autres défauts du même type, iii) disparaître sur des puits du système cristallin (joints de grains, dislocations, précipités,...) [5]. Seuls les deux derniers cas conduisent à une modification de la microstructure observable en microscopie en transmission.

Dans les métaux purs, plusieurs types d'amas sont observables après irradiation dû au regroupement des défauts ponctuels : des défauts plans sous forme de boucles de dislocation, des défauts 3D sous forme de tétraèdres de fautes d'empilement (SFT) ou de cavités. Les boucles peuvent être des amas d'interstitiels ou de lacunes alors que les SFT et les cavités sont des amas purement lacunaires. Les SFT sont constitués de fautes d'empilement regroupées sur les quatre faces d'une pyramide formée par les plans {111}. Ils ne sont observés que dans les matériaux FCC. Kiritani [6] propose une analogie simple pour se représenter ce qu'est un SFT. Il suffit de prendre un tétraèdre de matière délimité par quatre plans {111}. On retire ensuite une des quatre faces de tétraèdre et on recentre le nouveau tétraèdre sur sa position originelle. L'amas obtenu est alors bien formé de quatre fautes d'empilement. Cette représentation permet de comprendre qu'un SFT est constitué du même nombre de lacunes qu'une boucle de dislocation triangulaire de la taille d'une des faces.

Les boucles de dislocations peuvent être parfaites si elles ne modifient pas l'ordre des plans atomiques ou de Frank si une faute d'empilement est créée. La Figure II. 4 montre des boucles de Frank observées dans le nickel après irradiation aux électrons à 500 °C au SRMA [7] et une représentation schématique des boucles parfaites et fautées dites de Frank.

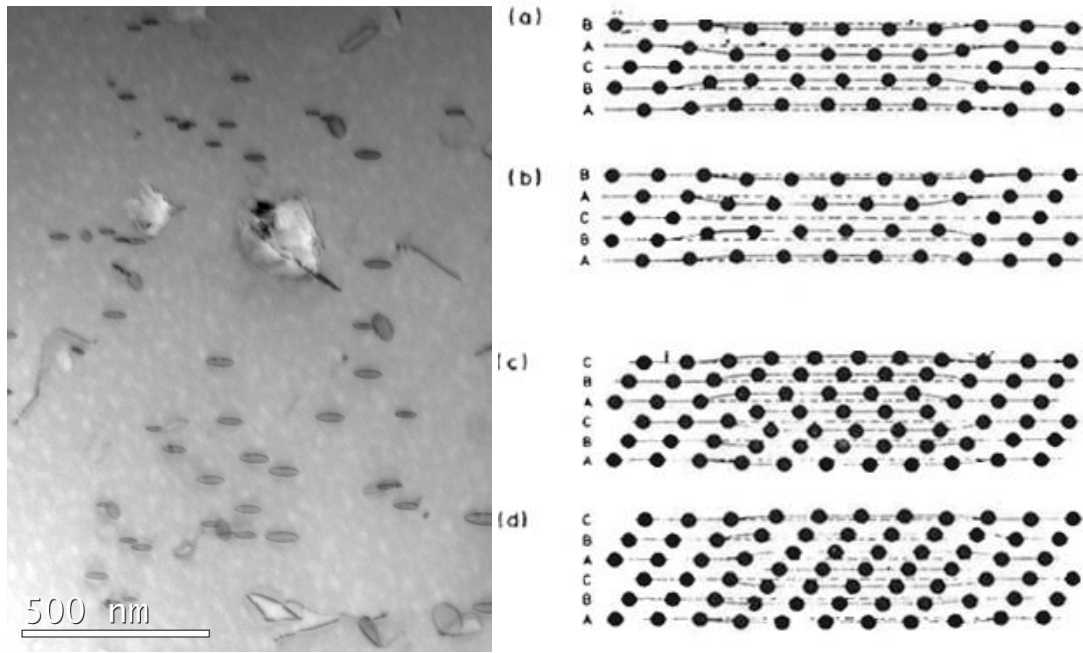


Figure II. 4 : Images MET de boucles de Frank dans le nickel après irradiation aux électrons [7] et représentation schématique de (a) une boucle de Frank lacunaire, (b) une boucle parfaite lacunaire, (c) une boucle de Frank interstitielle, et (d) une boucle parfaite interstitielle [8].

Dans les structures CFC, les boucles parfaites sont des boucles glissiles de vecteur de Burgers $\frac{1}{2}\langle 110 \rangle$. Les boucles de Frank sont des disques de faute d'empilement bordés d'une dislocation partielle, par conséquent ces boucles sont sessiles. Leur vecteur de Burgers est $\frac{1}{3}\langle 111 \rangle$. La forme des boucles comme celles des cavités peut être facettée ou non selon qu'elles suivent des plans cristallins. Le défautage des boucles de Frank, c'est-à-dire la transformation de boucles de Frank fautée en boucles parfaites, est possible. Il se fait soit en faisant apparaître des dislocations partielles de Schockley [8] selon la relation

$$\frac{1}{3} \langle 111 \rangle + \frac{1}{6} \langle 112 \rangle \rightarrow \frac{1}{2} \langle 110 \rangle, \quad (\text{II.4})$$

soit par des interactions avec les dislocations mobiles $\frac{1}{2} \langle 110 \rangle$, la boucle étant intégrée *in fine* au réseau de dislocations parfaites [9].

La Figure II. 5 montre une observation MET d'une boucle de Frank en train d'être défautée. Pour les boucles lacunaires, une seule partielle de Schockley suffit pour défauter une boucle de Frank. Pour les boucles interstitielles, deux partielles sont nécessaires, une glissant au-dessus du plan atomique ajouté et une en dessous [8].

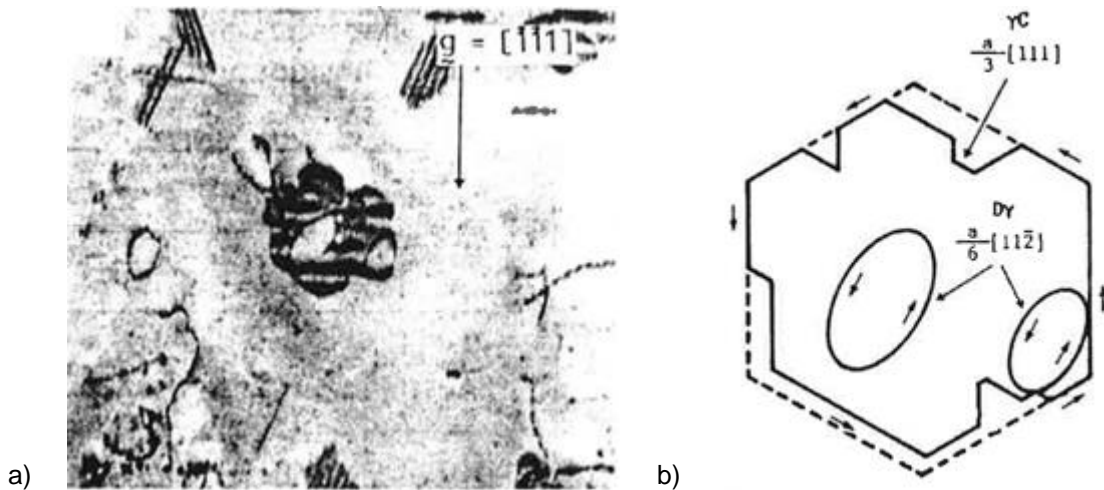


Figure II. 5 : a) une observation MET d'une boucle de Frank interstitielle dans un alliage métallique irradié au proton avec deux boucles de Schockley, b) une représentation schématique [10].

Il est généralement avancé que la formation de SFT se fait à partir d'une boucle de Frank triangulaire [6] selon le mécanisme de Silcox-Hirsch. Pour expliquer ce mécanisme, le tétraèdre de Thompson montre toute son utilité. Le tétraèdre est construit à partir des 4 plans {111} de la structure CFC, Figure II. 6 b). Les sommets du tétraèdre sont nommés à partir de lettres romaines (A, B, C, D) et les projections orthogonales des sommets sur les côtés opposés sont notées avec des lettres grecques (α , β , δ , γ). Chaque arête (entre deux lettres romaines) du tétraèdre est un vecteur de Burgers d'une dislocation parfaite $a/2\langle 110 \rangle$. Le vecteur entre une lettre romaine et la lettre grecque de la face opposée est le vecteur de Burgers d'une dislocation de type Frank $a/3\langle 111 \rangle$ et le vecteur entre une lettre romaine et une autre lettre grecque est un vecteur de Burgers d'une dislocation de Schockley $a/6\langle 112 \rangle$. Entre deux lettres grecques, on obtient un vecteur de Burgers d'une dislocation de type stair-rod $a/6\langle 110 \rangle$. Les plans opposés aux sommets A, B, C, D seront notés respectivement (a), (b), (c) et (d).

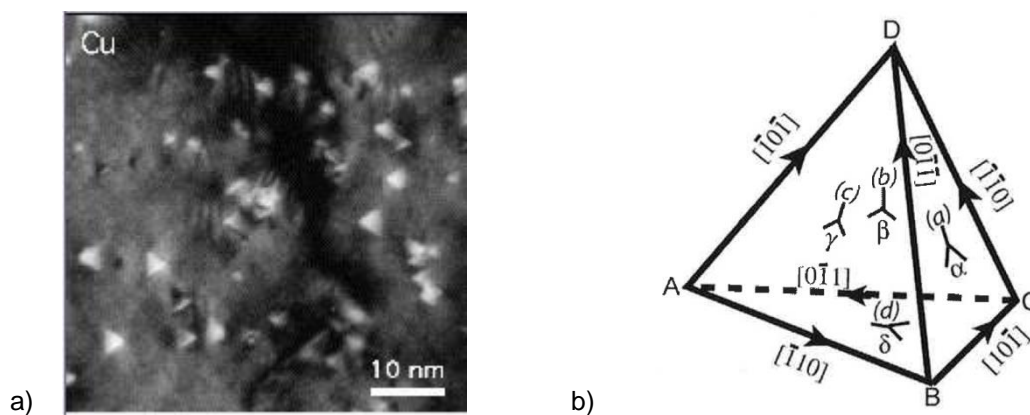


Figure II. 6 : a) SFT observés dans le cuivre irradié aux protons à 0.046 dpa (g 6g, $g=200$) [11] b) tétraèdre de Thompson d'après [10].

D'après le mécanisme de Silcox-Hirsch, une dislocation partielle de Frank peut se dissocier en une dislocation stair-rod de faible énergie et en une dislocation partielle de Schockley sur un plan de glissement interceptant la boucle selon la transformation :

$$\frac{1}{3} \langle 111 \rangle \rightarrow \frac{1}{6} \langle 112 \rangle + \frac{1}{6} \langle 110 \rangle. \quad (II.5)$$

L'énergie de faute d'empilement associée à ces dislocations étant proportionnelle à b^2 , la transformation précédente est énergétiquement favorisée. Ainsi, si des lacunes se regroupent dans

le plan (a) sous la forme d'un triangle équilatéral dont les côtés sont BC, CD, DB. Chaque arête de la boucle de Frank triangulaire peut se dissocier en une dislocation stair-rod sur chaque arête et en une dislocation de Schockley sur chacune des trois faces {111} restantes selon les transformations suivantes en reprenant les notations du tétraèdre de Thompson :

$$\alpha A \rightarrow \alpha\beta + \beta A \text{ sur (ACD)}, \quad (\text{II.6})$$

$$\alpha A \rightarrow \alpha\gamma + \gamma A \text{ sur (ABD)}, \quad (\text{II.7})$$

$$\alpha A \rightarrow \alpha\delta + \delta A \text{ sur (ABC)}. \quad (\text{II.8})$$

Les dislocations de Schockley sont ensuite repoussées par les dislocations stair-rod le long de leur plan de glissement. Ces dislocations sont ensuite attirées deux par deux pour former de nouvelles dislocations stair-rods partant du sommet A selon les transformations :

$$\beta A + A\gamma \rightarrow \beta\gamma \text{ le long de DA}, \quad (\text{II.9})$$

$$\gamma A + A\delta \rightarrow \gamma\delta \text{ le long de BA}, \quad (\text{II.10})$$

$$\delta A + A\beta \rightarrow \delta\beta \text{ le long de CA}. \quad (\text{II.11})$$

Le mécanisme est résumé sur la Figure II. 7. Il a été confirmé par Wirth et al. [12] en 2000 à l'aide de calculs de dynamique moléculaire comme un mécanisme de formation des SFT sous irradiation. Néanmoins, Schibli et Schaeublin soulignent en 2013 que ce sont les seules simulations donnant ce résultat [13].

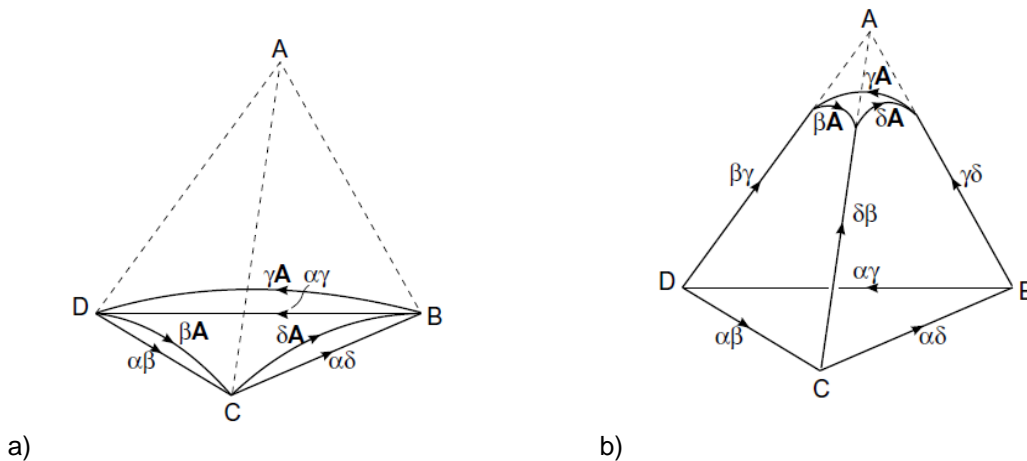


Figure II. 7 : Mécanisme Silcox-Hirsch de formation des SFT. a) dissociation de la boucle triangulaire, b) les dislocations de Schockley sont repoussées le long des plans de glissement [8].

Les SFT peuvent également, d'après les calculs de dynamique moléculaire, se former directement dans les cœurs des cascades de déplacements où la concentration de lacunes est forte [14]. Les structures formées sont néanmoins tronquées dans ces simulations. Des irradiations aux électrons qui n'induisent pas de cascades de déplacements dans le matériau mais créent des SFT montrent qu'il ne s'agit pas du seul mécanisme actif sous irradiation [15], [16]. Les SFT peuvent également se former après une déformation plastique lors d'un glissement dévié au niveau d'un

segment cranté d'une dislocation vis [8] ou lors de trempes qui créent une sursaturation de lacunes [17].

Selon le faisceau incident, la forme du SFT observée en MET diffère. La Figure II. 8 présente les projections orthogonales des SFT selon les faisceaux incidents les plus couramment utilisés pour l'observation de ces défauts. Pour différencier une boucle triangulaire ou un SFT tronqué d'un SFT parfait, il suffit de regarder le défaut selon un faisceau incident près de la direction [100] et un faisceau incident près de la direction [110] [18]. Près de [100], le SFT a une forme ressemblant à un carré [16]. Les meilleures conditions d'imagerie des SFT ont été calculées par Satoh et al. [19] : les SFT sont les plus visibles en faisceau faible loin des conditions de Bragg ($g, >5g, g=200$).

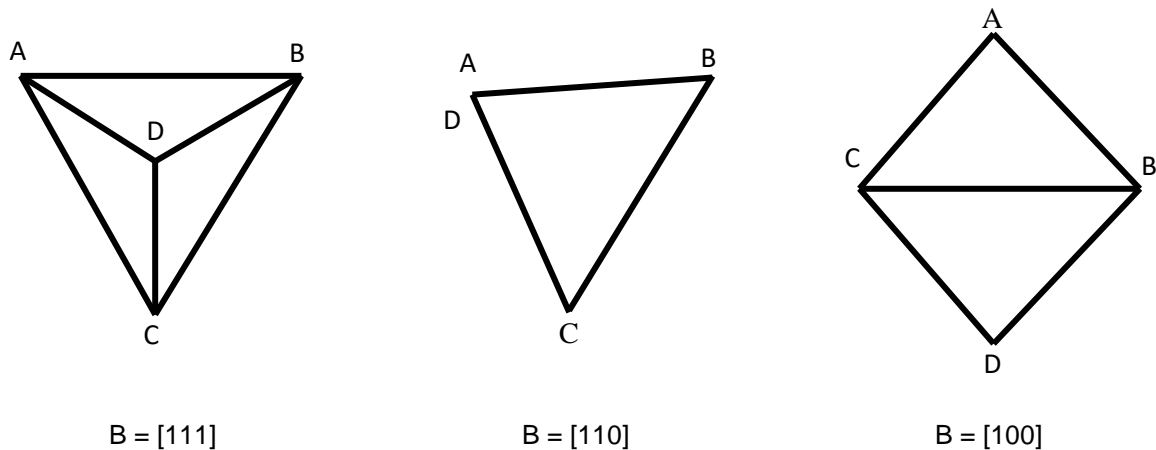


Figure II. 8 : Projections orthogonales des SFT selon divers faisceaux incidents.

II.1.3 Amas observés dans le cuivre

Le Tableau II. 1 liste quelques conditions d'irradiation et les amas de défauts observés en microscopie électronique en transmission. Ces amas sont principalement des SFT ou des boucles de Frank. La nature des défauts est principalement de type lacunaire [20] mais des boucles interstitielles peuvent être observés notamment près des dislocations [21], [22]. Ces dernières sont généralement de taille supérieure aux boucles lacunaires.

La formation de cavités dans le cuivre pur est sujette à la présence d'impuretés comme l'oxygène (> 10 ppm) ou l'hélium (>1 ppm) et à une température d'irradiation supérieure à 180 °C (pour des irradiations aux neutrons) [23]. L'apparition de cavités après irradiation dans le cuivre pur est donc souvent due soit à un cuivre de mauvaise qualité, soit à des implantations d'hélium avant [24] ou pendant l'irradiation [25], [26]. Dans les cuivres très purs, la formation de cavités n'intervient qu'à des températures élevées (> 400°C) [26], [27]. Les publications faisant état de cavités dans le cuivre n'ont pas été référencées dans le Tableau II. 1.

La densité volumique et la proportion de SFT visibles (rapport entre la densité de SFT mesurée et la densité totale d'amas) sont dépendantes de l'épaisseur de la lame mince observée. Plus l'épaisseur de la lame est faible et plus la proportion de SFT visibles est importante. Ainsi dans des conditions d'irradiation identiques, Proennecke [28] mesure une proportion de SFT de 40 % avec une épaisseur de lame supérieure à 80 nm alors que Dai et Victoria [29] comptent plus de 90 % de SFT avec une épaisseur de lame comprise entre 20 et 50 nm. Zinkle [18] a également mis en évidence, pour des irradiations aux neutrons, que la visibilité des petits amas était dépendante de l'épaisseur de la lame, Figure II. 9. Plus la lame est épaisse et plus le contraste avec la matrice en

faisceau faible est médiocre. L'épaisseur de lame étant un paramètre rarement donnée dans les publications, elle n'est pas reportée dans le Tableau II. 1 mais elle reste un paramètre primordial dans la qualité de la mesure du nombre de SFT visibles et de la densité totale de défauts visibles.

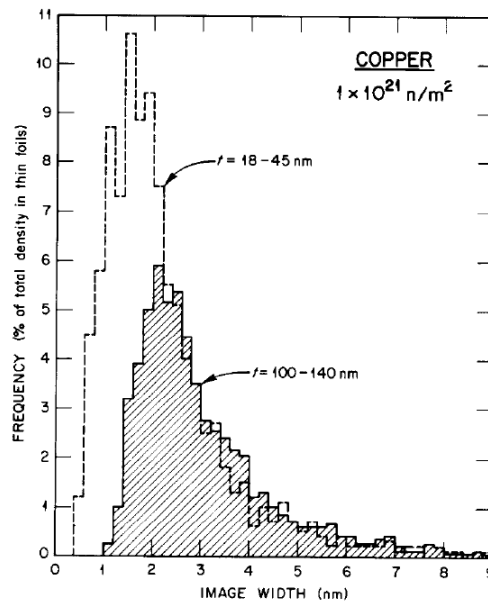


Figure II. 9: Comparaison de la proportion d'amas visibles entre une lame fine et une lame épaisse après une irradiation aux neutrons 14 MeV. Environ 1500 amas ont été comptés dans les deux cas. [18]

La résolution des microscopes électroniques en transmission ne permettait pas d'observer correctement les SFT présents dans le cuivre irradié avant les années 1980 [30]. Les premières lignes du Tableau II. 1 ne sont donc pas à prendre comme références pour caractériser la microstructure du cuivre après irradiation. Il est intéressant de noter que la proportion de SFT observée augmente au cours du temps, probablement en partie grâce au gain en résolution des microscopes électroniques.

Les irradiations aux électrons qui, à l'inverse des irradiations aux ions ou aux neutrons, ne créent pas de cascade de déplacements, ne sont pas mentionnées.

A la lecture du Tableau II. 1, il apparaît très nettement que pour des irradiations à une température modérée les amas de défauts observés dans le cuivre sont principalement des SFT avec une densité entre 10^{23} et 10^{24} SFT / m^3 et ceci de manière indépendante, au premier ordre, de la vitesse de création de l'endommagement.

La valeur de 0,1 dpa est généralement acceptée comme dose de saturation pour la formation de SFT [31]–[33]. La densité maximale de SFT est donc atteinte rapidement sous irradiation.

Type de particule et énergie	Température	flux	Energie seuil de déplacement (Ed)	Dose	Défauts observés	Densité totale de défauts mesurée	Année	Remarques	Ref
Cu 30 keV	20-400 °C	$1,6 \cdot 10^{10}$ ions.cm ⁻² .s ⁻¹	(25 eV)	(0,0078 dpa)	Boucles	$0,6 \cdot 10^{11}$ - $1,8 \cdot 10^{11}$ cm ⁻²	1976		[34]
Cu 5 - 38 MeV	ambiante	-	-	$5,6 \cdot 10^{12}$ ions.cm ⁻²	Boucles	$< 3 \cdot 10^{19}$ m ⁻³	1977		[35]
Cu 30 keV	ambiante	-	(25 eV)	($1,6 \cdot 10^{-3}$ dpa)	Boucles	-	1981		[36]
n 0.1 keV- 1 MeV	80-350 °C	$\sim 5 \cdot 10^{17}$ n.m ⁻² .s ⁻¹	-	$\sim 10^{22}$ n.m ⁻²	Boucles/ SFT	$\sim 10^{19}$ - 10^{22} m ⁻³	1985	8% SFT à 80°C, 90% à 350 °C. 13 % des boucles sont interstitielles	[20]
n 14 MeV	20 °C, 200 °C, 400 °C	-	-	$2,5 \cdot 10^{19}$ - $3,6 \cdot 10^{22}$ n.m ⁻²	SFT/ Boucles	10^{21} - 10^{24} m ⁻³	1985	50-60% de SFT à 20 et 200 °C. Boucles interstitielles près des dislocations (surtout à partir de 200 °C)	[37]
Cu 14 MeV	100-500° C	$5 \cdot 10^{16}$ ions.m ⁻² .s ⁻¹	29 eV	9 - 40 dpa	SFT/ boucles	$2,10^{22}$ - $1,4 \cdot 10^{23}$ m ⁻³	1986	SFT entre 30% (à 400°C) et 60% (à 100°C) des défauts observés. Boucles interstitielles observées	[21]
Cu 100 keV	30 °C	$3 \cdot 10^{14}$ ions.m ⁻² .s ⁻¹	25 eV	$1,10^{-3}$ - 0,03 dpa	Boucles	$2,10^{15}$ - $1,10^{16}$ m ⁻²	1987		[38]
n 0,1 MeV	182 °C	$1,7 \cdot 10^{-7}$ dpa.s ⁻¹	-	1,3 dpa	SFT/ boucles	$1,7 \cdot 10^{23}$ m ⁻³	1988	45 % SFT	[27]
n 14 MeV	ambiante	$1,5 \cdot 10^{-8}$ dpa. s ⁻¹	-	0,001 dpa	Boucles	$0,44 \cdot 10^{23}$ m ⁻³	1988		[27]
n	200 °C	-	-	$2,5 \cdot 10^{23}$ n.m ⁻²	Forte proportion de SFT	-	1991	Grandes boucles interstitielles observées	[39]
p 600 MeV	35 °C	$\sim 10^{-7}$ dpa. s ⁻¹	25 eV	$7,7 \cdot 10^{-4}$ - $1,10^{-3}$ dpa	SFT/ boucles	$6,9 \cdot 10^{22}$ - $8,8 \cdot 10^{22}$ m ⁻³	1992	30 % SFT, 40% boucles lacunaires, 30 % boucles interstitielles	[28]

p 600 MeV	350 °C	2.10^{-6} dpa/s	-	0,5 dpa	>70 % SFT	$1,2.10^{23}$ m ⁻³	1994		[40]
n	230 °C	$7,2.10^{-7}$ dpa. s ⁻¹	30 eV	0,1 - 0,25 dpa	> 90% SFT	$1,6.10^{23}$ m ⁻³	1995		[41]
p 600 MeV	35 °C	-	-	1.10^{-3} – $4,6.10^{-2}$ dpa	~90% SFT	9.10^{22} – $6,5.10^{23}$ m ⁻³	1997		[29]
p 600 MeV et n >1 MeV	30-60 °C	p : 5.10^{-7} dpa. s ⁻¹ n : $2,5.10^{17}$ n.m ⁻² .s ⁻¹	-	1.10^{-4} – 0,2 dpa	SFT	1.10^{22} – 7.10^{23} m ⁻³	2000		[32]
Cu 5 MeV	300 °C	-	-	45 dpa	SFT	$4,9.10^{22}$ m ⁻³	2000		[26]
n	100 °C	5.10^{-8} dpa. s ⁻¹	-	0,01 - 0,3 dpa	Forte proportion de SFT	$4,5.10^{23}$ m ⁻³	2001	Après 0,1 dpa les boucles interstitielles s'agglomèrent en en un réseau de segment de dislocations	[42]
n	80 °C	-	-	0,01 - 0,15 dpa	> 90 % SFT	$1,1.10^{23}$ – $1,4.10^{23}$ m ⁻³	2004	Morphologie SFT inchangée après recuit	[43]
p 590 MeV	50 °C	5.10^{-7} dpa/s	-	$4,6.10^{-2}$ dpa	90% SFT	-	2005		[11]
n	50 °C, 100 °C	5.10^{-8} dpa. s ⁻¹	-	0,01 - 0,3 dpa	Forte proportion de SFT	5.10^{23} m ⁻³	2005	A 0,1 dpa les boucles interstitielles sont regroupées sous forme d'agglomérats en radeau	[44]
n	65-100°C	-	-	0,013 - 0,92 dpa	~90 % SFT	$1,9.10^{23}$ – 7.10^{23} m ⁻³	2006	10% restant black dots	[45]
n 0.1 keV- 1 MeV	80, 150 °C	~ $1,5.10^{-8}$ dpa. s ⁻¹	-	0,0001 – 0,1 dpa	>90% SFT	1.10^{22} – $2,8.10^{23}$ m ⁻³	2007		[46]
n 0.1 keV- 1 MeV	50°C	5.10^{-8} dpa. s ⁻¹	-	1.10^{-2} – $3,8.10^{-2}$ dpa	~90 %SFT	$3,6.10^{23}$ – $5,2.10^{23}$ m ⁻³	2010		[47]
Cu 3 MeV	ambiante	~ 2.10^{11} ions.m ⁻² .s ⁻¹	-	0 - 0,56 dpa	Forte proportion de SFT	$< 13. 10^{22}$ m ⁻³	2013	Suivi <i>in situ</i> de la création de défauts	[31]

Tableau II. 1: Dommages d'irradiation observés par MET sous différentes conditions d'irradiation. Les valeurs entre parenthèse sont des valeurs calculées a *posteriori* à l'aide de SRIM.

II.2 Dommage d'irradiation dans les films de cuivre

Par rapport à des irradiations sur un cuivre massif à gros grains, deux paramètres supplémentaires peuvent influencer de manière significative sur la densité d'amas dans un film mince de cuivre en suspension : la faible taille de grain et la présence de deux surfaces libres. Ces deux types de défauts peuvent conduire, par effet de puits, à une diminution importante du nombre d'amas présents sous irradiation dans un film de cuivre.

II.2.1 Protocole expérimental

Afin d'étudier l'effet de la taille de grains du cuivre sur la densité de défauts, une campagne d'irradiations aux ions cuivre a été menée sur deux types de matériaux : un cuivre OFHC avec une taille de grains de plusieurs microns et un film de cuivre PVD de 500 nm déposé sur une tranche de silicium avec une taille de grains allant de quelques dizaines de nanomètres à plusieurs centaines.

Les irradiations ont lieu à température ambiante qui est la température d'intérêt dans cette étude. A cette température, les processus de diffusion sont limités.

L'énergie retenue pour les ions est de 600 keV. Au vu de la Figure II. 10, donnant les profils calculés par SRIM, on comprend que le film de cuivre n'est pas totalement irradié. Ainsi l'interface entre le silicium et le cuivre affecte très peu la densité d'amas observables dans l'échantillon. En effet, à température ambiante, la diffusion des défauts ponctuels est très limitée et ces derniers ne "voient" donc pas l'interface. Avec cette énergie, l'effet de la surface d'entrée est renforcé mais le seul paramètre variant significativement entre l'échantillon issu du cuivre massif et le film de cuivre est la taille de grains.

Les doses sont définies à partir des profils SRIM avec une énergie seuil de 25 eV et une inclinaison de l'échantillon à 7°. Cette inclinaison est appliquée afin d'éviter expérimentalement des phénomènes de canalisation des ions du fait de la texture {111} du film de cuivre. La dose référence de 1 dpa correspond à la dose moyenne valant 1 dpa sur les 200 premiers nanomètres obtenus pour une fluence de $1,6 \cdot 10^{14}$ ions/cm².

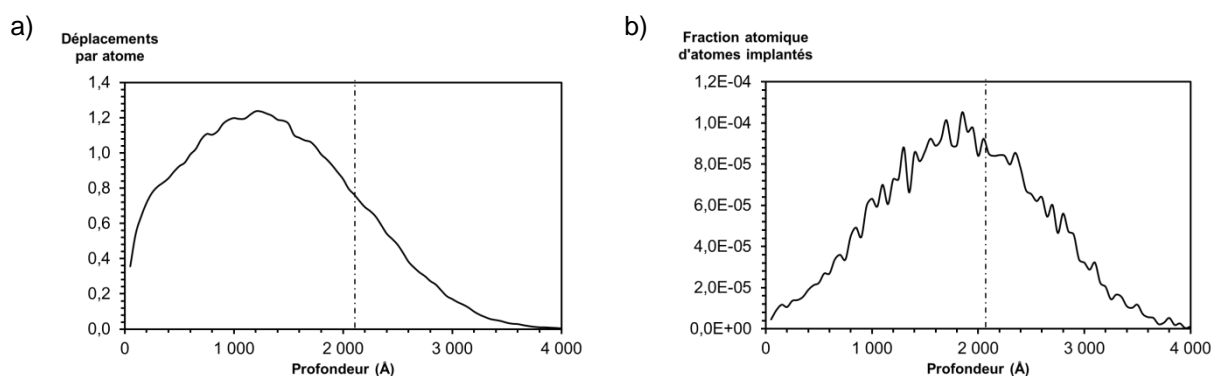


Figure II. 10: Profils SRIM pour des ions cuivre de 600 keV sur une cible de cuivre incliné à 7° donnant a) l'endommagement pour une dose de " 1 dpa et b) l'implantation.

Deux fluences, $1,6 \cdot 10^{14}$ et $1,1 \cdot 10^{15}$ ions/cm², ont été testées sur la plateforme du CSNSM à Orsay. Les doses équivalentes sont donc de 1 et 7 dpa selon la norme précédente. En plus de ne pas être homogène dans l'épaisseur, le dommage réel peut différer selon l'orientation des grains par

rapport au faisceau d'ions conduisant à des valeurs très différentes d'un grain à l'autre du fait de l'anisotropie de l'énergie seuil de déplacement. Néanmoins, la faible dose de saturation en amas de défauts, 0,1 dpa, permet de limiter l'importance de ce phénomène au moins pour ce qui concerne notre étude.

Une fois irradiés, les échantillons sont ensuite observés au MET pour caractériser la densité et la taille des SFT.

II.2.2 Préparation des échantillons

Les deux types d'échantillons sont irradiés en même temps sur le même porte objet. Les échantillons de cuivre OFHC à irradier se présentent sous la forme de lames MET polies une face en polissage électrolytique, Figure II. 11, tandis que le film est découpé en morceaux de 1 cm sur 2 cm et collé avec le substrat, au scotch carbone, sur le porte objet tenant les lames MET OFHC. Des lames FIB sont ensuite prélevées dans les films irradiés.

Après irradiation, un deuxième polissage électrolytique est appliqué sur les lames de cuivre OFHC en protégeant la face irradiée à l'aide d'un vernis. Le polissage est effectué avec la solution D2 de Struers à 20 °C sous une tension de 8 V.



Figure II. 11 : Réalisation de lames MET irradiées dans le cuivre OFHC.

Le film de cuivre PVD irradié est donc observé sur la tranche et le cuivre OFHC dans le plan de la surface irradiée. La découpe FIB utilise des ions gallium de quelques keV pour usiner l'échantillon. L'introduction de défauts d'irradiation près des surfaces sur quelques nanomètres est donc possible. Pour vérifier ce point, une lame FIB est prélevée dans un échantillon de cuivre OFHC non irradié. L'amincissement de la lame jusqu'à 100 nm d'épaisseur, est accompagné en parallèle d'une diminution progressive du courant du faisceau d'ions. La dernière étape de finition est effectuée dans des conditions de très faible endommagement, à une tension de 1 kV et un courant de 28 pA. Si des amas de défauts sont visibles près des bords épais de lame qui ont été exposés à de forts courants, il y a très peu d'amas de défauts ponctuels au centre de la lame. La Figure II. 12 montre une observation MET obtenue dans des conditions de diffraction pour l'observation des SFT, en faisceau faible (g , $3g$, $g=111$). On peut y voir des segments de dislocations mais pas d'amas de défauts. Il a donc été conclu à ce point que la réalisation de lame FIB dans le cuivre pouvait se faire sans introduction majeure de défauts d'irradiation qui pourraient, dans le cas contraire, fausser nos conclusions sur les effets de l'irradiation aux ions cuivre.

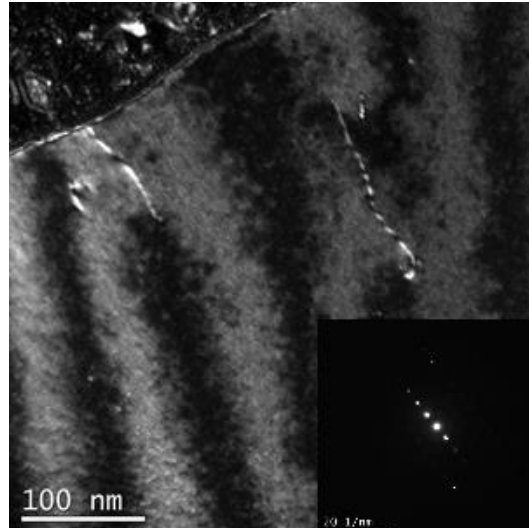


Figure II. 12 : Observation des lames FIB prélevées dans le cuivre OFHC.

Néanmoins, des lames FIB prélevées dans les mêmes conditions pour d'autres expériences dans des films de cuivre PVD viennent contrebalancer ce point. Des amas de défauts sont présents alors que ces films n'ont pas été exposés à des flux d'ions. Kiener et al. [48] avaient déjà souligné, il y a quelques années, la difficulté de faire des prélèvements FIB dans le cuivre sans altérer la microstructure. La Figure II. 13 montre que la quantité d'amas créés sur ces dernières lames n'est pas négligeable. La raison pour laquelle ces amas sont observés sur ces films et non sur le premier échantillon n'est pas connue.

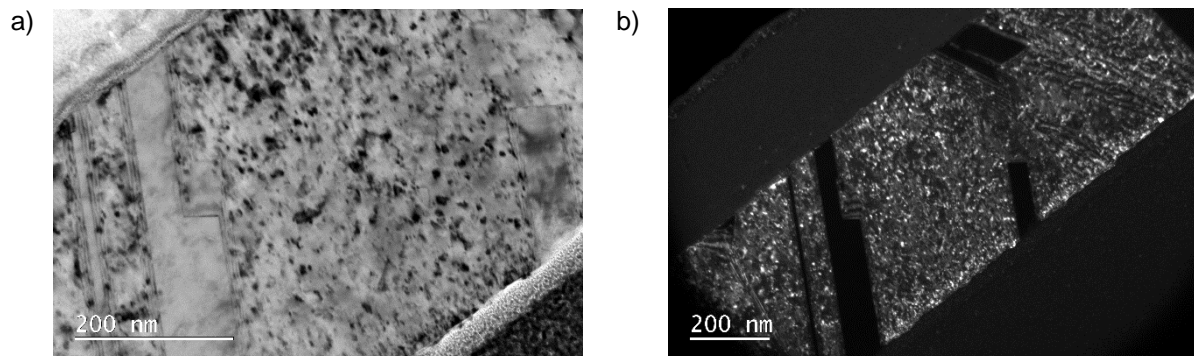


Figure II. 13: Endommagement observé sur des lames FIB non irradiées aux ions cuivre

En conclusion, il n'est pas certain que le FIB n'introduise pas défauts dans les échantillons de cuivre. Il doit donc être utilisé avec précaution. Pour une tension accélératrice de 5 kV, la cascade de déplacements engendrée par les ions gallium est contenue dans les 8 premiers nanomètres [48]. L'endommagement dû au FIB, s'il existe dans les lames irradiées, ne concerne en théorie que de fines régions situées près des surfaces.

II.2.3 Observations des dommages d'irradiation dans le cuivre

Toutes les observations MET mises en œuvre pour quantifier la densité et taille de SFT sont réalisées près d'un axe de zone [110] et en faisceau faible ($g > 3g$, $g 200$). La Figure II. 14 montre un champ clair et son équivalent en champs sombre-faisceau faible pour ces conditions de diffraction sur le cuivre irradié. Sur les lames MET de cuivre OFHC, plusieurs grains de plusieurs microns sont disponibles pour l'observation. De plus, plusieurs lames ont été irradiées en parallèles. Ces deux

points permettent de trouver facilement des zones de bonne qualité pour des observations à fort grossissement. Sur les lames FIB, seule une bande de 500 nm de large et 10 μm de long est disponible à l'observation. La faible taille de grains rend également l'observation plus difficile.

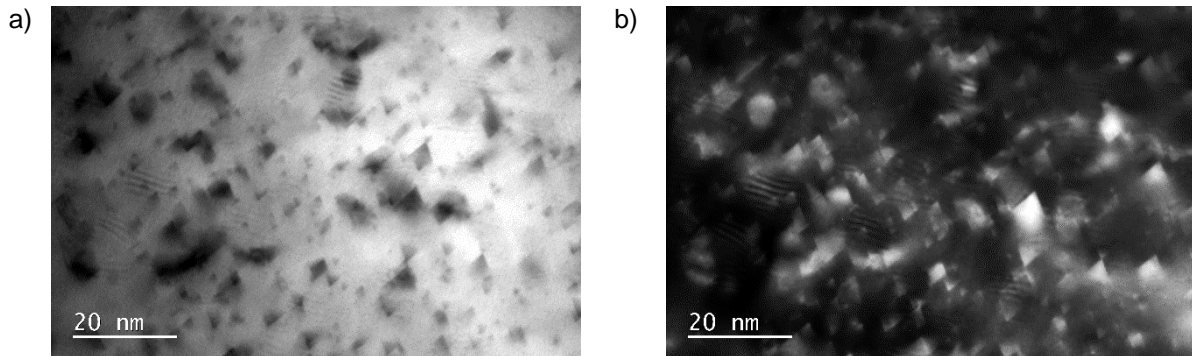


Figure II. 14: SFT observés dans une lame OFHC irradiée à 1 dpa en champs clair et faisceau faible avec un vecteur de diffraction 200.

La Figure II. 15 montrent quatre observations en faisceau faible des quatre échantillons. A ce grossissement, les SFT sont très largement majoritaires. Du fait de l'axe de zone choisi, les objets apparaissent sous la forme de triangles isocèles, Figure II. 8.

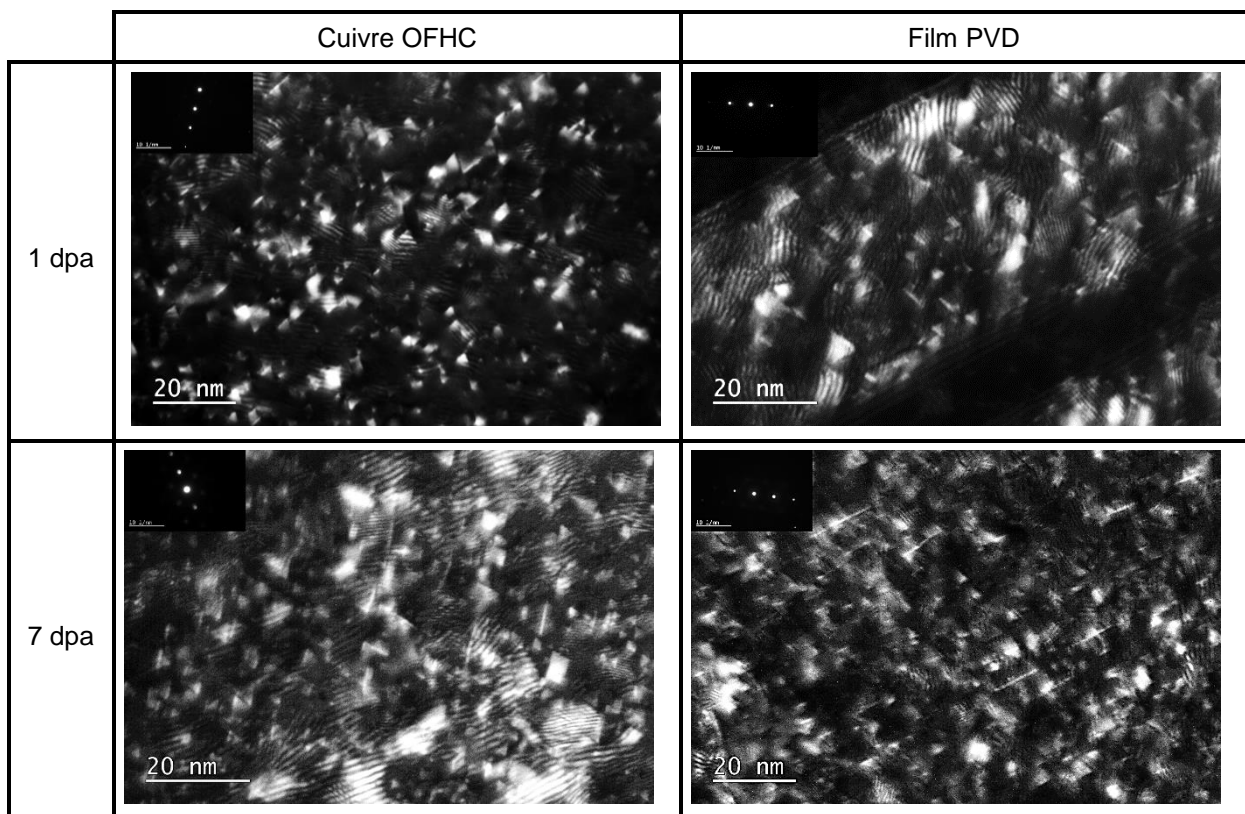


Figure II. 15 : Observations MET en faisceau faible $g=200$ du cuivre OFHC et du film PVD à 1 et 7 dpa.

Aucune cavité n'a été observée dans les échantillons après irradiation. Les boucles de dislocations sont nettement minoritaires par rapport aux SFT et n'ont pas été comptées avec précision. La proportion entre SFT et boucles de dislocations semble être en accord avec la littérature. Les boucles représentent moins de 10 % des amas des défauts visibles.

Le Tableau II. 2 récapitule les densités et les tailles mesurées de SFT pour chaque échantillon. Seuls les amas montrant une forme triangulaire nette et de contraste blanc sur fond noir sont pris en compte. Les formes présentant un contraste non identifiable ne sont pas comptées. En particulier les amas en dessous de 1 nm (black dots) ne sont pas répertoriés ici.

Les épaisseurs des lames sont systématiquement mesurées par EELS (Electron Energy Loss Spectroscopy). Les SFT sont ensuite tracés sur un logiciel de traitement d'images permettant de les compter et de mesurer les périmètres des formes tracées. Etant donné que les images sont faites près d'un axe de zone [110], les SFT sont isocèles. Un coefficient de 0,366 est appliqué au périmètre pour remonter à la longueur de l'arête.

On peut démontrer rapidement ce point en considérant le tétraèdre régulier ABCD, dont les sommets sont placés en A (a; 0; 0), B (0; a; 0), C (a; a; a) et D (0; 0; a). La projection orthogonale sur un plan de la famille {110} est équivalente à la projection sur un plan passant par deux sommets du tétraèdre et le milieu des deux autres sommets, Figure II. 8. Soit I (a/2; 0; a/2) le milieu de AD. Les côtés de même longueur du triangle isocèle vérifient alors la relation :

$$IB=IC= \frac{\sqrt{3}}{\sqrt{2}} a = \frac{\sqrt{3}}{2} AB. \quad (II.12)$$

Le périmètre de l'objet sur une image MET orientée près d'un axe de zone [110] est alors $P = 2*IB+AB = (1+\sqrt{3})AB$. Ce coefficient $(1+\sqrt{3})$ a été appliqué sur toutes les mesures de taille pour extraire la longueur de l'arête d'un SFT.

De plus, afin de ne pas biaiser la valeur moyenne extraite de différentes images à différents grossissements, la taille donnée dans le Tableau II. 2 est la moyenne des tailles mesurées sur chaque image pondérée par la densité volumique de SFT mesurée sur chaque image.

Les incertitudes données dans le Tableau II. 2 correspondent aux écarts-types statistiques. Le contraste des SFT est suffisamment net pour que les arêtes des tétraèdres puissent être mesurées avec une erreur de l'ordre de 0,8 nm. L'échantillon de cuivre PVD à 7 dpa est de mauvaise qualité. Très peu de photos de qualité suffisante ont pu être extraites. De plus ces photos sont nettement inférieures en qualité aux photos les plus abouties qui sont celles du cuivre OFHC à 1 dpa.

	Densité SFT (10^{23} m^{-3})	Taille SFT (nm)	Nombre de photos traitées	Nombre de SFT mesurés
Cuivre OFHC 1 dpa	$2,5 \pm 0,4$	$2,5 \pm 0,7$	5	369
Cuivre OFHC 7 dpa	$2,3 \pm 0,8$	$2,8 \pm 0,9$	12	1276
Cuivre PVD 1 dpa	$2,5 \pm 1,1$	$2,4 \pm 0,7$	9	640
Cuivre PVD 7 dpa	$2 \pm 0,3$	$2,8 \pm 0,7$	3	245

Tableau II. 2 : Observation MET en faisceau faible $g=200$ du cuivre OFHC et du film PVD à 1 et 7 dpa.

Au premier ordre, il n'y a pas de différence nette entre le cuivre OFHC et le film de cuivre PVD de 500 nm dans le régime de saturation en dose malgré une taille de grain présentant plusieurs ordres de grandeurs de différences (10 μm contre plusieurs dizaines de nanomètres). La plus petite taille de cristallite sondée dans le film de cuivre correspond à des nanomacles de 50 nm de large comme présenté sur la Figure II. 15.

La distribution en taille des SFT mesurés est donnée sur l'histogramme Figure II. 16. Les amas ont principalement des tailles entre 1 et 5 nm avec un pic autour de 2 nm. Aucun SFT de plus de 10 nm de large n'a été observé. La distribution est cohérente avec celle donnée par Zinkle sur la Figure II. 9 pour des lames entre 80 et 100 nm d'épaisseur.

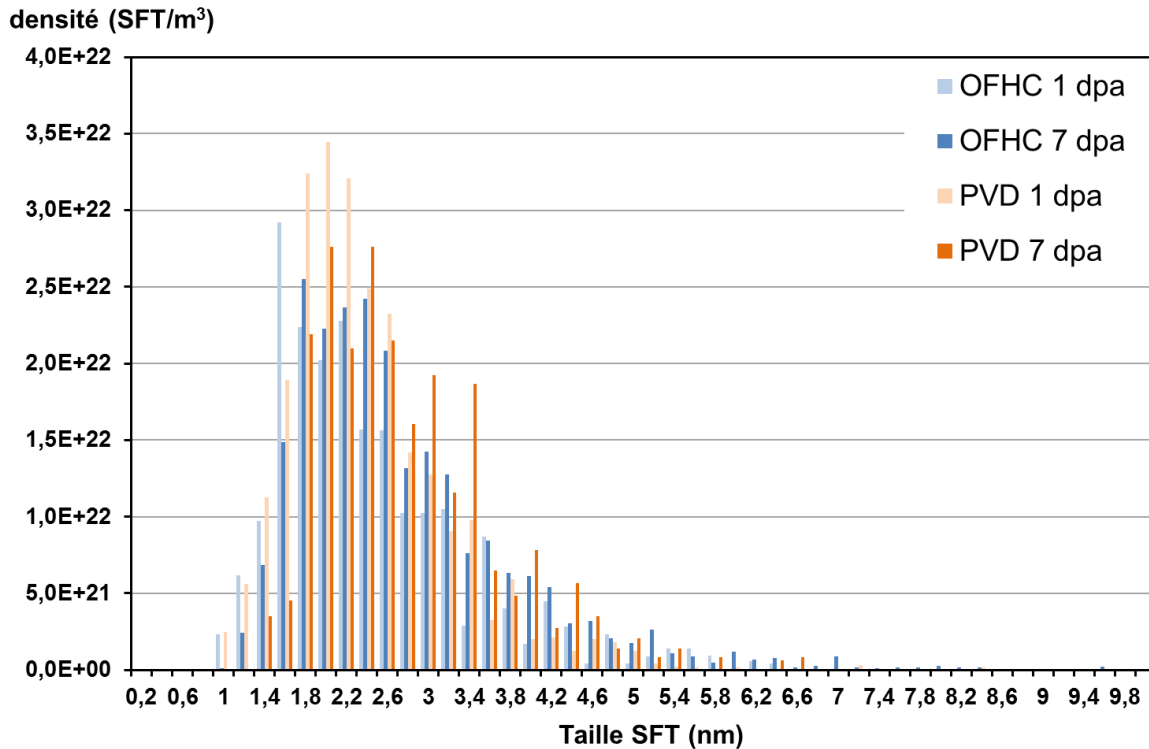


Figure II. 16 : Distribution en taille des SFT pour le cuivre OFHC 1 et 7 dpa et le cuivre PVD 1 et 7 dpa.

Il ne semble donc pas y avoir d'effet marqué de la taille de grain dans ces conditions d'irradiation. Il est important de ne pas oublier que l'épaisseur irradiée n'est que de 300 nanomètres, donc près d'une surface libre. De plus, l'étude concerne principalement des grains colonnaires avec des joints de grains quasi parallèles au faisceau d'ions. Ces deux points viennent limiter la généralisation des résultats obtenus ici.

L'effet de la surface libre semble tout de même limité. Les densités observées de SFT sont dans le même ordre de grandeur que celles relevées dans le Tableau II. 1 même si elles restent près de 4 fois inférieures aux densités maximales observées à saturation dans le cuivre [30], [32]. Ce faible effet de la surface libre est cohérent avec une formation des SFT par effondrement de la cascade de déplacements plutôt que par agglomération de lacunes suite à des mécanismes de diffusion plus sensibles aux puits.

Ce point peut expliquer également pourquoi la microstructure ultrafine du film de cuivre n'influence pas fortement la densité d'amas observée. Ce point est cohérent avec l'absence près des joints de grain de zones dénuées d'amas de défauts observée dans cette étude et dans la littérature [21], [43]. Ces zones sont observées par exemple dans les aciers et sont expliquées par la diffusion des défauts ponctuels vers les joints de grain [49]. La formation de SFT dans le cuivre semble donc indépendante de sa microstructure.

Ces observations en plus d'assurer la pertinence, pour les conditions d'irradiation utilisées, de nos expériences sur les micromachines, conduisent à penser que les joints de grains ne sont pas les puits dominants et que la microstructure d'irradiation et probablement le fluage sont essentiellement intragranulaires.

II.2.4 Irradiations *in situ*

Les observations *in situ* effectuées par Li [31] durant des irradiations aux ions cuivre et par Kiritani aux électrons [6] montrent des interactions importantes entre le faisceau de particules et les SFT. Les amas ne grossissent ou rétrécissent pas mais apparaissent et disparaissent sur l'écran montrant encore une fois l'importance de la cascade de déplacements dans la formation des SFT.

Une journée en octobre 2014 a été consacrée à l'irradiation d'échantillons de cuivre OFHC à JANNUS Orsay dans un MET sous faisceau d'ions cuivre à température ambiante. Sous irradiation les amas apparaissent et disparaissent de manière saccadée du fait du temps d'acquisition des images. Les images sont rafraichies environ toutes les 0,1 s en champs clair et le logiciel d'acquisition enregistre une capture d'écran environ toutes les 40 ms.

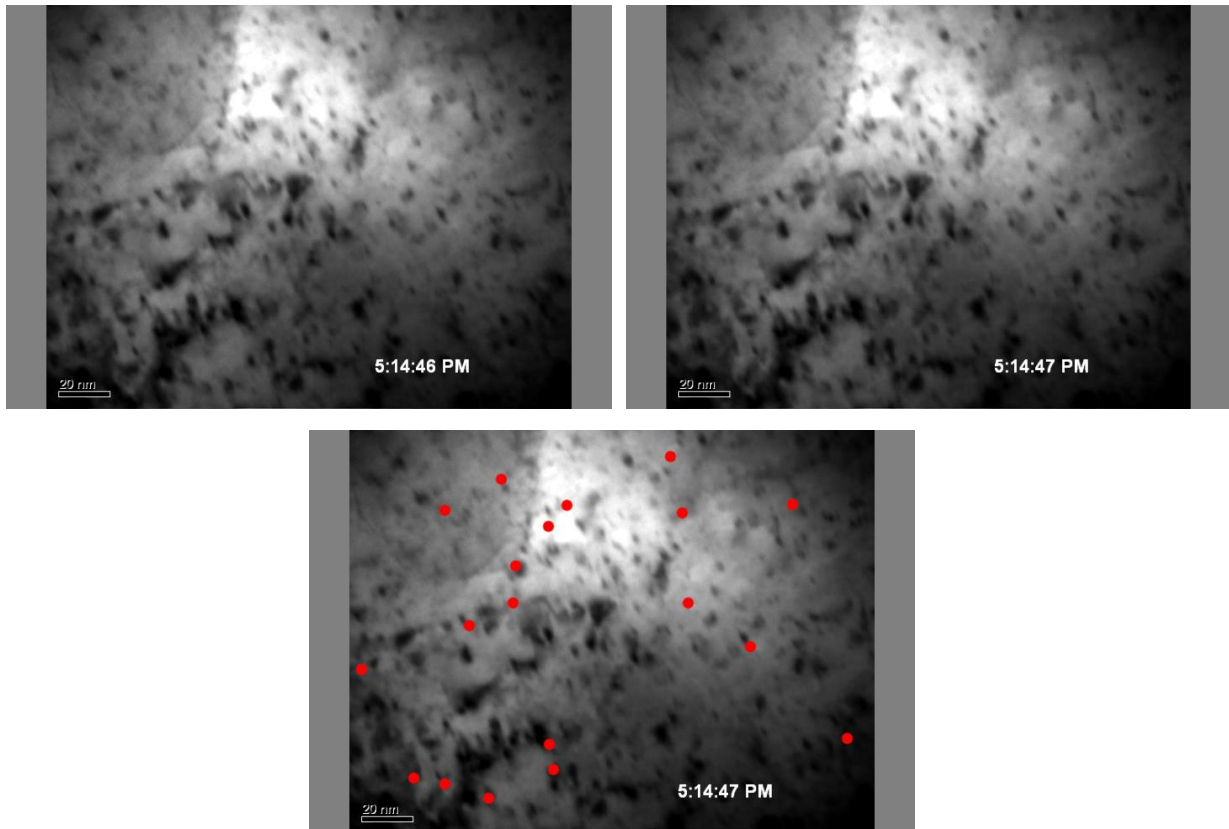


Figure II. 17 : Evènements observés sur une seconde. En rouge, les modifications de contrastes comptés.

Le flux d'ions d'énergie 300 keV est maintenu à une valeur de 6.10^{10} ions/cm²/s. La Figure II. 17 présente, en condition deux ondes, la microstructure durant l'irradiation à une seconde d'intervalle. A l'échelle de la Figure II. 17, il arrive en moyenne 20 ions par seconde sur la surface de l'image d'après le flux mesurée. Si on dénombre le nombre d'évènements (changement local de contraste) qui sont observés sur 1 s, on identifie 19 évènements entre les deux images indiquant un bon accord entre le nombre d'ions arrivant sur l'image et le nombre d'évènements se produisant dans la lame. Ceci suggère que chacun des évènements observés correspond à un ion incident.

En accord avec les observations de Li et Kiritani, des amas, probablement des SFT, disparaissent et apparaissent au gré des interactions avec le faisceau d'ion. Certains semblent se déplacer comme l'amas repéré par la flèche rouge sur la Figure II. 18 et d'autres apparaissent spontanément comme l'amas repéré par une flèche verte. Les deux images correspondent à deux prises de photos successives.

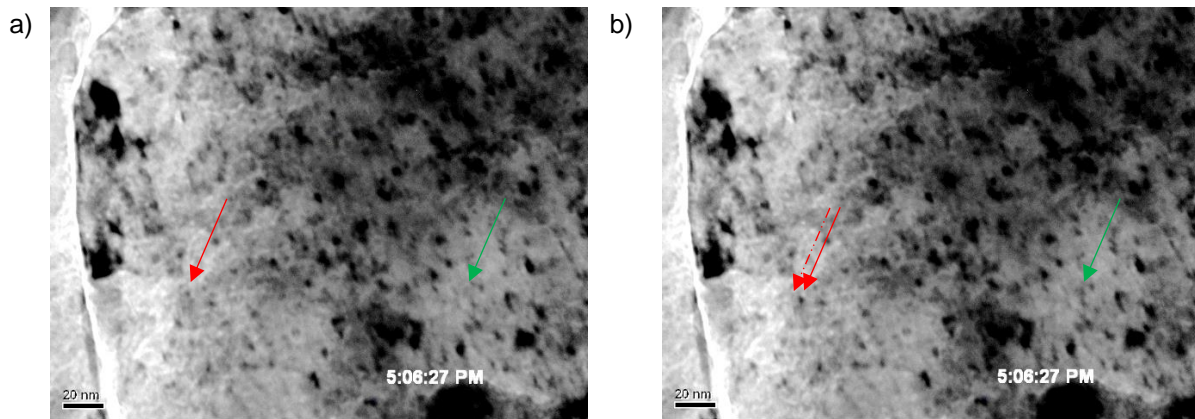


Figure II. 18: Création et disparition d'amas de défaut sous faisceau d'ions

Les interactions avec la cascade de déplacements et les SFT semblent donc bien conduire à un équilibre entre annihilation des SFT existants et création de nouveaux SFT à l'origine de la saturation. Il ne semble pas y avoir de grandissement ou de rétrécissement de SFT à température ambiante durant l'irradiation. Le mécanisme d'interaction est trop rapide pour être "capturé" par la caméra et seules des créations et annihilations de SFT sont visibles durant l'observation.

En revanche, des amas ressemblant à des boucles de dislocations semblent évoluer en taille sur des durées de plusieurs secondes. On peut voir un amas, probablement une boucle de dislocation, rétrécir et disparaître sur la Figure II. 19 probablement du fait d'un flux de défauts ponctuels vers l'amas. Ces longues durées sont plus compatibles avec des mécanismes de diffusion ou d'émission qu'avec des interactions directes avec la cascade de déplacements qui n'a une durée de vie que de l'ordre de quelques picosecondes.

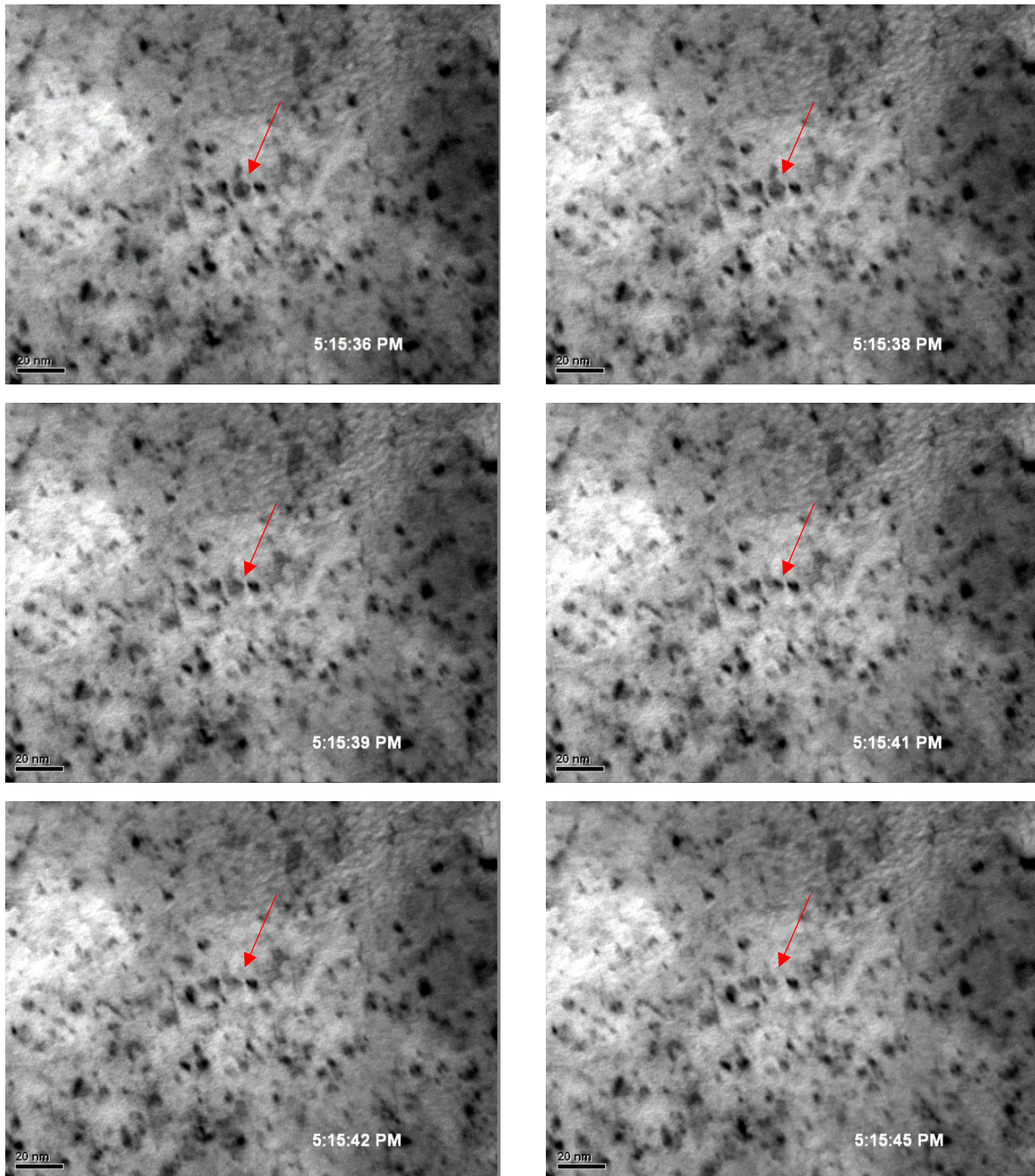


Figure II. 19 : Disparition progressive sur plusieurs secondes d'une boucle de dislocation

II.3 Conclusion

La réalisation de lames MET par FIB semble introduire des défauts d'irradiation. Néanmoins le résultat des observations ne montrent pas d'influence majeure de la méthode de réalisation de lames minces pour la quantification des amas dans le cuivre.

Les amas de défauts dans le cuivre après irradiation aux ions sont essentiellement des SFT de petites tailles, 2,5 nm et en grand nombre, $2,5 \cdot 10^{23} \text{ m}^{-3}$. Il n'y a pas de différences significatives entre le cuivre OFHC à gros grains et le cuivre PVD à petits grains. La microstructure du matériau ne semble

donc pas jouer un rôle important dans la formation et la croissance des amas. Le film mince est représentatif du cuivre massif irradié hors contrainte pour ce qui concerne l'évolution de la microstructure après irradiation.

Les SFT semblent se former directement suite à la cascade de déplacements. Les faibles vitesses d'acquisition de l'image ne permettent pas de capturer la formation ou la destruction de SFT. Les objets semblent apparaître ou disparaître d'une image à l'autre. Les mécanismes de diffusion ne semblent pas conduire au grandissement ou au rétrécissement des SFT sous irradiation comme c'est le cas pour les boucles de dislocations.

Ces défauts sont constitués de dislocations partielles et sont donc sessiles. Le caractère durcissant de ces objets n'est pas à négliger [50], ils constituent de vrais obstacles pour le glissement des dislocations sous contrainte.

Les boucles de dislocation n'ont pas fait l'objet d'une caractérisation approfondie comme les SFT. Les observations sont en accords avec la littérature. Leur nombre représente moins de 10 % des amas de défauts visibles. Les mécanismes de déformations basés sur ces amas tels que le SIPN ou le SIPA ont donc une importance moindre dans le cuivre que dans d'autres métaux.

Jusqu'à 7 dpa, aucune cavité n'est observée. Il n'y a donc pas eu de gonflement, accroissement du volume, sous irradiation par déplacement de matière.

Références Bibliographiques II

- [1] W. King, K. Merkle, and M. Meshii, "Determination of the threshold-energy surface for copper using in-situ electrical-resistivity measurements in the high-voltage electron microscope," *Phys. Rev. B*, vol. 23, no. 12, pp. 6319–6334, Jun. 1981.
- [2] S. J. Zinkle, "Radiation-Induced Effects on Microstructure," in *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier, 2012, pp. 65–98.
- [3] A. Barbu and G. Martin, "Radiation Effects in Metals and Alloys," *Solid State Phenom.*, vol. 30–31, pp. 179–228, 1992.
- [4] F. Garrido, "2013 international school in nuclear engineering-course 4," INSTN Saclay, 2013.
- [5] C. Lemaignan and Institut National des Sciences et Techniques Nucléaires, *Science des matériaux pour le nucléaire*. Les Ulis, France: EDP Sciences, 2004.
- [6] M. Kiritani, "Story of stacking fault tetrahedra," *Mater. Chem. Phys.*, vol. 50, no. 2, pp. 133–138, Sep. 1997.
- [7] J. Henry, *unpublished*.
- [8] D. Hull and D. J. Bacon, *Introduction to dislocations*. Oxford: Butterworth-Heinemann, 2011.
- [9] G. S. Was, *Fundamentals of radiation materials science: metals and alloys*. Berlin ; New York: Springer, 2007.
- [10] J. S. Robach, "Dislocation-defect interactions in irradiated and quenched FCC metals," University of Minnesota Minneapolis St. Paul, 2003.
- [11] R. Schaeublin, Z. Yao, N. Baluc, and M. Victoria, "Irradiation-induced stacking fault tetrahedra in fcc metals," *Philos. Mag.*, vol. 85, no. 4–7, pp. 769–777, Jan. 2005.
- [12] B. . Wirth, V. Bulatov, and T. Diaz de la Rubia, "Atomistic simulation of stacking fault tetrahedra formation in Cu," *J. Nucl. Mater.*, vol. 283–287, pp. 773–777, Dec. 2000.
- [13] R. Schibli and R. Schäublin, "On the formation of stacking fault tetrahedra in irradiated austenitic stainless steels – A literature review," *J. Nucl. Mater.*, vol. 442, no. 1–3, pp. S761–S767, Nov. 2013.
- [14] Y. . Osetsky and D. . Bacon, "Defect cluster formation in displacement cascades in copper," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 180, no. 1–4, pp. 85–90, Jun. 2001.
- [15] A. Seeger, N. Y. Jin, F. Phillipp, and M. Zaiser, "The study of self-organization processes in crystals by high-voltage electron microscopy," *Ultramicroscopy*, vol. 39, no. 1–4, pp. 342–354, Nov. 1991.
- [16] Y. Satoh, T. Yoshiie, H. Mori, and M. Kiritani, "Formation of stacking-fault tetrahedra in aluminum irradiated with high-energy particles at low-temperatures," *Phys. Rev. B*, vol. 69, no. 9, Mar. 2004.
- [17] B. . Singh, S. . Golubov, H. Trinkaus, D. . Edwards, and M. Eldrup, "Review: Evolution of stacking fault tetrahedra and its role in defect accumulation under cascade damage conditions," *J. Nucl. Mater.*, vol. 328, no. 2–3, pp. 77–87, Jul. 2004.
- [18] S. J. Zinkle, "Microstructure and properties of copper alloys following 14-mev neutron irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 150, no. 2, pp. 140–158, Oct. 1987.
- [19] Y. Satoh, H. Taoka, S. Kojima, T. Yoshiie, and M. Kiritani, "Diffraction contrast images of small stacking fault tetrahedra in f.c.c. metals," *Philos. Mag. A*, vol. 70, no. 5, pp. 869–891, Nov. 1994.
- [20] J. W. Muncie, B. L. Eyre, and C. A. English, "Low-dose neutron irradiation damage in copper. I. Vacancy loop production," *Philos. Mag. A*, vol. 52, no. 3, pp. 309–331, Sep. 1985.
- [21] S. J. Zinkle, G. L. Kulcinski, and R. W. Knoll, "Microstructure of copper following high dose 14-MeV Cu ion irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 138, no. 1, pp. 46–56, Mar. 1986.
- [22] N. Yoshida, K. Kitajima, and E. Kuramoto, "Evolution of damage structures under 14MeV neutron, 4MeV Ni ion and 1.25MeV electron irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 122, no. 1–3, pp. 664–668, May 1984.

- [23] S. J. Zinkle, "Copper and copper alloys," presented at the Effects of radiation on materials: 15th international, 1992, vol. ASTM STP 1125, pp. 813–834.
- [24] D. J. Mazey and F. Menzinger, "Resistance to void formation of Cu-Ni alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 48, no. 1, pp. 15–20, Aug. 1973.
- [25] J. A. Spitznagel, N. J. Doyle, W. J. Choyke, J. G. Gregg, J. N. McGruer, and J. W. Davis, "Ion irradiation effects on high strength, high conductivity copper alloys," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 16, no. 2–3, pp. 279–287, Jun. 1986.
- [26] I. Mukouda, Y. Shimomura, T. Iiyama, Y. Harada, Y. Katano, T. Nakazawa, D. Yamaki, and K. Noda, "Microstructure in pure copper irradiated by simultaneous multi-ion beam of hydrogen, helium and self ions," *J. Nucl. Mater.*, vol. 283–287, pp. 302–305, Dec. 2000.
- [27] S. J. Zinkle and R. L. Sindelar, "Defect microstructures in neutron-irradiated copper and stainless steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 155–157, pp. 1196–1200, Jul. 1988.
- [28] S. Proennecke, "Etude des dégâts d'irradiation créés par les cascades de déplacements de hautes énergies dans le cuivre et l'or," Ecole polytechnique fédérale de Lausanne, 1992.
- [29] Y. Dai and M. Victoria, "Defect Cluster Structure and Tensile Properties of Copper Single Crystals Irradiated With 600 MeV Protons," *MRS Proc.*, vol. 439, 1997.
- [30] B. N. Singh and S. J. Zinkle, "Defect accumulation in pure fcc metals in the transient regime: a review," *J. Nucl. Mater.*, vol. 206, no. 2–3, pp. 212–229, Nov. 1993.
- [31] N. Li, K. Hattar, and A. Misra, "In situ probing of the evolution of irradiation-induced defects in copper," *J. Nucl. Mater.*, vol. 439, no. 1–3, pp. 185–191, Aug. 2013.
- [32] M. Victoria, N. Baluc, C. Bailat, Y. Dai, M. Lupp, R. Schäublin, and B. N. Singh, "The microstructure and associated tensile properties of irradiated fcc and bcc metals," *J. Nucl. Mater.*, vol. 276, no. 1–3, pp. 114–122, Jan. 2000.
- [33] M. Li and S. J. Zinkle, "Physical and Mechanical Properties of Copper and Copper Alloys," in *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier, 2012, pp. 667–690.
- [34] C. A. English, B. L. Eyre, and J. Summers, "Influence of irradiation temperature on self-ion damage in copper," *Philos. Mag.*, vol. 34, no. 4, pp. 603–614, Oct. 1976.
- [35] J. Narayan, O. S. Oen, and T. S. Noggle, "Ion radiation damage in copper," *J. Nucl. Mater.*, vol. 71, no. 1, pp. 160–170, Dec. 1977.
- [36] A. Y. Stathopoulos, "The study of heavy-ion damage in pure copper," *Philos. Mag. A*, vol. 44, no. 2, pp. 285–308, Aug. 1981.
- [37] N. Yoshida, Y. Akashi, K. Kitajima, and M. Kiritani, "Formation of secondary defects in copper by 14 MeV neutron irradiation and their effects on microstructure evolution," *J. Nucl. Mater.*, vol. 133–134, pp. 405–409, Aug. 1985.
- [38] M. A. Kirk, I. M. Robertson, M. L. Jenkins, C. A. English, T. J. Black, and J. S. Vetrano, "The collapse of defect cascades to dislocation loops," *J. Nucl. Mater.*, vol. 149, no. 1, pp. 21–28, Jun. 1987.
- [39] K. Yamakawa, A. Kojima, and Y. Shimomura, "Types of damages in fission-neutron irradiated Cu and Cu dilute alloys at 200 °C," *Sci. Rep. Res. Inst. Tohoku Univ. Ser. -Phys. Chem. Metall.*, vol. 35, no. 2, pp. 377–382, Feb. 1991.
- [40] B. N. Singh and A. Horsewell, "Effects of fission neutron and 600 MeV proton irradiations on microstructural evolution in OFHC-copper," *J. Nucl. Mater.*, vol. 212–215, pp. 410–415, Sep. 1994.
- [41] S. J. Zinkle and L. L. Snead, "Microstructure of copper and nickel irradiated with fission neutrons near 230°C," *J. Nucl. Mater.*, vol. 225, pp. 123–131, Aug. 1995.
- [42] B. N. Singh, D. Edwards, and P. Toft, "Effect of neutron irradiation and post-irradiation annealing on microstructure and mechanical properties of OFHC-copper," *J. Nucl. Mater.*, vol. 299, no. 3, pp. 205–218, Dec. 2001.
- [43] S. A. Fabritsiev, A. S. Pokrovsky, and S. E. Ostrovsky, "Effect of the irradiation–annealing–irradiation cycle on the mechanical properties of pure copper and copper alloy," *J. Nucl. Mater.*, vol. 324, no. 1, pp. 23–32, Jan. 2004.

- [44] D. J. Edwards, B. N. Singh, and J. B. Bilde-Sørensen, "Initiation and propagation of cleared channels in neutron-irradiated pure copper and a precipitation hardened CuCrZr alloy," *J. Nucl. Mater.*, vol. 342, no. 1–3, pp. 164–178, Jun. 2005.
- [45] N. Hashimoto, T. S. Byun, and K. Farrell, "Microstructural analysis of deformation in neutron-irradiated fcc materials," *J. Nucl. Mater.*, vol. 351, no. 1–3, pp. 295–302, Jun. 2006.
- [46] S. A. Fabritsiev and A. S. Pokrovsky, "Effect of irradiation temperature on microstructure, radiation hardening and embrittlement of pure copper and copper-based alloy," *J. Nucl. Mater.*, vol. 367–370, pp. 977–983, Aug. 2007.
- [47] J. Pakarinen, "Quantitative analysis of irradiation defects of in-reactor tested copper by weak beam method in TEM," VTT, research report VTT-R-07064-10, 2010.
- [48] D. Kiener, C. Motz, M. Rester, M. Jenko, and G. Dehm, "FIB damage of Cu and possible consequences for miniaturized mechanical tests," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 459, no. 1–2, pp. 262–272, Jun. 2007.
- [49] S. Watanabe, "Theoretical prediction and direct observation of dislocation-free zone formation near a grain boundary in austenitic stainless steel under electron irradiation," *Philos. Mag. Lett.*, vol. 74, no. 5, pp. 351–356, Nov. 1996.
- [50] R. Schäublin, Z. Yao, P. Spätig, and M. Victoria, "Dislocation defect interaction in irradiated Cu," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 400–401, pp. 251–255, Jul. 2005.

Chapitre III

“ Lab-on-chips ” nanomécaniques

III.1 Le principe des “ lab-on-chips ”	4
III.2 Procédés de fabrication du lab-on-chip.....	4
III.2.1 Etapes de fabrication	4
III.2.2 La couche sacrificielle	4
III.2.3 L’actuateur	4
III.2.4 Le film métallique	4
III.3 Description des configurations de micromachines.....	4
III.3.1 Séries B/BT	4
III.3.2 Séries T/TT	4
III.3.3 Extraction des contraintes internes.....	5
III.3.4 Echantillons MET	5
III.4 Adaptation aux conditions d’irradiations.....	5
III.4.1 Relaxation des contraintes dans le nitrure de silicium.....	5
III.4.2 Protection de l’actuateur sous irradiation.....	5
III.4.3 Echantillons placés sous irradiation.....	5
III.5 Traitement des données.....	5
III.6 Conclusion.....	6

Ce chapitre présente, en détail, la technique expérimentale permettant de déformer des films minces métalliques. Des micromachines de traction sont reproduites sur des tranches de silicium.

III.1 Le principe des “ lab-on-chips ”

Le terme de “ systèmes microélectromécaniques ” (MEMS) est un terme générique décrivant un assemblage, sur un même composant, d’actionneurs, de capteurs et de systèmes électroniques. On parle également de “ lab-on-chips ” quand des structures microscopiques transposent des expériences macroscopiques sur des tranches de monocristal de silicium.

Les “ micromachines ”, à l’étude dans cette thèse, ont été conçues à l’Université catholique de Louvain-La-Neuve (UCL) par les équipes de Thomas Pardoën et Jean-Pierre Raskin Figure III. 1. Ces dispositifs permettent de réaliser des essais de traction statiques à l’échelle micrométrique sur des films métalliques mis en forme par photolithographie sur des substrats de silicium. Ce ne sont pas des MEMS à proprement parler puisqu’ils n’intègrent pas de composant électronique mais le concept se base sur des procédés de fabrication de MEMS. La contrainte est appliquée par le relâchement des contraintes internes dans un film actuateur. Ces contraintes internes peuvent provenir du dépôt lui-même ou bien des incompatibilités de dilatation thermique entre les différentes couches.

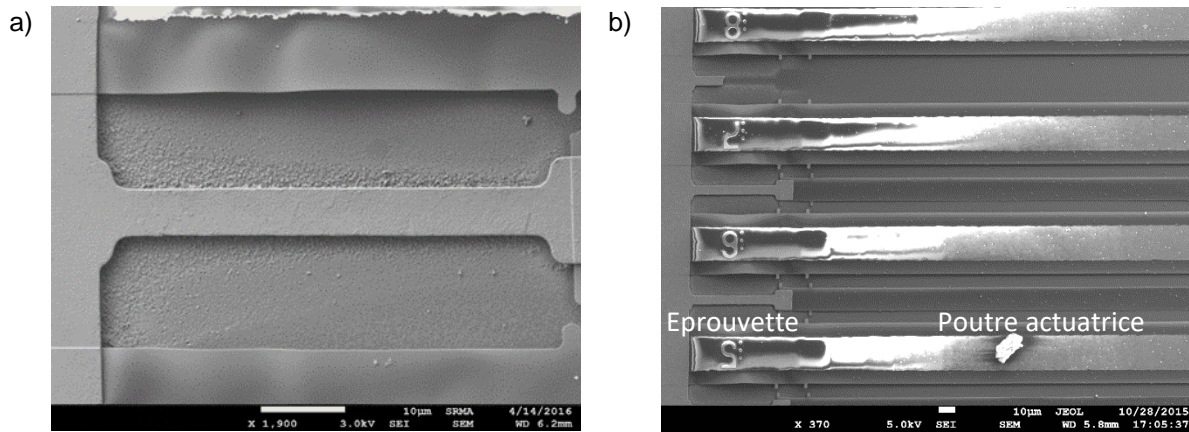


Figure III. 1: a) géométrie des éprouvettes, b) vue de plusieurs micromachines de traction comprenant une poutre échantillon et une poutre actuatrice.

Les dispositifs développés à l'UCL ne sont composés que de trois éléments : le film "échantillon" étudié, une couche "actuateur" servant à l'application et à la mesure des contraintes et une couche sacrificielle permettant de relâcher les contraintes dans l'actuateur lors de son retrait par gravure chimique.

Comme représenté sur la Figure III. 2, chaque microéprouvette permet de reconstituer un point de la courbe de comportement contrainte-déformation. En effet, l'actuateur ayant un comportement purement élastique, la relation force-déplacement est linéaire. Elle est connue facilement puisque le point de force maximum correspond au système avant le relâchement des contraintes et le point de force minimum correspond au système relâché sans chargement. Le film suivant sa propre courbe de comportement, le point d'équilibre du système est obtenu en prenant l'intersection des deux courbes. En mesurant le déplacement u de l'actuateur, il devient possible de connaître le point d'équilibre du système et donc de remonter à un point de la courbe contrainte-déformation du film métallique.

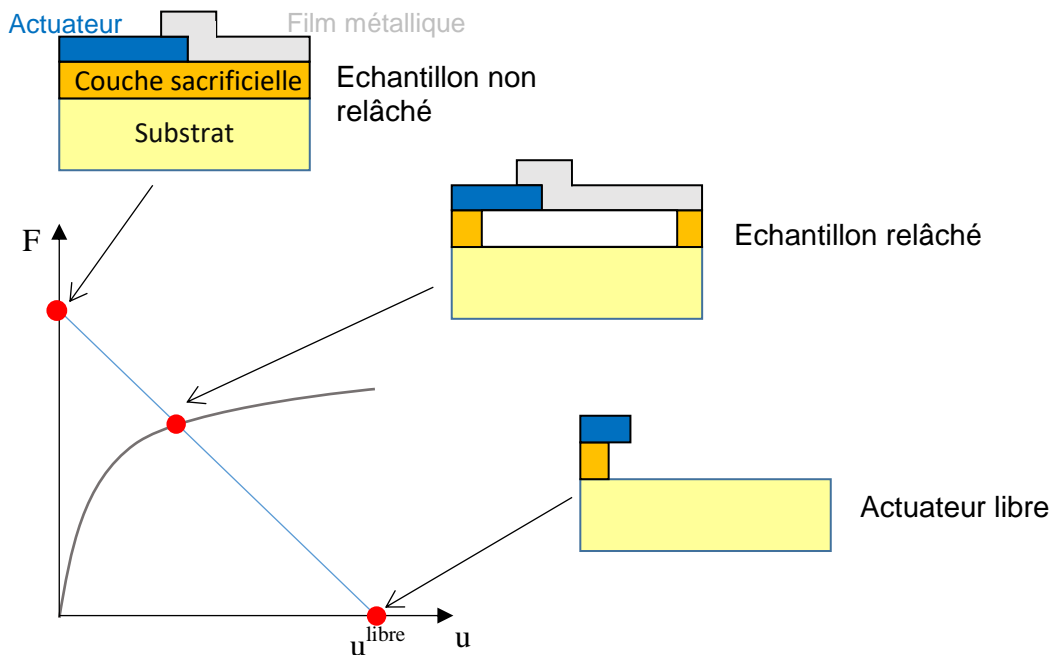


Figure III. 2 : Principe de l'extraction de la loi de comportement.

L'expression de la droite peut se retrouver facilement de manière analytique. La déformation totale de l'actuateur ε_a est la somme de deux contributions, ε_a^{mech} la déformation "mécanique" de

l'actuateur et ε_a^{mis} , la déformation de "mismatch" ou d'incompatibilité liée à la croissance du film ou à la dilatation thermique différente entre le film et le substrat :

$$\varepsilon_a = \varepsilon_a^{mech} + \varepsilon_a^{mis}. \quad (III.1)$$

En faisant l'hypothèse des petites déformations, en notant L_{a0} la longueur initiale de l'actuateur, on obtient que :

$$\varepsilon_a = -\frac{u}{L_{a0}}. \quad (III.2)$$

Le comportement élastique de l'actuateur donne $\sigma_a = E_a \varepsilon_a^{mech}$.

Dans le cas d'un actuateur libre, la contrainte est nulle et par conséquent ε_a^{mech} est également nulle. On trouve alors, en notant u^{libre} la longueur de l'actuateur libre, que :

$$\varepsilon_a = \varepsilon_a^{mis} = -\frac{u^{libre}}{L_{a0}}. \quad (III.3)$$

Le chargement F , obtenu à partir de $F = S_a E_a \varepsilon_a^{mech}$, avec S_a la section de l'actuateur et E_a son module d'Young, est donné par :

$$F = \frac{S_a E_a}{L_{a0}} (u^{libre} - u). \quad (III.4)$$

Il est donc possible de modifier la pente de la droite en jouant sur la longueur de l'actuateur (ou sur sa section), voir Figure III. 3, les déformations étant suffisamment faibles pour supposer la variation de S_a nulle. Dans la pratique, on ne mesure ni F , ni u^{libre} mais directement ε_a^{mis} .

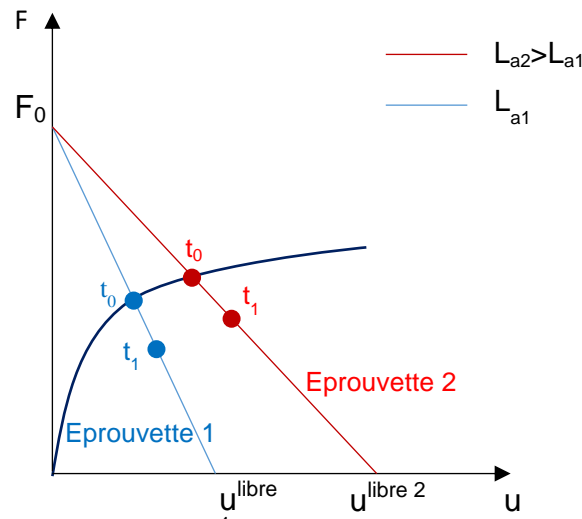


Figure III. 3 : Reconstitution de la loi de comportement. Deux courbes correspondant à deux actuateurs différents sont tracées. Les points rouges et bleus sont deux états d'équilibre à deux instants donnés, t_0 et t_1 , $t_1 > t_0$.

La mesure du déplacement u se fait en mesurant au Microscope Electronique à Balayage (MEB) l'écart entre des indicateurs placés sur la poutre actuatrice et une partie fixe. Le déplacement u est alors obtenu en faisant la moyenne de quatre déplacements, voir Figure III. 4. L'incertitude sur la mesure de chaque composante de u est de 50 nm.

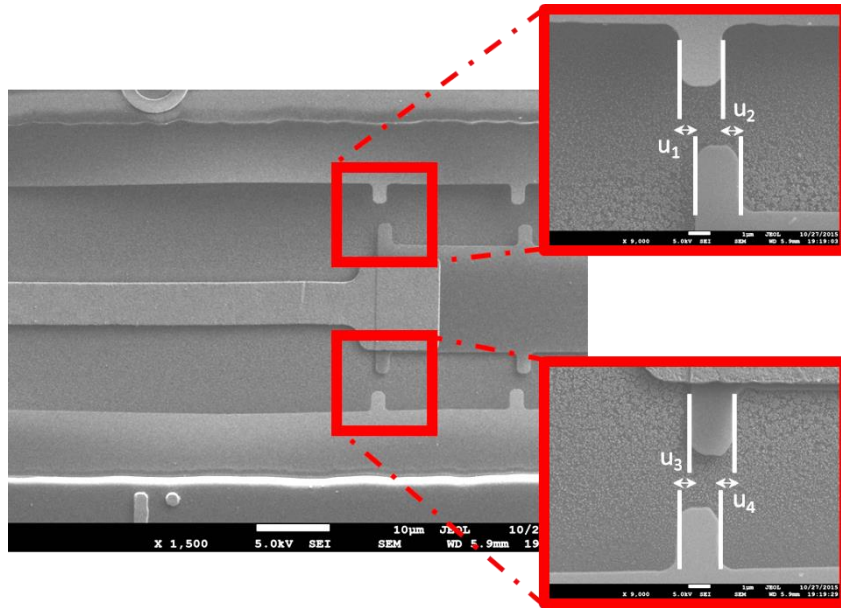


Figure III. 4 : Mesure du déplacement. Le déplacement retenu est la moyenne des quatre déplacements mesurés sur les deux curseurs.

La force F_0 est fixée par les valeurs des contraintes internes et de la section de l'actuateur. Contrairement aux essais macroscopiques, il ne s'agit pas d'un essai dynamique avec une contrainte variable mais d'un essai statique.

Il est possible de jouer sur la largeur de la poutre du film métallique ou encore sa longueur pour optimiser la mesure et gagner en précision sur une portion de la courbe de comportement du film. Par exemple, pour obtenir une mesure précise du comportement élastique du matériau il est préférable de travailler avec de grandes longueurs et largeurs de poutres.

Si l'état du matériau évolue au cours du temps du fait des propriétés viscoplastiques, le point d'équilibre du système suivra les droites de relaxation de l'actuateur dans le diagramme contrainte-déformation, Figure III. 3. Ainsi une mesure à un instant t_0 et une mesure à un instant t_1 donneront deux états de contraintes et déformations différents pour un matériau viscoplastique.

III.2 Procédés de fabrication du lab-on-chip

III.2.1 Etapes de fabrication

La Figure III.5 résume les différentes étapes de fabrication en salle blanche pour réaliser des micromachines avec un film échantillon métallique. Les méthodes de dépôt, de création de motifs et de gravure sont décrites dans la suite. Entre chaque étape, l'épaisseur des dépôts et la qualité de la gravure sont mesurées par profilométrie, ellipsométrie et contrôlée par microscopie optique. Après chaque mesure, les échantillons sont nettoyés dans un bain de solution "piranha" (1:3 H_2O_2 , H_2SO_4) pendant une dizaine de minutes.

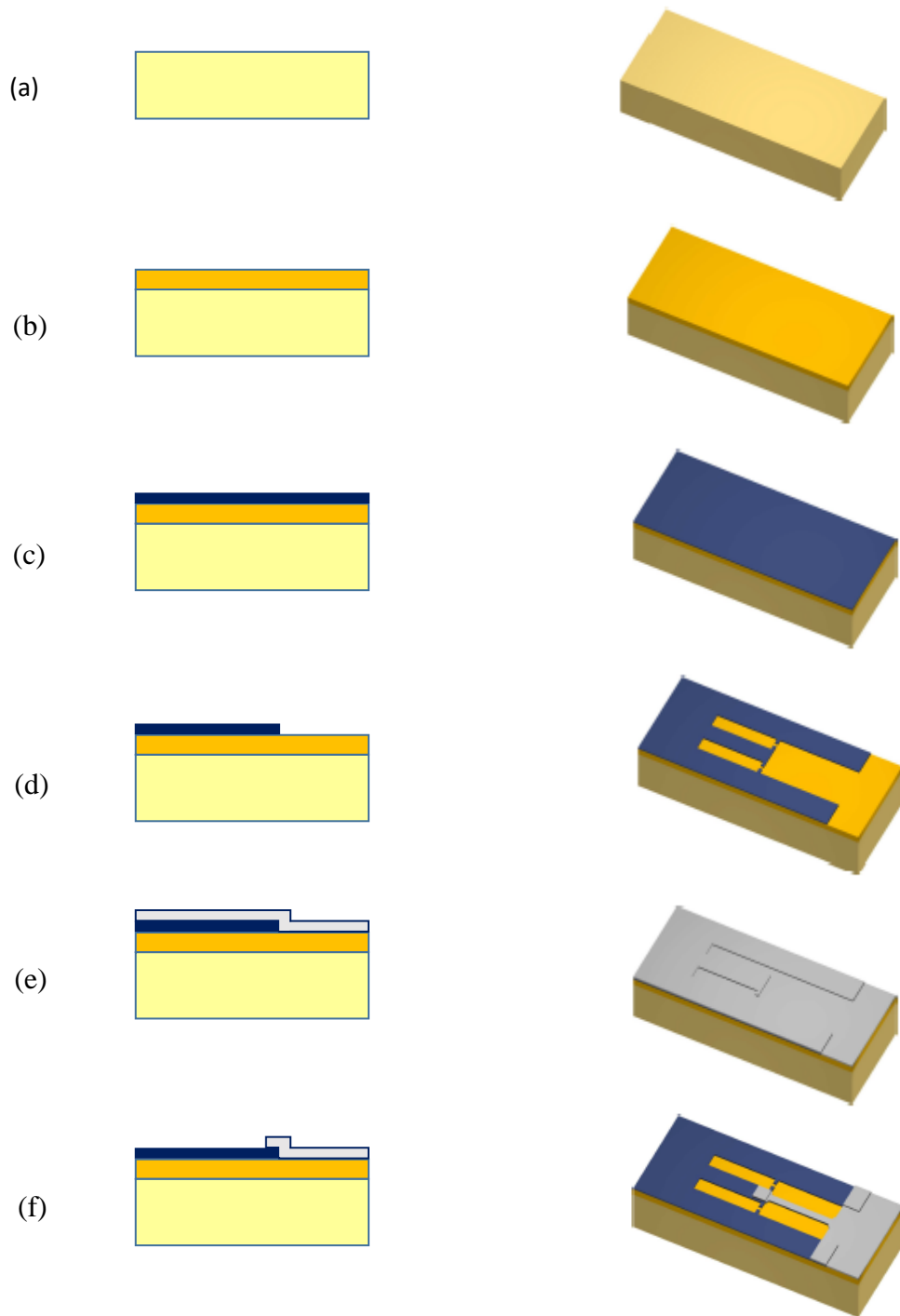


Figure III.5 : Etapes du procédé de fabrication (a) tranche de silicium vierge, (b) dépôt de la couche sacrificielle, (c) dépôt de l'actuateur, (d) gravure de l'actuateur, (e) dépôt du film métallique et (f) gravure du film métallique.

Une fois l'étape (f) terminée, les échantillons sont prêts à être utilisés. Il ne reste qu'à enlever la couche sacrificielle pour entraîner le relâchement des contraintes internes dans l'actuateur. Si cette gravure se fait par voie humide, il est nécessaire, pour maintenir les structures en suspension et par conséquent la contrainte appliquée sur le film métallique, de sécher les échantillons à l'aide d'un équipement CPD (Critical Point Dryer). Ce dernier permet de faire passer le CO_2 au-delà de son point critique supprimant ainsi la transition liquide-gaz. Sans ce "séchage supercritique", les tensions de surface des gouttes séchant sous les structures entraînent le collage des structures sur le substrat. Les structures sont alors figées et leur comportement viscoplastique ne peut plus être évalué.

III.2.2 La couche sacrificielle

La couche sacrificielle (en orange sur la Figure III.5b est une couche de SiO_2 déposée par Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition (PECVD) sur une épaisseur d'environ $1 \mu\text{m}$. Le dépôt est réalisé à 300°C sous un flux de $\text{SiH}_4/\text{N}_2\text{O}/\text{N}_2$. Le dioxyde de silicium se révèle moins dense sous cette forme que par simple croissance thermique sous flux d'oxygène d'un film d'oxyde. Il est donc plus facilement éliminé par les solutions d'attaque comme les acides fluorhydriques (HF) qu'un oxyde thermique. Les oxydes les moins denses ont été obtenus avec des flux de 100/700 sccm et un flux d'azote entre 200 et 300 sccm (standard cubic centimeter per minute) sous une pression de 675 mTorr. Pour avoir une gravure latérale de $20 \mu\text{m}$, il faut 1 s dans une solution de HF concentré à 49% pour un oxyde réalisé avec un flux de 200 sccm contre 9 s pour un oxyde réalisé avec un flux de 300 sccm plongé dans la même solution.

Toutes les gravures d'oxyde de silicium ont été effectuées dans une solution de HF concentrée à 73 % ou 49 %. Les échantillons sont ensuite plongés dans trois bains d'isopropanol pendant une douzaine de minutes pour rinçage. Le séchage par CPD est enfin utilisé si on souhaite étudier le comportement viscoplastique du matériau. Dans le cas contraire, les échantillons sèchent à l'air libre.

III.2.3 L'actuateur

L'actuateur (en bleu sur la Figure III.5c est une couche de nitrure de silicium (Si_3N_4)) est obtenu par Low Pressure Chemical Vapor Deposition (LPCVD). Le dépôt est réalisé à 790°C et les contraintes internes, de l'ordre du GPa en tension, sont indépendantes de l'épaisseur déposée pour des épaisseurs inférieures à 300 nm. L'origine la plus probable des contraintes internes est intrinsèque. Durant la phase de croissance du film, la dissociation des liaisons Si-H et N-H et leur remplacement par des liaisons Si-N plus courtes entraîneraient une contraction du volume du film conduisant à l'existence de contraintes internes en tension [1].

Ce matériau a été retenu comme actuateur pour la bonne uniformité des contraintes internes à la fois dans l'épaisseur et dans le plan mais surtout pour la conservation de ses propriétés élastiques au cours du temps. Ce film ne montre pas de relaxation des contraintes au cours du temps ce qui rend possible le suivi temporel des micromachines. L'évolution de la déformation observée est alors attribuable uniquement à l'éprouvette métallique.

La gravure du nitrure de silicium est réalisée au plasma SF_6 . Le motif est imprimé au préalable par photolithographie en déposant une résine positive sur le nitrure. Après développement, les zones encore recouvertes par la résine sont protégées lors de la gravure. La Figure III.6 retranscrit les différentes étapes pour graver un motif dans le nitrure. L'arrêt de la gravure peut être automatique si l'appareil est équipé d'un capteur d'oxygène, la couche de SiO_2 sert alors de couche d'arrêt pour la gravure.

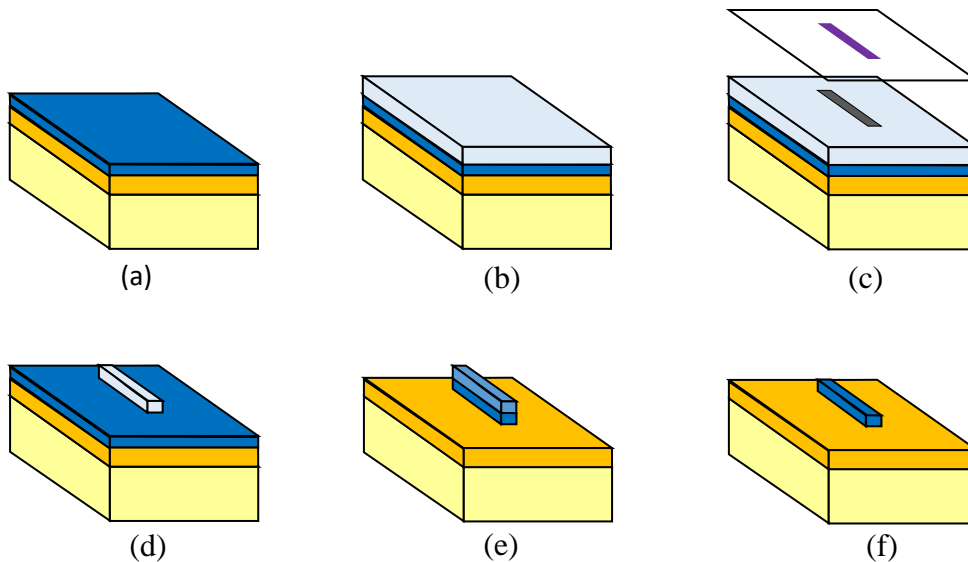


Figure III.6 : Etapes pour la gravure d'un motif sur le nitrure de silicium : (a) dépôt CVD du nitrure, (b) dépôt avec spin-coating de la résine, (c) exposition UV, (d) développement à l'aide d'un solvant, (e) gravure SF_6 , (f) retrait résine.

III.2.4 Le film métallique

Le matériau étudié dans cette thèse est le cuivre. C'est très certainement le métal dont le comportement plastique est le plus documenté dans la littérature. Il peut constituer ce que l'on appelle un matériau modèle pour une étude telle que la nôtre. De plus, il a fait l'objet d'études sous forme pure ou d'alliages pour le divertor et le mur intérieur d'ITER, deux ensembles exposés au flux neutronique émis lors des réactions de fusion nucléaire [2].

Le film métallique (en gris sur la Figure III.5c) est déposé par Plasma Vapor Deposition (PVD) au moyen de bombardement électronique sur une cible de cuivre pur (99,999%) sous une pression d'environ 10^{-7} Pa. L'impression du motif est réalisée par "lift off" (Figure III.7). L'idée est de déposer une résine négative puis d'imprimer un motif. On vient ensuite faire le dépôt de cuivre et retirer la résine. Il ne reste alors plus que le motif en cuivre déposé sur le substrat. Le cuivre n'adhérant pas bien sur le nitrure de silicium une couche intermédiaire est déposée juste avant le cuivre dans le même équipement de dépôt. Deux couches ont été testées : une couche uniforme de chrome et une couche non uniforme de titane (car celui-ci se fait graver par la solution d'attaque HF du SiO_2).

Les meilleurs résultats ont été obtenus avec la couche de chrome. En effet, les échantillons avec titane ne sont pas suffisamment fiables. Dans une zone où la couche de titane est trop continue, le titane est attaqué lors du relâchement et le cuivre se décolle du substrat. S'il n'y a pas suffisamment d'amas de titane sous le cuivre, l'adhésion du cuivre sur le nitrure n'est pas suffisamment bonne. Sur une tranche de silicium, il n'est pas possible de discerner *a priori* quelle région, et donc quelle série de structures, a la bonne quantité de titane déposée. Une couche uniforme de chrome de quelques nanomètres permet de régler ce problème de fiabilité tout en ayant un impact limité sur l'évaluation du comportement mécanique de la couche de cuivre.

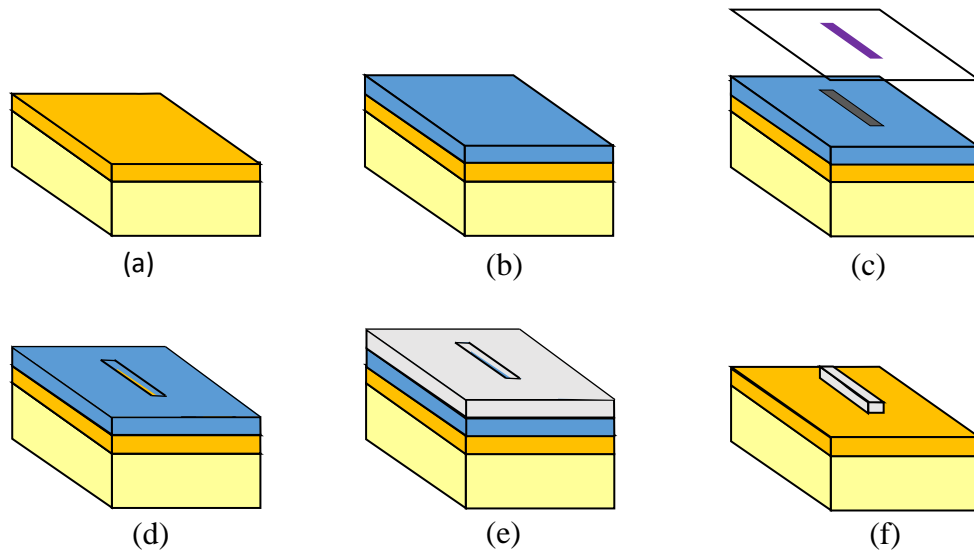


Figure III.7: Procédé "lift off", (a) substrat (SiO₂+Si), (b) dépôt d'une résine photosensible négative, (c) exposition UV avec masque, (d) développement, (e) dépôt d'un film de cuivre, (f) retrait de la résine.

Un recuit sous atmosphère d'azote hydrogéné à 150 °C est ensuite effectué pour faire croître les grains.

III.3 Description des configurations de micromachines

Plusieurs milliers de micromachines sont gravées par photolithographie sur une tranche de silicium. Différents types de micromachines regroupées en blocs permettent d'extraire les différentes propriétés utiles des films comme les contraintes internes ou encore le comportement mécanique du film. La tranche est divisée en 4 sous parties. Chaque quart de tranche est équivalent. Des disques de 3 mm sont également prévus pour être découpés et observés au MET. La Figure III. 8 donne une représentation schématique d'une tranche fabriquée à l'UCL.

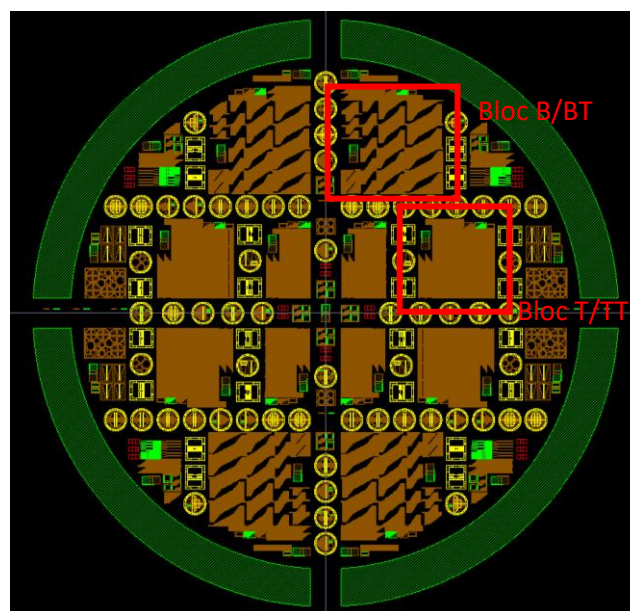


Figure III. 8 : Représentation schématique d'une tranche terminée de lab-on chips.

III.3.1 Séries B/BT

Les séries B et BT sont des séries de 40 micromachines où les éprouvettes sont identiques sur les 40 structures, les actuateurs ont quant à eux différentes longueurs. Elles sont disponibles avec des éprouvettes d'une longueur de 25, 50 et 100 μm et une largeur de 1, 2, 4 et 6 μm . Dans chaque série, une micromachine de longueur L donne un point unique de la courbe $\sigma(\epsilon)$ de l'éprouvette.

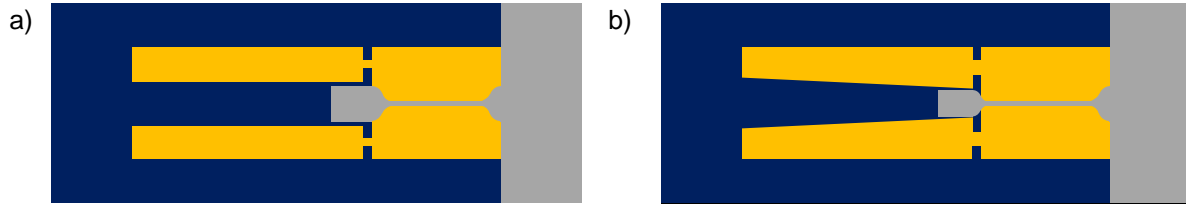


Figure III. 9 : Géométrie des structures de type (a) B, (b) BT.

Les séries B et BT diffèrent l'une de l'autre par la géométrie de l'actuateur. Les séries B ont un actuateur de largeur constante 15 μm . Les actuateurs des séries BT sont trapézoïdaux avec une largeur moyenne de 15 μm . Leur comportement suit donc les mêmes lois. Cependant la forme trapézoïdale permet de maîtriser la vitesse de chargement initial. En effet, lors de la gravure de l'oxyde, l'échantillon est toujours relâché avant l'actuateur. Avec une forme rectangulaire, il n'est pas possible de savoir où l'actuateur sera relâché en premier. Si le relâchement se produit au niveau de la jonction avec l'échantillon, la mise sous contrainte sera lente alors que si le relâchement a lieu à sa base elle sera plus brutale. Dans le cas des séries BT, l'actuateur est d'abord relâché au niveau de la partie la moins large pour ensuite être progressivement totalement relâché.

La vitesse de déformation d'un actuateur trapézoïdal sans poutre échantillon peut être calculée à partir de l'expression :

$$\dot{\epsilon}_a \text{ libre} = \epsilon_a^{\text{mis}} \left(\frac{2v_{\text{gravure}}}{W_{a \text{ max}} - W_{a \text{ min}}} \right), \quad (\text{III.5})$$

Avec v_{gravure} la vitesse de gravure de l'oxyde de silicium par HF, $W_{a \text{ max}}$ et $W_{a \text{ min}}$ les largeurs maximales et minimales de l'actuateur.

Il est possible de remonter à une borne supérieure de la vitesse de déformation de l'éprouvette avec l'équation (III.5) en multipliant la vitesse par le rapport $\frac{L_{a0}}{L_0}$, L_{a0} étant la longueur initiale de l'actuateur, et L_0 la longueur d'éprouvette. Cette vitesse varie typiquement entre 10^{-5} s^{-1} pour les actuateurs les plus petits et 10^{-2} s^{-1} pour les actuateurs les plus grands.

III.3.2 Séries T/TT

Les séries T et TT sont des séries de 30 structures où la longueur de l'actuateur et la longueur de l'échantillon varient en même temps. La longueur totale de la structure, la longueur de l'échantillon plus la longueur de l'actuateur, ainsi que les largeurs de l'échantillon et de l'actuateur ne varient pas au sein d'une même série. Elles sont disponibles avec des largeurs d'éprouvettes de 1, 2, 4 et 6 μm . Les grandes longueurs d'éprouvettes permettent d'être précis sur les petites déformations tandis que les petites longueurs sont plus robustes pour étudier les grandes déformations. En effet, ces dernières présentent une probabilité de défauts de surface plus faible que les longues structures et, par conséquent, la probabilité d'apparition de fissures est également diminuée sur ces structures.

Elles sont donc particulièrement intéressantes pour connaître le comportement mécanique du film échantillon en traction. La Figure III. 10 présente les configurations B et T.

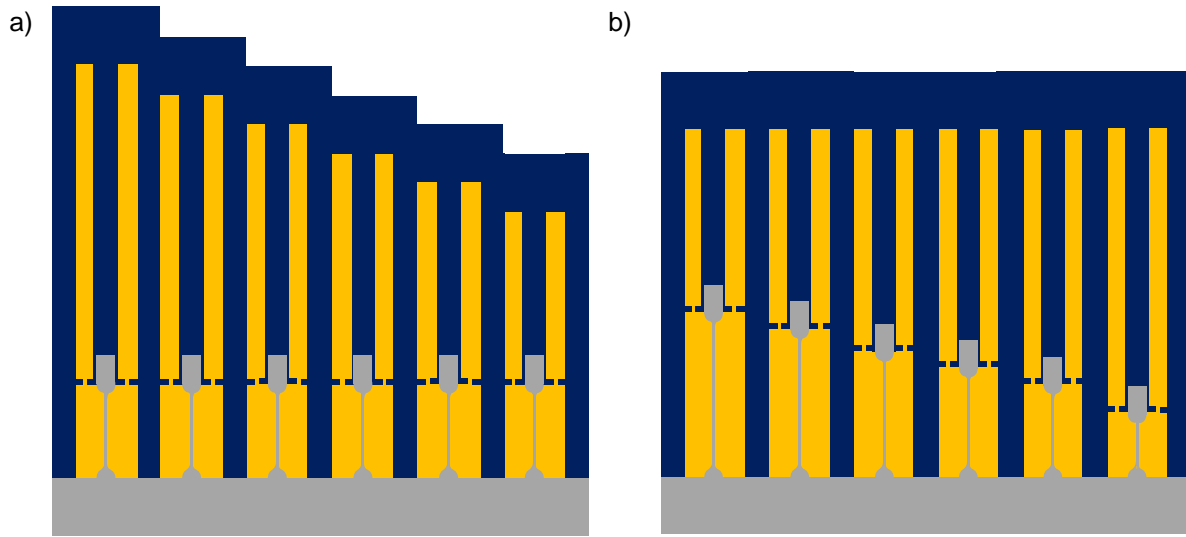


Figure III. 10 : Géométrie des séries de type (a) B, (b) T.

De manière similaire aux séries B et BT, les séries T sont constituées d'actuateurs de largeur 15 μm constante par opposition aux séries TT où l'actuateur est trapézoïdal. Les micromachines des séries B et T (et les séries BT et TT) fonctionnent donc avec les mêmes types d'éprouvettes et d'actuateur.

III.3.3 Extraction des contraintes internes

Plusieurs micromachines permettent de déterminer les contraintes internes dans l'actuateur.

Les poutres libres sont des structures simples qui permettent d'extraire facilement la déformation ε^{mis} . L'équation (III.3) montre que la déformation mesurée sur la poutre est directement la déformation ε^{mis} . Néanmoins, les mouvements hors plan générés par les contraintes internes en tension les rendent difficilement utilisables en pratique.

Les structures autoactuées sont des micromachines de traction où l'actuateur est constitué d'un matériau identique à l'échantillon. Elles permettent d'extraire simplement la déformation ε^{mis} à condition que les poutres actuatrice et échantillon se comportent de manière élastique. Sous cette hypothèse, en reprenant l'équation (III.4) pour la poutre actuatrice et l'éprouvette, on obtient les équations (III.6) et (III.7) :

$$F = S_a E \left(-\frac{u}{L_{a0}} - \varepsilon^{mis} \right), \quad (III.6)$$

$$F = SE \left(\ln \left(\frac{L_0 + u}{L_0} \right) - \varepsilon^{mis} \right). \quad (III.7)$$

Soit en les regroupant :

$$\varepsilon^{mis} = \frac{S \ln\left(\frac{L_0 + u}{L_0}\right) + S_a\left(\frac{u}{L_{a0}}\right)}{S - S_a}. \quad (\text{III.8})$$

L'hypothèse des petits déplacements n'est pas prise en compte pour l'éprouvette car son déplacement peut être important par rapport à sa longueur.

Pour des contraintes en tension, comme c'est le cas pour le nitrure de silicium, aucun mouvement hors plan ne vient parasiter la mesure du déplacement. Elles sont donc plus adaptées pour la mesure des contraintes internes dans le film actuateur que les poutres libres simples.

Les contraintes internes dans le cuivre sont également en tension. Par conséquent, ces structures peuvent être utilisées pour déformer des échantillons de cuivre. Néanmoins, le caractère non élastique du cuivre, notamment durant la relaxation des contraintes dans l'actuateur, ne permet ni d'évaluer la contrainte appliquée sur l'éprouvette ni d'utiliser ces micromachines pour mesurer les contraintes internes dans un film de cuivre.

Enfin un troisième type de micromachines est également présent sur la tranche de silicium : les capteurs rotatifs. Ils sont constitués de deux bras non alignés tenant une poutre initialement horizontale. Après le retrait de la couche sacrificielle sous l'effet des contraintes internes, les bras mettent en rotation la poutre centrale par l'action d'un couple de forces. Une relation existe entre la déformation de " mismatch " dans le film et l'angle formé par la poutre centrale avec l'horizontale. Cette relation est donnée par :

$$\theta = \frac{2L\varepsilon_{mis}}{d\left(2\varepsilon_{mis} + 1 + \frac{4}{3}\frac{w^2}{d^2}\right)}. \quad (\text{III.9})$$

où θ représente l'angle formé par la poutre avec l'horizontal, L la longueur des bras, d l'écart des bras par rapport au centre de masse et w la largeur des bras.

Les capteurs rotatifs sont regroupés en un ensemble de 5 capteurs. Chaque capteur a une distance d différente. Dans la pratique, on trace la courbe $\theta(d)$ pour chaque ensemble, on ajuste ensuite ε^{mis} comme paramètre pour superposer la courbe théorique avec la courbe expérimentale.

La Figure III. 11 présente ces trois types de micromachines utilisables pour l'extraction de la déformation ε^{mis} .

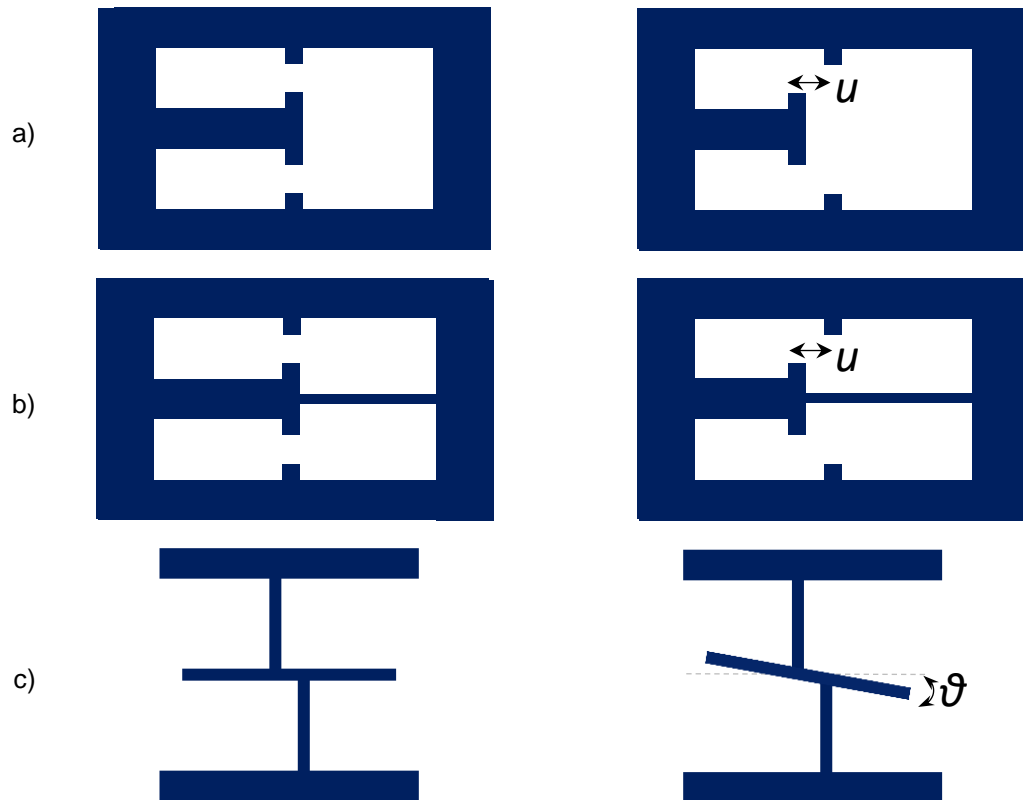


Figure III. 11 : Micromachines disponibles sur la tranche pour la mesure des contraintes internes dans le film avant et après relâchement des structures : a) les poutres libres, b) les structures autoactuées et c) les capteurs rotatifs.

La dernière méthode qui est applicable sur tous les films consiste à déposer le film sur l'intégralité du wafer et à mesurer ensuite le changement de courbure de la tranche de silicium. La formule de Stoney permet de relier le changement de courbure aux contraintes internes présentes dans le film :

$$\sigma_i = \frac{1}{6} \frac{E_s}{1-\nu_s} \frac{h_s^2}{h_f} \left(\frac{1}{R_{post}} - \frac{1}{R_{pre}} \right). \quad (\text{III.10})$$

avec $\frac{E_s}{1-\nu_s}$ le module biaxial du silicium, h_s et h_f respectivement l'épaisseur du substrat et du film déposé et R_{pre} et R_{post} les rayons de courbure avant et après dépôt du film.

C'est cette dernière méthode qui a été privilégiée pour l'extraction des contraintes internes dans les films de cuivre. C'est en effet la plus précise et la plus reproductible pour ce matériau.

III.3.4 Echantillons MET

Il est possible de graver en face arrière le silicium pour y ouvrir une fenêtre. Des observations de la microstructure des films *in situ* sous contrainte au Microscope Electronique en Transmission (MET) sont alors envisageables. Dans ce cas, on utilise des tranches amincies à 200 μm plutôt que des tranches classiques de 380 μm d'épaisseur. Cette étape de gravure face arrière est effectuée par procédé Bosch à l'Institut d'Electronique de Microélectronique et Nanotechnologie de Lille. Le procédé Bosch consiste à alterner attaque plasma du substrat et dépôt d'une couche de passivation protégeant le substrat. Le caractère directionnel des ions du plasma conduit à une attaque plus marquée sur la couche de passivation au fond du trou par rapport aux parois latérales. La vitesse de

gravure est alors plus importante au fond du trou. A chaque étape, la profondeur du trou augmente tout en limitant son élargissement grâce la protection des parois latérales.

Les fenêtres sont soit situées juste sous l'échantillon, soit situées sous l'intégralité des structures. Des réductions de section sont intégrées sur le masque échantillon afin de pouvoir savoir où se produisent les évènements pendant la déformation.

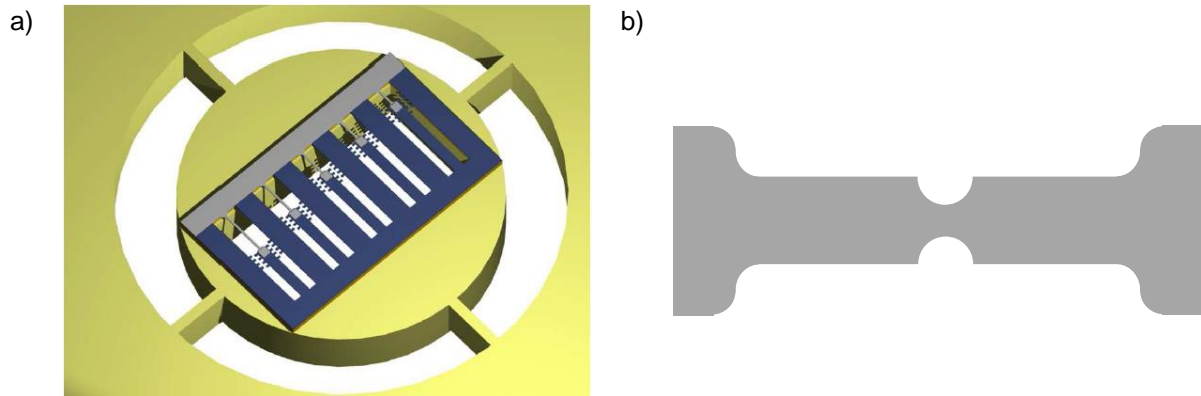


Figure III. 12 : Représentation schématique (a) d'un échantillon MET, (b) d'une poutre échantillon avec réduction de section.

III.4 Adaptation aux conditions d'irradiations

III.4.1 Relaxation des contraintes dans le nitrure de silicium

Les lab-on-chips, comme présentés précédemment, ne nécessitent pas de dispositifs externes pour appliquer une contrainte sur le film échantillon à température ambiante. Le point clé est de s'assurer que le nitrure de silicium continue de jouer son rôle d'actuateur sous irradiation. Cela revient à savoir si les contraintes dans le nitrure de silicium sont relaxées sous irradiation aux ions.

Afin de répondre à cette question, un film de 210 nm d'épaisseur a été déposé sur une tranche de silicium recouverte d'une couche sacrificielle. Après découpe de la tranche en plusieurs morceaux, certains morceaux ont été irradiés aux ions cuivre d'énergie 600 keV sur l'accélérateur ARAMIS du CNRS/CSNSM d'Orsay. Ensuite, des micromachines de type capteurs rotatifs sont imprimées par photolithographie sur les films étudiés. Enfin ces structures sont relâchées afin de mesurer les contraintes internes dans le film. La Figure III. 13 retrace ces différentes étapes.

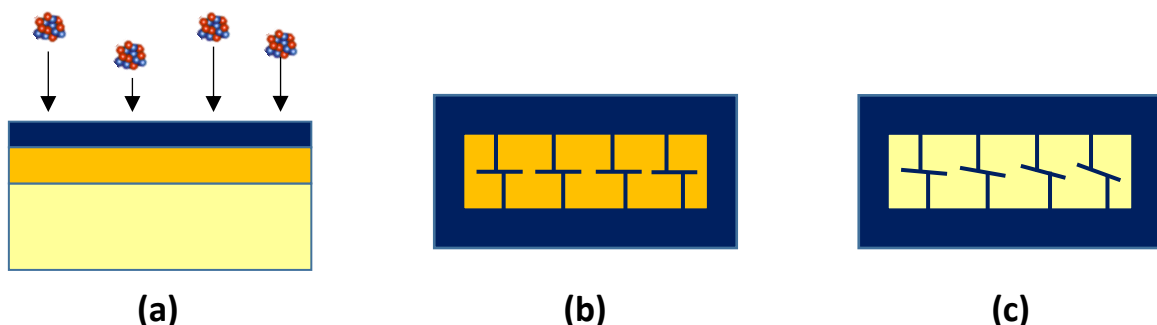


Figure III. 13 : (a) Irradiation d'un échantillon de nitrure de silicium sur silice, (b) Création de micromachines dans le film irradié, (c) Relâchement des structures.

Le logiciel SRIM permet de calculer le nombre d'atomes déplacés par cascade dans une cible pour un type d'ion incident donné. Il permet également de connaître le profil d'implantation dans la cible. Pour cela, il faut renseigner l'énergie seuil de déplacement des atomes de la cible, l'énergie cinétique et la nature de l'ion incident. Les énergies seuils de déplacement retenues sont celles données par défaut par SRIM pour le nitrure de silicium et la silice, à savoir 15 eV pour Si et 28 eV pour N dans Si_3N_4 et 15 eV pour Si et 28 eV pour O dans SiO_2 . Les profils de la Figure III. 14 sont donnés pour une énergie de 600 keV et une fluence de $1,6 \cdot 10^{14}$ ions/cm². Cette dose correspond à une dose de référence de 1 dpa pour l'étude des dommages d'irradiation dans le cuivre, voir chapitre V.

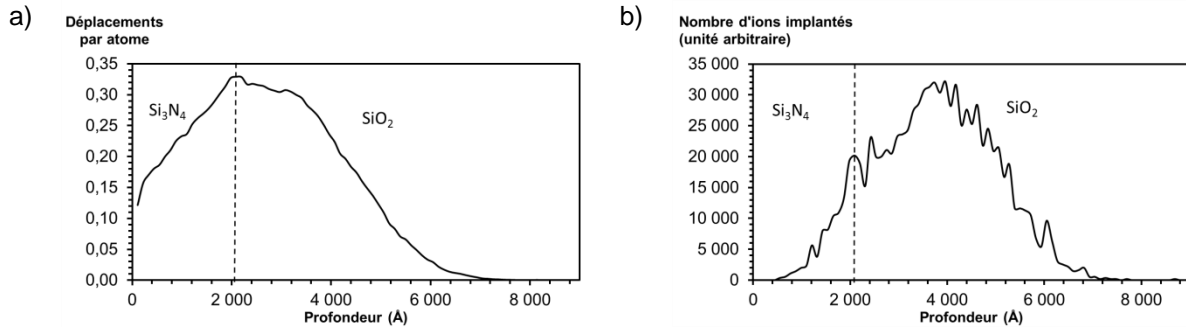


Figure III. 14 : Profil SRIM de (a) dommage et (b) d'implantation pour des ions cuivres de 600 keV sur une cible de nitrure de silicium et silice

A cette dose, le déplacement d'atomes par chocs balistiques est limité (0,3 dpa au maximum). De même, l'implantation intervient principalement dans la couche de silice. Les dommages créés dans la silice ne sont *a priori* pas limitants. Au contraire, une dégradation de la silice permet d'augmenter sa vitesse de gravure et donc d'avoir une meilleure sélectivité avec le nitrure de silicium.

Les capteurs rotatifs sont regroupés en jeu de 5 micromachines. Ces micromachines ont toutes les mêmes longueurs et largeurs de bras mais diffèrent les unes des autres par l'écart d entre les deux bras sur la poutre centrale. L'angle θ formé par la poutre centrale avec l'horizontale est mesuré pour chacune de ces micromachines. On ajuste ensuite la valeur de ϵ_a^{mis} dans la relation (III.9) afin que l'expression théorique se rapproche au mieux des valeurs expérimentales.

Deux fluences, $1,6 \cdot 10^{13}$ ions/cm² et $1,6 \cdot 10^{14}$ ions/cm² sont comparées à un échantillon non irradié issu de la même tranche. La Figure III. 15 montre une micromachine issue de chaque échantillon. Sans même effectuer les mesures, il est possible de voir que la rotation des poutres diminue de manière importante avec l'augmentation de la dose. On a donc bel et bien une relaxation des contraintes internes induites par irradiation dans le matériau de l'actuateur.

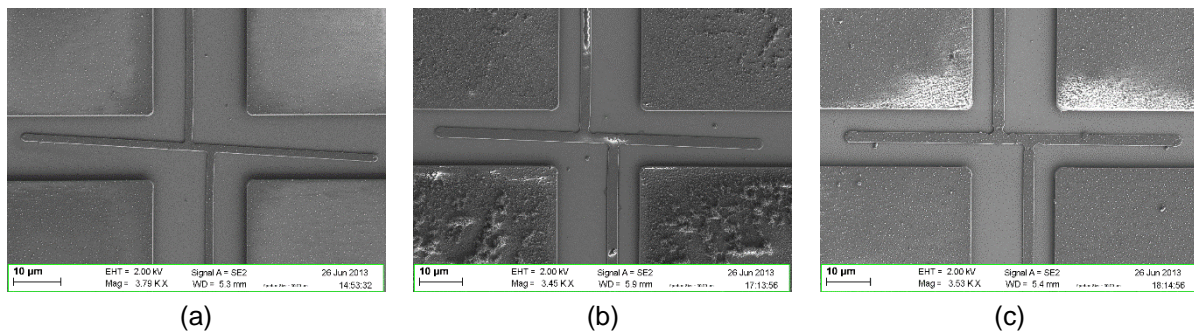


Figure III. 15: Images SEM d'une micromachine après relâchement sur l'échantillon témoin non irradié (a), irradié à $1,6 \cdot 10^{13}$ ions/cm² (b), irradié à $1,6 \cdot 10^{14}$ ions/cm² (c).

De manière plus quantitative, la Figure III. 16 regroupe, pour les trois échantillons, l'évolution de l'angle θ en fonction de d . Plus la fluence est importante et plus l'angle de rotation est faible. Les données expérimentales montrent qu'elles peuvent être décrites à partir de la formule (9). Les déformations associées aux contraintes internes peuvent alors être calculées. Ces déformations sont synthétisées dans le Tableau III. 1.

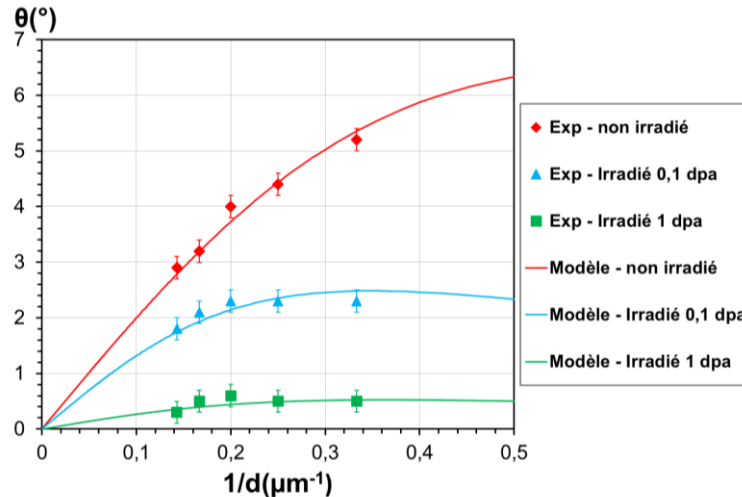


Figure III. 16 : Evolution de l'angle de rotation de la poutre centrale en fonction de la distance d entre les deux bras.

La déformation ε_a^{mis} diminue fortement avec l'augmentation de la fluence. Elle disparaît presque totalement à une fluence de $1,6 \cdot 10^{14}$ ions/cm². Les contraintes internes dans le film de nitrure de silicium ont donc été relaxées sous irradiation.

	Si_3N_4 non irradié	Si_3N_4 irradié à $1,6 \cdot 10^{13}$ cm ⁻²	Si_3N_4 irradié à $1,6 \cdot 10^{14}$ cm ⁻²
ε_a^{mis}	-0,36 %	-0,25 %	-0,03 %

Tableau III. 1 : Valeurs de ε_a^{mis} extraites des mesures des capteurs rotatifs.

Il est donc nécessaire de protéger l'actuateur durant les expériences sous faisceau d'ions. En effet, les contraintes dans le nitrure de silicium relaxent de manière importante et rapide. Le matériau ne peut alors plus servir d'actuateur. Il serait possible qu'il puisse encore servir de capteur de force mais cela nécessite un modèle de relaxation sous flux du nitrure de silicium qui n'a pas été développé dans le cadre de cette thèse. Il est également possible que les contraintes ne soient pas simplement relaxées mais mise en compression par gonflement sous irradiation [3], [4].

Des observations ultérieures semblent confirmer ce point. La Figure III. 17 montre des micromachines entièrement irradiées. Le nitrure de silicium présente des zones régulières de flambement caractéristiques d'un film en compression. Le nitrure de silicium aurait alors gonflé sous irradiation.

Le module d'Young pourrait aussi diminuer sous irradiation [5] entraînant une modification du comportement élastique du nitrure irradié.

Pour utiliser les micromachines sous irradiation, il convient donc à la fois d'irradier les éprouvettes de cuivre et de ne pas irradier les actuateurs en nitrure de silicium.

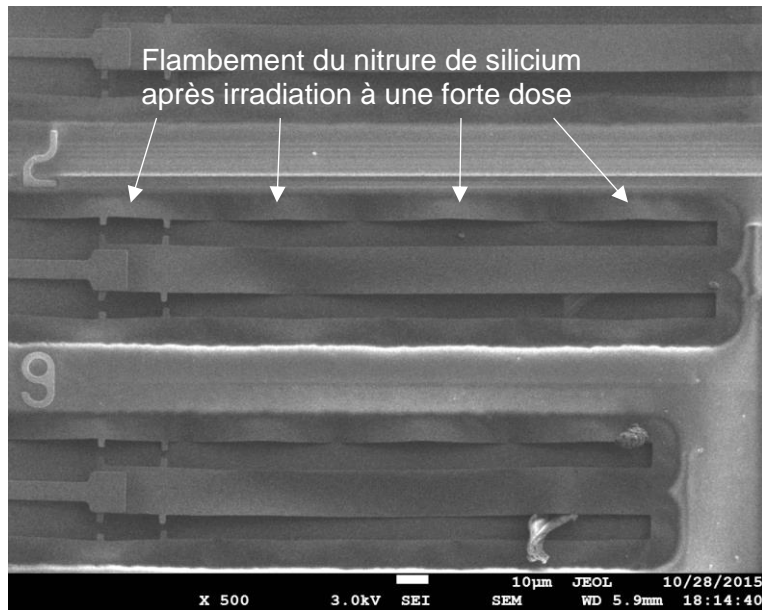
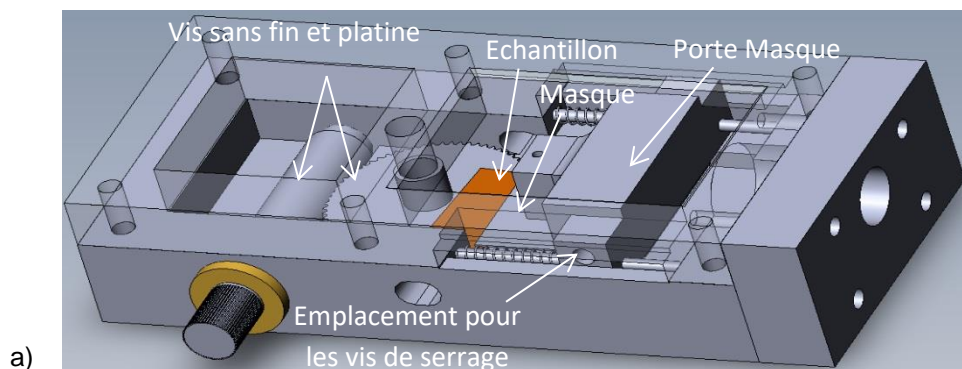


Figure III. 17 : Flambement du nitrure de silicium observé sur des micromachines entièrement irradiées.

III.4.2 Protection de l'actuateur sous irradiation

Un dispositif de masquage, Figure III. 18 a été conçu et usiné pour protéger le nitrure sous irradiation. Ce dispositif permet de placer un feuillard d'acier avec une grande précision au-dessus de l'échantillon protégeant ainsi une partie de l'échantillon de l'irradiation. Les séries B, voir paragraphe III.3.1, qui ont des éprouvettes toutes de la même longueur et alignées, sont les plus simples à masquer. Ce sont donc les structures avec lesquelles ont été effectuées toutes les expériences de fluage d'irradiation.

L'échantillon est collé au scotch carbone double face sur une platine tournante. Une vis sans fin permet d'aligner les poutres échantillons perpendiculairement au masque. Le masque, fixé sur une pièce en aluminium coulissante, peut être poussé à l'aide d'une butée micrométrique. Le masque est aligné en translation à quelques centaines de microns au-dessus de l'échantillon. Des ressorts placés dans les glissières permettent le recul du masque. Toute la procédure d'alignement a été pensée pour être effectuée sous une loupe binoculaire ou un microscope optique 3D qui ont des plans focaux éloignés des objectifs.



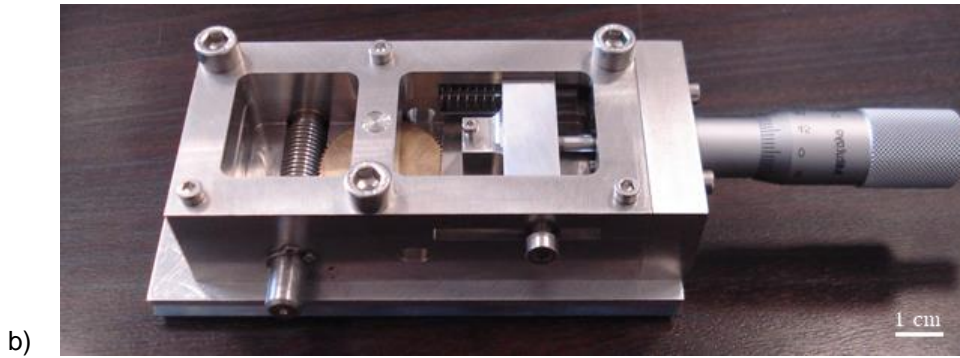


Figure III. 18 : (a) Vue du dispositif conçu sur SolidWorks®, (b) Photographie du montage usiné.

La butée micrométrique a une précision de $2 \mu\text{m}$ en translation garantie par l'industriel. La platine est composée de 72 dents ce qui permet un facteur de réduction de $1/72^{\text{ème}}$. Par conséquent pour faire un tour complet de platine il faut faire 72 tours avec la vis sans fin. Mécaniquement la précision du positionnement du masque est donc très bonne. Le point limitant est alors la profondeur de champs des objectifs de microscope. En effet, il n'est pas possible de faire la mise point à fort grossissement à la fois sur le masque et sur l'échantillon. Pour répondre à ce problème une vis a été placée sur le porte-masque. Cette vis permet d'appuyer sur le masque pour le rapprocher de l'échantillon. La Figure III. 19 montre la qualité de l'image optique par binoculaire et microscope 3D pour un alignement sur des éprouvettes de $50 \mu\text{m}$ de long et $2 \mu\text{m}$ de large pour les binoculaires et $50 \mu\text{m}$ de long et $6 \mu\text{m}$ de large pour le microscope 3D. Les qualités d'image étant similaires, le microscope 3D a été retenu pour sa simplicité d'utilisation notamment grâce à son interface et sa platine motorisée.

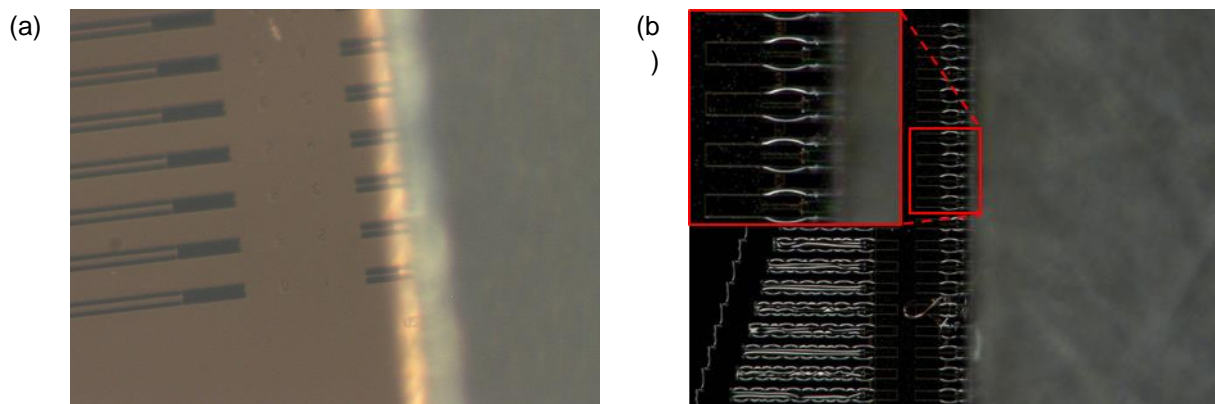


Figure III. 19 : Micrographie optique de la procédure d'alignement du masque fait sur des structures autoactuées de cuivre par binoculaires (a) et par microscope 3D sur des séries B après une étape d'irradiation (b).

La frontière irradiée/non irradiée est visible sur l'échantillon au MEB, Figure III. 20. Il est donc possible d'évaluer la qualité d'alignement après irradiation. Un alignement parfait est un alignement où le masque est placé au niveau des curseurs de sorte que les éprouvettes sont intégralement irradiées et que le nitrure de silicium soit entièrement protégé. Il n'y a alors aucune dégradation des propriétés de la micromachine. Néanmoins cet alignement étant difficile à obtenir, il a été fait le choix de prendre une marge de sécurité de quelques dizaines de micromètres, soit du côté de l'actuateur afin d'être sûr d'irradier intégralement les poutres échantillons, soit du côté des échantillons afin de garantir l'intégrité de l'actuateur.

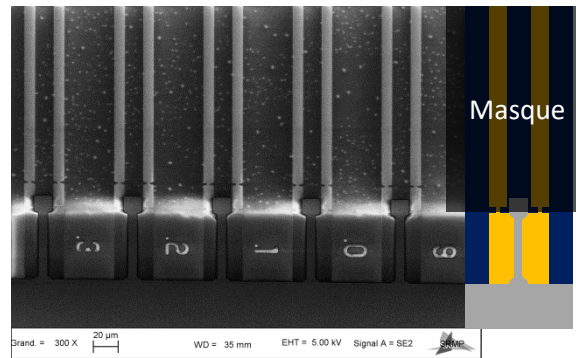


Figure III. 20 : Alignement parfait obtenu sur une série B irradiée.

Le dispositif permet d'étudier le comportement mécanique *post* irradiation des films échantillons en protégeant des structures non relâchées mais également le comportement sous irradiation en multipliant les séquences : mesures MEB des déplacements, alignement masque, irradiation aux ions, mesures MEB des déplacements. De cette manière, il est possible, en soustrayant le fluage thermique, de remonter au fluage d'irradiation.

Les irradiations *in situ* dans un MET ne nécessitent pas de dispositif de masquage. En effet, la fenêtre pour laisser passer les électrons peut être située seulement sous les échantillons. Il suffit alors d'exposer la face de l'échantillon où ne sont pas les films pour protéger les actuateurs, le substrat de silicium de 200 µm d'épaisseur sert alors à arrêter les ions.

III.4.3 Echantillons placés sous irradiation

Bien qu'inadaptées pour extraire la contrainte appliquée les structures autoactuées permettent tout de même de déformer des films de cuivre. Les premiers tests ont été effectués avec ces structures, notamment les tests du dispositif de masquage car les échantillons avec un actuateur en nitrure n'étaient pas encore opérationnels. Les relâchements ont tous été effectués après irradiation. Les structures ont donc été déformées une fois irradiées.

Les micromachines avec un actuateur en nitrure de silicium permettent d'avoir accès à la contrainte appliquée sur les éprouvettes. Toutes les campagnes d'irradiation ont été focalisées sur un seul type d'échantillon le bloc B/BT. L'alignement de toutes les éprouvettes facilite le masquage. Sur le bloc B/BT sont présents 12 séries B et 12 séries BT. Ces 12 séries comprennent 3 longueurs d'éprouvettes différentes 25, 50 et 100 µm et 4 largeurs 1, 2, 4 et 6 µm. Le choix a été fait de se focaliser sur la série B avec des éprouvettes de 50 µm de long et 6 µm de large.

Les séries BT ont été éliminées car elles ne sont pas suffisamment robustes. La faible largeur de l'actuateur près de l'échantillon crée une faiblesse structurale lors du relâchement qui conduit à la rupture de nombreuses structures à ce niveau. Seules quelques structures sont alors utilisables. Afin de limiter les effets de taille, les structures les plus longues et les plus larges ont été choisies. Les structures de 100 µm de long sont situées en bord d'échantillon. Irradier ces structures conduit à irradier tout le reste de l'échantillon et perdre donc toutes les autres structures. Lorsque le masque est placé au-dessus des actuateurs des structures de 50 µm, Figure III.21, il protège également l'intégralité des structures de 100 µm. En travaillant avec les structures de 50 µm, il est possible de conserver les structures de 100 µm comme structures témoins non irradiées durant les expériences.

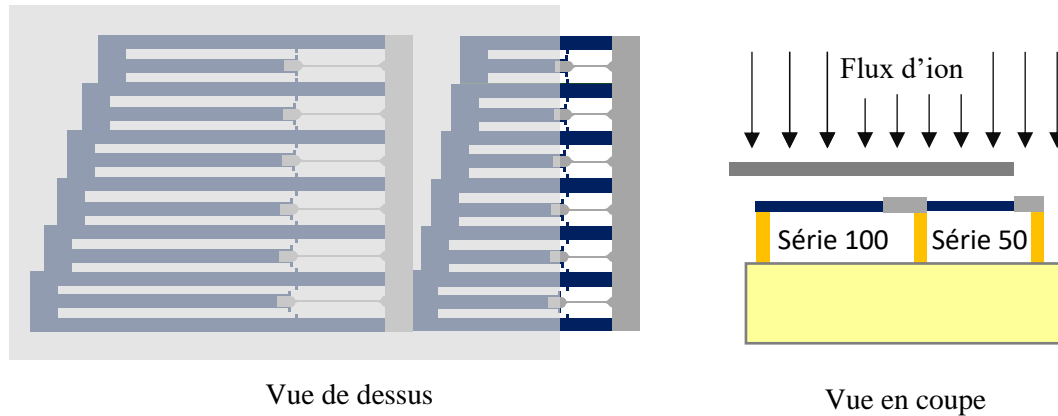


Figure III.21 : Choix du positionnement du masque sur les structures.

Deux épaisseurs de films de cuivre ont été étudiées : 200 nm et 500 nm. Le film de 200 nm permet l'étude *in situ* dans un MET à une tension de 200 kV, l'épaisseur étant alors suffisamment faible pour être transparente aux électrons. L'épaisseur de 500 nm répond à une volonté d'optimisation de la géométrie des échantillons afin de limiter la perte de contrainte lors des études de relaxation et de fluage. En effet, à partir de la relation (III.4) on peut déduire :

$$\sigma = \frac{S_a}{S} E_a \left(-\varepsilon_a^{mis} - \frac{\varepsilon L}{L_a} \right). \quad (III.11)$$

Cette équation indique que plus les rapports S_a/S et L/L_a sont faibles et plus la contrainte diminue lentement dans l'échantillon avec la déformation. Les longueurs et les largeurs sont déjà définies, seuls des ajustements sur les épaisseurs de films déposés sont possibles. Avec une épaisseur de 500 nm de cuivre et 85 nm de Si_3N_4 , la perte de contrainte est d'environ 20 MPa par % de déformation pour l'actuateur le plus long (3 mm) de la série B de 50 μm . A titre de comparaison pour des épaisseurs de 85 nm de Si_3N_4 et 200 nm de Cu, la relaxation est de 640 MPa par % pour la structure présentant l'actuateur le plus petit (200 μm) sur la même série B de 50 μm .

III.5 Traitement des données

Afin d'évaluer au mieux la contrainte appliquée et la déformation de l'éprouvette, Renaud Vayrette et al. [6] ont proposé de prendre en compte les déformations de l'intégralité des parties composant une micromachine. Une micromachine n'est plus alors simplement une poutre actuatrice et une éprouvette mais est composée de :

- L'extension de la poutre actuatrice due à la surgravure de l'oxyde
- La poutre actuatrice libre jusqu'à la jonction avec l'éprouvette
- La jonction actuateur/échantillon
- La tête de l'éprouvette
- L'éprouvette
- La base de l'éprouvette
- L'extension de l'éprouvette due à la surgravure de l'oxyde

Le déplacement mesuré au niveau des curseurs est alors la somme des déplacements associés aux déformations des parties du même côté des curseurs, Figure III. 22.

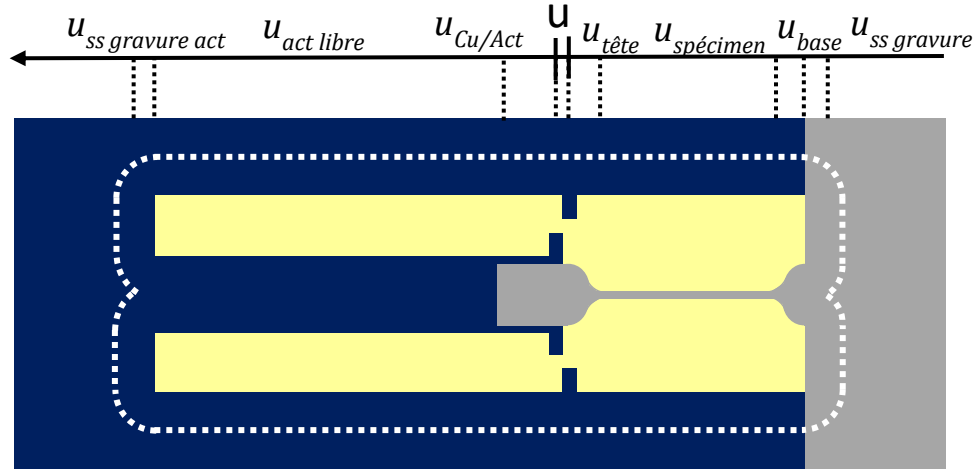


Figure III. 22 : Représentation schématique d'une micromachine. Les pointillés blancs délimitent la zone gravée par la solution de HF. Les déplacements u sont notés relativement à la zone qu'ils représentent.

En prenant comme convention que le déplacement est positif lorsque la région qu'il concerne s'allonge, il est possible d'écrire les deux relations suivantes :

$$\text{Côté échantillon} \quad u = u_{tête} + u_{échantillon} + u_{base} + u_{ss\ gravure\ échantillon}, \quad (\text{III.12})$$

$$\text{Côté actuateur} \quad -u = \frac{u_{EC}}{Act} + u_{act\ libre} + u_{ss\ gravure\ act}. \quad (\text{III.13})$$

En faisant l'hypothèse que les différentes parties (hors échantillon) sont suffisamment larges pour n'être déformées qu'élastiquement, les déformations peuvent s'écrire comme la somme des déformations dues aux contraintes internes et de la déformation élastique. Les relations (III.12) et (III.13) et peuvent alors s'écrire :

$$\begin{aligned} \text{Côté échantillon} \quad u &= \left(\varepsilon_{Ec}^{mis} + \frac{\sigma_{Ec}}{E_{Ec}} \frac{S_{Ec}}{S_{tête\ moyen}} \right) L_{tête} + \varepsilon_{Ec} L_{Ec} \\ &+ \left(\varepsilon_{Ec}^{mis} + \frac{\sigma_{Ec}}{E_{Ec}} \frac{S_{Ec}}{S_{base\ moyen}} \right) L_{base} \end{aligned} \quad (\text{III.14})$$

$$\begin{aligned} &+ \left(\varepsilon_{spec}^{mis} + \frac{\sigma_{Ec}}{E_{Ec}} \frac{S_{Ec}}{S_{ss\ gravure\ Ec}} \right) L_{ss\ gravure\ Ec}, \\ \text{Côté actuateur} \quad -u &= \left(\varepsilon_{Act}^{mis} + \frac{\sigma_{Ec}}{E_{Act}} \frac{S_{Ec}}{S_{Act}} \right) L_{Act} \\ &+ \left(\varepsilon_a^{mis} + \frac{\sigma_{Ec}}{E_a} \frac{S_{Ec}}{S_a} \right) \left(La - L_{Act} \right) \\ &+ \left(\varepsilon_a^{mis} + \frac{\sigma_{Ec}}{E_a} \frac{S_{Ec}}{S_{ss\ gravure\ Act}} \right) \left(L_{ss\ gravure\ Act} \right). \end{aligned} \quad (\text{III.15})$$

où les indices Ec , a , Ec/Act correspondent respectivement à l'échantillon, à l'actuateur et à la jonction entre l'échantillon et l'actuateur avec les déformations internes ε^{mis} , les sections S , les modules d'Young E et les longueurs L . $S_{base\ moyen}$ est la section moyenne de la base de la poutre échantillon. Pour les sous-gravures, on considère toute la largeur de la base des poutres.

ε_{Act}^{mis} et E_{Act} peuvent être exprimés en fonction des autres paramètres en considérant les deux couches comme deux ressorts en parallèle :

$$\left\{ \begin{array}{l} \varepsilon_{Act}^{mis} = \frac{E_{Ec}}{E_a S_a + E_{Ec} S_{tête\ max}} S_{tête\ max} \varepsilon_{Ec}^{mis} + \frac{E_a}{E_a S_a + E_{Ec} S_{tête\ max}} S_a \varepsilon_a^{mis} \\ \frac{E_{Ec}}{Act} = \frac{E_a S_a + E_{Ec} S_{tête\ max}}{S_a + S_{tête\ max}} \end{array} \right. \quad (III.16)$$

σ_{Ec} est alors déduit de la relation (III.15) et ε_{spec} de la relation (III.14) :

$$\begin{aligned} \sigma_{Ec} = & \left(-u - \frac{\varepsilon_{Ec}^{mis}}{Act} \frac{L_{Ec}}{act} - \varepsilon_a^{mis} \left(L_a - \frac{L_{Ec}}{act} \right) - \varepsilon_a^{mis} \cdot L_{ss\ gravure\ Act} \right) \\ & / \left(\frac{1}{E_{Ec}} \frac{S_{Ec}}{Act} \frac{L_{Ec}}{Act} + \left(\frac{1}{E_a} \frac{S_{Ec}}{S_a} \right) \left(L_a - \frac{L_{Ec}}{act} \right) \right) \\ & + \frac{1}{E_a} \frac{S_{Ec}}{S_{ss\ gravure\ Act}} L_{ss\ gravure\ Act}, \end{aligned} \quad (III.17)$$

$$\begin{aligned} \varepsilon_{Ec} = & \left(u - \left(\varepsilon_{Ec}^{mis} + \frac{\sigma_{Ec}}{E_{Ec}} \frac{S_{Ec}}{S_{tête\ moyen}} \right) L_{tête} \right. \\ & - \left(\varepsilon_{Ec}^{mis} + \frac{\sigma_{Ec}}{E_{Ec}} \frac{S_{Ec}}{S_{base\ moyen}} \right) L_{base} \\ & \left. - \left(\varepsilon_{Ec}^{mis} + \frac{\sigma_{Ec}}{E_{Ec}} \frac{S_{Ec}}{S_{ss\ gravure\ Ec}} L_{ss\ gravure\ Ec} \right) \right) / L_{Ec}. \end{aligned} \quad (III.18)$$

Lorsque l'actuateur est en partie irradié, nous avons considéré cette partie de l'actuateur comme inactive, c'est-à-dire totalement libéré de ses contraintes internes. Cela revient à dire qu'elle se déforme élastiquement mais que la valeur de ε_a^{mis} est égale à 0 sur cette partie. Le module d'Young est considéré constant. Seule l'expression de la contrainte est modifiée, (III.17) elle devient alors dans le cas où la longueur d'actuateur irradiée $L_{act\ irr}$ est supérieure à la longueur de recouvrement de l'actuateur sur le cuivre $\frac{L_{Ec}}{act}$:

$$\begin{aligned} \sigma_{Ec} = & \left(-u - \frac{\varepsilon_{Ec}^{mis}}{Act\ irr} \frac{L_{Ec}}{act} - \varepsilon_a^{mis} (L_a - L_{act\ irr}) - \varepsilon_a^{mis} \cdot L_{ss\ gravure\ Act} \right) \\ & / \left(\frac{1}{E_{Ec}} \frac{S_{Ec}}{Act} \frac{L_{Ec}}{Act} + \left(\frac{1}{E_a} \frac{S_{Ec}}{S_a} \right) \left(L_a - \frac{L_{Ec}}{act} \right) \right) \\ & + \frac{1}{E_a} \frac{S_{Ec}}{S_{ss\ gravure\ Act}} L_{ss\ gravure\ Act}. \end{aligned} \quad (III.19)$$

Ceci est certainement une approximation discutable puisque, d'une part, elle ne tient pas compte de la cinétique de la relaxation des contraintes. D'autre part, la relaxation des contraintes dans la partie irradiée tend probablement à rendre la contrainte nulle dans l'actuateur lorsque celui-ci est en suspension lors de l'irradiation. Lorsqu'une partie de l'actuateur est irradiée sur une micromachine relâchée, la contrainte est donc sous-évaluée à faible dose pour des raisons de cinétique et potentiellement fortement surévaluée à forte dose. Plus l'actuateur est long et plus la cinétique de relaxation sera lente.

Le Tableau III. 2 donne des valeurs obtenues sur une série B avec des éprouvettes de cuivre de $6 \times 50 \times 0,5 \mu\text{m} \times \mu\text{m} \times \mu\text{m}$. Les épaisseurs des films sont mesurées après relâchement par

profilométrie. Les largeurs et longueurs sont mesurées sur des images MEB au grandissement adéquat.

ε_a^{mis} est mesurée sur des micromachines autoactuées situées près des séries B.

ε_a^{mis}	(-0,3%)
S_a	(1,3 μm^2)
L_a	200-3000 μm
E_a	235 GPa
ε_{Ec}^{mis}	-0,2%
S_{Ec}	(3 μm^2)
L_{Ec}	50 μm
E_{Ec}	130 GPa
$\frac{L_{Ec}}{act}$	(10 μm)
$S_{tête\ max}$	(6,5 μm^2)
$S_{tête\ moyen}$	(4,5 μm^2)
$L_{tête}$	(3 μm)
$S_{base\ moyen}$	(4,5 μm^2)
L_{base}	(3 μm)
$S_{base\ max}$	(6,5 μm^2)
$L_{ss\ gravure\ Act}$	(10 μm)
$S_{ss\ gravure\ Act}$	(2,6 μm^2)
$L_{ss\ gravure\ Ec}$	(10 μm)
$S_{ss\ gravure\ Ec}$	(15 μm^2)
$L_{Act\ irradié}$	(50 μm)

Tableau III. 2 : Liste des paramètres permettant l'évaluation de la contrainte et de la déformation pour des éprouvettes de cuivre de 6 x 50 x 0,5 μm x μm x μm . Les valeurs entre parenthèses sont mesurées systématiquement sur chaque échantillon.

La Figure III. 23 présente les courbes de tractions obtenues sur un film de 190 nm de cuivre PVD non recuit. Elles sont obtenues à partir des mêmes données issues des séries B. La Figure III. 23

(a) montre la courbe obtenue avec un traitement simple et la Figure III. 23 (b) la courbe obtenue en tenant compte des déformations élastiques de l'environnement. On peut remarquer que les points ne sont presque pas décalés au niveau des déformations mais qu'il y a un décalage marqué en contrainte au niveau des faibles déformations. En effet, ces points correspondent aux actuateurs les plus courts qui sont les structures les plus sensibles à des modifications de leur longueur effective.

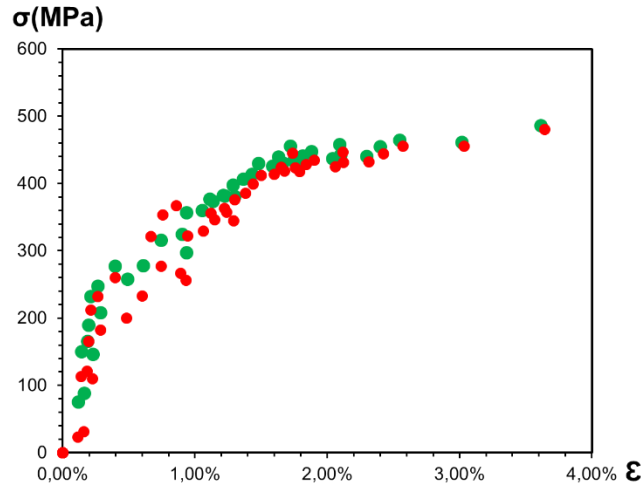


Figure III. 23 : Courbe de traction d'un film de 190 nm de cuivre non recuit avec un traitement de données simple (en rouge), avec le traitement décrit en II.5 (en vert).

III.6 Conclusion

La technique présentée permet donc de déformer sous une contrainte uniaxiale des films minces déposés sur un substrat de silicium. Le principe de cette méthode repose sur l'utilisation d'un actuateur en nitrure de silicium servant également de capteur de force. Garantir l'intégrité de cette actuateur sous irradiation en le protégeant par un feuillard d'acier doit permettre le bon fonctionnement des micromachines sous irradiation.

En revanche, l'utilisation d'un tel actuateur ne permet pas de réaliser un essai de fluage pur. La contrainte diminuant avec la déformation. La déformation maximale des éprouvettes est alors limitée par la géométrie de l'actuateur.

Cette méthode est appliquée au cuivre mais elle peut être étendue à tout matériau pouvant être déposé sur un substrat. Cependant, des alliages complexes comme les aciers austénitiques utilisés dans l'industrie nucléaire ne peuvent être utilisés en l'absence de techniques de dépôt adaptées.

Toutes les expériences se déroulent ici à température ambiante pour des questions de simplicité. Des essais à plus haute température, 50 °C, ont déjà été menés avec succès sur le palladium [7]. Cela nécessite de prendre en compte la dilatation thermique des différents objets pour connaître la contrainte appliquée. Des essais en température sont donc envisageables avec cette méthode expérimentale.

Références Bibliographiques III

- [1] J. G. E. Gardeniers, H. A. C. Tilmans, and C. C. . VISSERS, "LPCVD silicon-rich silicon nitride films for applications in micromechanics, studied with statistical experimental design*," *J. Vac. Sci. Technol. Vac. Surf. Films*, vol. 14, no. 5, p. 2879, Sep. 1996.
- [2] S. A. Fabritsiev, S. J. Zinkle, and B. N. Singh, "Evaluation of copper alloys for fusion reactor divertor and first wall components," *J. Nucl. Mater.*, vol. 233–237, pp. 127–137, Oct. 1996.
- [3] W. Shi, H. Zhang, G. Zhang, and Z. Li, "Modifying residual stress and stress gradient in LPCVD Si₃N₄ film with ion implantation," *Sens. Actuators Phys.*, vol. 130–131, pp. 352–357, Aug. 2006.
- [4] E. P. EerNisse, "Stress in ion-implanted CVD Si₃N₄ films," *J. Appl. Phys.*, vol. 48, no. 8, p. 3337, 1977.
- [5] O. Tabata, S. Sugiyama, and M. Takigawa, "Control of internal stress and Young's modulus of Si₃N₄ and polycrystalline silicon thin films using the ion implantation technique," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 56, no. 14, p. 1314, 1990.
- [6] R. Vayrette, J.-P. Raskin, and T. Pardoen, "On-chip fracture testing of freestanding nanoscale materials," *Eng. Fract. Mech.*, vol. 150, pp. 222–238, Dec. 2015.
- [7] G. Guisbiers, M.-S. Colla, M. Coulombier, J.-P. Raskin, and T. Pardoen, "Study of creep/relaxation mechanisms in thin freestanding nanocrystalline palladium films through the lab-on-chip technology," *J. Appl. Phys.*, vol. 113, no. 2, p. 24513, 2013.

Chapitre IV

Caractérisation des films non irradiés

IV.1 Microstructure des films	6
IV.1.1 Film de 200 nm d'épaisseur.....	6
IV.1.2 Film de 500 nm d'épaisseur.....	6
IV.2 Contraintes internes.....	6
IV.3 Comportement en traction	7
IV.3.1 Film de 200 nm d'épaisseur.....	7
IV.3.2 Film de 500 nm d'épaisseur.....	7
IV.4 Fluage hors irradiation	7
IV.4.1 Volume d'activation et exposant de sensibilité	7
IV.4.2 Film de 200 nm d'épaisseur non recuit.....	7
IV.4.3 Film de 200 nm d'épaisseur recuit.....	8
IV.4.4 Film de 500 nm d'épaisseur recuit.....	8
IV.5 Synthèse	8

Ce chapitre s'attarde sur la caractérisation des films de cuivre hors irradiation. Pour bien comprendre comment les films de cuivre évoluent sous irradiation et sous contrainte, il est primordial de caractériser au mieux la microstructure, le comportement mécanique et les mécanismes de déformation de ces films hors irradiation. Les différences de comportement sous irradiation n'en seront alors que plus perceptibles. L'étude se focalise sur des films de 200 et 500 nm d'épaisseur qui seront les deux types d'échantillons placés sous flux (chapitre V).

IV.1 Microstructure des films

IV.1.1 Film de 200 nm d'épaisseur

La microstructure des films PVD après dépôt n'est pas stable. A température ambiante, on observe une augmentation de la taille de grain. Pour démontrer ce point, un film de 200 nm de cuivre PVD a pu être déposé, dans les mêmes conditions que pour les micromachines, sur une membrane de 20 nm de nitrure de silicium afin de réaliser des observations MET du phénomène. Dans les heures qui suivent le dépôt, des déplacements de joints de grains sont visibles au MET, voir Figure IV. 1.

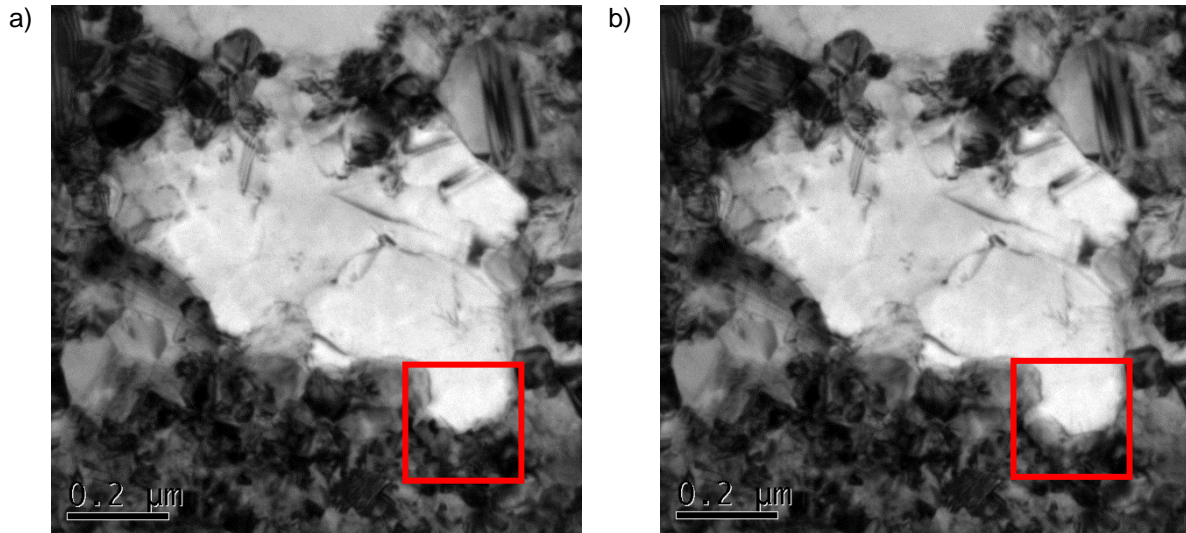


Figure IV. 1 : Croissance de grains observée au MET quelques heures après dépôt.

Ces déplacements de joints de grains ne sont pas générés par l'apport énergétique du faisceau d'électrons. En effet, même lorsque le matériau est laissé au repos dans une armoire sous azote, la taille de grain continue d'évoluer dans le matériau. D'une matrice de petits grains, de quelques dizaines de nanomètres, entourant des gros grains, la microstructure tend vers un état homogène de gros grains, de plusieurs centaines de nanomètres, Figure IV. 2. Afin de stabiliser la microstructure, un recuit à 150 °C dans une atmosphère de N_2/H_2 pendant une demi-heure est appliqué sur les micromachines qui seront placées sous irradiation. Le recuit est effectué au plus près du dépôt.

Les observations MET de cet échantillon recuit ne montrent pas de porosité. Comme l'échantillon non recuit, le film recuit est dense.

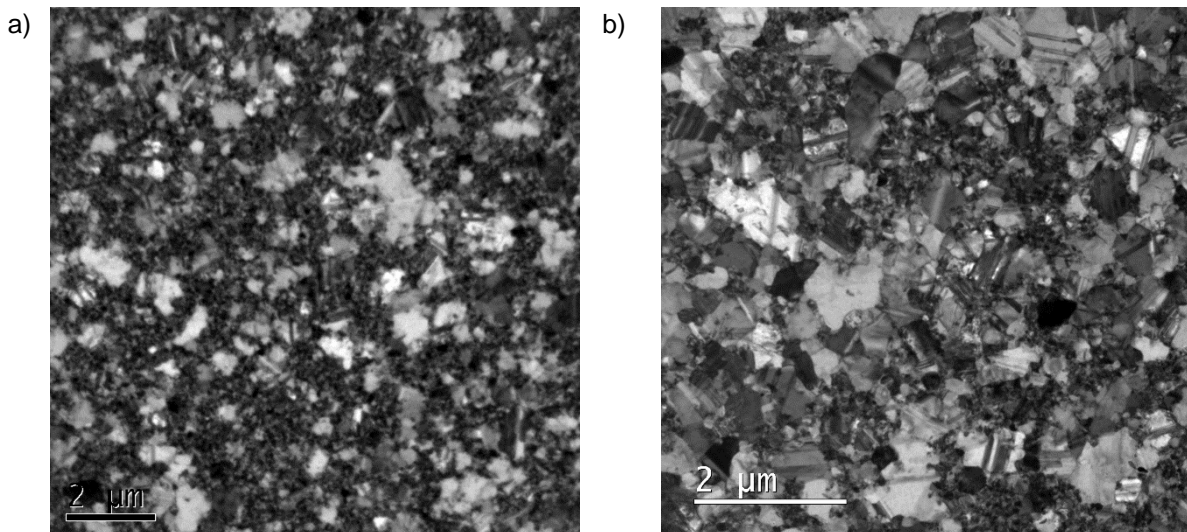


Figure IV. 2 : Microstructure d'un film de 200 nm a) non recuit quelques heures après dépôt, b) cinq jours après dépôt.

L'effet de ce recuit est visible sur les cartographies EBSD de la Figure IV. 3. Ces cartographies ont été obtenues dans un MEB sur le même type d'échantillon que ceux utilisés pour les images MET. Le code couleur suit la convention du triangle standard repéré dans le coin supérieur gauche des images, la couleur bleue indique une direction $\{111\}$ proche de la normale à l'échantillon. La Figure

IV. 3 montre que les films recuit et non recuit sont fortement texturés avec des plans {111} parallèles à la surface de l'échantillon.

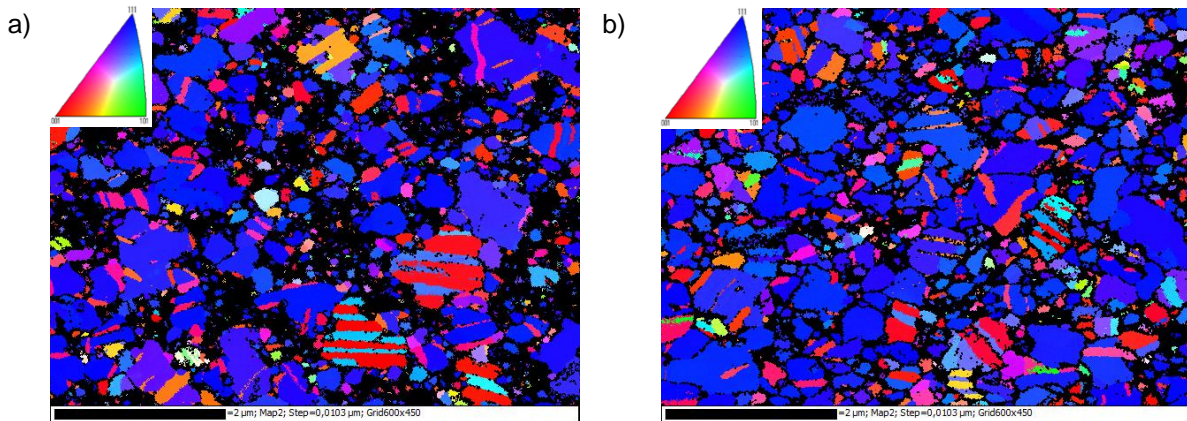


Figure IV. 3 : Cartographie d'orientation projetée sur la normale obtenue par EBSD sur a) l'échantillon non recuit après plusieurs semaines, b) sur un échantillon recuit à 150 °C après dépôt. Les couleurs correspondent aux couleurs standards d'orientation.

La distribution obtenue en nombre de la taille grain est présentée sur la Figure IV. 4. La taille moyenne de grains est de 120 nm pour le film non recuit et 140 nm pour le film recuit avec, dans les deux cas, une distribution monomodale. Cette faible différence s'explique par le fait que la moyenne n'est faite que sur les grains indexés de plus de 35 nm de diamètre. La grande région non indexée du film non recuit n'est pas prise en compte dans le calcul de la taille de grain moyenne.

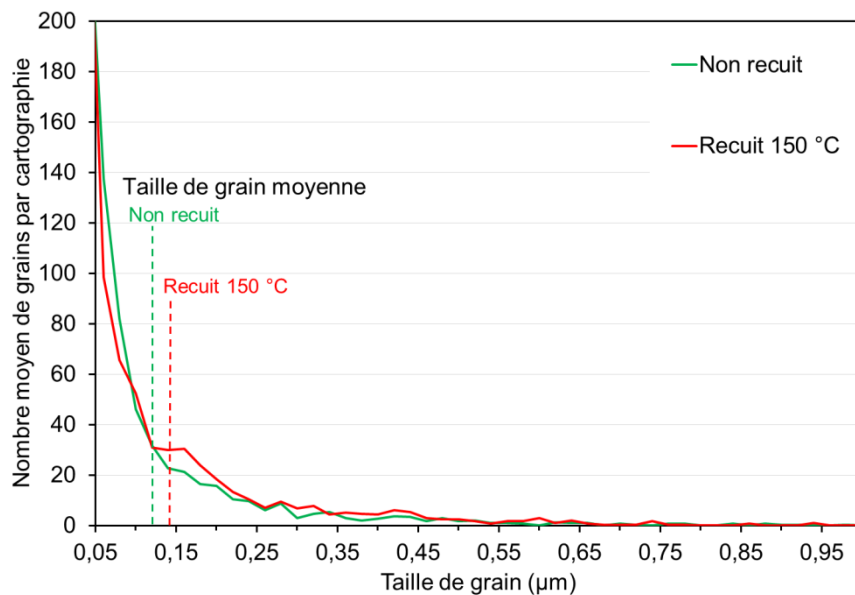


Figure IV. 4 : Distribution de la taille de grain dans un film de cuivre 200 nm non recuit et recuit à 150 °C.

IV.1.2 Film de 500 nm d'épaisseur

Des films de 500 nm de cuivre PVD ont été déposés sur une fine couche de 4 nm de Cr sur un substrat de silicium. Le choix de travailler sur des films de 500 nm répondait à une volonté d'optimisation des épaisseurs des films pour étudier dans les meilleures conditions possibles le fluage d'irradiation. Une étude de l'influence du recuit sur la taille de grains a été effectuée afin d'obtenir différentes tailles de grains. Pour cela des recuits à 100 °C, 150 °C et 250 °C ont été effectués sous une atmosphère de N₂/H₂. La Figure IV. 5 montre des cartographies d'orientations projetées sur la normale à l'échantillon obtenues par EBSD. Les images révèlent ainsi un film texturé avec des plans {111} parallèles à la surface de l'échantillon pour toutes les conditions de recuit.

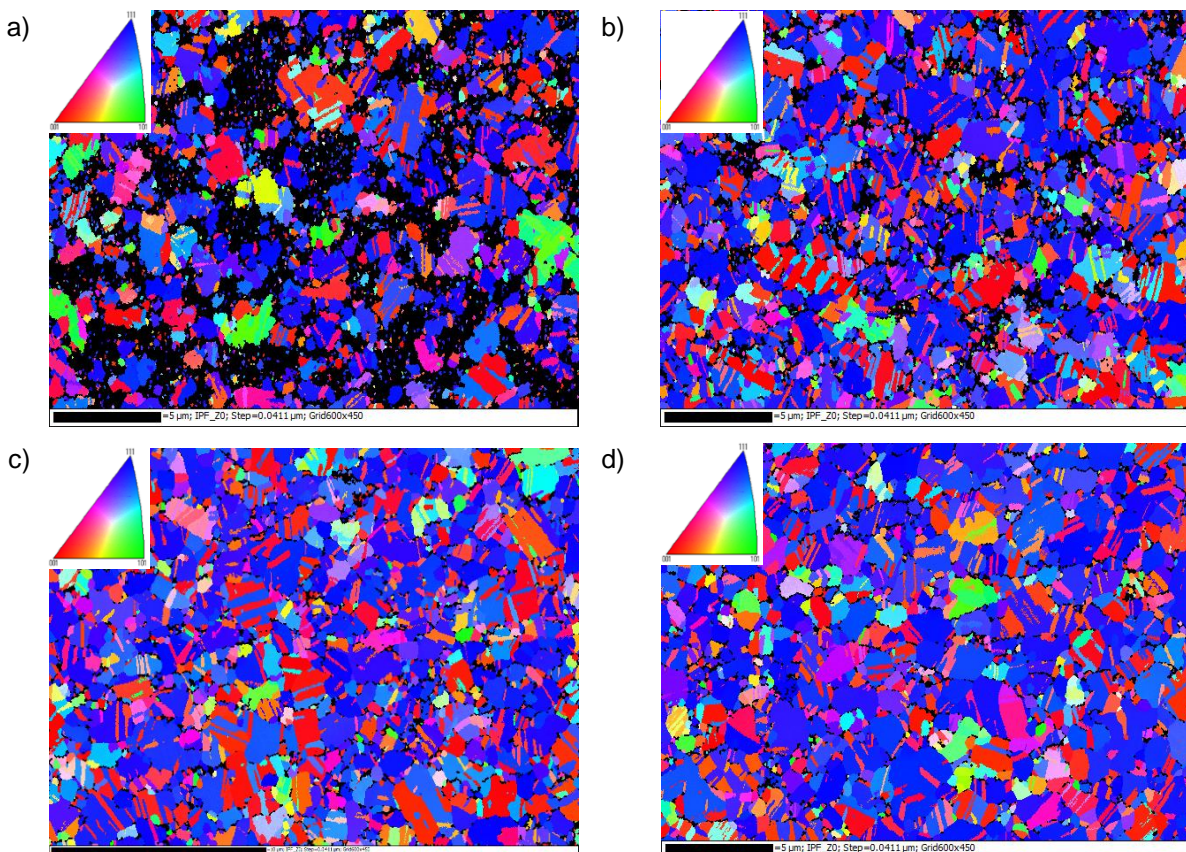


Figure IV. 5 : Microstructure a) d'un film de 500 nm non recuit plusieurs semaines après dépôt, b) après recuit à 100 °C pendant une demi-heure, c) à 150 °C pendant une heure et d) à 250 °C pendant une heure.

La résolution de ces cartographies est inférieure à celle des films de 200 nm, un pixel représente un carré de surface d'une largeur de 30 nm. Seuls les grains de plus de 100 nm de diamètre sont comptabilisés pour la mesure. La Figure IV. 6 donne la distribution en nombre des grains dans les différentes conditions de recuit. Les grains atteignent une taille proche de leur taille maximale pour un recuit à 150 °C pendant une heure. La taille de grains moyenne sur ce film est d'environ 520 nm pour le film recuit contre 276 nm pour le film non recuit. Leur distribution dans le film à 150 °C est monomodale néanmoins la faible résolution ne permet pas d'observer les très faibles tailles de grains (<100 nm).

De plus, le film recuit à 250 °C présente en surface des pores indiquant une détérioration de la qualité du film. Il n'a donc pas été possible d'obtenir par recuit différentes microstructures stables et seul le film recuit à 150 °C a été étudié.

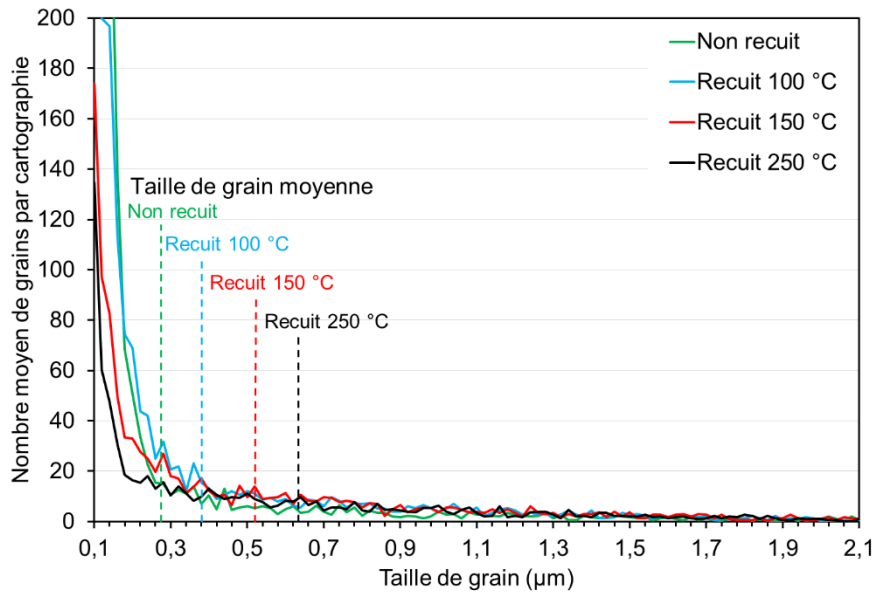


Figure IV. 6 : Distribution de la taille de grain dans le film de 500 nm pour les quatre conditions de recuit.

Des lames FIB ont été prélevées dans les films de 500 nm afin de pouvoir observer la microstructure en MET. La Figure IV. 7 donne un exemple de la morphologie des grains dans l'épaisseur. Le film non recuit présente des grains colonnaires avec principalement un seul grain dans l'épaisseur, le film recuit à 150 °C présente, quant à lui majoritairement, des grains cubiques avec de grandes macles de recuit. La présence de nanomacles, de 15-20 nm de largeur, comme dans le film non recuit, Figure IV. 7 a) n'est pas observée dans le film recuit de 500 nm.

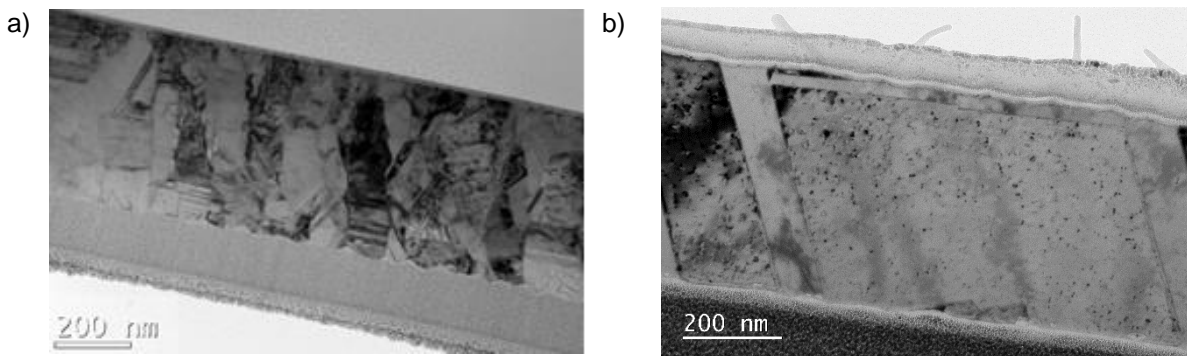


Figure IV. 7 : Microstructure d'un film de 500 nm a) non recuit plusieurs semaines après dépôt, b) après recuit à 150 °C.

IV.2 Contraintes internes

Les mesures des contraintes internes ont été effectuées avant et après recuit pour les deux films par la méthode de Stoney (voir chapitre III). Le passage des contraintes aux déformations est obtenu en divisant les contraintes mesurées par le module biaxial $E/(1-\nu)$. Par convention dans cette thèse, le module de Young du cuivre est pris égale à sa valeur théorique de 130 GPa correspondant à une texture de fibre {111} parfaite [1] bien qu'expérimentalement les valeurs obtenues dans la littérature sont plus proches de 110 GPa [1], [2]. Le coefficient de Poisson du cuivre est de 0,34 [3].

	σ^{int}	ε^{mis}
Film 200 nm/4 nm Cr non recuit	~0	~ 0
Film 200 nm/4 nm Cr recuit 150 °C	425 MPa	-0,2%
Film 500 nm/4 nm Cr non recuit	~ 0	~0
Film 500 nm/4 nm Cr recuit 150 °C	285 MPa	-0,15%

Tableau IV. 1 : Valeurs contraintes obtenues par mesure de courbure du wafer en appliquant la formule de Stoney.

On peut remarquer que le recuit entraîne une augmentation des contraintes internes mesurées à température ambiante. La valeur de 425 MPa correspond environ à la valeur de contraintes introduites à 150 °C dans un film de cuivre déposé à l'ambiante du fait des différences entre les coefficients de dilatation thermique du cuivre et du silicium, $\alpha_{Si}=2,3 \cdot 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ contre $\alpha_{Cu}=16,5 \cdot 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ [4] :

$$\varepsilon_{recuit}^{mis} = (\alpha_{Cu} - \alpha_{Si})(T_{recuit} - T_{ambiant}). \quad (IV.1)$$

Le film de cuivre se charge en compression lors de la montée en température et les contraintes sont "récupérées" élastiquement en tension lors du refroidissement. Il y a donc eu une relaxation des contraintes durant le palier de température à 150 °C conduisant à l'apparition de contraintes internes lors du refroidissement. Le traitement thermique effectué n'a donc pas simplement entraîné une croissance de grains mais également une plastification du film avec probablement l'introduction de défauts structuraux dans le film de cuivre.

La valeur de ces contraintes internes correspond au chargement moyen du film de cuivre avant gravure de la couche sacrificielle. Après gravure, le chargement est mesuré directement à partir de l'actuateur, équation (III.4). Outre les modifications structurales qui peuvent être introduites par la création des contraintes internes, le niveau de ces dernières n'a pas d'influence sur le comportement observé en relaxation.

IV.3 Comportement en traction

Pour évaluer le comportement mécanique des films en traction, il est nécessaire d'effectuer les mesures le plus tôt possible après le relâchement afin d'éviter une relaxation trop importante et non contrôlée des contraintes dans les films de cuivre. Les structures sont donc séchées à l'air libre, comme expliqué dans la partie III, afin d'être figées. En effet, les micromachines restent suspendues et donc déformables tant qu'elles restent immergées en solution. En séchant à l'air libre, des gouttes présentes sous les structures permettent, du fait des tensions de surface, de coller les structures en séchant sur le substrat et d'arrêter ainsi leur déformation. En additionnant les temps de gravure de l'oxyde de silicium dans HF et les différents temps de rinçage dans l'isopropanol, les courbes sont obtenues après 15-20 min de relaxation. Les modules de Young et les limites d'élasticité obtenus à partir de ces courbes sont donc plus faibles que leur valeur réelle.

La vitesse de déformation ne peut pas être évaluée dans cette configuration. La poutre actuatrice est plus large que l'éprouvette, c'est donc elle qui est relâchée en dernier. Le chargement de l'éprouvette est alors brutal si le dernier point relâché de l'actuateur est près de l'éprouvette ou plus doux si ce point est situé plus loin sur l'actuateur. Dans l'ensemble, les vitesses de déformation sont nettement supérieures aux vitesses observées en fluage/relaxation hors irradiation, partie IV.4.

Ces essais seront considérés comme des essais à “ haute vitesse ” dans la suite de la thèse mais cette notion de “ haute vitesse ” reste relative aux essais de relaxation.

Les mesures de déplacements sont considérées comme valides tant que l’intégrité de la structure est conservée notamment par l’absence de grandes fissures ouvertes. De même, lorsqu’une localisation trop importante de la déformation apparaît si le point mesuré n’est pas aligné avec le reste de la série, il est jugé non représentatif du comportement de l’éprouvette. En effet, le tracé de la courbe suppose que chaque poutre dans la série se comporte de manière similaire durant le chargement mécanique. Or, lorsque la localisation se produit pour des raisons géométriques dans deux poutres différentes le comportement observé est celui des grains où la localisation se produit et non plus le comportement de la poutre dans son ensemble.

IV.3.1 Film de 200 nm d’épaisseur

Le comportement mécanique des films de 200 nm en traction a été évalué sur des films de cuivre déposés sur une couche non uniforme de titane. Les données ont été acquises par R. Vayrette à l’UCL.

La Figure IV. 8 présente les courbes de traction pour le film non recuit et recuit. La déformation représentée est la déformation totale de l’éprouvette telle que définie dans le chapitre II. La courbe non recuite est obtenue à partir des séries B de largeur 4 et 6 μm et longueur 25, 50, 100 et 400 μm . La courbe recuite est quant à elle obtenue à partir des séries T de largeur 4 et 6 μm et longueur totale 500, 1000 et 2000 μm . La rupture d’une éprouvette est atteinte dans chacune de ces séries.

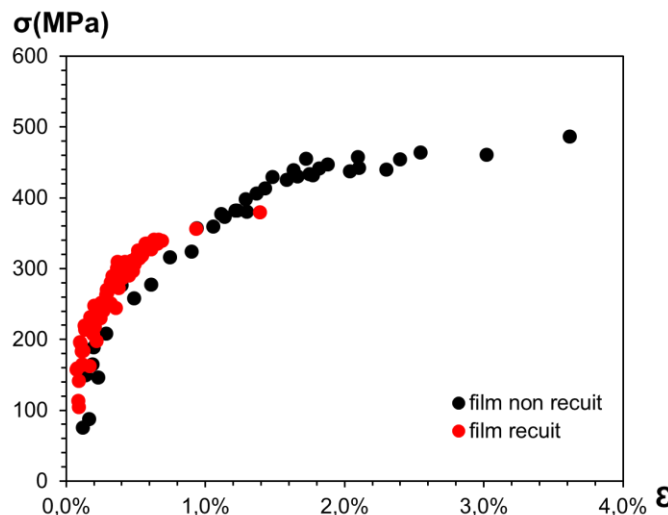


Figure IV. 8 : Courbe de traction du film de 200 nm non recuit (points noirs) et recuit à 150 °C (points rouges).

On peut remarquer que le film recuit a un comportement proche du film non recuit sur le premier pourcent de déformation. Le léger décalage peut être expliqué par la présence de contraintes internes en tension dans le film recuit. En revanche, la ductilité du matériau est fortement réduite par le recuit de plus d’un facteur 2.

Le Tableau IV. 2 donne les valeurs du module de Young et de la limite d’élasticité pour les deux films tels qu’extraits à l’aide des micromachines. Ces valeurs tiennent compte des différences de contraintes internes initialement présentes dans le film. Les limites d’élasticité à 0,2 % de déformation plastique sont obtenues en prenant le module de Young expérimental. Les incertitudes sont calculées à partir des incertitudes de mesures sur les déplacements et les épaisseurs.

Comme annoncé, les modules de Young mesurés sont nettement inférieurs au module de Young théorique. Il se produit probablement dans le film de cuivre, dans les 20 premières minutes qui précèdent le collage des éprouvettes sur le substrat lors du séchage, une forte relaxation des contraintes même à des niveaux inférieurs à la limite d'élasticité du matériau. Cette relaxation conduit à une augmentation de la déformation des structures. Les points mesurés sont donc décalés plus bas sur les courbes de relaxation des actuateurs, Figure IV. 9.

	E	$\sigma_{0,2\%}$
Film 200 nm/amas Ti non recuit	100 GPa \pm 30 GPa	300 MPa \pm 90 MPa
Film 200 nm/amas Ti recuit 150 °C	75 GPa \pm 20 GPa	290 MPa \pm 90 MPa

Tableau IV. 2 : Valeurs des modules d'Young et des limites d'élasticité à 0,2 % de déformation plastique.

La loi de Hall-Petch, relie la limite d'élasticité à la taille de grain :

$$\sigma = \sigma_0 + \frac{k}{\sqrt{d}}. \quad (IV.2)$$

Pour une taille de grain de 140 nm, en utilisant les paramètres de Hansen pour le cuivre nanocristallin [5], $\sigma_0=20$ MPa et $k=0,14$ MPa.m^{0,5} on trouve une limite d'élasticité de 390 MPa supérieure d'environ 100 MPa de la valeur mesurée sur le film recuit. Ce calcul est aussi cohérent avec une relaxation importante des contraintes pendant les 20 premières minutes.

La différence de comportement, notamment au niveau de la ductilité, est bien due au changement de microstructure et non à la différence de géométrie entre les deux échantillons. Les séries T permettent de couvrir l'intégralité du comportement du film de cuivre comme le montre la Figure IV. 9a). Les séries B sont plus spécifiques puisque les séries avec des éprouvettes de 400 μ m de long sont dédiées aux faibles déformations tandis que celles avec des éprouvettes de 25 et 50 μ m décrivent les déformations supérieures au %, Figure IV. 9b). La faible taille des éprouvettes rend les structures plus robustes pour l'étude des plus grandes déformations.

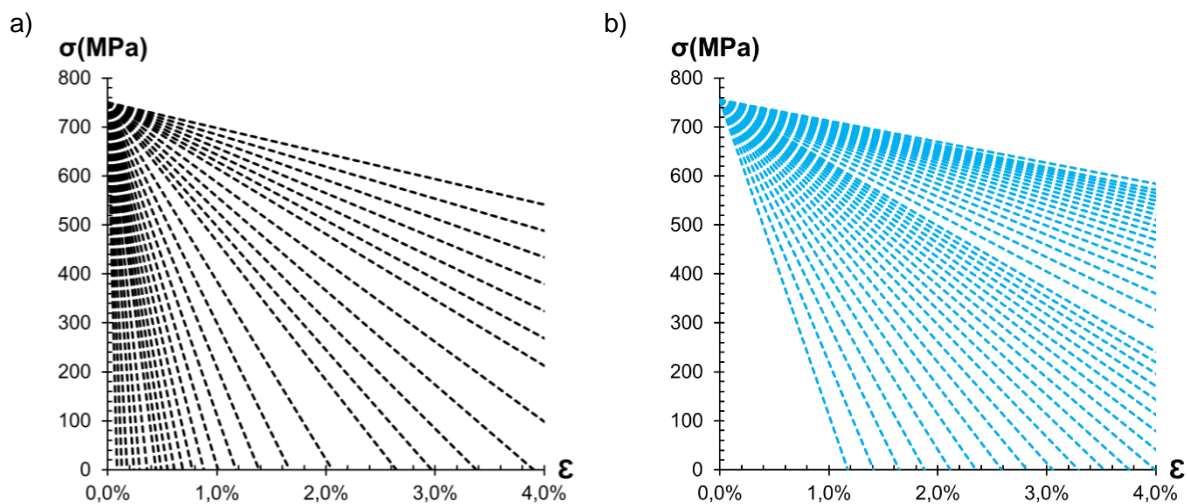


Figure IV. 9 : a) Pentes de relaxation des actuateurs pour les séries T et b) les séries B de 25 et 50 μ m de long.

La perte de ductilité après recuit pourrait être expliquée par l'introduction de "défauts structuraux" pendant le recuit. En effet, comme mentionné dans le paragraphe IV.2, les contraintes

internes dans le film recuit sont plus importantes que dans le film non recuit. De plus, une plastification du matériau a pu se produire lors de la descente en température du fait des différences entre les coefficients de dilation thermique du cuivre et du silicium. Cependant, cet effet ne se traduit pas comme attendu par un durcissement du matériau. Ce durcissement associé à une plastification pourrait être contrebalancé par un adoucissement par effet Hall-Petch grâce à une taille de grains plus grande après recuit.

Une autre explication pourrait résider dans un changement de rugosité du film après recuit. Une augmentation de la rugosité importante peut entraîner une perte de ductilité par imperfections. Ces imperfections en surface entraînent une concentration des contraintes et peuvent servir d'amorces aux fissures. Les courbes obtenues par profilométrie ne montrent pas un changement important de la rugosité des films après recuit. Néanmoins cela ne signifie pas que des imperfections ne soient pas apparues sur les parois latérales des éprouvettes.

Une dernière explication pourrait résider dans la présence dans le film non recuit de nanomacles parallèles à la surface de l'échantillon avec un écart entre macles de 15-20 nm. Ces nanomacles sont connues pour conférer au matériau une grande dureté sans perte de ductilité [6]. Dans cette hypothèse, ce serait le matériau non recuit qui aurait un gain de ductilité conféré par une forte densité de nanomacles. Cependant, les duretés du film recuit et non recuit sont très proches d'après la Figure IV. 8. Ce point rend peu probable cette hypothèse.

En revanche, cela ne peut pas être un effet de la couche d'adhésion. Sur ces deux échantillons, il s'agit d'une couche non continue de titane qui est gravée sous le cuivre lors du relâchement des structures. Les éprouvettes sont donc constituées uniquement d'un film de cuivre.

Les observations de la surface des éprouvettes, Figure IV. 10 et Figure IV. 11, révèlent à la fois dans le film recuit et non recuit, une localisation de la déformation dans des grains mous de taille importante, 1 μm environ sur les images. Cette localisation se traduit par la présence de bandes de glissement en surface indiquant des mécanismes de déformation associés au glissement des dislocations dans ces grains. Les sources de dislocations peuvent alors être des sources classiques de Frank-Read si les grains sont suffisamment gros ou directement les joints de grains. La pureté élevée du cuivre offre peu d'obstacles aux dislocations qui peuvent alors une fois émises, balayer facilement le grain.

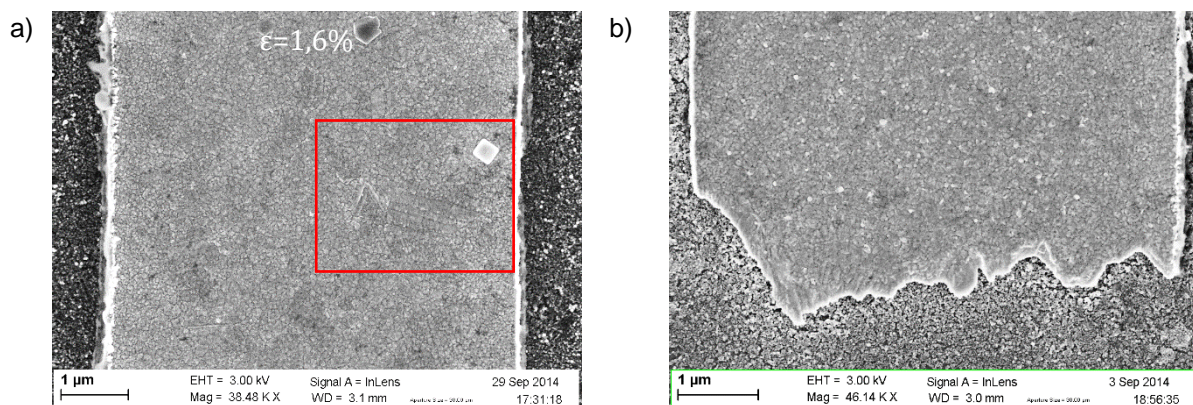


Figure IV. 10 : a) localisation de la déformation plastique observée dans un grain du film de 200 nm non recuit, b) exemple de faciès de rupture dans sur le film de 200 nm non recuit.

Les faciès de rupture sur les Figure IV. 10 et Figure IV. 11 montrent également un fort étirement de la matière sur des zones de plusieurs microns indiquant la génération d'une forte quantité de dislocations et une propagation transgranulaire de la fissure dans cette région. En particulier, le film recuit présente un profil en dents de scie typique de ce cas de figure. Dans le film non recuit, une propagation intergranulaire de la fissure au niveau de petits grains semble également se produire.

Aucun glissement aux joints de grains n'a été observé de manière évidente sur les films de 200 nm soumis à ces vitesses de déformation.

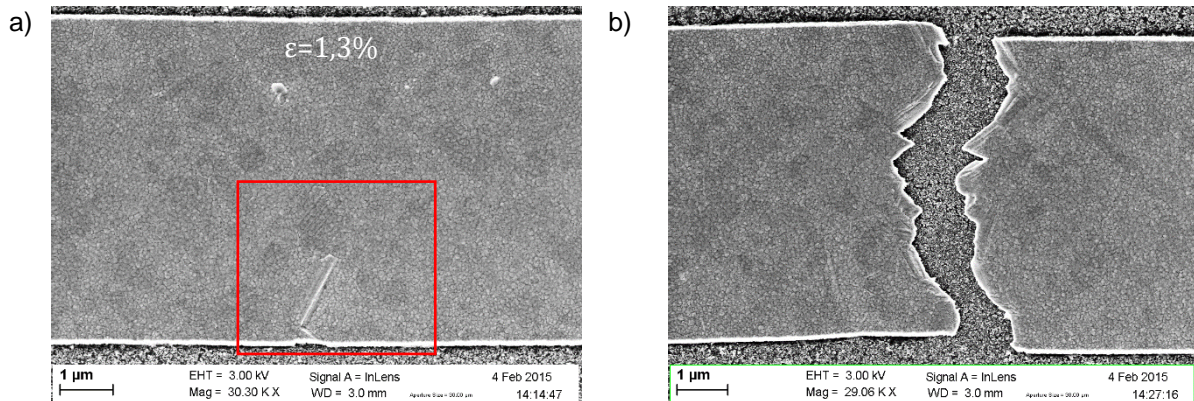


Figure IV. 11 : a) localisation de la déformation plastique observée dans un grain du film de 200 nm recuit, b) exemple de facies de rupture dans sur le film de 200 nm recuit.

Des images MET sur des micromachines réalisées sur des disques de 3 mm viennent confirmer la déformation par glissement de dislocations à ces vitesses de déformation. Sur les images de la Figure IV. 11, des empilements de dislocations sont clairement visibles près de la zone de rupture. Ces structures et les observations précédentes permettent d'affirmer que les mécanismes de déformation de films de 200 nm reposent sur le glissement intragranulaire de dislocations.

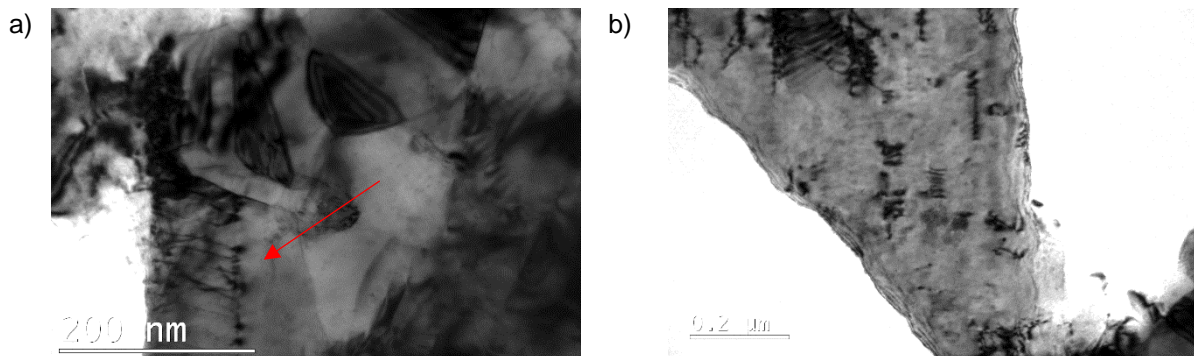


Figure IV. 12 : Empilements de dislocations visibles au MET sur une éprouvette brisée d'un film de 200 nm recuit.

IV.3.2 Film de 500 nm d'épaisseur

Le même protocole que pour les films de 200 nm est appliqué sur des films de 500 nm déposés sur 4 nm de chrome. Les structures avec les localisations de la déformation les plus marquées ne sont pas représentées. Le comportement du film non recuit n'a cette fois pas été évalué avec les micromachines.

La Figure IV. 13 présente les courbes de traction obtenues sur le film de 500 nm d'épaisseur recuit à 150 °C à partir des série T et B avec des éprouvettes de 6 μm large. Dans les séries B, la striction apparaît très rapidement avec les éprouvettes de 25 et 50 μm de long pour l'épaisseur d'actuateur choisie, 150 nm. Les séries B et T ont bien des comportements proches démontrant une fois de plus que les deux types de séries décrivent bien la même courbe sans effet marqué sur la ductilité.

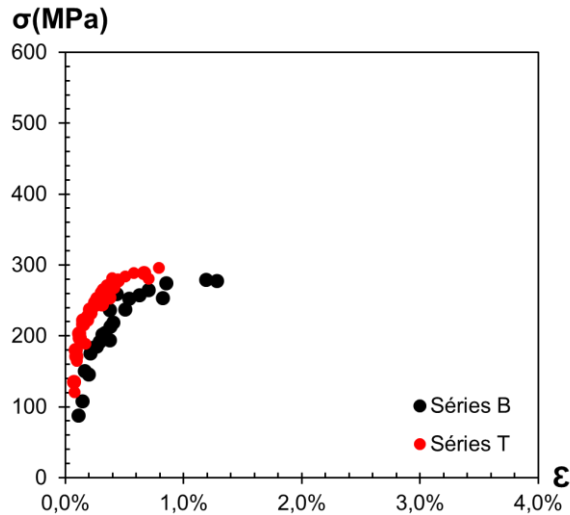


Figure IV. 13 : Courbe de traction obtenue avec les séries T (en rouge), et les séries B (en noir).

Le film de 500 nm recuit a une ductilité proche du film de 200 nm recuit avec une contrainte maximale applicable aux alentours de 300 MPa contre 380 MPa pour le film de 200 nm. Ces différences de contraintes peuvent s'expliquer par un effet Hall-Petch puisque la taille de grain du film de 500 nm est plus de deux fois plus grande que dans le film de 200 nm.

De manière analogue aux films de 200 nm, le module de Young et la limite d'élasticité à 0,2 % sont relevés. Les deux paramètres sont proches du film de 200 nm recuit. Les deux épaisseurs de films ont une réponse quasi identique en traction.

	E	$\sigma_{0,2\%}$
Film 500 nm/4 nm Cr recuit 150 °C	85 GPa \pm 15 GPa	260 MPa \pm 60 MPa

Tableau IV. 3 : Valeurs des modules de Young des limites d'élasticité à 0,2 % de déformation plastique

Comme pour les films de 200 nm, la localisation de la déformation semble se produire d'abord dans des grains mous de taille importante, Figure IV. 14. Des bandes de glissements sont à nouveau observées sans qu'il y ait de glissement évident aux joints de grains. Les faciès de rupture révèlent également une forte déformation des grains dans cette région avec une propagation de rupture très majoritairement intragranulaire. Il ne semble pas y avoir de différences majeures du point de vue des mécanismes de déformations entre les films de 200 et 500 nm pour les vitesses de déformation importantes.

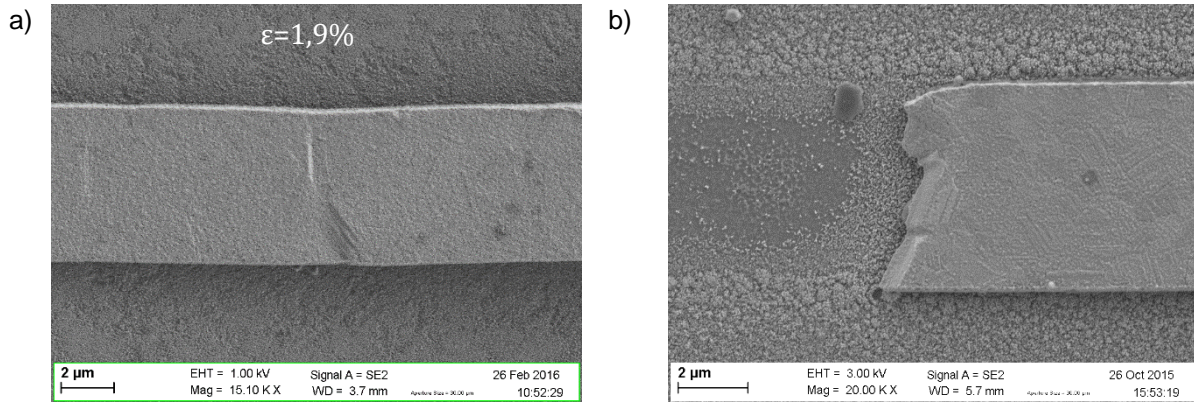


Figure IV. 14 : a) localisation de la déformation plastique observée dans le film de 500 nm recuit, b) exemple de faciès de rupture sur le film de 500 nm recuit.

IV.4 Fluage hors irradiation

Le comportement en fluage/relaxation est évalué à partir de structures maintenues en suspension. Au lieu d'être séchées à l'air libre comme précédemment, les structures sont séchées à l'aide d'un équipement CPD (Critical Point Dryer) permettant d'éviter la transition liquide vapeur du solvant. Avec ce protocole, le premier point de mesure peut être obtenu seulement après 2h de relaxation. Les contraintes appliquées ont donc pu significativement diminuer. Les vitesses de déformation à ce moment précis sont typiquement autour de 10^{-8} s^{-1} . Ces vitesses sont considérées comme faibles en comparaison des essais précédents.

IV.4.1 Volume d'activation et exposant de sensibilité

Afin d'analyser les courbes de relaxation et de comparer les données avec la littérature, deux paramètres sont extraits : le volume d'activation V_{act} et l'exposant de sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation, m . Ils sont définis par les deux relations suivantes pour un essai de traction :

$$V_{act} = M k T \left(\frac{\partial \ln \dot{\varepsilon}_p}{\partial \sigma} \right)_T, \quad (\text{IV.3})$$

$$m = \left(\frac{\partial \ln \sigma}{\partial \ln \dot{\varepsilon}_p} \right)_T = \frac{M k T}{\sigma V_{act}}, \quad (\text{IV.4})$$

où M est le facteur de Taylor, k la constante de Boltzmann, T la température et ε_p la déformation plastique se produisant durant la relaxation.

Le volume d'activation dérive directement de considérations thermodynamiques sur l'énergie libre associée aux mécanismes de déformation en jeu dans le matériau. Le paramètre m est un paramètre plus empirique utilisé par de nombreux auteurs notamment lors des essais de sauts de vitesses de déformation [7], [8].

Le volume d'activation obtenu à partir de la contrainte totale dans les essais est toujours un volume d'activation apparent. En effet, l'expression (IV.3) n'est valable qu'à microstructure constante. Théoriquement, il conviendrait de prendre une contrainte effective qui tiendrait compte

des contraintes locales introduites notamment par les dislocations. En première approximation, la distinction n'est pas faite dans ce travail.

Ce paramètre est généralement donné en b^3 , où b est la norme du vecteur de Burgers principal du matériau. Une valeur autour de b^3 est directement associée aux mécanismes de diffusion des défauts ponctuels [9] tandis que des valeurs de plusieurs centaines de b^3 correspondent généralement à des mécanismes basés sur les interactions entre dislocations [10], [11].

Le Tableau IV. 4 donne des valeurs usuelles pour ces deux paramètres dans le cuivre en provenance de la littérature. On peut noter une tendance à la diminution du volume d'activation avec la taille des cristallites indiquant un changement de mécanisme. Dans le cuivre microcristallin, la déformation est expliquée par l'interaction entre dislocations ce qui se traduit par des volumes d'activation élevés alors que dans le cuivre nanocristallin cette interaction devient très peu probable. Des mécanismes d'émission de dislocations aux joints de grain, d'interactions des dislocations avec les joints de grain ou encore de glissement des joints de grain sont alors plus probables et peuvent expliquer ces faibles valeurs de volumes d'activation. En plus de la taille de grain, d'autres paramètres comme l'historique de chargement [12], la densité de dislocation initiale [13], le niveau de contraintes [14], la vitesse de déformation [15] ou la température [7] peuvent influencer sur ces valeurs.

	V_{act}	m	Références
Cuivre microcristallin	$\sim 1000 b^3$	0,004-0,009	[16], [17]
Cuivre grains ultrafins (>100 nm) sans macle	$\sim 130 b^3$	$\sim 0,005$	[6], [18]
Cuivre grains ultrafins faible densité de macles (~100 nm)	$\sim 20-50 b^3$	$\sim 0,02$	[6], [18], [19]
Cuivre grains ultrafins haute densité de macles (5-20 nm)	$\sim 12 b^3$	0,005-0,04	[6], [18]
Cuivre nanocristallin (<100 nm)	$\sim 25 b^3$	0,02-0,03	[20], [21]
Films minces (grains nanostructurés et colonnaires)	$\sim 10-20 b^3$	0,025-0,2	[13], [20], [22]

Tableau IV. 4 : Quelques valeurs de V_{act} et m obtenues dans la littérature.

Si on suppose une évolution logarithmique de la déformation au cours de la relaxation sous la forme $\varepsilon = A \log(t) + B$, on peut exprimer la contrainte en fonction de la vitesse de déformation plastique. En effet, en première approximation, la contrainte peut s'écrire d'après la relation (III.11) :

$$\sigma = \frac{Sa}{S} Ea \left(-\varepsilon_a^{mis} - \frac{\varepsilon L}{La} \right). \quad (IV.5)$$

La déformation ε peut également s'exprimer comme la somme des déformations internes, élastiques et plastiques :

$$\varepsilon = \varepsilon^{mis} + \varepsilon_{el} + \varepsilon_p, \quad (IV.6)$$

d'où la vitesse de déformation :

$$\dot{\varepsilon} = \frac{\dot{\sigma}}{E} + \dot{\varepsilon}_p. \quad (IV.7)$$

Or d'après le choix de ε ,

$$\dot{\varepsilon} = \frac{A}{t \ln(10)}, \quad (IV.8)$$

et en dérivant (IV.5), on obtient :

$$\dot{\sigma} = -\frac{S_a}{S} E_a \frac{\dot{\varepsilon} L}{L_a}. \quad (IV.9)$$

Ainsi en injectant (IV.8) et (IV.9) dans (IV.7) on obtient :

$$\dot{\varepsilon}_p = \frac{A}{t \ln 10} \left(1 + \frac{S_a E_a L}{S E L_a} \right), \quad (IV.10)$$

d'où la relation entre σ et ε_p , obtenue en remplaçant t dans (IV.5) par la relation (IV.10) :

$$\sigma = \frac{S_a}{S} E_a \left(-\varepsilon_a^{mis} - \frac{L}{L_a} \left(A \log \left(\frac{A}{\dot{\varepsilon}_p \ln 10} \left(1 + \frac{S_a E_a L}{S E L_a} \right) \right) + B \right) \right). \quad (IV.11)$$

Ainsi, on obtient une expression analytique pour V_{act} :

$$V_{act} = M k T \frac{S}{S_a} \frac{1}{E_a} \frac{L_a \ln 10}{L A} \quad (IV.12)$$

En conclusion, si ε suit une loi logarithmique en fonction du temps, le volume d'activation est constant au cours du temps.

On peut également déduire l'exposant de sensibilité à la vitesse de déformation :

$$m = \frac{1}{\sigma} \frac{S_a}{S} E_a \frac{L}{L_a} \frac{A}{\ln 10}. \quad (IV.13)$$

Le facteur de Taylor M , rapport entre la contrainte de traction et la cission critique, est de 3 pour un matériau CFC de texture aléatoire [23] ou $\sqrt{3}$ [24], [25] pour un film mince texturé. En réalité, la valeur de ce coefficient dépend du mécanisme de déformation. La valeur de 3 correspond à une déformation engendrée par le glissement simple des dislocations dans un polycristal non texturé. Le choix est fait de représenter le volume d'activation normalisé par le facteur de Taylor afin d'avoir un paramètre indépendant du choix de mécanismes retenu pour expliquer la déformation. Les valeurs $\sqrt{3}$ et 3 sont généralement acceptées comme des limites possibles basses et hautes dans un matériau CFC à petits grains [26].

IV.4.2 Film de 200 nm d'épaisseur non recuit

R. Vayrette s'est également intéressé au phénomène de relaxation à température ambiante sur des structures autoactuées (actuateurs en cuivre) et des structures B (actuateur en nitrure de silicium) de films de cuivre de 200 nm non recuits.

Comme expliqué dans le chapitre III, les structures autoactuées de cuivre ne permettent pas de connaître la contrainte appliquée sur l'éprouvette du fait de la déformation plastique qui peut se produire dans la poutre actuatrice en cuivre. Néanmoins, le suivi de la déformation reste possible. La Figure IV. 15 présente le suivi de la déformation pour une série BT de longueur d'éprouvettes 25 μm

et de largeur 2 μm . Chaque symbole correspond à une structure de la série, les symboles pleins signifient que la rupture de la structure est atteinte.

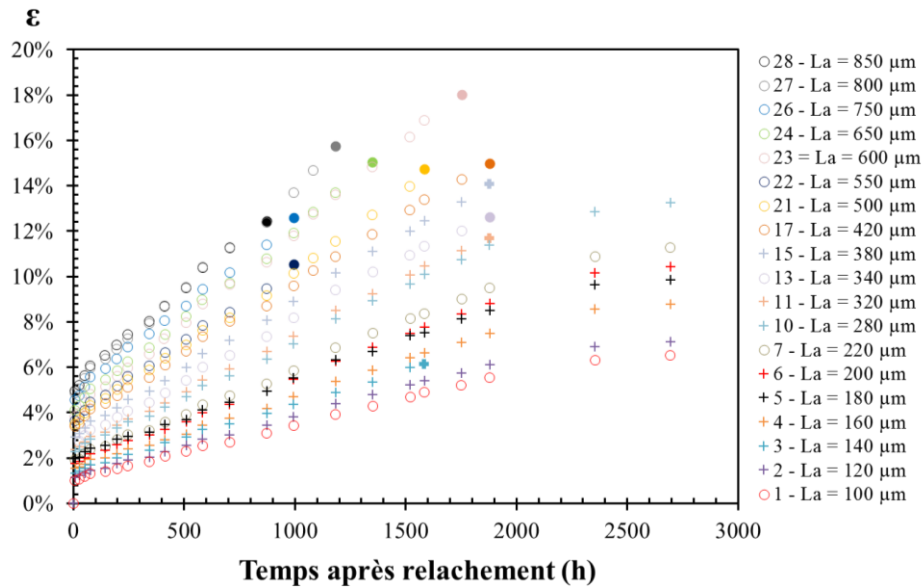


Figure IV. 15 : Evolution de la déformation pour des structures autoactuées avec des éprouvettes de 25 μm de long.

On peut remarquer sur la Figure IV. 15 que les déformations atteignables en relaxation sont bien plus importantes que sur des essais avec des vitesses de déformation plus rapides. Il est possible d'atteindre des déformations de plus de 10 %. La Figure IV. 16 met en avant un changement de mécanismes de déformation entre des vitesses de déformation rapide et lente. La propagation de la fissure est intragranulaire à haute vitesse et intergranulaire à basse vitesse de déformation. On peut noter l'apparition de cavités aux joints triples indiquant une accumulation de défauts aux joints de grains. Il n'est pas impossible qu'une telle transition à basse vitesse révèle un effet de l'environnement sur ces films de cuivre comme par exemple une contamination ou une oxydation de l'éprouvette. Pour limiter au maximum cet effet de l'environnement, les échantillons sont stockés sous vide ou sous azote.

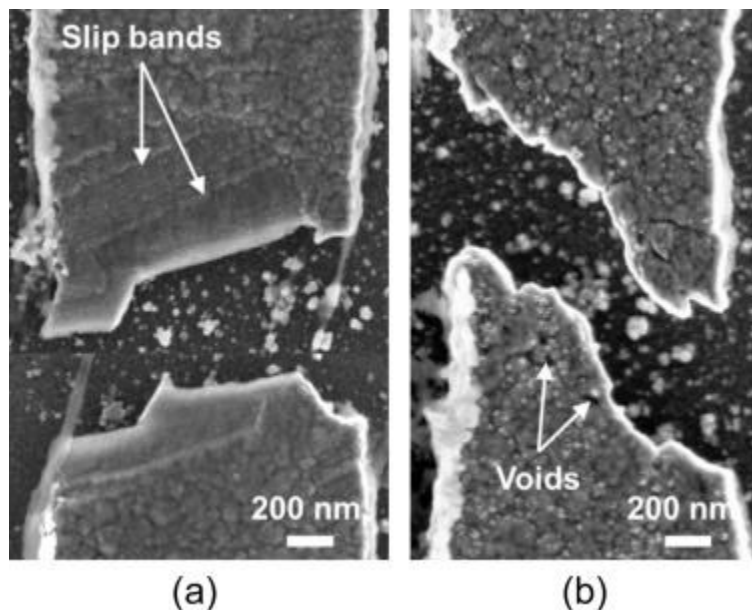


Figure IV. 16 : faciès de rupture de poutre de 2 μm de large a) à vitesse de déformation rapide, b) durant un essai de relaxation [27].

Le suivi de structures B avec un actuateur en nitrure de silicium permet de connaître la contrainte appliquée pendant la déformation des structures. Deux séries B avec des longueurs d'éprouvettes de 25 μm et de largeur 6 μm ont été exploitées. Malheureusement, suite à des problèmes de stockage et de contamination importante au soufre, le suivi des échantillons s'arrête après 190 h. Les deux séries ont des comportements similaires. La Figure IV. 17 présente les évolutions de la déformation et de la contrainte pour les structures d'une série B.

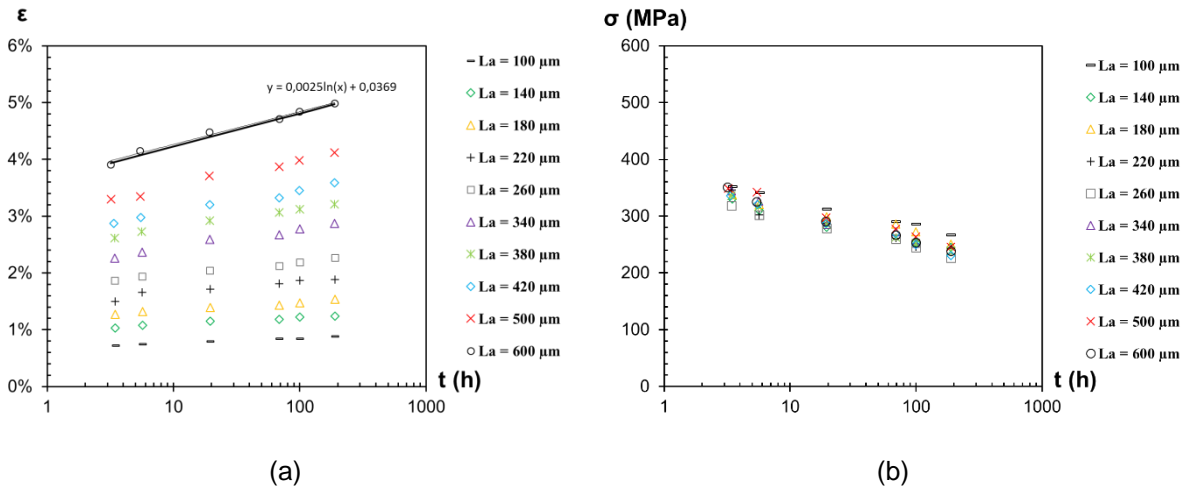


Figure IV. 17 : Evolution de (a) la déformation et (b) de la contrainte à température ambiante dans un film de 200 nm non recuit.

Même à température ambiante, l'augmentation de la déformation n'est pas négligeable. Celle-ci suit une évolution temporelle logarithmique. A partir de ces courbes et de la méthode décrite en IV.4.1, il est possible d'extraire des quantités telles que le volume d'activation, V_{act} , et l'exposant de sensibilité de la contrainte à la vitesse de déformation, m .

La Figure IV. 18 présente le volume d'activation divisé par le facteur de Taylor et l'exposant m calculés à partir des formules analytiques (IV.11) et (IV.12) pour les deux séries de données rapportées. V_{act} est exprimé en $M b^3$ avec b la norme du vecteur de Burgers. L'exposant m tracé a été calculé en prenant la valeur de contrainte issue du premier point de mesure. Il correspond donc à la valeur minimale que l'on peut obtenir sur cet essai étant donné que la contrainte appliquée diminue au cours du temps.

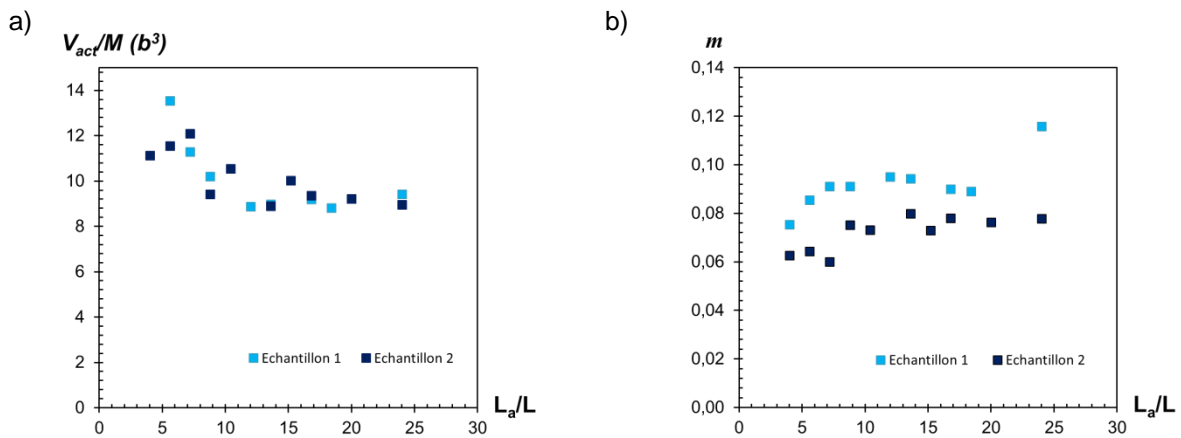


Figure IV. 18 : Volume d'activation et exposant de sensibilité à la vitesse de déformation extrait sur la relaxation d'un film de 200 nm de Cu non recuit.

V_{act} prend donc des valeurs entre 15 et $30 b^3$ selon le choix de M . Cette plage est en accord avec les valeurs trouvées dans la littérature qui sont entre 10 et $50 b^3$ pour une microstructure nanocristalline ou ultrafine [6]. On peut noter une légère décroissance du volume d'activation avec la longueur de l'actuateur. Plus l'actuateur est long dans cette configuration de micromachines et plus les structures sont déformées, par conséquent plus la déformation plastique en début de relaxation est importante. Ainsi, plus la densité de dislocations initiales est importante et plus le volume d'activation semble faible, ce qui est effectivement le comportement attendu selon la loi de Cottrell-Stokes [22].

Les mécanismes basés sur la diffusion prédisent un volume d'activation de l'ordre de b^3 . Des valeurs entre 15 et $30 b^3$ indiquent plutôt des mécanismes de déformation reposant sur les mouvements des dislocations et les joints de grains [23]. Le fait d'avoir un volume d'activation qui reste presque constant durant la relaxation pourrait indiquer des mécanismes de glissement aux joints de grain [23].

Les valeurs de m apparaissent élevées. En effet, en regard du Tableau IV. 4, elles sont dans la fourchette haute des valeurs trouvées dans la littérature. Néanmoins, les observations sur films minces présentent des valeurs toujours plus importantes que les matériaux similaires plus épais [28] sans que la raison ne soit bien connue.

La déformation apparaît également plus homogène en relaxation que pour les essais à plus fortes vitesses de déformation. Il n'y a pas de nouvelles zones de localisation de la déformation qui apparaissent, comme par exemple de nouveaux grains présentant des bandes de glissement. Les zones qui présentaient des localisations de la déformation ne semblent pas non plus évoluer significativement, Figure IV. 19. En particulier, il n'y a pas d'augmentation du nombre visible de bandes de glissement sur la surface de l'échantillon. En conclusion, aucun changement significatif n'a été observé en surface sur les films de 200 nm non recuit après 188 h de relaxation. De plus ces "faibles" temps n'ont pas non plus permis d'atteindre une rupture des échantillons en relaxation indiquant ainsi un changement de résistance à la localisation aux très faibles déformations.

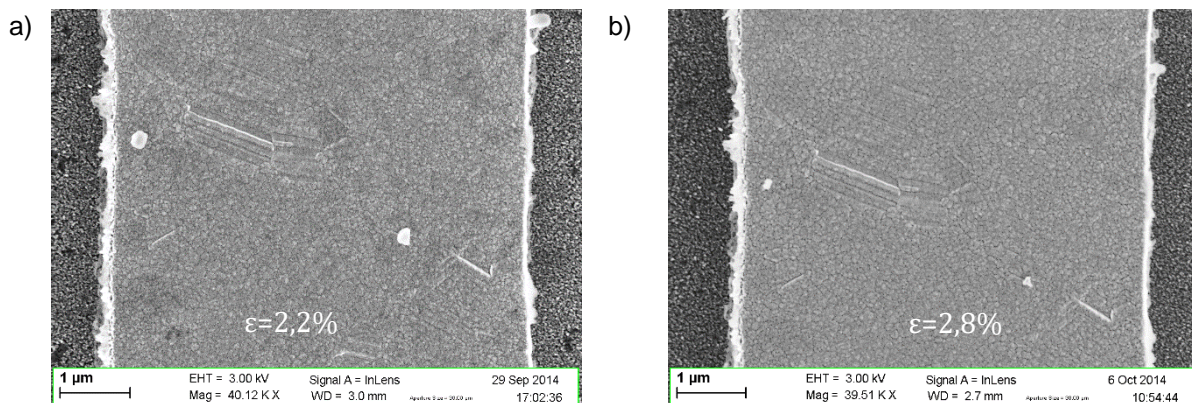


Figure IV. 19 : Localisation de la déformation plastique observée dans le film de 200 nm non recuit a) après 3 h sous contrainte, b) après 188 h.

IV.4.3 Film de 200 nm d'épaisseur recuit

La relaxation des films de 200 nm recuits a pu être étudiée à partir des structures témoins de $100 \mu\text{m}$ de long et $6 \mu\text{m}$ de large placées sur les échantillons destinés à être irradiés. Deux séries ont été suivies au cours du temps. La Figure IV. 20 présente les évolutions de la déformation et de la contrainte pour les deux échantillons. Les deux échantillons sont issus du même wafer cependant la

mesure de l'épaisseur des différentes couches n'a pu être correctement effectuée sur l'échantillon 1 dû à des problèmes de propreté de surface gênant la mesure au profilomètre. Les épaisseurs ont alors été prise égales à celles mesurées sur l'échantillon 2. Néanmoins les épaisseurs réelles, en particulier l'épaisseur de cuivre, sont probablement différentes de celles retenues sur l'échantillon 1. Ceci explique pourquoi, malgré des déformations similaires, la contrainte mesurée est plus faible dans l'échantillon 1 que dans l'échantillon 2.

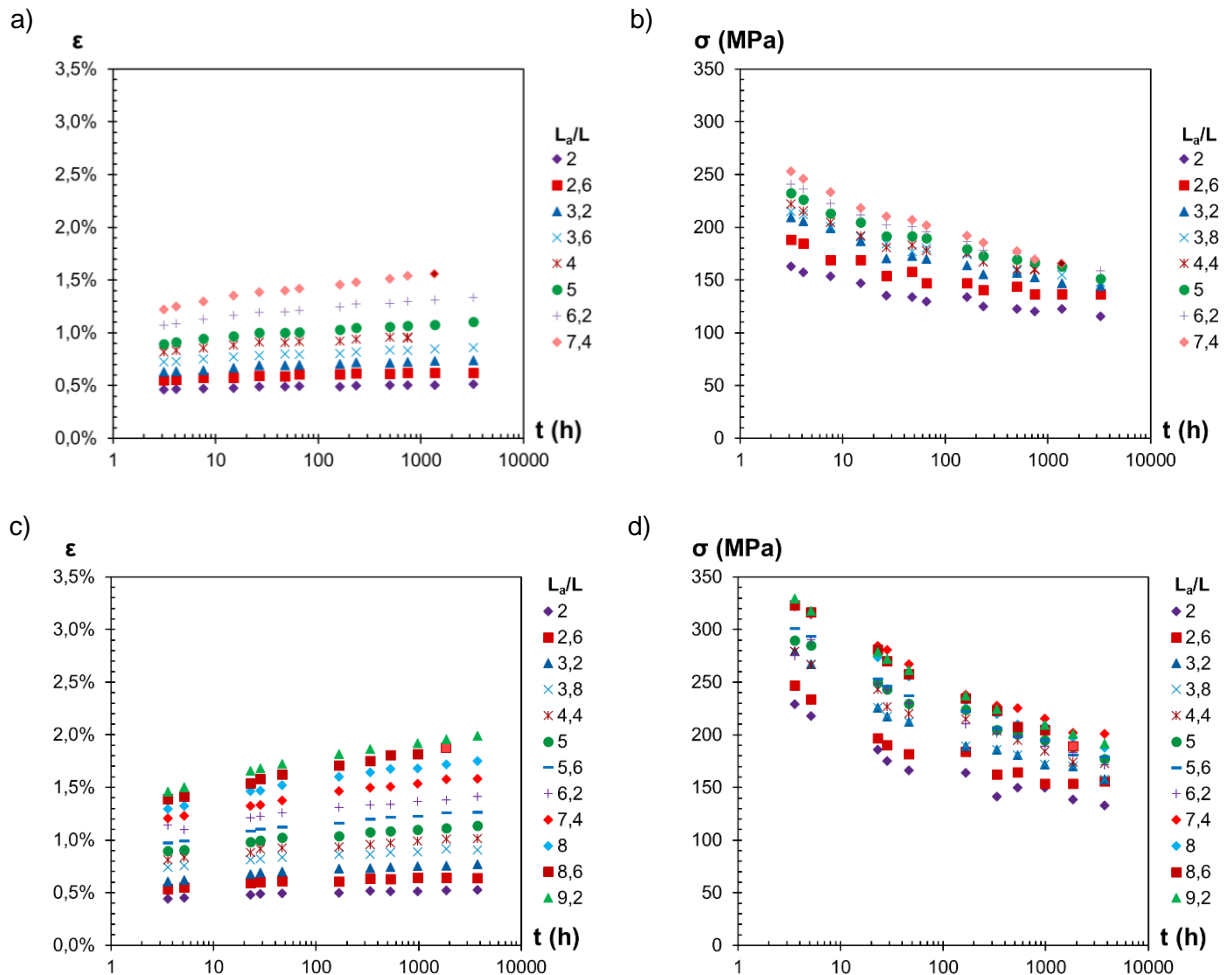


Figure IV. 20 : Evolution de la déformation et de la contrainte au cours du temps respectivement dans l'échantillon 1 a-b) et l'échantillon 2 c-d).

La déformation suit toujours une loi logarithmique avec le temps. De la même manière que pour les films non recuits, le volume d'activation et l'exposant de sensibilité à la vitesse peuvent être extraits à partir de cette loi. Sur l'échantillon 1, l'épaisseur de cuivre est probablement surestimée. Ceci conduit à une surestimation du volume d'activation. Le volume d'activation de l'échantillon 2 est donc probablement plus proche de la réalité. On remarque que le volume d'activation est légèrement plus important que pour le film non recuit avec des valeurs entre 12 et 20 $M.b^3$. Il n'y a donc pas de changement significatif ni du volume d'activation ni de l'exposant de sensibilité à la contrainte, les mécanismes de relaxation sont donc très probablement identiques dans les deux films.

Une légère inflexion des courbes de déformations est observée sur la Figure IV. 20 après plusieurs centaines d'heures. Les valeurs de déformations sont situées légèrement en dessous des premières lois logarithmiques obtenues avec les premiers points. Ceci conduit à une légère augmentation du volume d'activation au cours du temps. Néanmoins, sur de telles durées

d'expérience, les problématiques de stockage et de vieillissement des films de cuivre et des structures en suspension deviennent importantes. La qualité des structures n'est probablement pas maintenue sur des temps aussi longs. Les volumes d'activation donnés sur la Figure IV. 21 correspondent à une loi logarithmique prise sur l'intégralité des points de mesures. Les valeurs sont donc légèrement plus élevées que celles obtenues avec seulement les premiers point de mesures et légèrement plus faibles que celles obtenus avec seulement les dernières mesures.

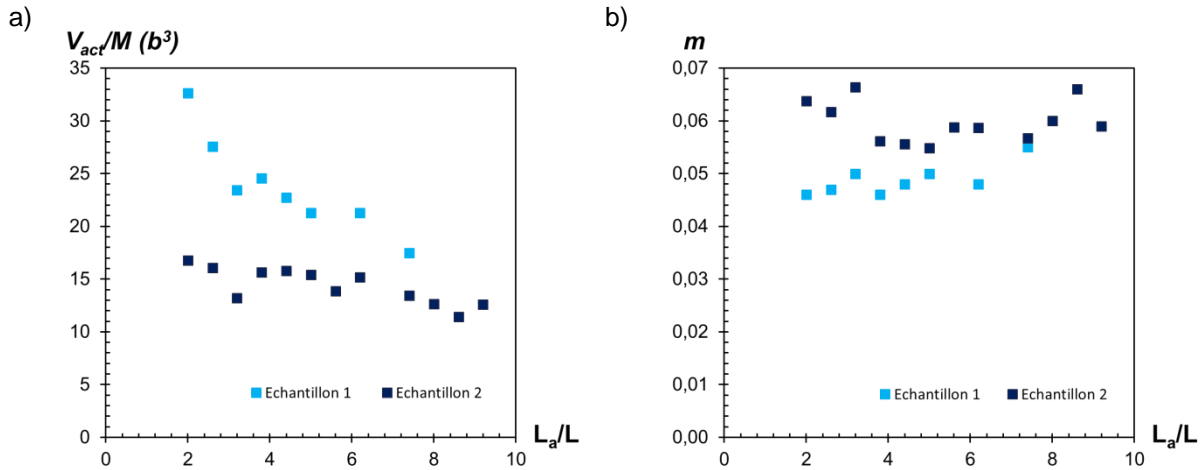


Figure IV. 21 : (a) Volume d'activation et (b) exposant de sensibilité à la vitesse de déformation extrait sur la relaxation d'un film de 200 nm de Cu recuit.

De manière similaire au film non recuit, une légère décroissance du volume d'activation avec la longueur d'actuateur et donc la densité de dislocations initiale ρ est possible. Les dislocations semblent donc conserver un rôle important lors de la relaxation du film. La loi de Cottrell-Stokes, valable pour des matériaux CFC [29], prédit en effet une relation linéaire entre le volume d'activation et la distance entre dislocation $1/\sqrt{\rho}$ [30]. Or cette distance est elle-même inversement proportionnelle à la contrainte d'écoulement d'après la relation de Taylor. Le volume d'activation est alors inversement proportionnel à cette contrainte. La contrainte d'écoulement n'est pas connue dans nos essais à cause du temps important entre le relâchement et la première mesure et de la relaxation des contraintes qui en découle. Le premier point de mesure sur chaque éprouvette peut tout de même constituer une approximation sous évaluant cette contrainte. La Figure IV. 22 présente le tracé du volume d'activation en fonction de l'inverse de la contrainte initiale. Une dépendance linéaire entre les deux paramètres semble apparaître, validant ainsi la loi de Cottrell-Stokes et suggérant donc un mécanisme de déformation contrôlé par la distance entre dislocations. Néanmoins, il s'agit de la seule expérience dans cette thèse montrant une relation nette entre le volume d'activation et la contrainte initiale.

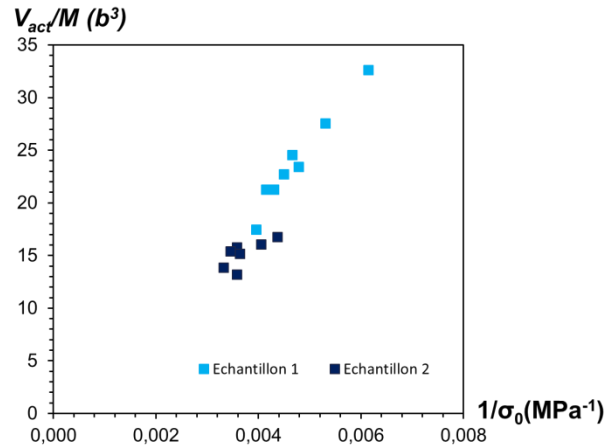


Figure IV. 22 : Volume d'activation en fonction de l'inverse de la contrainte initiale.

De plus, la mauvaise qualité de surface sur les deux échantillons ne permet pas de bonnes observations des traces des mécanismes de déformations, Figure IV. 23. La porosité visible en surface est due à l'attaque HF lors du relâchement des structures qui a gravé la surface du film. Ces pores ne semblent pas, sur les images MEB, traverser l'intégralité du film. Cette mauvaise qualité de surface est exceptionnelle et ne se retrouve que sur ces échantillons qui sont les premiers échantillons réalisés. Les autres échantillons de 200 ou 500 nm ne présentent pas ce problème. Cette attaque est probablement due à une mauvaise qualité de film, le vide n'étant pas suffisamment bas lors du dépôt du film entraînant une dégradation de la pureté du film. Les faciès de rupture sont alors difficilement interprétables. La présence de tels pores en surface facilite, de fait, la propagation intergranulaire des fissures et réduit la ductilité.

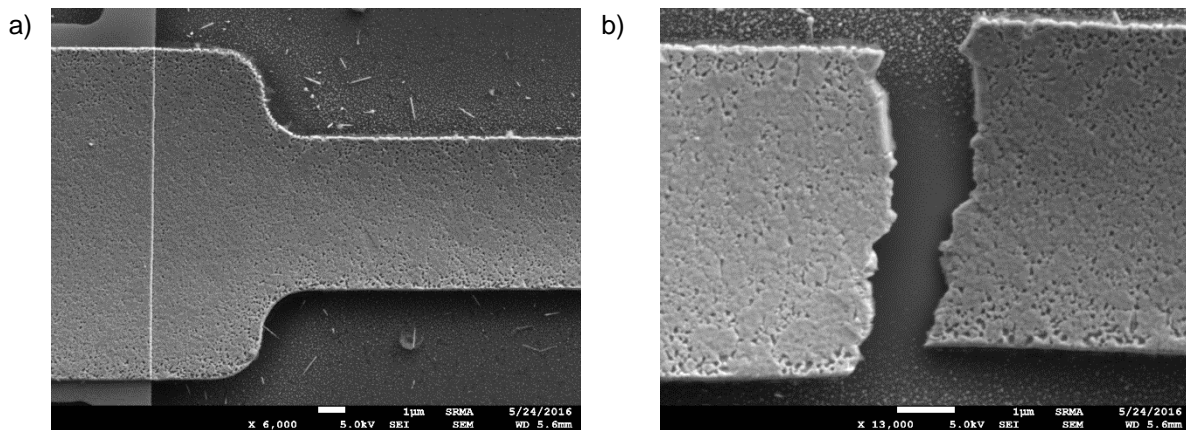


Figure IV. 23 : a) Etat de surface des structures échantillons recuites, b) faciès de rupture d'une poutre brisée en relaxation.

IV.4.4 Film de 500 nm d'épaisseur recuit

Comme pour les structures de 200 nm, les structures témoins de 100 μm de long des échantillons irradiés permettent de quantifier le comportement viscoplastique des films de cuivre recuits de 500 nm. Aucune expérience n'a été effectuée sur des films non recuits.

Les deux échantillons sont issus de la même tranche de silicium et ont été relâchés en même temps. Le premier échantillon a servi pour des expériences de fluage d'irradiation les deux jours

suivants la relaxation et le deuxième pour une expérience plus de quatre mois plus tard. Les structures avec les actuateurs les plus longs sont particulièrement vulnérables. Suite probablement à des contacts avec le masque servant à protéger l'actuateur de l'irradiation sur l'échantillon 1, elles ont été rendues inutilisables. En effet, le masque, s'il touche la surface de l'échantillon lors de la mise en place de l'échantillon par exemple, force le contact entre l'actuateur et le substrat. Souvent ce contact suffit à coller l'actuateur sur le substrat rendant alors la micromachine inutilisable.

Le porte-objet a été modifié entre les deux séries d'irradiation pour répondre à ce problème, lequel ne se pose plus sur l'échantillon 2. Cependant les structures de l'échantillon 2 n'ont pas fait l'objet d'un suivi temporel après la gravure de l'oxyde. Quatre mois après le relâchement, la rupture s'est déjà produite sur les structures avec les actuateurs les plus longs. Au final, seules 8 micromachines sur la trentaine initialement présentes après relâchement peuvent permettre d'évaluer le comportement viscoplastique du film de 500 nm recuit sur l'échantillon 2.

La Figure IV. 24 présente l'ensemble des points mesurés traduits en déformation et contrainte pour les deux échantillons. Contrairement au film de 200 nm très peu de mesures sont disponibles. Il est donc évident que les évaluations de volume d'activation et d'exposant de sensibilité à la vitesse sont également beaucoup moins précises. L'échantillon 1 permet d'obtenir tout de même des informations sur la relaxation à court terme dans les premières dizaines d'heures tandis que l'échantillon 2 renseigne sur la relaxation après plusieurs mois.

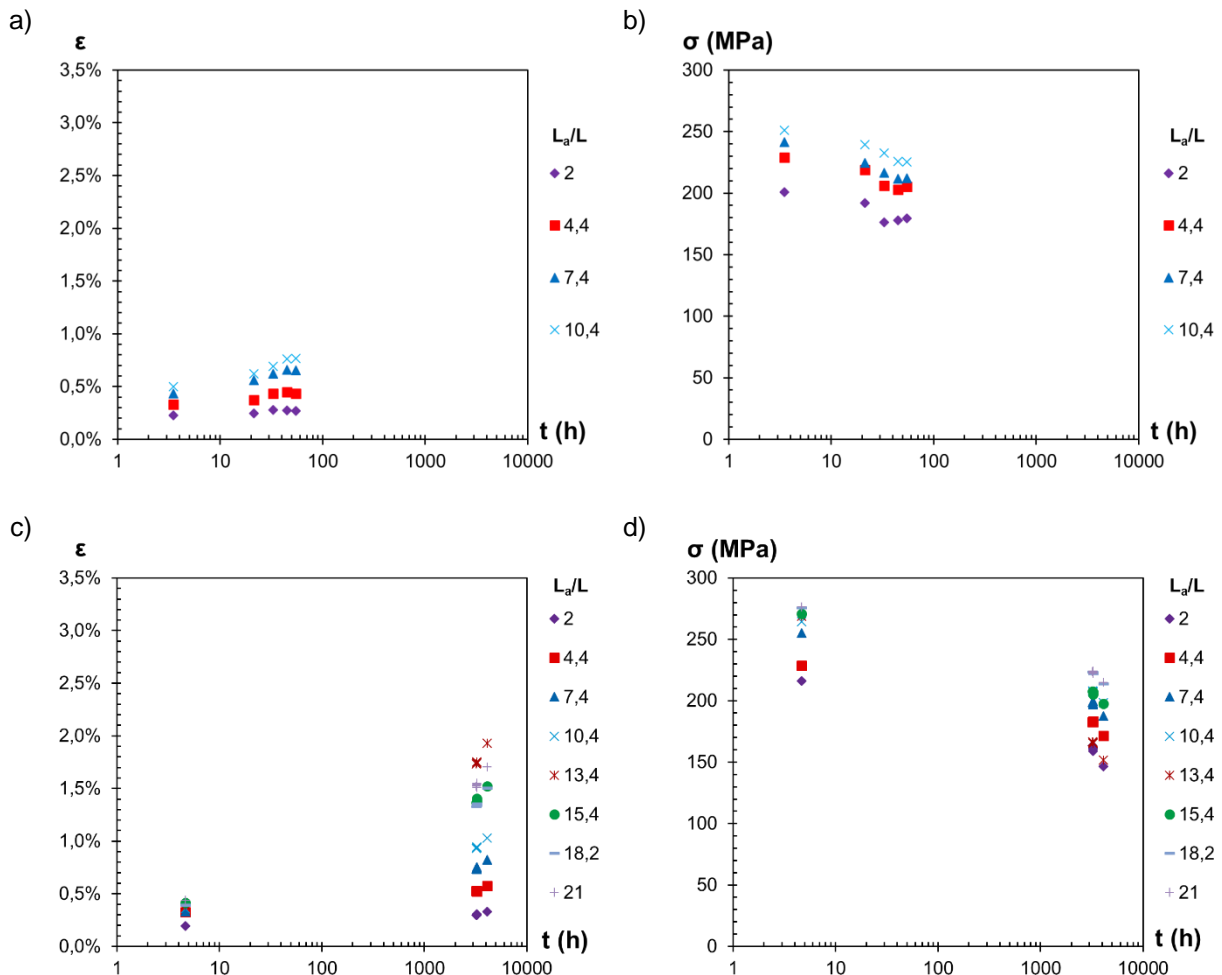


Figure IV. 24 : Evolution de la déformation et de la contrainte au cours du temps respectivement a-b) dans l'échantillon 1 et c-d) l'échantillon 2.

Afin d'extraire les volumes d'activation et les exposants de sensibilité à la vitesse, on fait l'hypothèse que la déformation suit une loi logarithmique avec le temps du même type que pour les

films de 200 nm précédents. Les paramètres sont ensuite extraits avec la même méthode que précédemment, ils sont représentés sur la Figure IV. 25. On peut remarquer que le volume d'activation semble être aux alentours de $25 M b^3$ et l'exposant de sensibilité autour de 0,04. Le volume d'activation pourrait donc être légèrement plus grand que dans les films de 200 nm. Néanmoins, il est suffisamment proche et l'imprécision de nos mesures sur les échantillons de 500 nm est telle qu'on peut penser que ce sont probablement les mêmes mécanismes de déformation qui interviennent dans les films de 200 et 500 nm.

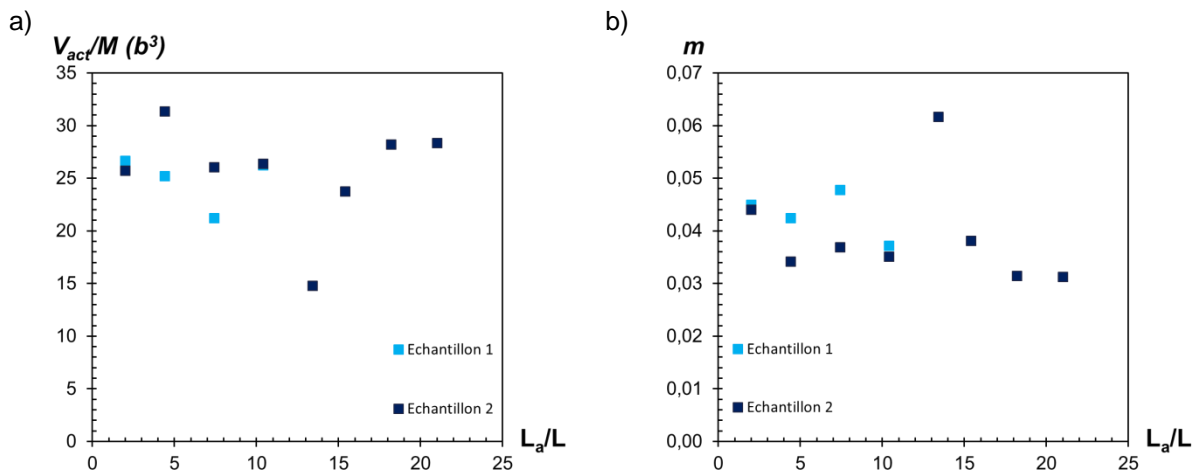


Figure IV. 25 : Volume d'activation et exposant de sensibilité à la vitesse de déformation extrait sur la relaxation d'un film de 500 nm de Cu recuit.

La surface des échantillons après plus de 3200 heures de relaxation montre des craquelures non présentes initialement, Figure IV. 26. Ces craquelures semblent délimiter des grains à différentes hauteurs. Ceci pourrait indiquer des glissements aux joints de grains, les grains apparaissant alors à différents niveaux. De tels changements ne sont pas visibles sur l'échantillon 1 suivi sur quelques dizaines d'heures. De nombreuses structures sont brisées en cours de relaxation sur l'échantillon à plus de 3000 heures. Néanmoins, l'absence de suivi temporel ne permet pas de savoir quand la rupture est atteinte dans la poutre. Les photos présentées sur la Figure IV. 26 sont représentatives de structures présentant un état de surface similaire aux structures non brisées. L'objectif est d'essayer d'avoir les structures ayant tenu le plus longtemps possible et d'éviter ainsi les artefacts comme les ruptures engendrées lors des transports des échantillons entre le CEA et l'UCL par les vibrations.

Ces structures présentent un faciès de rupture différent des essais à haute vitesse, Figure IV. 14. Là où la rupture était purement intragranulaire avec de larges bandes de matière déformée dans le premier cas, ici une composante intergranulaire semble présente. Ceci pourrait être compatible avec des mécanismes de glissement aux joints de grains. Néanmoins, la déformation de la matière dans ces zones indique également une activité des dislocations.

Deux explications sont alors possibles. Soit le glissement des joints de grains n'est pas le mécanisme de déformation exclusif en relaxation. Soit ce mécanisme conduit à la formation d'une fissure dans l'échantillon qui lorsqu'elle devient trop importante entraîne la rupture brutale du reste de l'échantillon avec une déformation rapide des grains situés en tête de fissure. Ces grains se déformeraient alors de la même manière que ceux décrits dans le paragraphe III.2 à "haute" vitesse de déformation.

Les mécanismes de glissement aux joints de grains sont des mécanismes diffusifs [31], deux mécanismes sont principalement évoqués dans la littérature. Le mécanisme de Lifshitz [32] prévoit une diffusion importante de lacunes aux joints de grain pour expliquer le déplacement du joint et est compatible avec des fluages de type Nabarro-Herring et Coble. Il se retrouve donc plutôt à haute

température. Le mécanisme de Rachinger [33] repose, lui, sur le glissement de dislocations aux joints de grains rendus possible par l'absorption ou l'émission de lacunes. Dans ce type de mécanisme il n'y a pas de modification de la forme du grain mais des accommodations géométriques par le glissement de dislocations intragranulaires sont nécessaires. Les deux mécanismes sont activés par la température mais les faibles vitesses de déformation de l'ordre de 10^{-8} s^{-1} peuvent laisser le temps aux processus diffusifs de se produire. Un glissement de joints de grains est observé à température ambiante dans les matériaux à la microstructure ultrafine obtenus par déformation plastique sévère [34]. Dans ce cas, la présence de joints de grains non à l'équilibre et de forte désorientation facilite la diffusion aux niveaux des joints de grains.

Pour ces mécanismes, le volume d'activation et l'exposant de sensibilité à la vitesse de déformation attendus sont respectivement autour de $1 b^3$ et 0,5 [7]. Les valeurs obtenues expérimentalement même si elles correspondent à des paramètres apparents semblent suffisamment éloignées pour indiquer que le glissement aux joints de grains n'est pas le seul mode de déformation en relaxation dans les films minces de cuivre.

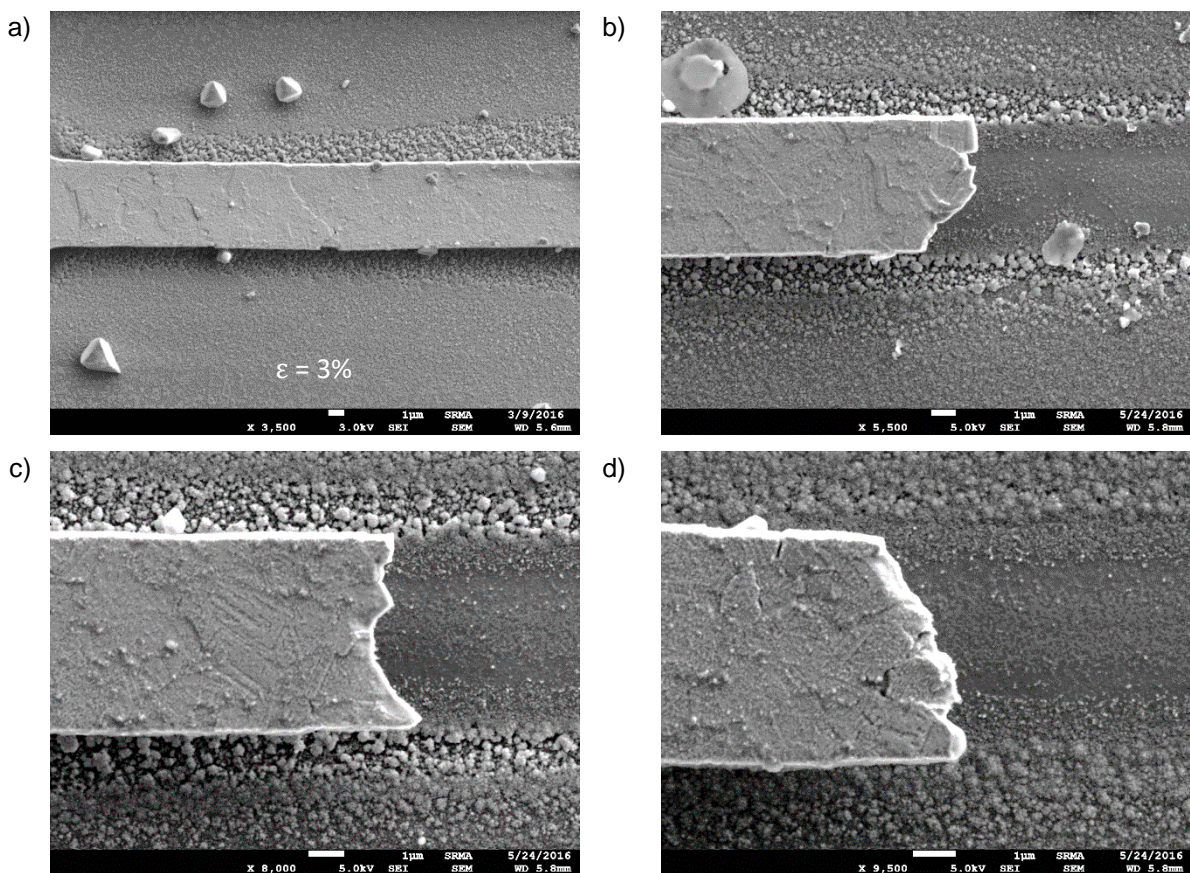


Figure IV. 26 : a) film 500 nm recuit après plus de 3200 h sous contrainte, b-d) différents faciès de rupture de poutres brisées en relaxation.

IV.5 Synthèse

Le Tableau IV. 5 récapitule l'ensemble des échantillons utilisés pour l'étude, présentée dans ce chapitre, du comportement mécanique hors irradiation des films de 200 et 500 nm d'épaisseur.

Epaisseur Cu	Epaisseur Si ₃ N ₄	Couche d'adhésion	Séries d'éprouvettes	Recuit	Séchage CPD	Nombre d'échantillons
200 nm	85 nm	0,3 nm Ti	Séries B	Non recuit	non	1
200 nm	85 nm	0,3 nm Ti	Séries T	150 °C, 30 min	non	1
500 nm	150 nm	4 nm Cr	Séries B Séries T	150 °C, 1 h	non	2
200 nm	85 nm	0,3 nm Ti	B-25x6 μm ²	Non recuit	oui	2
200 nm	80 nm	4 nm Cr	B-100x6 μm ²	150 °C, 30 min	oui	2
500 nm	85 nm	4 nm Cr	B-100x6 μm ²	150 °C, 1 h	oui	2

Tableau IV. 5 : Récapitulatif des échantillons étudiés pour évaluer le comportement mécanique des films de cuivre.

Le comportement mécanique des films de 200 et 500 nm est globalement similaire à la fois pour les "hautes" et les très basses vitesses de déformation.

A "haute" vitesse, les films recuits présentent une très faible ductilité. A environ 1% de déformation une forte striction apparaît dans les films. Une forte relaxation durant les premières minutes fausse les mesures de limites d'élasticité et de module d'Young dans les deux films.

Les mécanismes de déformation font intervenir principalement des dislocations traversant des grains particuliers, probablement du fait d'un compromis entre une concentration de contrainte due à un défaut sur les surfaces latérales et des orientations des grains présentant un faible module de Young et une taille plus grande et donc une limite d'élasticité plus faible.

En relaxation, à basse vitesse de déformation, les mécanismes semblent être différents. Il n'y a plus de nouvelles traces de glissement en surface mais les grains semblent se détacher de la surface de l'échantillon. Ceci pourrait indiquer des mécanismes de glissement aux joints de grain. Néanmoins les valeurs élevées des volumes d'activation et les faibles valeurs du facteur de sensibilité, Figure IV. 27, semblent indiquer que ce n'est pas le mode principal de déformation en jeu. Ces paramètres vont plutôt dans le sens de mécanismes basés sur les dislocations. Ils montrent une dépendance avec la déformation plastique initiale ϵ_{p0} . Cette dernière est calculée à partir du premier point de mesure quelques heures après le relâchement des structures. Toutefois, la dépendance avec la déformation plastique initiale est moins marquée si on ne regarde que les échantillons jugés les plus fiables, c'est-à-dire les films non recuits et l'échantillon 2 des films de 200 nm recuit. L'importance des dislocations préexistantes sur les mécanismes de relaxation n'est donc pas évidente.

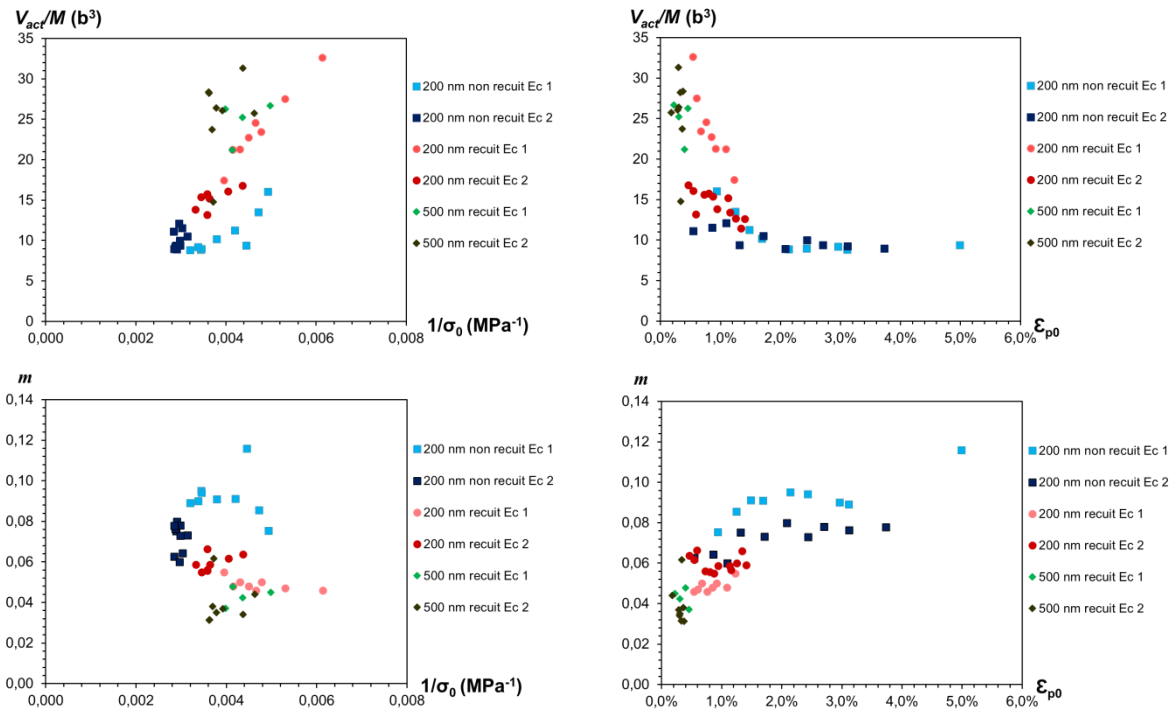


Figure IV. 27 : Ensemble des volumes d'activation et exposants de sensibilité à la vitesse de déformation extrait sur la relaxation des éprouvettes de cuivre tracé en fonction de l'inverse de la contrainte et de la déformation plastique au premier point de mesure.

Ces conclusions sont en accord avec les travaux de Hu et al. [35] et Jiang et al. [36] qui ont mis en évidence sur un cuivre nanocristallin que le mode déformation principal à haute vitesse de déformation ($> 10^{-2} \text{ s}^{-1}$) repose sur les dislocations tandis que le glissement aux joints de grains deviendrait plus présent aux basses vitesses ($< 10^{-2} \text{ s}^{-1}$).

Néanmoins, bien que prédit par la dynamique moléculaire [37], [38] et souvent proposés pour expliquer de nombreux phénomènes comme la superplasticité des matériaux nanocristallins [39], de tels mécanismes de glissement n'ont jamais été observés directement durant des essais *in situ* de déformation dans un MET [40]–[42]. Des auteurs comme Shan [41] et Wang [43] ont tout de même pu observer une rotation des grains durant la déformation d'échantillons de nickel et de platine nanocristallin. Cependant ces mêmes auteurs privilégient des mécanismes de montée des dislocations plutôt que de glissement des joints de grains pour expliquer la rotation des grains. Des observations macroscopiques après déformation par ajout de marqueurs [44], par interférométrie [45], mesures MEB [46] ou AFM [47] montrent, tout de même, que des mécanismes de glissement aux joints de grains se produisent réellement lors d'essais de fluage ou de relaxation.

Les analyses MET *in situ* réalisées dans le cadre de la thèse de M.S. Colla [48], sur des échantillons de palladium nanocristallin, à l'aide des mêmes micromachines, montrent une activité des dislocations pour des valeurs de volumes d'activation et d'exposants de sensibilité à la vitesse similaires à celles trouvées ici. Il n'y pas eu de glissement aux joints grains observés sur le palladium. Malheureusement par manque de temps et d'échantillons, ce type d'expérience n'a pas pu être réalisé sur le cuivre pour observer et quantifier les mécanismes de déformation hors irradiation sur le cuivre.

Références Bibliographiques IV

- [1] H. Huang and F. Spaepen, "Tensile testing of free-standing Cu, Ag and Al thin films and Ag/Cu multilayers," *Acta Mater.*, vol. 48, no. 12, pp. 3261–3269, Jul. 2000..
- [2] D. T. Read, "Young's modulus of thin films by speckle interferometry," *Meas. Sci. Technol.*, vol. 9, no. 4, pp. 676–685, Apr. 1998.
- [3] "Material property database." [Online]. Available: <http://www.mit.edu/~6.777/matprops/copper.htm>. [Accessed: 29-Jul-2013].
- [4] D. R. Lide, *CRC Handbook of chemistry and physics*. Boca Raton, FL.; London: CRC, 2004.
- [5] N. Hansen, "Hall–Petch relation and boundary strengthening," *Scr. Mater.*, vol. 51, no. 8, pp. 801–806, Oct. 2004.
- [6] L. Lu, R. Schwaiger, Z. W. Shan, M. Dao, K. Lu, and S. Suresh, "Nano-sized twins induce high rate sensitivity of flow stress in pure copper," *Acta Mater.*, vol. 53, no. 7, pp. 2169–2179, Apr. 2005.
- [7] Y. Wang, A. Hamza, and E. Ma, "Temperature-dependent strain rate sensitivity and activation volume of nanocrystalline Ni," *Acta Mater.*, vol. 54, no. 10, pp. 2715–2726, Jun. 2006.
- [8] M. Dao, L. Lu, Y. F. Shen, and S. Suresh, "Strength, strain-rate sensitivity and ductility of copper with nanoscale twins," *Acta Mater.*, vol. 54, no. 20, pp. 5421–5432, Dec. 2006.
- [9] Yrivals, *Dislocations et déformation plastique*. 1979.
- [10] D. Torre, E. V. Pereloma, and C. H. J. Davies, "Strain rate sensitivity and apparent activation volume measurements on equal channel angular extruded Cu processed by one to twelve passes," *Scr. Mater.*, vol. 51, no. 5, pp. 367–371, Sep. 2004.
- [11] M. A. Meyers, A. Mishra, and D. J. Benson, "Mechanical properties of nanocrystalline materials," *Prog. Mater. Sci.*, vol. 51, no. 4, pp. 427–556, May 2006.
- [12] N. N. Guo, J. Y. Zhang, P. M. Cheng, G. Liu, and J. Sun, "Room temperature creep behavior of free-standing Cu films with bimodal grain size distribution," *Scr. Mater.*, vol. 68, no. 11, pp. 849–852, Jun. 2013.
- [13] I.-C. Choi, Y.-J. Kim, Y. M. Wang, U. Ramamurty, and J. Jang, "Nanoindentation behavior of nanotwinned Cu: Influence of indenter angle on hardness, strain rate sensitivity and activation volume," *Acta Mater.*, vol. 61, no. 19, pp. 7313–7323, Nov. 2013.
- [14] Z. . Basinski, "Forest hardening in face centred cubic metals," *Scr. Metall.*, vol. 8, no. 11, pp. 1301–1307, Nov. 1974.
- [15] G. Wang, J. Lian, Z. Jiang, L. Qin, and Q. Jiang, "Compressive creep behavior of an electric brush-plated nanocrystalline Cu at room temperature," *J. Appl. Phys.*, vol. 106, no. 8, p. 86105, 2009.
- [16] P. S. Follansbee and U. F. Kocks, "A constitutive description of the deformation of copper based on the use of the mechanical threshold stress as an internal state variable," *Acta Metall.*, vol. 36, no. 1, pp. 81–93, Jan. 1988.
- [17] R. P. Carreker and W. R. Hibbard, "Tensile deformation of high-purity copper as a function of temperature, strain rate, and grain size," *Acta Metall.*, vol. 1, no. 6, pp. 654–663, Nov. 1953.
- [18] Y. F. Shen, L. Lu, M. Dao, and S. Suresh, "Strain rate sensitivity of Cu with nanoscale twins," *Scr. Mater.*, vol. 55, no. 4, pp. 319–322, Aug. 2006.
- [19] A. M. Hodge, Y. M. Wang, and T. W. Barbee, "Mechanical deformation of high-purity sputter-deposited nano-twinned copper," *Scr. Mater.*, vol. 59, no. 2, pp. 163–166, Jul. 2008.
- [20] J. Chen, L. Lu, and K. Lu, "Hardness and strain rate sensitivity of nanocrystalline Cu," *Scr. Mater.*, vol. 54, no. 11, pp. 1913–1918, Jun. 2006.
- [21] S. Cheng, E. Ma, Y. Wang, L. Kecskes, K. Youssef, C. Koch, U. Trociewitz, and K. Han, "Tensile properties of in situ consolidated nanocrystalline Cu," *Acta Mater.*, vol. 53, no. 5, pp. 1521–1533, Mar. 2005.
- [22] P. Huang, F. Wang, M. Xu, K. W. Xu, and T. J. Lu, "Dependence of strain rate sensitivity upon deformed microstructures in nanocrystalline Cu," *Acta Mater.*, vol. 58, no. 15, pp. 5196–5205, Sep. 2010.

- [23] C. Duhamel, Y. Brechet, and Y. Champion, "Activation volume and deviation from Cottrell–Stokes law at small grain size," *Int. J. Plast.*, vol. 26, no. 5, pp. 747–757, May 2010.
- [24] H. Conrad, "Grain size dependence of the plastic deformation kinetics in Cu," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 341, no. 1–2, pp. 216–228, Jan. 2003.
- [25] P. Wang, Y. Fu, G. Zhang, and R. Ma, "The grain growth and phase transformation in Ni thin films induced by ion irradiation," *Vacuum*, vol. 42, no. 15, pp. 995–999, Jan. 1991.
- [26] H. Conrad and K. Jung, "On the strain rate sensitivity of the flow stress of ultrafine-grained Cu processed by equal channel angular extrusion (ECAE)," *Scr. Mater.*, vol. 53, no. 5, pp. 581–584, Sep. 2005.
- [27] R. Vayrette, J.-P. Raskin, and T. Pardoen, "On-chip fracture testing of freestanding nanoscale materials," *Eng. Fract. Mech.*, vol. 150, pp. 222–238, Dec. 2015.
- [28] D. S. Gianola, D. H. Warner, J. F. Molinari, and K. J. Hemker, "Increased strain rate sensitivity due to stress-coupled grain growth in nanocrystalline Al," *Scr. Mater.*, vol. 55, no. 7, pp. 649–652, Oct. 2006.
- [29] W. Bochniak, "The cottrell-stokes law for F.C.C. single crystals," *Acta Metall. Mater.*, vol. 41, no. 11, pp. 3133–3140, Nov. 1993.
- [30] A. H. Cottrell and R. J. Stokes, "Effects of Temperature on the Plastic Properties of Aluminium Crystals," *Proc. R. Soc. Math. Phys. Eng. Sci.*, vol. 233, no. 1192, pp. 17–34, Dec. 1955.
- [31] T. G. Langdon, "Grain boundary sliding revisited: Developments in sliding over four decades," *J. Mater. Sci.*, vol. 41, no. 3, pp. 597–609, Feb. 2006.
- [32] I. M. Lifshitz, "On the Theory of Diffusion-viscous Flow of Polycrystalline Bodies," *J. Exp. Theor. Phys.*, vol. 17, no. 4, p. 909, 1963.
- [33] W. A. Rachinger, "Relative Grain Translations In The Plastic Flow Of Aluminium," *J. Inst. Met.*, vol. 81, pp. 33–41, 1953 1952.
- [34] P. Kumar, M. Kawasaki, and T. G. Langdon, "Review: Overcoming the paradox of strength and ductility in ultrafine-grained materials at low temperatures," *J. Mater. Sci.*, vol. 51, no. 1, pp. 7–18, Jan. 2016.
- [35] J. J. Hu, X. P. Zhang, G. X. Sun, and G. Y. Wang, "Deformation mechanism of an electric brush-plated nanocrystalline Cu investigated by tensile testing and nanoindentation creep," *Mater. Res. Innov.*, vol. 19, no. sup4, pp. S181–S186, May 2015.
- [36] Z. Jiang, H. Zhang, C. Gu, Q. Jiang, and J. Lian, "Deformation mechanism transition caused by strain rate in a pulse electric brush-plated nanocrystalline Cu," *J. Appl. Phys.*, vol. 104, no. 5, p. 53505, 2008.
- [37] Y. Qi and P. Krajewski, "Molecular dynamics simulations of grain boundary sliding: The effect of stress and boundary misorientation," *Acta Mater.*, vol. 55, no. 5, pp. 1555–1563, Mar. 2007.
- [38] V. Yamakov, D. Wolf, S. R. Phillpot, and H. Gleiter, "Grain-boundary diffusion creep in nanocrystalline palladium by molecular-dynamics simulation," *Acta Mater.*, vol. 50, no. 1, pp. 61–73, Jan. 2002.
- [39] H. Van Swygenhoven and P. M. Derlet, "Grain-boundary sliding in nanocrystalline fcc metals," *Phys. Rev. B*, vol. 64, no. 22, Nov. 2001.
- [40] M.-S. Colla, B. Amin-Ahmadi, H. Idrissi, L. Malet, S. Godet, J.-P. Raskin, D. Schryvers, and T. Pardoen, "Dislocation-mediated relaxation in nanograined columnar palladium films revealed by on-chip time-resolved HRTEM testing," *Nat. Commun.*, vol. 6, p. 5922, Jan. 2015.
- [41] Z. Shan, "Grain Boundary-Mediated Plasticity in Nanocrystalline Nickel," *Science*, vol. 305, no. 5684, pp. 654–657, Jul. 2004.
- [42] C. . Youngdahl, J. . Weertman, R. . Hugo, and H. . Kung, "Deformation behavior in nanocrystalline copper," *Scr. Mater.*, vol. 44, no. 8–9, pp. 1475–1478, May 2001.
- [43] L. Wang, J. Teng, P. Liu, A. Hirata, E. Ma, Z. Zhang, M. Chen, and X. Han, "Grain rotation mediated by grain boundary dislocations in nanocrystalline platinum," *Nat. Commun.*, vol. 5, Jul. 2014.
- [44] R. L. Bell and T. G. Langdon, "An investigation of grain-boundary sliding during creep," *J. Mater. Sci.*, vol. 2, no. 4, pp. 313–323, Jul. 1967.

- [45] T. G. Langdon, "The role of grain boundaries in high temperature deformation," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 166, no. 1–2, pp. 67–79, Jul. 1993.
- [46] K. V. Ivanov and E. V. Naydenkin, "Tensile behavior and deformation mechanisms of ultrafine-grained aluminum processed using equal-channel angular pressing," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 606, pp. 313–321, Jun. 2014.
- [47] N. Q. Chinh, P. Szommer, T. Csanádi, and T. G. Langdon, "Flow processes at low temperatures in ultrafine-grained aluminum," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 434, no. 1–2, pp. 326–334, Oct. 2006.
- [48] M.-S. Colla, "Plasticity and creep in thin free-standing nanocrystalline Pd films," UCL, Louvain-La-Neuve, 2014.

Chapitre V

Caractérisation du comportement mécanique du cuivre irradié

V.1 Fluage post irradiation	9
V.2 Fluage sous irradiation.....	9
V.2.1 Etude de faisabilité.....	9
V.2.2 Artefacts de mesure.....	10
V.2.2.1 Adhésion de l'actuateur sur le substrat	10
V.2.2.2 Calibration des MEB	10
V.2.2.3 Vibrations lors du transport.....	10
V.2.3 Irradiation complète des éprouvettes.....	10
V.2.4 Protection totale de l'actuateur	10
V.2.5 Reproductibilité et validation du comportement sous flux	11
V.3 Conclusion	11

Ce chapitre s'articule autour des expériences ayant permis d'aboutir à une loi de fluage sous irradiation pour des éprouvettes de 200 et 500 nm d'épaisseur. Les différentes étapes clés et le raisonnement qui ont permis l'établissement de cette loi sont présentés.

V.1 Fluage post irradiation

Les premiers essais de micromachines utilisées sous irradiation ont été effectués sur des micromachines non relâchées. Ainsi, la déformation des éprouvettes est bloquée par le substrat. L'avantage de travailler sur de tels échantillons est de pouvoir manipuler des structures plus robustes avec des risques plus faibles d'être abimées lors du transport ou du masquage de l'échantillon. Lorsque l'oxyde est retiré, on visualise ainsi le comportement *post* irradiation des éprouvettes.

Néanmoins la gravure devient une étape encore plus critique que sur les échantillons non irradiés. En effet, le nitrure de silicium irradié est gravé plus vite par la solution acide HF que le nitrure non irradié diminuant ainsi la sélectivité avec l'oxyde de silicium. Ces échantillons nécessitent donc une protection complète du nitrure de silicium sous irradiation. Dans le cas contraire, les structures ne sont pas utilisables, Figure V. 1.

Seul un échantillon, lors de l'étude de faisabilité sur des films de 200 nm de cuivre recuit, a permis d'évaluer le comportement post irradiation.

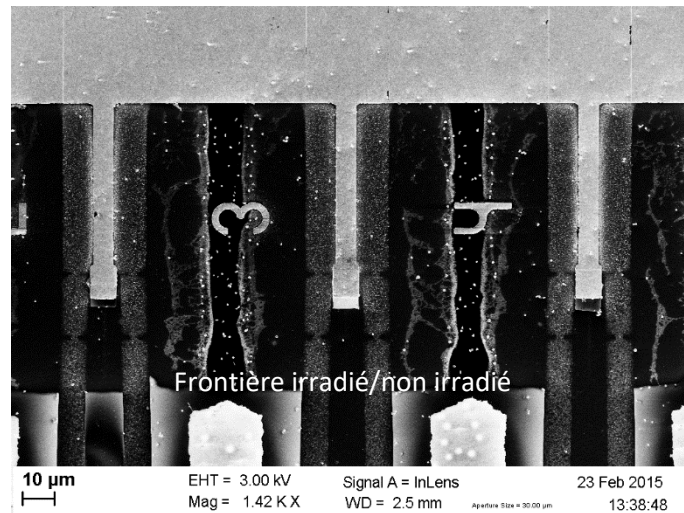


Figure V. 1: Gravure du nitrure de silicium irradié suite à un choix d'alignement ne protégeant pas l'intégralité de l'actuateur.

Cet échantillon est un échantillon où les épaisseurs après gravure HF sont d'environ 200 nm pour les éprouvettes et 80 nm pour les poutres actuatrices. L'échantillon est irradié aux ions cuivre à une énergie de 600 keV jusqu'à une dose de 1 dpa sur ARAMIS au CNRS/CSNSM. Les profils SRIM d'endommagement et d'implantation pour cette énergie et cette dose sont donnés sur la Figure V. 2. Le même traitement de données que pour les échantillons hors irradiation est appliqué ici. Les structures témoins non irradiées sont la série B avec des éprouvettes de 100 µm placées entièrement sous le masque durant l'irradiation. Cette série correspond à l'échantillon 1 de la partie IV.4.3. Les deux séries ont fait l'objet d'un suivi temporel dans les mois qui suivent l'irradiation.

Cet échantillon a donc été fabriqué à l'UCL, placé sur le dispositif de masquage au CEA, irradié au CNRS/CNSM à Orsay, puis relâché à l'UCL, et enfin suivi au MEB dans un premier temps à l'UCL et dans un second temps au CEA.

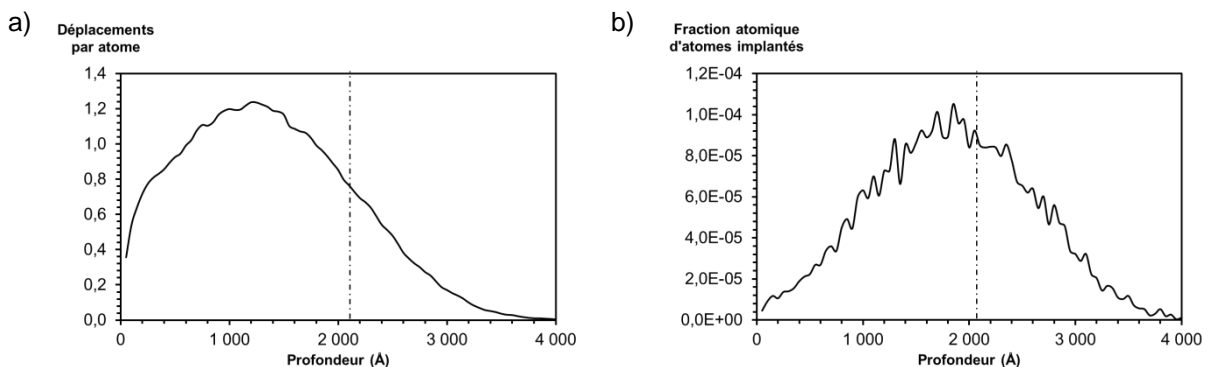


Figure V. 2 : Profils SRIM pour des ions cuivre de 600 keV sur une cible de cuivre incliné à 7° donnant a) l'endommagement pour une dose de "1 dpa" et b) l'implantation.

La Figure V. 3 montre les premiers points de mesure sur la série irradiée et la série non irradiée dans un graphique contrainte-déformation. Comme l'échantillon nécessite un séchage par CPD, les premiers points sont obtenus plus de deux heures après la mise sous contrainte de l'échantillon. Une relaxation importante des contraintes est donc possible sur cette durée. On peut remarquer que les structures irradiées sont nettement plus résistantes que les structures non irradiées. Cela peut être associé soit à un durcissement du matériau après irradiation, soit à un ralentissement de la première phase de relaxation intervenant dans les premières minutes après la gravure de la couche sacrificielle. Dans les deux cas, il semble que les SFT introduits par l'irradiation jouent leur rôle d'obstacles pour entraver le déplacement des dislocations.

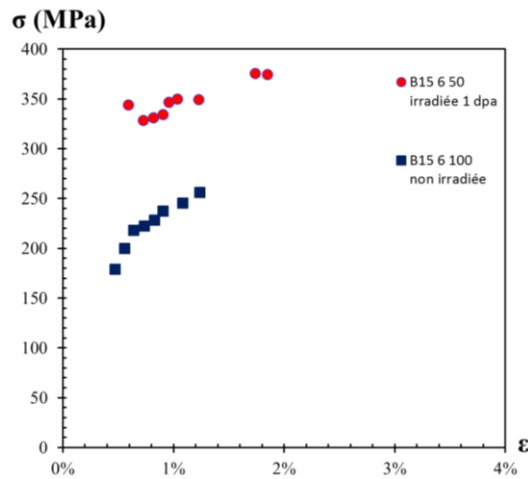


Figure V. 3 : Premiers points de mesures après 2h de relaxation sur la série irradiée et la série témoin.

Les faciès de rupture sur les éprouvettes rompues dès l'application de la contrainte, Figure V. 4, présentent des morphologies similaires aux faciès de rupture hors irradiation avec notamment des profils en dents de scies. Ces profils sont caractéristiques de mécanismes de déformation contrôlés par le glissement de dislocations avec une propagation transgranulaire des fissures. Les mêmes mécanismes de déformation pourraient donc se produire dans les éprouvettes irradiées et les éprouvettes non irradiées aux "hautes" vitesses de déformation.

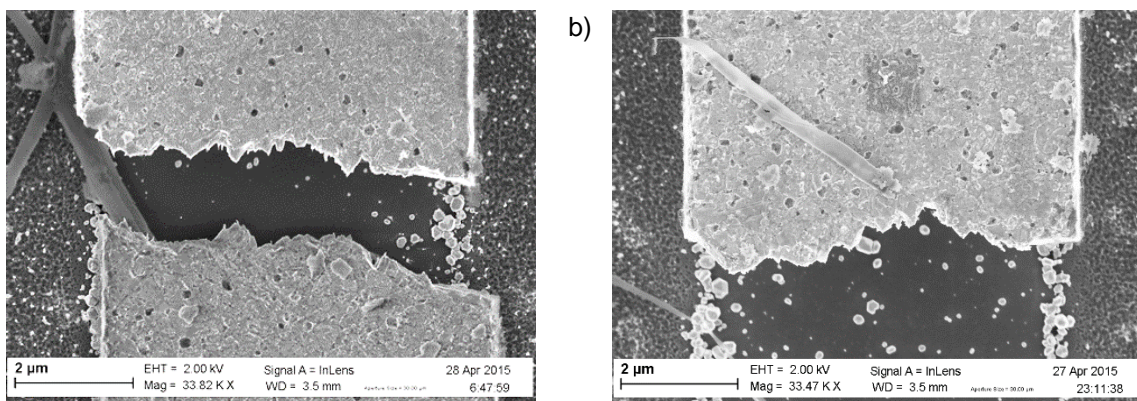


Figure V. 4 : Faciès de rupture en traction de deux éprouvettes irradiées.

Le suivi temporel de la série irradiée est présenté sur la Figure V. 5. La déformation suit une loi logarithmique du même type que pour les échantillons non irradiés, chapitre IV. La vitesse de déformation est plus importante pour la série irradiée que pour la série témoin mais la contrainte appliquée sur la série irradiée est également plus importante. La rupture est atteinte sur les trois éprouvettes les plus déformées, au niveau de la jonction entre l'actuateur et l'éprouvette, ce qui ne permet pas d'interprétation des faciès.

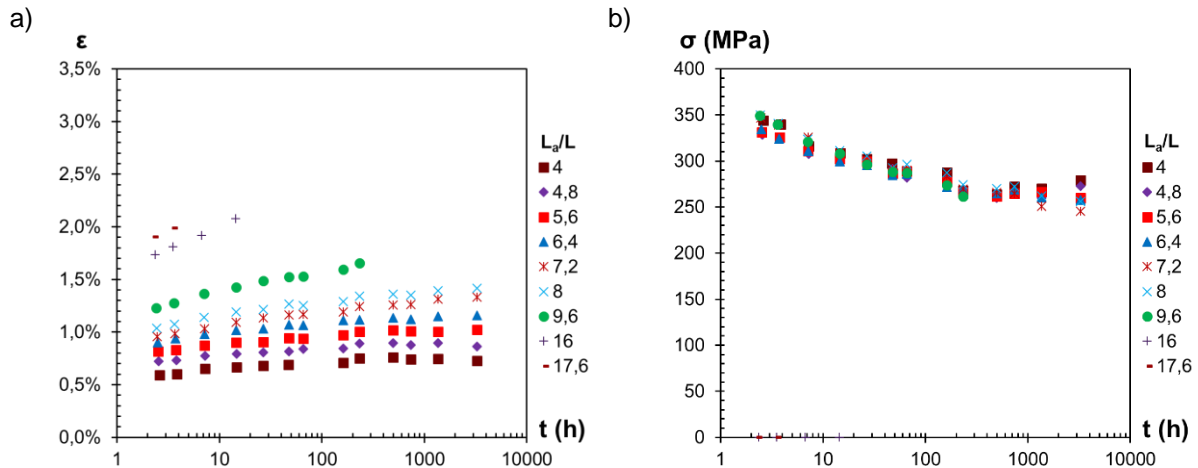


Figure V. 5 : Evolution après irradiation à 1 dpa de a) la déformation et b) de la contrainte.

Les volumes d'activation et les facteurs de sensibilité à la contrainte sont tracés sur la Figure V. 6 pour la série irradiée et la série témoin. Les volumes d'activation sont similaires dans les deux séries, on note une décroissance du paramètre L avec le rapport des longueurs des poutres actuatrices et des éprouvettes. Pour rappel, plus ce rapport est grand et plus la déformation plastique initiale est élevée. Les facteurs de sensibilité m sont légèrement plus faibles pour la série irradiée sauf pour les 3 derniers points qui correspondent aux trois séries ayant atteint la rupture.

On observe sur la Figure V. 5 une légère inflexion de la courbe après 300 h. L'intégration des points après cet instant, dans le calcul du volume d'activation, conduit à un abaissement des droites logarithmiques par rapport aux ajustements obtenus sur les premiers points. Cela se traduit par une légère augmentation du volume d'activation au cours du temps.

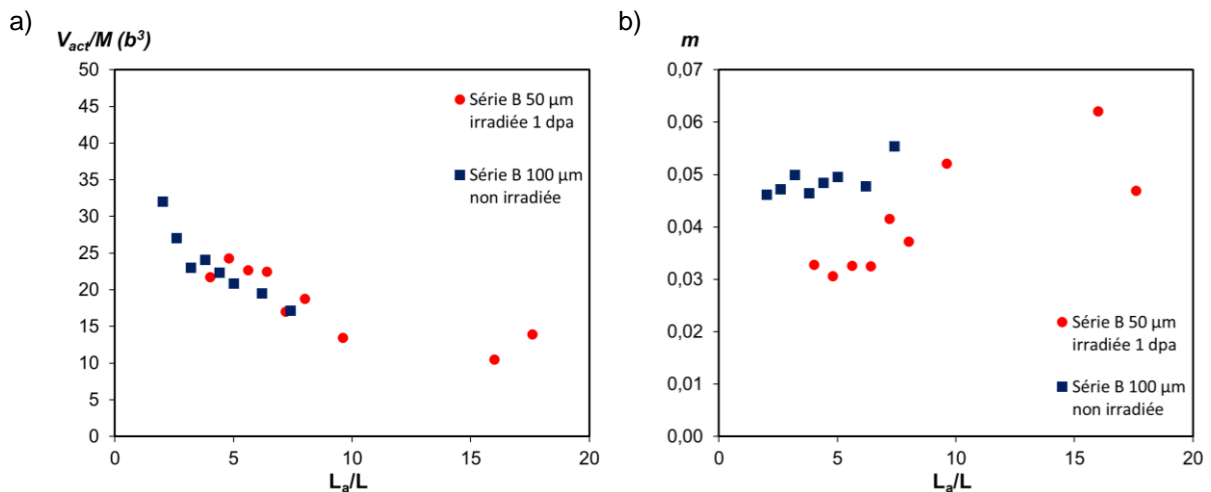


Figure V. 6 : a) Volume d'activation et b) facteur de sensibilité à la contrainte pour la série irradiée à 1 dpa et la série non irradiée.

Le comportement visqueux *post* irradiation du film de cuivre semble donc être très similaire au comportement hors irradiation. La présence de SFT semble ne pas induire un mécanisme de déformation différent, à basse vitesse, du film de cuivre non irradié.

Pour autant, la vitesse de déformation dans les éprouvettes irradiées est plus faible que la vitesse attendue en prolongeant les données extraites des éprouvettes non irradiées, Figure V. 7. Le

rôle d'obstacles des SFT est donc aussi observé à basse vitesse de déformation. Ces observations sont cohérentes avec les conclusions faites sur le matériau non irradiée qui statuaient sur des mécanismes de déformation basés sur les dislocations.

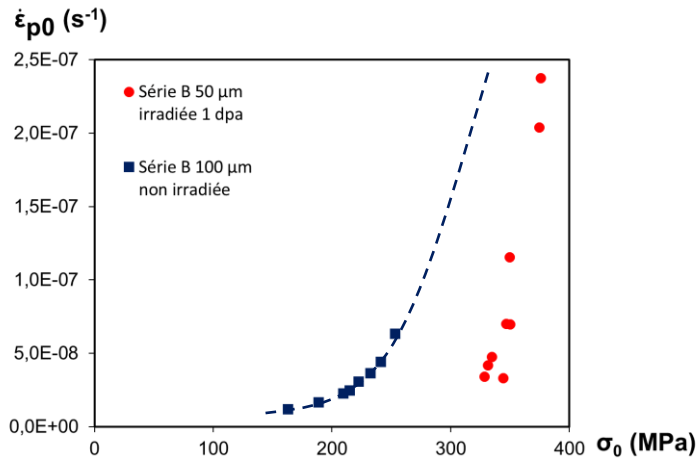


Figure V. 7 : Vitesse de déformation plastique au premier point de mesure en fonction de la contrainte

Les SFT pourraient donc contribuer à une force de friction globale sans influencer sur l'activation thermique qui resterait contrôlée par d'autres paramètres microstructuraux comme, par exemple, la distance interdislocation pour la loi de Cottrell-Stokes.

Un phénomène couramment observé dans le cuivre OFHC irradié puis déformé est la canalisation des dislocations. Les SFT forment un champ d'obstacles denses et uniformément répartis pour le glissement des dislocations. Les interactions SFT-dislocation peuvent conduire à la disparition du SFT [1]–[3]. Au fur et à mesure que la dislocation glisse de plus en plus de SFT disparaissent dans son sillage. Il se crée alors une zone adoucie dans la matrice favorisant le glissement des dislocations dans cette région par rapport au reste de la matrice dure. Le glissement successif de dislocations dans cette zone entraîne alors la formation de bandes claires dépourvues d'amas de défauts, Figure V. 8. Les mécanismes exactes de formation et de propagation des bandes claires ne sont pas connus [4] mais les observations *in situ* de Robach et al. [5] montre qu'elles se forment préférentiellement aux joints de grain et fissures plutôt qu'au niveau des dislocations préexistantes.

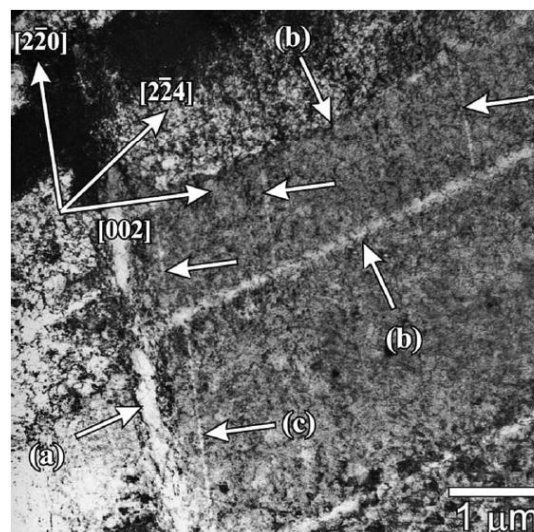


Figure V. 8 : Bandes claires observées dans un cuivre OFHC irradié aux neutrons à 0,3 dpa à 100 °C. Les lettres (a), (b), (c) correspondent à trois générations différentes de canaux suite à des changements de plans de glissement [6].

La présence de bandes claires est avérée dans le cuivre pur déformé après irradiation aux neutrons à des vitesses de déformation de 10^{-7} s^{-1} par Pakarinen et al. [7]. Cette vitesse de déformation est comparable à celles des structures les plus déformées. L'absence d'observations MET sur nos échantillons ne permet pas de savoir si la présence de bandes claires est avérée et de conclure sur une éventuelle canalisation de la déformation plastique après irradiation.

V.2 Fluage sous irradiation

V.2.1 Etude de faisabilité

La première expérience exploitable de fluage sous irradiation avec des micromachines a pu aboutir en avril 2015. Cette expérience portait sur un film de cuivre, de 200 nm d'épaisseur irradié une seule fois aux ions cuivre à une énergie de 600 keV à 1 dpa (dose moyenne sur l'épaisseur du film). L'échantillon est relâché, c'est à dire la couche sacrificielle est retirée, la veille de l'irradiation à l'UCL en Belgique. La déformation est mesurée au plus près avant et après l'irradiation au CEA. Le masque a été placé de sorte à protéger intégralement le nitrure de silicium. En revanche, seule une longueur d'éprouvette de cuivre entre 35 et 43 μm a été exposée sur les 50 μm totaux. On peut visualiser sur Figure V. 9 la frontière entre la zone irradiée et la zone non irradiée du fait d'un comportement d'accumulation des charges différent dans la silice sous le nitrure de silicium. Sur l'image, la silice irradiée renvoie un contraste blanc.

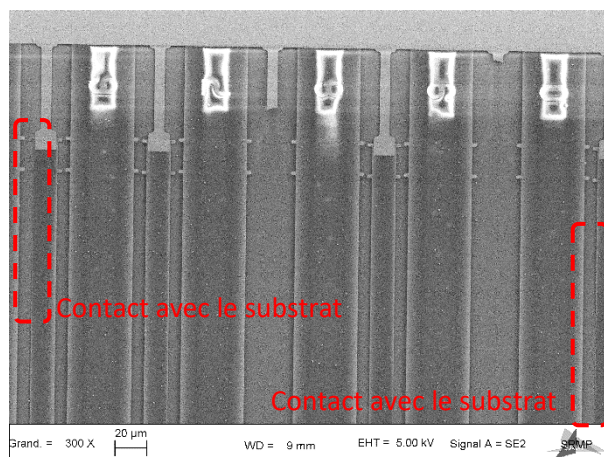


Figure V. 9 : Vue des micromachines après irradiation

La Figure V. 10 présente l'évolution au cours du temps de la déformation et de la contrainte sur les éprouvettes. Les deux premiers points de mesures ont été faits à l'UCL et le reste des points a été obtenu au CEA. L'irradiation, quant à elle, a toujours lieu au CNRS/CSNSM à Orsay. Les structures ont continué à être suivies plusieurs mois après l'irradiation au CEA. Au moment de l'irradiation, on observe un saut notable dans les courbes indiquant un effet important du faisceau d'ions sur la réponse mécanique du film de cuivre.

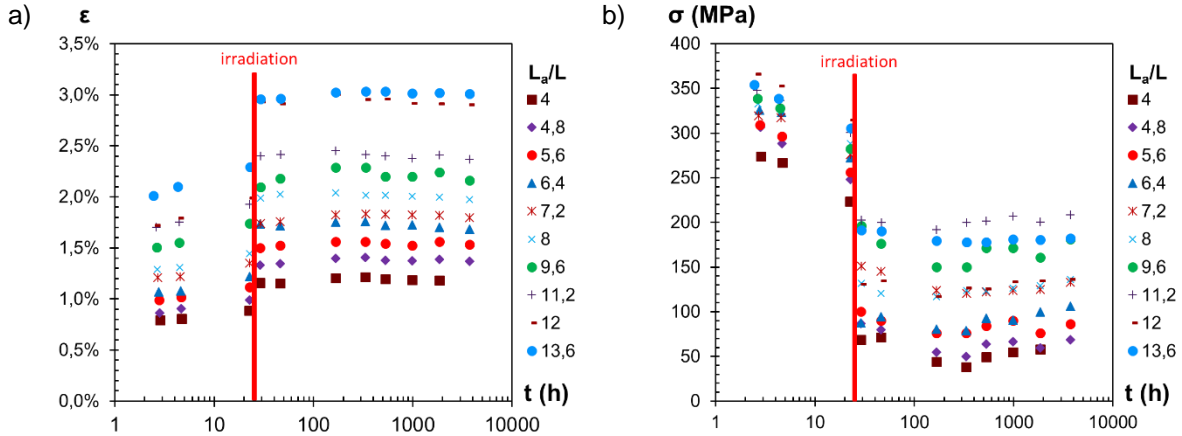


Figure V. 10 : Evolution de la déformation et de la contrainte au cours du temps sur l'échantillon irradié une fois. L'irradiation aux ions s'est produite 25 h après la gravure de l'oxyde de silicium.

La Figure V. 11 présente la déformation plastique obtenue sous irradiation tracée en fonction de la contrainte moyenne durant l'irradiation, moyenne des contraintes avant et après irradiation. La déformation totale sous irradiation est obtenue par la différence des déformations mesurées après et avant irradiation multipliée par un facteur correctif pour tenir compte de la longueur de cuivre irradié. La relaxation élastique due à la diminution de contrainte dans l'éprouvette est ensuite ajoutée pour obtenir la déformation plastique sous flux :

$$\epsilon_{irr} = \Delta\epsilon \frac{L}{L_{irr}} - \frac{\Delta\sigma}{E_{EC}} \quad (V.1)$$

On peut voir sur la Figure V. 10 et dans la partie IV que la relaxation hors irradiation est négligeable sur la durée de l'irradiation. L'hypothèse que seule la partie irradiée du film se déforme est donc viable. Ainsi la déformation totale telle que tracée sur la Figure V. 10 peut être corrigée par le rapport des longueurs totale et irradiée pour obtenir la déformation totale de la partie irradiée.

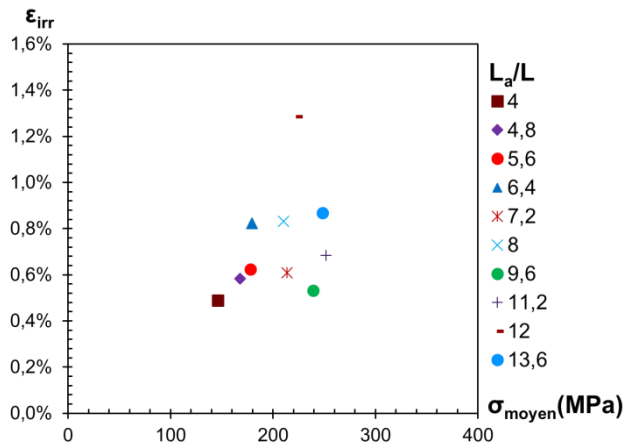


Figure V. 11 : Déformation plastique de la partie irradiée sous irradiation en fonction de la contrainte moyenne durant la déformation.

Les résultats montrent qu'il est possible d'étudier, avec les micromachines, l'évolution de la déformation sous irradiation. Cette déformation n'est pas identique pour toutes les éprouvettes ce qui permet d'exclure le gonflement sous irradiation comme seul mécanisme de déformation sous irradiation dans les éprouvettes. En effet, le gonflement sous irradiation est indépendant de la

contrainte appliquée. L'augmentation de la longueur d'éprouvette qui en résulte serait donc identique pour toutes les micromachines. Le dispositif expérimental permet donc bien d'obtenir un phénomène de fluage sous flux ionique.

On peut voir sur la Figure V. 11 que si, en général, la déformation sous irradiation est d'autant plus élevée que la contrainte est importante et plus la déformation sous irradiation est importante, cela n'est pas systématiquement le cas. Cela est probablement dû à un problème expérimental. Sur la Figure V. 9, des zones qui ne semblent plus être en suspension au-dessus du substrat sont visibles. L'actuateur semble coller sur ces zones au substrat de manière similaire à ce qui est obtenu par séchage des échantillons à l'air libre après gravure de la silice. Cela pourrait être dû à un contact entre le masque et l'échantillon forçant l'adhésion de l'actuateur sur le substrat. Il en résulte alors une diminution de la longueur effective de l'actuateur. La contrainte initiale avant irradiation reste inchangée mais la relaxation des contraintes est beaucoup plus rapide. La contrainte telle que mesurée à la fin de l'irradiation est donc dans cette hypothèse fortement surestimée. Etant donnée la très faible évolution au cours du temps de la déformation après irradiation, il est même possible que la contrainte ait été entièrement relaxée du fait de ce phénomène.

V.2.2 Artefacts de mesure

Les résultats précédents font apparaître un premier artefact possible gênant l'évaluation de la contrainte. La partie suivante présente justement des artefacts de mesures qui peuvent avoir une influence sur le comportement mécanique extrait pendant l'irradiation.

V.2.2.1 Adhésion de l'actuateur sur le substrat

Comme mentionné dans la partie précédente une adhésion même locale de l'actuateur sur le substrat peut entraîner une mauvaise évaluation de la contrainte appliquée et donc avoir une influence sur le comportement de fluage observé sous irradiation.

Les contraintes en cisaillement à l'interface, introduites par les contraintes en tension dans les poutres actuatrices, ne permettent pas de briser les liaisons de Van der Waals entre le substrat et l'actuateur. Ces points de contacts entraînent alors une diminution de la longueur effective de l'actuateur et donc une relaxation plus rapide des contraintes avec la déformation de l'éprouvette. La contrainte avant déformation reste toutefois inchangée.

Pour rappel d'après l'équation (III.11), qui relie la contrainte à la déformation :

$$\sigma = \frac{S_a}{S} E_a \left(-\varepsilon_a^{mis} - \frac{\varepsilon L}{L_{a\,eff}} \right). \quad (V.2)$$

Une diminution de la longueur effective de l'actuateur entraîne une augmentation de la pente de relaxation des contraintes avec la déformation, Figure V. 12. Si l'effet n'est pas pris en compte, cela entraîne une surestimation de la contrainte appliquée sur l'éprouvette durant la relaxation.

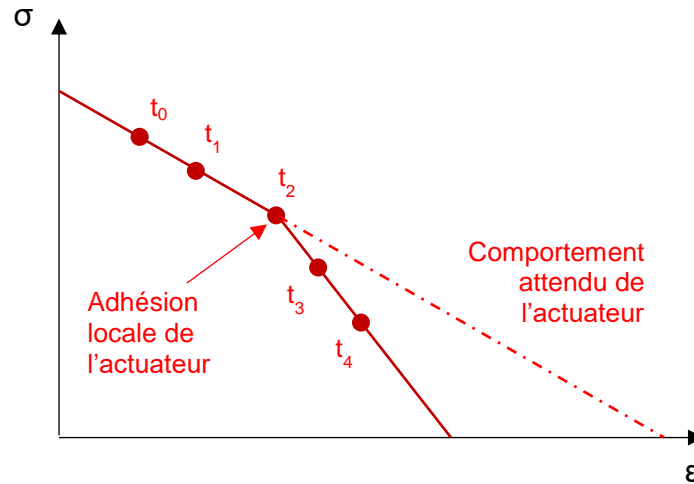


Figure V. 12 : Effet de l'adhésion locale de l'actuateur sur le substrat sur la relaxation de la contrainte avec la déformation.

C'est la raison pour laquelle les déformations sous irradiation, présentées dans l'article "méthode" [8] reprenant les tous premiers résultats sur des films de 500 nm d'épaisseur, Figure V. 13, saturent en dose rapidement malgré une faible relaxation apparente des contraintes.

L'actuateur le plus grand mesure 3 mm de long. De telles longueurs d'actuateur sont peu sensibles à la qualité de masquage qui est dans le pire des cas à une précision de quelques dizaines de micromètres. Pourtant on peut voir sur la Figure V. 13 que la vitesse de fluage diminue sous irradiation alors que la contrainte évaluée reste quasi inchangée après irradiation. Au bout de quelques incréments de dose, la déformation cesse même d'augmenter.

Les observations MEB révèlent de manière similaire à la Figure V. 9 des zones où l'actuateur ne semble plus totalement en suspension. Il en découle alors une diminution de la longueur effective de l'actuateur.

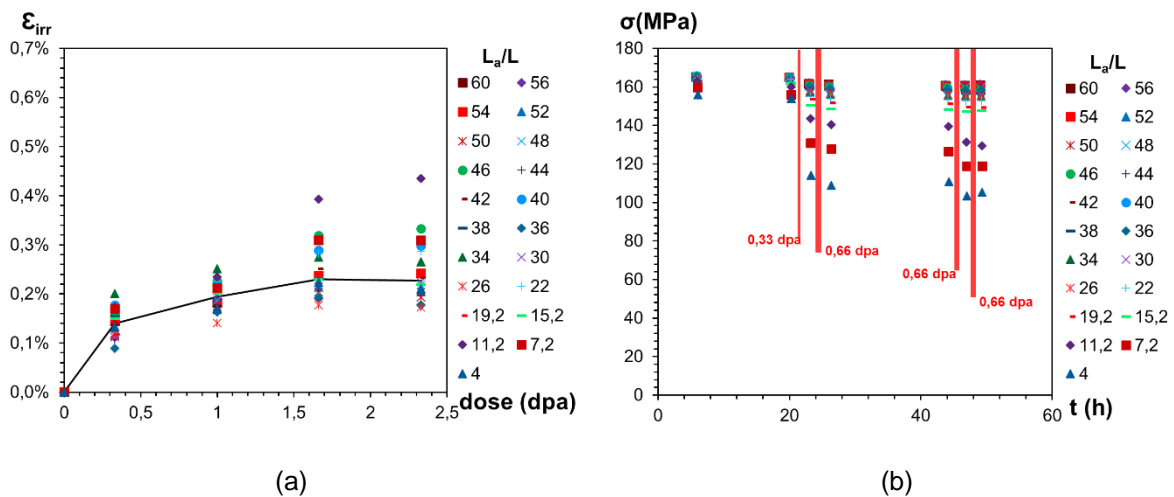


Figure V. 13 : Evolution au cours du temps de (a) la déformation totale et (b) de la contrainte sous irradiation dans les d'éprouvettes de 500 nm d'épaisseur où les actuateurs sont en partie collés sur le substrat.

Dans la suite de ce chapitre, toutes les micromachines qui seront présentées seront des micromachines où l'actuateur semble encore entièrement suspendu. Toutes les structures où le problème d'adhésion est possible sont éliminées de l'expérience.

V.2.2.2 Calibration des MEB

Les mesures de déplacements sont effectuées sur 3 MEB différents : 1 MEB Zeiss à l'UCL, 1 MEB Zeiss au CEA et 1 MEB Jeol au CEA. Différents MEB peuvent avoir différentes calibrations et donc entraîner des différences de mesures. Pour les suivis de la déformation il a été fait le choix de travailler au maximum avec le même équipement. Néanmoins les relâchements des structures et les premiers points de mesure sont effectués à l'UCL tandis que le reste des mesures est effectué au CEA. Ainsi pour toutes les expériences, deux MEB différents ont été utilisés.

Les MEB Zeiss de l'UCL et du CEA ont une calibration proche. Aucune rupture de pente n'est observée au moment du passage d'un MEB à l'autre, Figure V. 14. Les deux calibrations sont considérées suffisamment proches pour ne pas avoir d'effet sur les mesures.

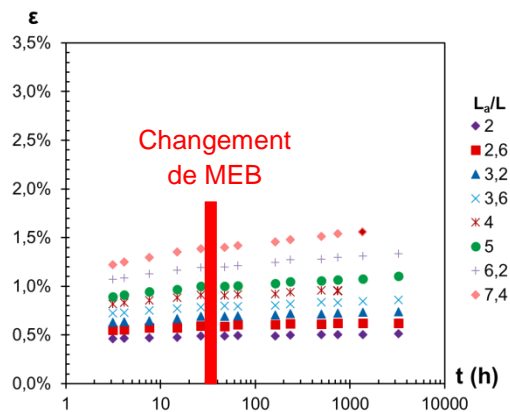


Figure V. 14 : Evolution temporelle de la déformation observée sur des structures avec les deux MEB Zeiss.

Le logiciel utilisé pour les mesures de déplacement permet la lecture directe des échelles sur les images faites par un MEB Zeiss. Par contre, il permet simplement d'afficher les images faites sur le MEB Jeol. Pour remédier à ce problème, il a été fait le choix d'enregistrer l'échelle d'une image faite sur un MEB Zeiss et d'utiliser cette échelle pour mesurer les déplacements sur les images JEOL. Une calibration est effectuée sur un même objet qui n'a pas varié entre les deux prises, à savoir la largeur des curseurs. Une moyenne est appliquée sur plusieurs mesures de largeurs de curseurs. Un coefficient est ensuite obtenu pour mesurer le déplacement réel des curseurs sur les images Jeol. Une autre méthode aurait consisté à mesurer les barres d'échelle sur les images Jeol pour l'obtention de ce coefficient. Néanmoins la première méthode permet de s'abstenir des choix de calibration de Jeol.

Toutes les images Jeol sont prises au même grossissement durant les expériences et un seul coefficient est appliqué sur l'ensemble des données. Les courbes ne montrent pas un désalignement des points au moment du changement de microscope, Figure V. 15.

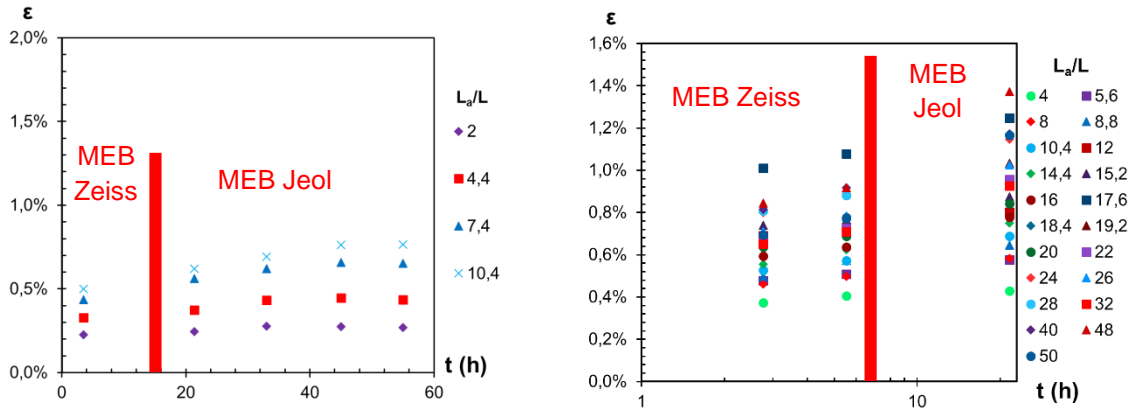


Figure V. 15 : Evolution temporelle de la déformation après le passage sur le MEB Jeol.

Cet artefact est considéré comme très faible et sans impact significatif sur les évaluations des déformations et contraintes des structures.

V.2.2.3 Vibrations lors du transport

Les micromachines sont des structures fragiles en suspension. Le transport des échantillons entre les différents sites, l'UCL en Belgique pour la fabrication, le CEA à Saclay pour la mesure et le masquage et le CNRS/CSNSM à Orsay pour l'irradiation, pourrait donc être critique. En particulier les vibrations engendrées par les véhicules de locomotion comme le train et la voiture pourraient endommager les structures. Les Figure V. 14 et Figure V. 15 correspondant au passage du MEB de l'UCL aux MEB du CEA montrent également que l'effet du transport des échantillons entre la France et la Belgique est très limité.

La Figure V. 16 présente l'évolution de la déformation d'une série témoin durant une expérience d'irradiation. L'écart entre 2 points, à partir de $t = 3237$ h, correspond au temps d'un ou plusieurs aller-retour entre le CEA et le centre d'Orsay. Aucune évolution de déformation n'est notée durant ces périodes indiquant un effet également très limité des vibrations lors du transport sur les structures.

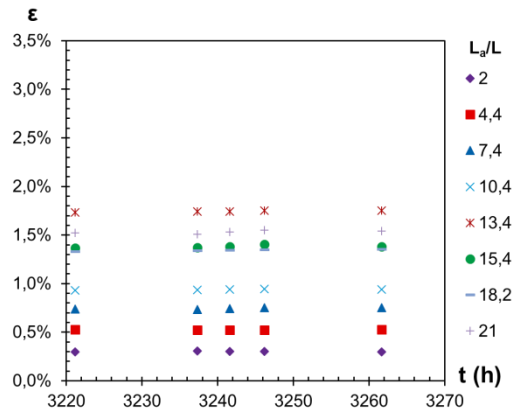


Figure V. 16 : Evolution temporelle des structures témoins durant le transport des échantillons.

Les artefacts mentionnés précédemment n'ont donc pas d'influence sur les résultats qui seront présentés dans la suite.

V.2.3 Irradiation complète des éprouvettes

Sur les premières expériences de quantification du fluage d'irradiation, nous avons choisi de prendre une marge de sécurité du côté de l'actuateur afin d'irradier intégralement l'éprouvette de cuivre. L'objectif était de maximiser le déplacement mesuré après chaque étape d'irradiation. En effet, plus la longueur d'éprouvette irradiée, à une contrainte donnée, est grande et plus l'allongement de l'éprouvette qui résulte des mécanismes de déformation, devrait être importante sous flux. Dans cette configuration, une certaine longueur d'actuateur est donc irradiée.

Cette expérience a été menée sur des films de 200 nm et 500 nm d'épaisseur sur des séries B avec des éprouvettes de 50 μm de long et 6 μm de large. Après gravure de l'oxyde de silicium, les épaisseurs des poutres actuatrices ont été mesurées à 65 nm pour l'échantillon avec le film de 200 nm et 85 nm pour l'échantillon avec le film de 500 nm.

Les conditions d'irradiation sont choisies pour que les ions cuivre traversent le film de cuivre tout en maximisant le dommage à l'intérieur du film. Pour les éprouvettes de 200 nm d'épaisseur, l'irradiation est faite avec des ions cuivre d'énergie 600 keV tandis que pour les éprouvettes de 500 nm, l'énergie des ions est prise à 1200 keV. Les profils SRIM de dommages et d'implantation pour des ions de 1200 keV sont donnés sur la Figure V. 17 pour une dose 2.10^{14} ions/cm². Pour rappel, les profils pour une énergie de 600 keV sont présentés sur la Figure V. 2. Comme précédemment la dose de 1 dpa correspond à la dose moyenne sur l'épaisseur du film.

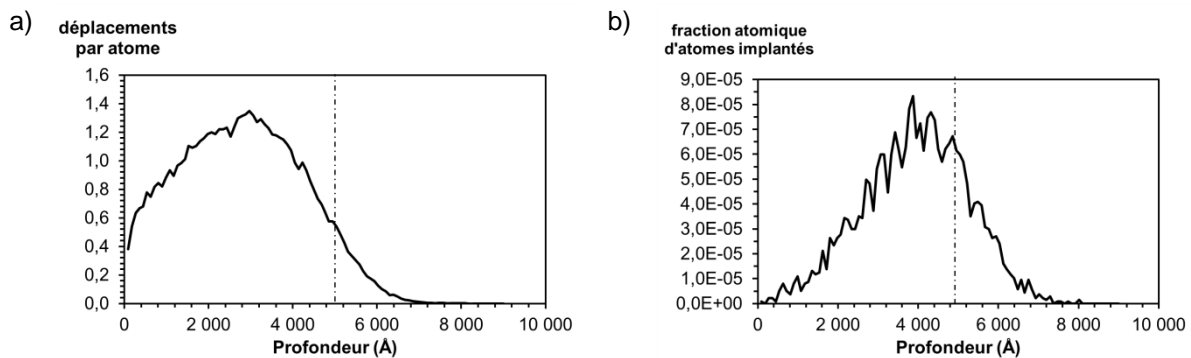


Figure V. 17 : Profils SRIM pour des ions cuivre de 1200 keV sur une cible de cuivre incliné à 7° donnant a) l'endommagement pour une dose de "1 dpa" et b) l'implantation.

Quatre incréments d'irradiation jusqu'à une dose de 2,4 dpa ont été effectués sur l'échantillon du film de 200 nm contre 7 incréments jusqu'à 5,6 dpa. Le Tableau V. 1 liste les différentes étapes d'irradiation pour chaque film. La longueur de nitrure irradiée est visible au MEB après irradiation par une différence de contraste entre la zone irradiée et la zone non irradiée. La longueur donnée dans le Tableau V. 1 correspond à la frontière visible entre les deux zones. Cela signifie que cette longueur d'actuateur a au moins été irradiée une fois lors d'une étape.

Comme expliqué dans le chapitre III, dans l'extraction de la contrainte cette partie irradiée est considérée comme ne se déformant plus qu'élastiquement sous l'effet du chargement externe. Comme discuté dans ce chapitre III, ce traitement est incorrect et ne permet pas de donner la contrainte exacte après chaque irradiation. La contrainte est sous-estimée à faible dose et surestimée à forte dose. Pour connaître la contrainte exacte dans cette configuration un modèle de relaxation sous irradiation des contraintes dans le nitrure de silicium est nécessaire.

Afin d'éviter toute propagation des erreurs, la relaxation élastique n'est pas prise en compte dans l'évaluation de la déformation plastique sous irradiation, équation (V.1) dans cette partie. La déformation sous irradiation calculée est donc légèrement sous-estimée.

Film	Flux (10^{-4} dpa/s)	Incrément de dose (dpa)	Longueur de nitrure irradiée (μm)
200 nm	5,5	0,26	35-45
	5,5	0,26	35-45
	5,5	0,48	35-45
	5,5	1,4	35-45
500 nm	6,3	0,26	25-30
	6,3	0,26	25-30
	6,3	0,48	60-65
	6,3	1,4	60-65
	6,3	0,8	60-65
	6,3	0,8	60-65
	6,3	1,6	60-65

Tableau V. 1 : Etapes d'irradiation pour les films de 200 et 500 nm d'épaisseur.

La Figure V. 18 présente l'évolution de la déformation et de la contrainte pour le film de 200 nm à chaque étape d'irradiation. On observe une nette augmentation de la déformation dès les premières irradiations. Plus la contrainte est importante et plus la déformation est importante. L'éprouvette la plus déformée atteint environ 4 % de déformation.

Plus le rapport L_a/L est élevé et plus la perte de contrainte liée à la déformation de l'éprouvette est faible. De même, plus ce rapport est important et plus l'influence de la longueur irradiée de nitrure de silicium est faible. Les structures les plus grandes sont donc les structures les plus fiables.

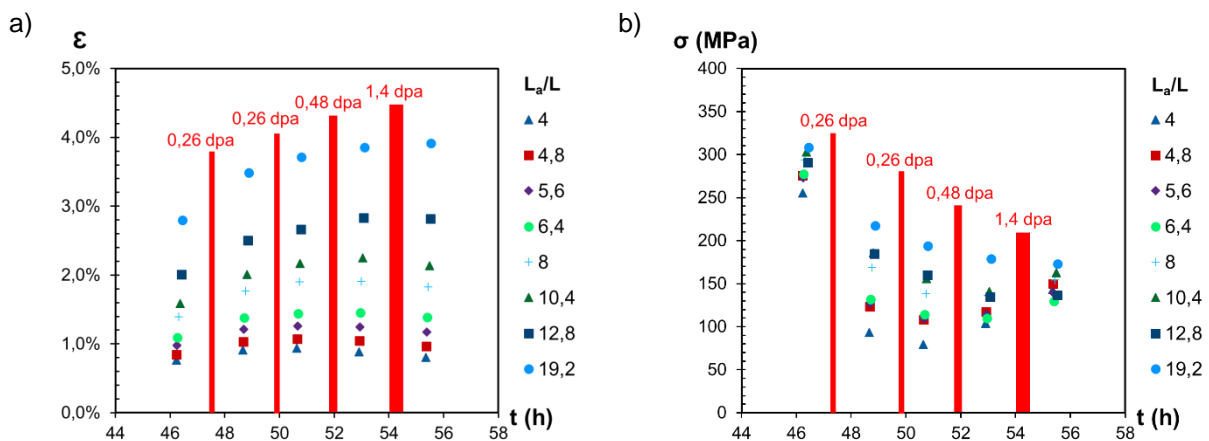


Figure V. 18 : Evolution a) de la déformation et b) de la contrainte au cours du temps dans le film après chaque étape d'irradiation dans le film de 200 nm d'épaisseur.

La Figure V. 19 représente l'évolution de la déformation sous irradiation en fonction de la dose. Pour rappel, la relaxation élastique n'est pas prise en compte sur cette figure. Une relaxation de 150 MPa conduit à une diminution de la déformation élastique de 0,12%. Une fonction exponentielle de saturation est ajoutée pour chaque éprouvette pour aider la lecture. A l'exception peut-être de la micromachine avec le rapport de longueur le plus long, 19,2, la saturation du phénomène semble atteinte sur toutes les micromachines. Plus étonnant, on note une diminution de la déformation à partir de 1 dpa. Cette diminution est plus importante sur les micromachines les plus petites. Ce point n'est probablement pas dû au comportement sous flux de l'éprouvette de cuivre

mais à un gonflement sous irradiation du nitrure de silicium comme évoqué dans le chapitre III. Plus le rapport entre la longueur d'actuateur irradiée et la longueur de l'actuateur est grand et plus l'influence de ce gonflement sera importante. Il est donc normal dans cette hypothèse que l'effet soit plus marqué sur les structures les plus petites.

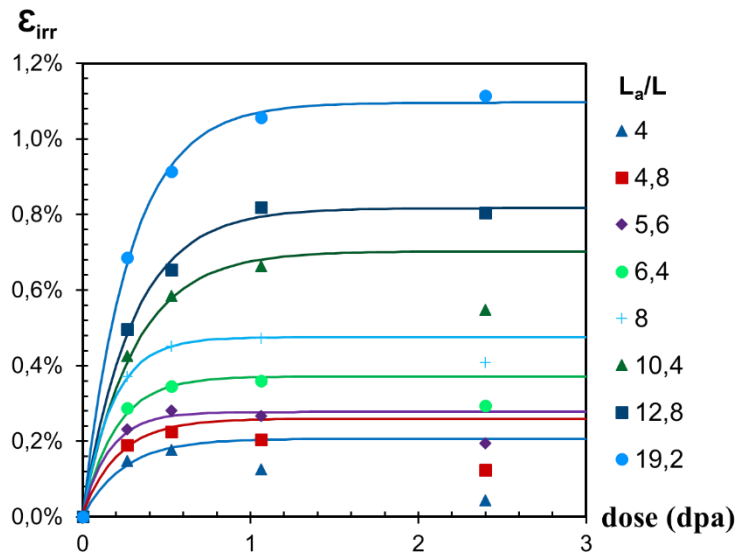


Figure V. 19 : Evolution de la déformation totale sous irradiation dans les éprouvettes du film de 200 nm d'épaisseur.

A partir de la Figure V. 19, on peut extraire une approximation de la vitesse de fluage en prenant simplement la pente entre deux points de mesures. Cette vitesse est tracée sur la Figure V. 20 en fonction de la contrainte moyenne entre ces deux points. Seules les vitesses positives sont représentées. Etant données les limites sur l'évaluation des contraintes, cette courbe est difficilement interprétable. Les premiers points de chaque série de mesure, surlignés en rouge sur la figure, sont les points les moins affectés par l'irradiation de l'actuateur et le traitement des données. Ces points ne sont pas alignés avec l'origine ce qui indique que la vitesse de fluage n'est *a priori* pas linéaire en contrainte.

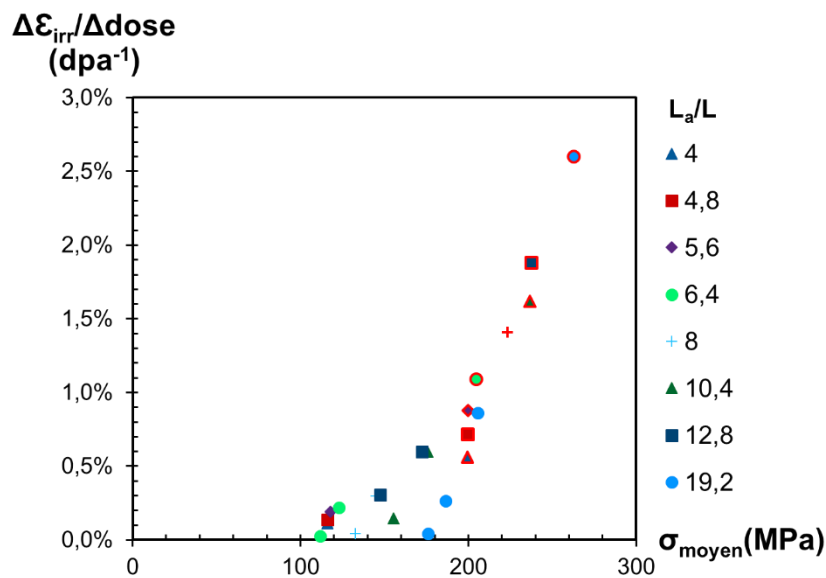


Figure V. 20 : Gain de la déformation totale en fonction de la contrainte moyenne sous irradiation.

Du fait d'un rapport d'épaisseurs film actuateur/film échantillon plus favorable, les micromachines à long actuateur sont utilisables sur l'échantillon avec un film de cuivre de 500 nm

d'épaisseur. 38 micromachines sont fonctionnelles sur l'échantillon. Après avoir retiré les structures présentant des traces d'adhésion de l'actuateur sur le substrat, il reste 21 micromachines pour l'étude du fluage.

La Figure V. 21 présente l'augmentation de la déformation observée au cours du temps après chaque étape d'irradiation pour les 17 micromachines intactes. Les sept étapes d'irradiation ont été effectuées sur deux jours ce qui explique l'absence de donnée pendant 12 h entre deux irradiations. A nouveau, on observe dans les périodes hors irradiation, ici la période de 12 h, que le fluage est minime en comparaison de l'évolution sous irradiation.

Comme pour l'expérience avec le film de 200 nm, plus les actuateurs sont petits et plus la saturation de la déformation est atteinte tôt. On observe même une diminution de la déformation pour les structures les plus petites. Les actuateurs les plus longs conservent une évolution plus monotone.

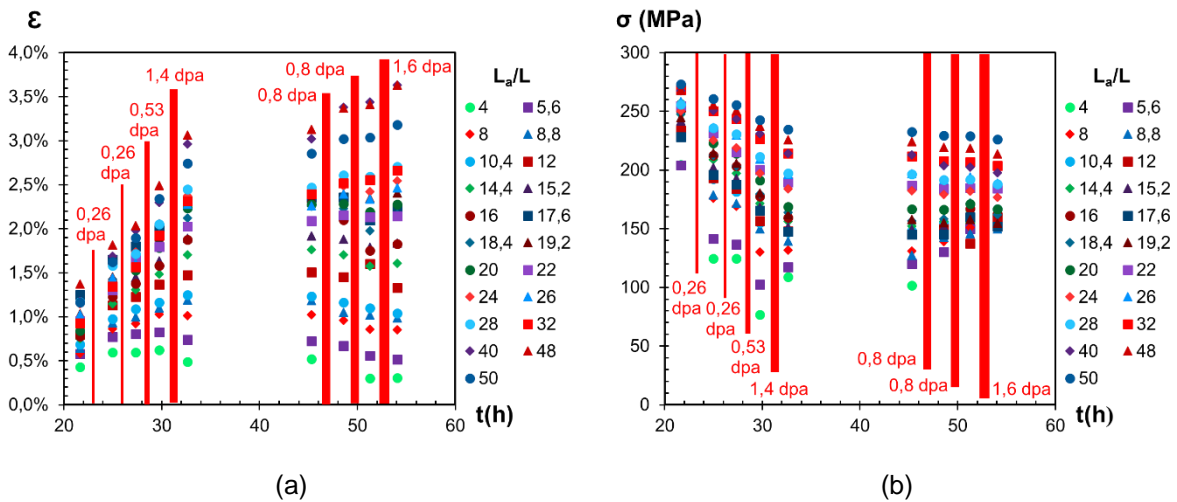


Figure V. 21 : Evolution au cours du temps de (a) la déformation et (b) de la contrainte sous irradiation dans les éprouvettes de 500 nm d'épaisseur nm.

Sur la Figure V. 22, on retrouve l'évolution de la déformation tracée en fonction de la dose. La relaxation élastique n'est toujours pas prise en compte ici mais elle peut être considérée comme négligeable étant donné les faibles pertes de contrainte entre deux points de mesures. Au maximum, qui correspond à la plus petite micromachine la relaxation conduit à une réduction de la déformation élastique de 0,06 %, ce qui est inférieur à l'incertitude de mesure qui est de 0,1 %. On peut noter que comme pour l'échantillon de 200 nm, la saturation est atteinte dès 1 dpa pour l'actuateur le plus court. Cette dose augmente avec la longueur de l'actuateur ce qui est cohérent avec une relaxation de la contrainte du fait de l'irradiation d'une partie de l'actuateur. Plus l'actuateur est long et plus la cinétique de relaxation des contraintes due à ce phénomène est lente.

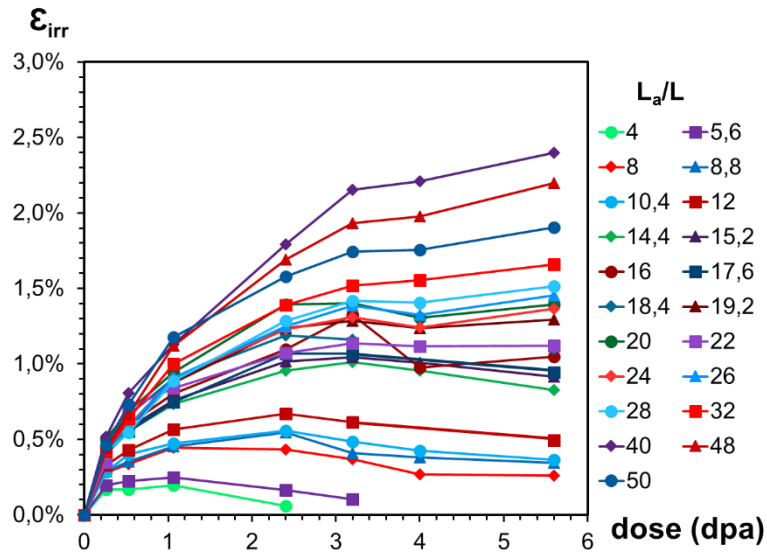


Figure V. 22 : Evolution de la déformation totale des éprouvettes sous flux en fonction de la dose.

De manière analogue au film de 200 nm d'épaisseur, une approximation de la vitesse de fluage est extraite de la Figure V. 22 et tracée en fonction de la contrainte moyenne entre deux points de mesure sur la Figure V. 23. Les premiers points de mesures de chaque éprouvette sont surlignés en rouge. On retrouve les vitesses obtenues sur les films de 200 nm, les différences d'épaisseur et de taille de grain entre les deux films ne semblent pas influencer sur les mécanismes de déformation sous irradiation.

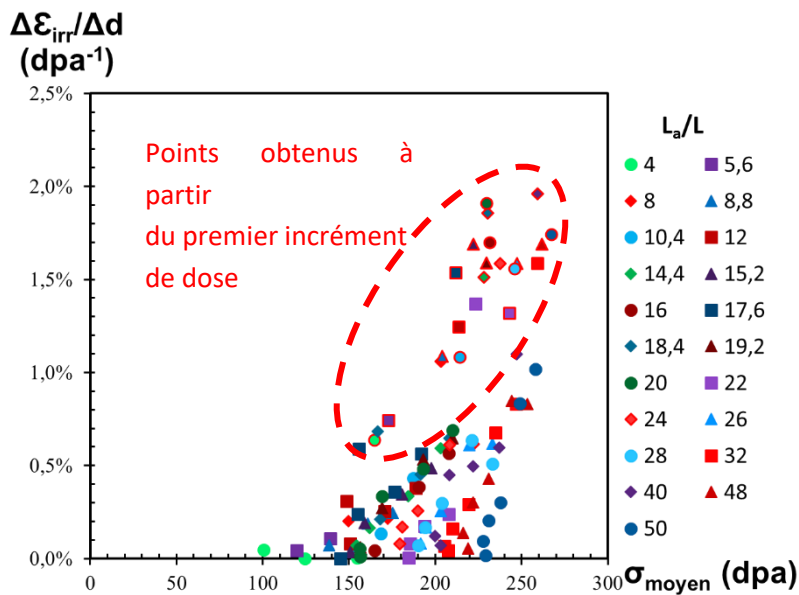


Figure V. 23 : Vitesse de déformation totale sous flux en fonction de la contrainte pour les éprouvettes de 500 nm d'épaisseur.

V.2.4 Protection totale de l'actuateur

Après les nombreux problèmes d'adhésion des actuateurs sur le substrat, le dispositif de masquage a été modifié afin de rehausser le masque et d'éviter au maximum tout contact entre l'échantillon et le masque. Ce problème est nettement moins présent sur l'échantillon qui va être présenté.

Les éprouvettes sont une nouvelle fois des éprouvettes de 50 μm de long et 6 μm de large avec une épaisseur de 500 nm. L'épaisseur du film actuateur est de 85 nm. L'échantillon est issu de la même tranche que l'échantillon utilisé pour établir la Figure V. 21. Il a été placé sous irradiation en mars 2016, quatre mois (3240 h) après avoir été relâché.

Les conditions d'irradiation sont données dans le Tableau V. 2. Le flux a été choisi identique à celui du premier échantillon. Il a été pris soin de protéger intégralement l'actuateur sous irradiation. Une marge importante a été prise sur la première irradiation afin de s'assurer de la qualité du masquage du nitrure. Seuls les 30 premiers nanomètres des éprouvettes ont alors été irradiés. Sur les irradiations suivantes, le masque a été placé pour irradier l'intégralité des éprouvettes. La deuxième irradiation ne semble pas s'être déroulée correctement car la longueur irradiée mesurée au MEB est inférieure ou égale à la première irradiation. Sur toutes les irradiations, l'actuateur n'a jamais été irradié et l'extraction de la contrainte a été faite de manière identique au film hors irradiation.

Etant donné la bonne évaluation des contraintes sur cet échantillon, la relaxation élastique peut être prise en compte pour le calcul de la déformation sous irradiation.

Film	Flux (10^{-4} dpa/s)	Incrément de dose (dpa)	Longueur de cuivre irradiée (μm)
500 nm	6,3	1,2	20-30 μm
	6,3	1,2	?
	6,3	1,6	50 μm
	6,3	1,6	50 μm
	6,3	2,4	50 μm

Tableau V. 2 : Conditions d'irradiation avec l'actuateur totalement masqué.

Après 3200 h, sur les 40 micromachines présentes après la gravure de l'oxyde de silicium, 21 structures ont atteint la rupture en relaxation hors irradiation. Sur les 19 restantes, deux structures présentent des actuateurs collés sur le substrat durant l'expérience et ne sont pas prises en compte.

La Figure V. 24 présente l'évolution de la déformation totale et de la contrainte à chaque étape. Les contraintes initiales appliquées sur les éprouvettes sont plus faibles que sur la Figure V. 21 du fait des phénomènes de relaxation intervenant avant irradiation dans les éprouvettes de cuivre.

On constate sur cette figure que contrairement à la sous-partie V.2.2, la déformation continue d'augmenter à chaque étape d'irradiation y compris pour les structures avec les actuateurs les plus petits. La diminution de la déformation sous flux observée sur Figure V. 21 est donc bien attribuable à l'irradiation d'une partie de l'actuateur.

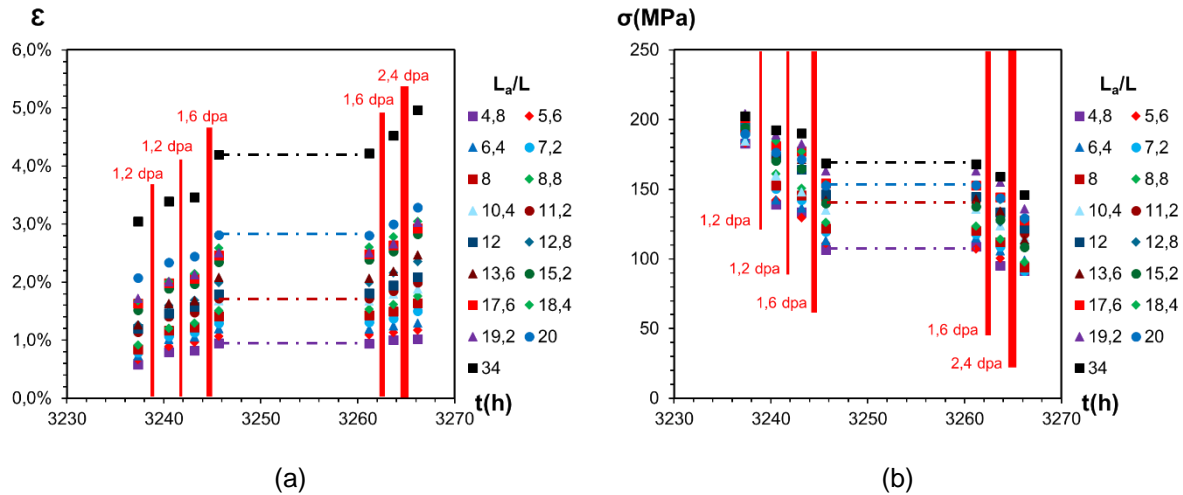


Figure V. 24 : Evolution au cours du temps de (a) la déformation et (b) de la contrainte sous irradiation dans les éprouvettes de 500 nm d'épaisseur nm avec l'actuateur totalement protégé.

La Figure V. 25 reprend l'évolution de la déformation sous flux ϵ_{irr} . Le même traitement que dans la partie V.2.1 est appliqué. Le premier point de mesure est corrigé du rapport entre la longueur de l'éprouvette et la longueur irradiée de cuivre. En effet, sur les temps d'expérience la déformation hors flux est négligeable donc seule la partie irradiée du cuivre se déforme. La déformation plastique sous flux est donc bien la déformation totale mesurée multipliée par les rapports des longueurs totales et irradiées à laquelle s'ajoute la diminution de la déformation élastique due à la relaxation (relation (V.1)).

Le reste des points de mesure n'est pas corrigé car soit la longueur irradiée n'est pas connue comme pour la deuxième série de mesures, soit l'éprouvette est entièrement irradiée et la déformation totale correspond bien la déformation de la partie irradiée.

La Figure V. 25 fait bien apparaître l'absence de saturation en dose ou en contrainte du fluage d'irradiation.

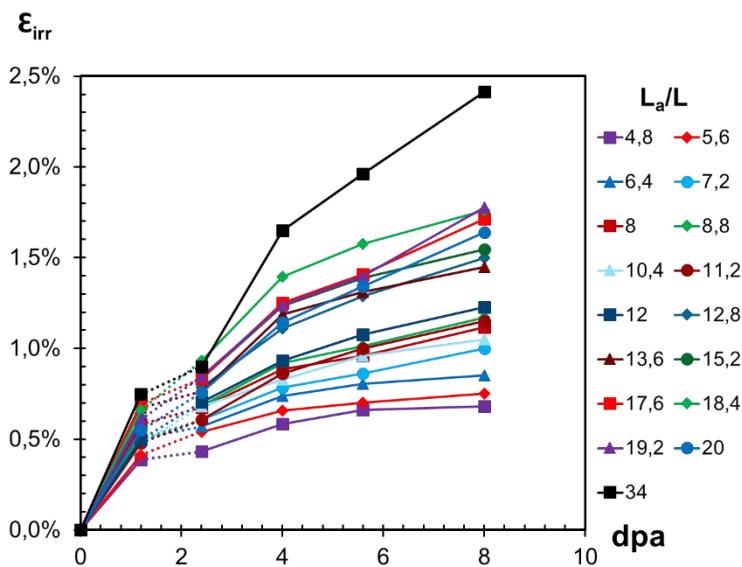


Figure V. 25 : Evolution de la déformation plastique sous flux en fonction de la dose.

A partir de la Figure V. 25, il est possible d'extraire une approximation de la vitesse de fluage à partir des pentes entre deux points. Ces valeurs sont tracées sur la Figure V. 26 en fonction de la

contrainte moyenne entre deux points. La pente associée à la deuxième irradiation n'est pas prise en compte, du fait des problèmes rencontrés. L'ensemble des points semble cette fois suivre une même loi globale avec une dispersion des données beaucoup plus faible que sur les échantillons où l'actuateur est irradié. Une loi de dépendance de la vitesse de déformation en puissance 5 par rapport à la contrainte semble pouvoir être établie. La faible dispersion des données peut s'expliquer par une meilleure définition de la contrainte et une meilleure représentativité de la contrainte moyenne du fait d'une relaxation des contraintes plus faible entre deux points.

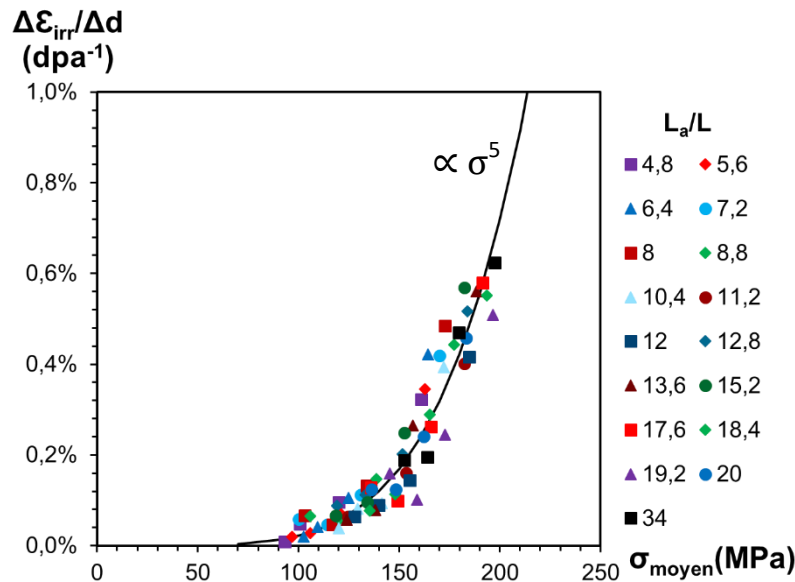


Figure V. 26 : Evolution de la vitesse de fluage en fonction de la contrainte.

En supposant une dépendance linéaire de la vitesse de déformation avec le flux, ce qui est couramment observée [9], [10], on obtient l'expression pour la vitesse de fluage :

$$\dot{\epsilon}_{irr} = K\varphi\sigma^5, \quad (V.3)$$

avec $K=2,2 \cdot 10^{-14}$ dpa⁻¹.MPa⁻⁵, φ le flux en dpa.s⁻¹.

V.2.5 Reproductibilité et validation du comportement sous flux

La Figure V. 27 regroupe l'ensemble des résultats pour la caractérisation de la vitesse de fluage, à savoir : l'irradiation d'un échantillon de 500 nm d'épaisseur en protégeant intégralement l'actuateur, l'irradiation d'échantillons de 200 et 500 nm d'épaisseur en irradiant une partie de l'actuateur. Pour ces deux derniers cas, seule la première étape d'irradiation est représentée car c'est le point de mesure le moins influencé par le comportement sous irradiation du nitrure. Pour ces deux échantillons, deux représentations sont proposées : (i) une surestimant la contrainte en considérant que l'actuateur garde son comportement mécanique sous irradiation, (ii) une sous-estimant la contrainte en diminuant la longueur effective de l'actuateur comme proposé dans la partie V.2.3. Les vitesses données tiennent compte de la relaxation élastique due à la diminution de contrainte avec la déformation.

On remarque que les points correspondant aux échantillons avec l'actuateur partiellement irradié se répartissent autour de la loi de comportement en puissance 5 trouvée précédemment. Les points où la contrainte est sous-estimée sont majoritairement décalés vers les basses contraintes contrairement aux points où la contrainte est surestimée qui sont décalés principalement vers les

hautes contraintes. Le modèle semble donc convenir pour les deux échantillons irradiés partiellement.

La loi en puissance 5 reste donc valable à plus forte contrainte et sur une épaisseur de film de cuivre deux fois plus faible.

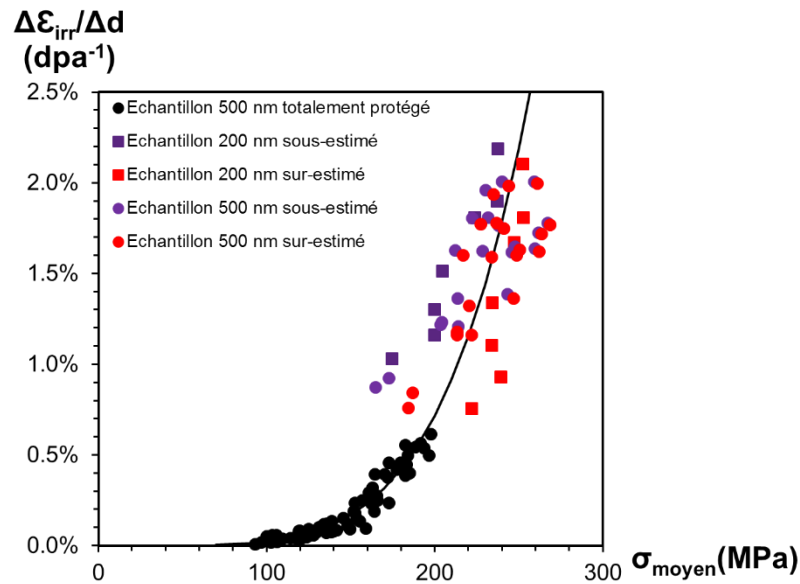


Figure V. 27 : Vitesses de fluage extraites sur les différentes expériences.

La loi de fluage obtenue est donc identique quel que soit le rapport L_a/L , c'est à dire quelle que soit la déformation plastique initiale. En effet, plus ce rapport est élevé et plus la déformation initiale de l'éprouvette est importante. La loi semble également convenir à la fois pour une microstructure de films avec des grains cubiques de 200 nm de côté et 500 nm de côté. Elle ne dépend donc pas fortement de la microstructure de départ et pourrait être généralisée à des échantillons de cuivre gros grains "massif" si cette indépendance persiste sur plusieurs ordres de grandeurs de tailles de grains.

Par ailleurs, l'effet du séquençage en différents segments d'irradiation a également pu être testé. Le but de l'expérience était de vérifier si le découpage de l'expérience en plusieurs incréments de dose pouvait avoir un effet sur la déformation sous flux observée. Pour cela des structures B avec des éprouvettes de $50 \mu\text{m} \times 6 \mu\text{m} \times 500 \text{nm}$ ont été irradiées une fois à une dose de 5,6 dpa dans les mêmes conditions que celle rapportées dans le Tableau V. 2. L'épaisseur de l'actuateur est de 150 nm contre 80 nm pour l'expérience où l'actuateur est totalement masqué. Les pentes de relaxation sont donc plus importantes pour cet échantillon pour les mêmes longueurs d'actuateurs.

Les éprouvettes ont pu être intégralement irradiées sans irradier les actuateurs. La Figure V. 28 présente les niveaux de contraintes et déformations avant et après irradiation pour chaque éprouvette.

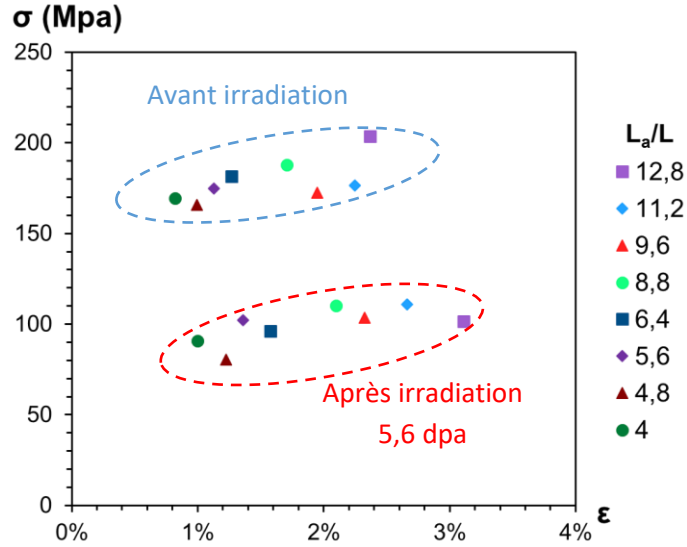


Figure V. 28 : Contraintes et déformations avant et après irradiation

A partir de la relation (V.3) qui lie la vitesse de la déformation plastique sous flux à la contrainte, on peut prédire le comportement mécanique des éprouvettes sous le faisceau d'ion.

La contrainte est liée linéairement à la déformation par la relation :

$$\sigma = \frac{S_a}{S} E_a \left(-\varepsilon_a^{mis} - \varepsilon \frac{L}{L_a} \right), \quad (V.4)$$

avec S , S_a , L , L_a qui sont respectivement les sections et les longueurs des éprouvettes et des actuateurs et E_a et ε_a^{mis} le module d'Young et les déformations internes de l'actuateur.

On a décrit dans la partie III un traitement des données plus complexe prenant en compte la déformation élastique de l'environnement. Pour simplifier les expressions, ce traitement n'est pas appliqué sur l'expression (V.4), néanmoins la relation linéaire entre la contrainte et la déformation et ce qui en découle ci-après reste valable avec ce traitement de données.

En dérivant l'expression (V.4) et en remplaçant la déformation totale par la somme des déformations "internes", plastique et élastique on peut en déduire :

$$\dot{\sigma} = -\frac{S_a}{S} E_a \frac{L}{L_a} \left(K\varphi\sigma^5 + \frac{\dot{\sigma}}{E_{Ec}} \right), \quad (V.5)$$

où E_{Ec} est le module d'Young de l'échantillon.

Il en découle alors, en "séparant" les variables :

$$\frac{d\sigma}{\sigma^5} = -\frac{\frac{S_a}{S} E_a \frac{L}{L_a}}{1 + \frac{S_a}{S} \frac{E_a}{E_{Ec}} \frac{L}{L_a}} K\varphi dt. \quad (V.6)$$

Ainsi, en intégrant la relation (V.5) on obtient, en notant σ_0 la contrainte avant irradiation, la relation entre l'évolution de la contrainte et la dose φt :

$$\frac{1}{4}\sigma^{-4} = \frac{\frac{S_a}{S} E_a \frac{L}{L_a}}{1 + \frac{S_a}{S} \frac{E_a}{E_{Ec}} \frac{L}{L_a}} K\varphi t + \frac{1}{4}\sigma_0^{-4}. \quad (V.7)$$

La déformation totale sous irradiation est alors :

$$\varepsilon (dose) = -\frac{L_a}{L} \varepsilon_a^{mis} - \frac{S}{S_a} \frac{1}{E_a} \frac{L_a}{L} \left(4 \frac{\frac{S_a E_a L_a}{S E_c L_a}}{1 + \frac{S_a E_a L_a}{S E_c L_a}} K \varphi t + \sigma_0^{-4} \right)^{-1/4}. \quad (V.8)$$

L'augmentation de déformation plastique sous irradiation telle que définie précédemment s'écrit alors :

$$\varepsilon_{irr} = \varepsilon (dose) - \varepsilon_0 + \frac{\sigma_0 - \sigma (dose)}{E_{Ec}}, \quad (V.9)$$

où l'indice 0 fait référence aux déformations et contraintes avant irradiation. La relaxation élastique n'est pas négligée ici car on ne peut pas dire *a priori* si elle est faible devant les déformations mesurées. Cela dépend des choix géométriques effectués sur les micromachines et de la dose atteinte.

La Figure V. 29 compare la mesure expérimentale de la déformation plastique sous flux et l'évolution prédite à partir du modèle établi pour chaque éprouvette. Aucune variable d'ajustement n'est appliquée. Le plus grand écart est de 0,07% sur la micromachine la plus longue. Pour rappel, l'incertitude sur la mesure de déformation est considérée comme étant de 0,1 %. Le modèle est donc en bon accord avec l'expérience et il n'y a pas d'effet du séquençage de l'irradiation sur le phénomène.

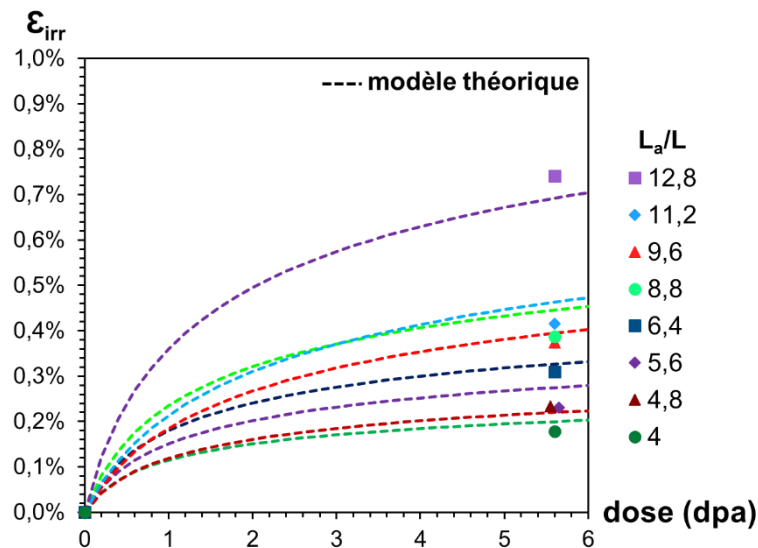


Figure V. 29 : Comparaison entre le modèle en loi de puissance et l'expérience

Le volume d'activation sous irradiation peut être calculé analytiquement à partir de l'expression (V.2). Il est proportionnel à l'inverse de la contrainte, Figure V. 30. Sur la plage de contrainte étudiée, il varie entre 5 et 12 Mb^3 . Hors irradiation, chapitre IV, et après irradiation, partie V.1, il a été montré que le volume d'activation se situe entre 15 et 30 Mb^3 . Le facteur de sensibilité à la vitesse est constant et vaut par définition 0,2, soit 4 à 5 fois sa valeur hors irradiation. Le Tableau V. 3 liste ces paramètres.

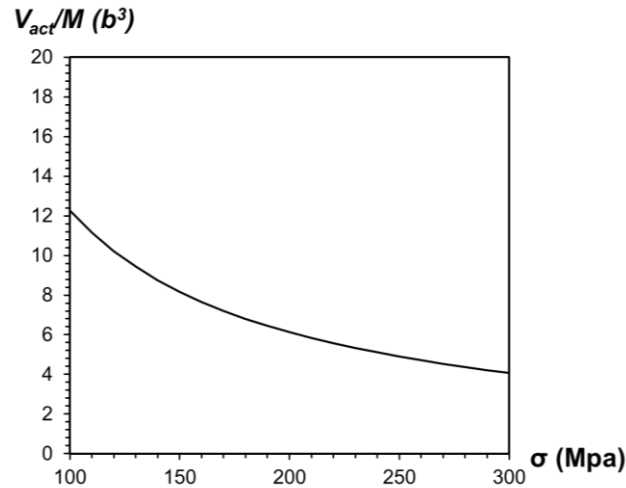


Figure V. 30 : Volume d'activation sous irradiation

Si le volume d'activation est simplement légèrement plus faible que sa valeur hors irradiation, le facteur de sensibilité est nettement plus important. Les mécanismes de déformation sous irradiation dans les films minces sont donc différents des mécanismes de relaxation hors irradiation et après irradiation. Néanmoins il convient de rappeler que les paramètres sont extraits différemment sous irradiation et en relaxation ce qui peut induire un léger écart sur les valeurs extraites avec les deux méthodes.

Mode de déformation	$V_{act}/M (b^3)$	m
Relaxation de film de 200 nm non recuit	9-14	0,06-0,1
Relaxation de film de 200 nm recuit	10-35	0,06-0,07
Relaxation de film de 500 nm recuit	15-35	0,03-0,07
Relaxation post irradiation de film de 200 nm	10-25	0,03-0,05
Fluage sous irradiation	5-12	0,2

Tableau V. 3 : Récapitulatif des valeurs de volume d'activation et de paramètre de sensibilité à la vitesse.

V.3 Conclusion

Les micromachines montrent un durcissement du film de cuivre après irradiation démontrant la force d'obstacle des SFT, défauts majoritaires dans le cuivre, pour s'opposer au glissement des dislocations. Ce durcissement peut être évalué à une valeur entre 100 et 200 MPa.

En revanche, le fluage post irradiation ne révèle pas de différences marquées avec le fluage hors irradiation. Les volumes d'activation sont identiques sur le matériau irradié et non irradié. La vitesse de fluage, aux contraintes expérimentales est plus faible que ce qui est attendu à ces mêmes contraintes hors irradiation. Les SFT joueraient également un rôle d'obstacle à basse vitesse, ce qui est cohérent avec des mécanismes de déformation par dislocations. Des observations microstructurales supplémentaires sont nécessaires pour déterminer précisément les mécanismes en jeu après irradiation.

Sous flux, la faisabilité de l'étude à l'aide des micromachines a pu être démontrée. La protection totale de l'actuateur lors de l'irradiation a permis d'établir une loi de comportement de

fluage sous irradiation. La vitesse de déformation suit une loi de puissance en contrainte d'exposant 5 pour des contraintes supérieures à 100 MPa. Les faibles contraintes entraînant de faibles vitesses de déformation n'ont pas pu être testées. En effet, si la loi reste valable aux faibles contraintes, des doses élevées (>10 dpa) sont nécessaires pour avoir une déformation supérieure à l'incertitude de mesure (0,1 %).

La loi de fluage obtenue est indépendante de l'épaisseur du film et donc de la taille de grain. Elle ne dépend pas non plus du rapport de longueurs entre l'éprouvette et l'actuateur, donc de la densité initiale de dislocations. Elle ne semble donc pas dépendre fortement de la microstructure du film. Dans ce cas de figure, elle pourrait être intrinsèque au matériau et être identique au matériau " massif " placé dans les mêmes conditions d'irradiation. Néanmoins la taille de grain testée reste de seulement quelques centaines de nanomètres et rend difficile une extension à une microstructure avec une taille de grain de plusieurs dizaines, voire centaines de micromètres.

La loi de fluage est également identique pour toutes les micromachines quelle que soit leur déformation plastique avant irradiation. La densité initiale de dislocations semble donc très faiblement influencer le fluage observé. Le fluage primaire qui est le régime transitoire avant l'instauration d'un régime stationnaire est souvent associé à la libération des dislocations préexistantes dans le matériau [11]. Etant donné la faible dépendance à la densité initiale de dislocation, ce fluage primaire apparaît limité dans l'étude. Le fluage observé est donc essentiellement du fluage secondaire.

Les mécanismes de déformation seront discutés dans la partie VI.

Références Bibliographiques V

- [1] H. Kimura and R. Maddin, "Effect of quenched-in vacancies on the mechanical properties of metals and alloys," presented at the Lattice defects in quenched metals, 1964, vol. Proceedings of an International Conference, pp. 319–386.
- [2] Y. N. Osetsky, D. Rodney, and D. J. Bacon, "Atomic-scale study of dislocation–stacking fault tetrahedron interactions. Part I: mechanisms," *Philos. Mag.*, vol. 86, no. 16, pp. 2295–2313, Jun. 2006.
- [3] H.-J. Lee, J.-H. Shim, and B. D. Wirth, "Molecular dynamics simulation of screw dislocation interaction with stacking fault tetrahedron in face-centered cubic Cu," *J. Mater. Res.*, vol. 22, no. 10, pp. 2758–2769, Oct. 2007.
- [4] M. Li and S. J. Zinkle, "Physical and Mechanical Properties of Copper and Copper Alloys," in *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier, 2012, pp. 667–690.
- [5] J. S. Robach, I. M. Robertson, B. D. Wirth, and A. Arsenlis, "In-situ transmission electron microscopy observations and molecular dynamics simulations of dislocation-defect interactions in ion-irradiated copper," *Philos. Mag.*, vol. 83, no. 8, pp. 955–967, Jan. 2003.
- [6] D. J. Edwards, B. N. Singh, and J. B. Bilde-Sørensen, "Initiation and propagation of cleared channels in neutron-irradiated pure copper and a precipitation hardened CuCrZr alloy," *J. Nucl. Mater.*, vol. 342, no. 1–3, pp. 164–178, Jun. 2005.
- [7] J. Pakarinen, S. Tähtinen, and B. N. Singh, "A comparative TEM study of in-reactor and post-irradiation tensile tested copper," *J. Nucl. Mater.*, vol. 442, no. 1–3, pp. S821–S825, Nov. 2013.
- [8] P. Lapouge, F. Onimus, R. Vayrette, J.-P. Raskin, T. Pardoën, and Y. Bréchet, "A novel on chip test method to characterize the creep behaviour of metallic layers under heavy ion irradiation," *J. Nucl. Mater.*, Apr. 2016.
- [9] J. R. Matthews and M. W. Finnis, "Irradiation creep models — an overview," *J. Nucl. Mater.*, vol. 159, pp. 257–285, Oct. 1988.
- [10] C. Xu and G. S. Was, "In situ proton irradiation creep of ferritic–martensitic steel T91," *J. Nucl. Mater.*, vol. 441, no. 1–3, pp. 681–687, Oct. 2013.
- [11] P. Jung, "Irradiation creep of 20% cold-worked copper," *J. Nucl. Mater.*, vol. 200, no. 1, pp. 138–140, Mar. 1993.

Chapitre VI

Mécanismes de déformation sous irradiation

VI.1 Origine de la déformation plastique sous flux	11
VI.1.1 Elévation de température sous le faisceau	11
VI.1.2 Implantation d'atomes de cuivre	12
VI.2 Comparaison avec la littérature	12
VI.3 Observations <i>in situ</i> sur cuivre OFHC.....	12
VI.4 Observations <i>post fluage</i> irradiation sur les micromachines	12
VI.4.1 A la surface des éprouvettes	12
VI.4.2 Au cœur des éprouvettes	12
VI.5 Rôle des défauts ponctuels.....	13
VI.6 Conclusions.....	13

L'objectif de ce chapitre est de déterminer les mécanismes physiques qui pourraient être à l'origine de la déformation observée sous flux. Cette partie se base à la fois sur des considérations théoriques simples, des comparaisons avec la littérature et des observations microstructurales des éprouvettes.

VI.1 Origine de la déformation plastique sous flux

Cette partie est consacrée à la démonstration que le phénomène physique quantifié dans le chapitre est bien du fluage d'irradiation.

VI.1.1 Elévation de température sous le faisceau

La question posée dans cette section est de savoir si l'apport d'énergie du faisceau d'ions a entraîné ou non une augmentation de la température de l'éprouvette. Si c'est le cas, la déformation observée pourrait être un simple fluage thermique à une température locale sur l'échantillon plus élevée que l'ambiante.

Pour cela, on peut considérer le système suivant : une poutre libre de cuivre en suspension, collée à une extrémité sur un substrat de silicium recouvert de silice. L'échantillon est lui-même collé à l'aide de scotch carbone sur une platine métallique, voir Figure VI. 1. Seules les pertes par conduction vers une source froide sont considérées. Etant données les dimensions de la platine métallique (5 mm d'épaisseur et 5 cm de diamètre) par rapport à la zone irradiée ($< 4 \text{ cm}^2$), la platine est considérée comme la source froide et est maintenue à température ambiante. La température maximale obtenue à l'extrémité de la poutre suspendue est donc une borne supérieure de la température d'une éprouvette des micromachines sous faisceau d'ions puisque les pertes d'énergie par radiation et par conduction par l'actuateur sont négligées.

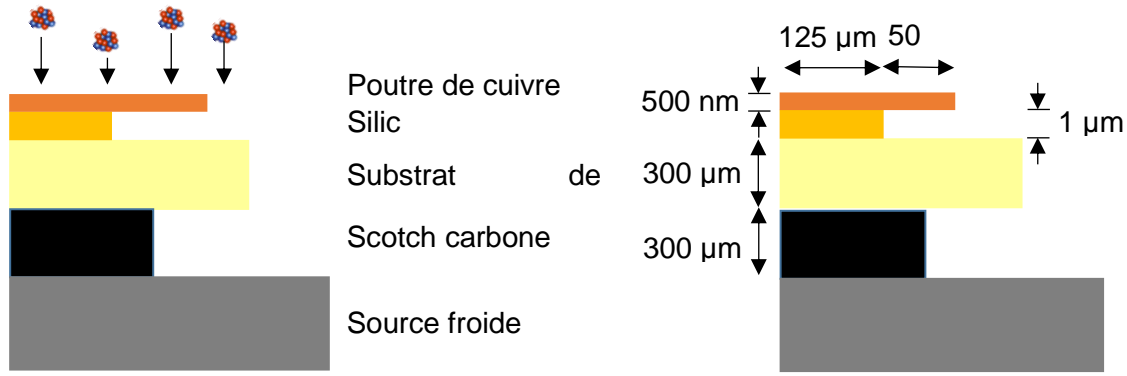


Figure VI. 1 : Système considéré pour l'évaluation de la température.

Un simple calcul de résistances thermiques, en régime stationnaire, permet d'évaluer la température à l'extrémité de la poutre. La différence de température ΔT , en l'absence de source d'énergie interne entre deux surfaces isothermes est donnée par :

$$\Delta T = R_{th} \phi, \quad (VI.1)$$

Avec ϕ le flux de chaleur (en W) entre les deux surfaces et R_{th} la résistance thermique du milieu,

$$R_{th} = \frac{e}{\lambda S}, \quad (VI.2)$$

où e est la distance entre les deux isothermes, λ la conductivité thermique du milieu et S la surface d'échange.

Pour simplifier, toutes les surfaces d'échanges entre la source froide et le film de cuivre sont considérées comme étant la surface minimale qui est celle entre la silice et le cuivre, soit un rectangle de $125 \mu\text{m}$ par $100 \mu\text{m}$ (distances entre deux micromachines dans les deux directions). On suppose que toute l'énergie du faisceau d'ions est déposée dans le film de cuivre ce qui maximise la température dans le film. Le flux d'ions est de $1,3 \cdot 10^{11}$ ions/cm²/s à une énergie de 1200 keV ce qui donne une puissance déposée surfacique de $2,5 \cdot 10^{-2}$ W/cm². La puissance totale déposée sur le film de cuivre est donc de $3,2 \cdot 10^{-6}$ W.

En régime stationnaire, le flux sortant est égal à la puissance générée. Donc en supposant l'interface cuivre/silice comme isotherme, la température T_S de l'interface est donnée :

$$T_S = \left(\frac{e_{SiO_2}}{\lambda_{SiO_2}} + \frac{e_{Si}}{\lambda_{Si}} + \frac{e_C}{\lambda_C} \right) \frac{P}{S} + T_0, \quad (VI.3)$$

où les indices SiO₂, Si, C font référence à la silice, au substrat et au scotch carbone et P est la puissance déposée dans le cuivre. Les conductivités thermiques sont $\lambda_{SiO_2} = 1,4 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$, $\lambda_{Si} = 148 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$ [1] et $\lambda_C = 1 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$ [2]. T_0 est la température de la source froide et vaut 293 K.

Avec cette définition, la température T_S vaut 293,08 K. Pour simplifier à nouveau le calcul, on peut placer toute la puissance déposée à l'extrémité de la poutre de cuivre plutôt que de la répartir sur toute la longueur de la poutre et supposer des isothermes perpendiculaires à la longueur de la poutre. La température à l'extrémité de la poutre de cuivre est alors :

$$T_{max} = \left(\frac{L_{Cu}}{\lambda_{Cu}} \right) \frac{P}{S} + T_S, \quad (VI.4)$$

avec $L_{Cu} = 50 \mu\text{m}$ et $\lambda_{Cu} = 340 \text{ W} \cdot (\text{m} \cdot \text{K})^{-1}$ [1]. T_{max} est de 293,2 K. Malgré des hypothèses entraînant une surestimation de la température, l'élévation de température sous le faisceau d'ions reste

négligeable. Les principales raisons résident dans la très faible puissance déposée et les faibles dimensions des structures qui permettent une évacuation rapide vers la source froide.

En conclusion, d'après ces calculs thermiques, aux flux utilisés, il n'y a pas d'effet thermique significatif sur les éprouvettes sous irradiation. La déformation observée s'est donc bien déroulée à température ambiante. Le fluage thermique reste donc négligeable sur la durée de l'expérience.

VI.1.2 Implantation d'atomes de cuivre

Un deuxième effet parasite pourrait être constitué par l'implantation d'ions dans le film. L'utilisation d'ions du même type que les films permet d'éviter des problèmes chimiques comme la formation de précipités. Néanmoins, la quantité d'ions cuivre injectés dans le film n'est pas négligeable. Le profil SRIM de la Figure VI. 2 donne le profil d'implantation pour des ions de 1200 keV sur une cible de cuivre pour la dose 1 dpa. Il s'agit des conditions d'irradiations utilisées sur les films de 500 nm d'épaisseur. Au pic d'implantation si les atomes ne sont pas déplacés, les ions injectés représentent près de 1 atome sur 10000. A la dose maximale atteinte durant l'expérience qui est 8 dpa, ces ions représenteraient 0,6 % des atomes au niveau du pic.

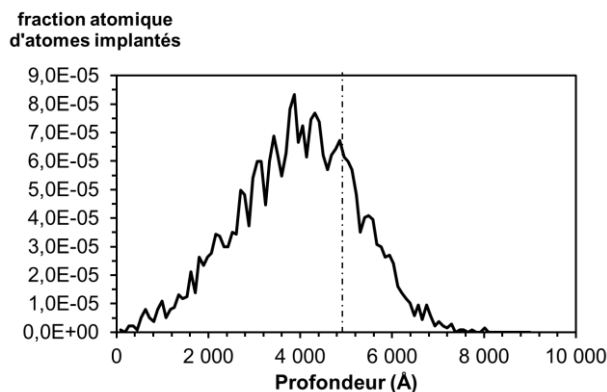


Figure VI. 2 : Profil d'implantation des ions cuivre d'énergie 1200 keV dans une cible de cuivre pour la dose de 1 dpa.

La dose de 8 dpa correspond une fluence de $1,6 \cdot 10^{15}$ ions.cm⁻². La densité du cuivre est de $8,45 \cdot 10^{22}$ atomes.cm⁻³. En moyenne, si on considère que tous les ions se sont arrêtés dans le film et sont répartis de manière uniforme, les ions injectés représenteraient 0,038 % des atomes. Si tous ces atomes s'alignaient sur des plans perpendiculaires à l'éprouvette, la déformation maximale de l'éprouvette résultant de ce phénomène serait également de 0,038 %, ce qui est inférieure à l'incertitude de mesure de 0,1 %.

L'implantation a donc un effet très limité sur la valeur de déformation moyenne mesurée. La déformation mesurée lors de l'expérience n'est donc pas associée à un gonflement de l'éprouvette par ajout d'interstitiels.

Toutefois cette implantation peut jouer sur les mécanismes de déformation. Elle peut modifier la densité locale et la taille des amas du fait d'une concentration d'interstitiels plus importante. Ces interstitiels peuvent entraîner une montée plus importante des dislocations dans les zones fortement implantées. Ils peuvent également introduire des contraintes locales en compression modifiant par exemple l'environnement des dislocations. Fort heureusement, l'énergie des ions a été choisie pour placer le pic d'implantation près d'une surface libre ce qui limite son influence.

Par conséquent, le gonflement par interstitiels comme l'échauffement thermique sont négligeables durant les essais. De plus, les irradiations sur films minces, chapitre II, ont montré l'absence de cavités dans le film irradié. Ce point démontre l'absence de gonflement par déplacement de la matière. Le phénomène physique à l'origine de la déformation observée sous flux est donc bien le fluage d'irradiation.

L'implantation des ions dans l'éprouvette peut néanmoins entraîner une déformation plastique inhomogène dans l'épaisseur du film altérant le comportement en fluage de l'éprouvette en comparaison d'irradiation aux neutrons.

VI.2 Comparaison avec la littérature

Peu de données de fluage d'irradiation sont disponibles sur le cuivre pur [3]. Trois expérimentations de la littérature sont tout de même intéressantes pour notre étude.

Aitkhozkin et al. [4], [5] ont réalisé des études de fluage d'irradiation sur des échantillons de cuivre pur dans un réacteur expérimental entre 150 et 500 °C à des contraintes entre 20 et 65 MPa. En dessous de 270 °C, ils notent une forte dépendance à la température d'irradiation avec un fluage d'irradiation prépondérant devant le fluage thermique. La même dépendance de la vitesse de fluage avec la contrainte sous flux et hors flux est trouvée. La vitesse de fluage suit, comme dans notre cas, une loi de puissance d'exposant 5 en contrainte. Ils avancent que les deux fluages suivent le même mécanisme de déformation à savoir du glissement de dislocations assisté par la montée.

Jung et al. [6] ont étudié, sur plusieurs métaux CFC purs, le fluage sous irradiation aux protons. A 150 °C sur le cuivre, ils observent un fluage linéaire en contrainte en dessous de 50 MPa et au-dessus une loi de puissance d'exposant au minimum 4 jusqu'à une contrainte de 70 MPa. La transition est expliquée par l'activation du glissement des dislocations.

Enfin Tai et al. [7] ont utilisé un dispositif original pour étudier la déformation sous irradiation aux ions Kr d'une membrane de cuivre sous contrainte jusqu'à 60 dpa. A 200 °C, ils observent un fluage linéaire jusqu'à 10 MPa (limite de leur étude). A température ambiante, le fluage observé est inférieur au moins d'un facteur 10 et est considéré comme négligeable. Ce dernier point peut paraître surprenant. Comme expliqué dans le chapitre I, le fluage d'irradiation linéaire dépend normalement très peu de la température.

La Figure VI. 3 présente les vitesses de fluage de Jung et Tai par rapport aux vitesses obtenues par les micromachines. Les courbes de Jung et de Tai sont étendues jusqu'à 300 MPa. Les vitesses obtenues dans cette thèse sont un à deux ordres de grandeurs inférieures aux vitesses de Tai. Les données, notamment à plus faible contrainte, ne sont pas suffisantes sur les micromachines pour déterminer si comme pour les travaux de Jung, une transition vers un régime linéaire est présente ou si, comme pour les travaux de Aitkhozkin, la dépendance en loi de puissance est toujours présente à faible contrainte.

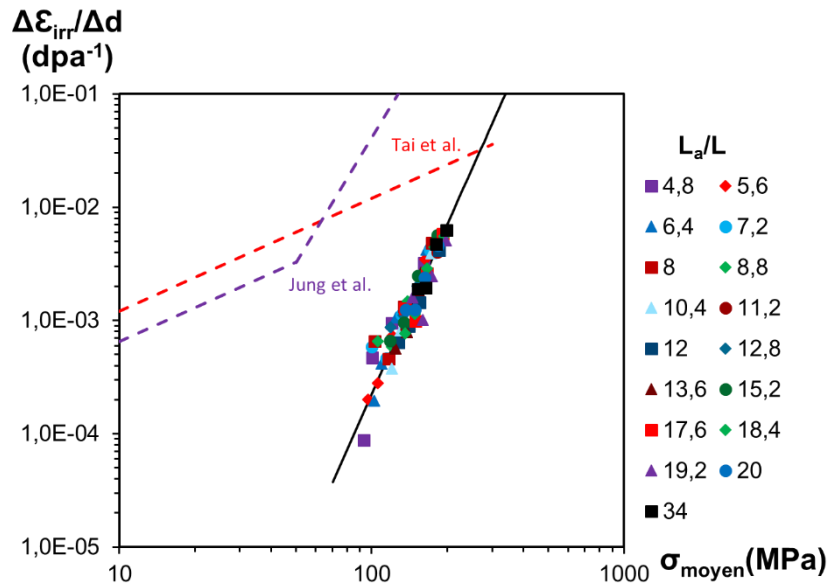


Figure VI. 3 : Comparaison entre les vitesses de fluages obtenues avec les micromachines et les vitesses de fluage obtenues dans la littérature.

Jung relève, en comparant différents matériaux CFC, une correspondance entre la contrainte à laquelle se fait la transition linéaire-puissance et la limite d'élasticité du matériau. Néanmoins, la limite d'élasticité du cuivre utilisée par Jung est très proche, même légèrement inférieure aux températures concernées, à celles des échantillons de Aitkhozkin. Une différence de limite d'élasticité ne peut donc pas expliquer la différence de comportement en fluage à basse contrainte pour les deux expériences.

Une forte dépendance à la température comme observée par Aitkhozkin pourrait expliquer une partie des écarts entre les courbes obtenues par les micromachines et celle de Jung. A plus basse température, comme dans notre cas, les mécanismes thermiquement activés sont ralentis entraînant une vitesse de déformation plus faible qu'à plus haute température. Il est également possible que le décalage des courbes soit en partie en contrainte. Comme expliqué par Jung et al. [6], plus la contrainte appliquée est grande devant la contrainte nécessaire au glissement des dislocations, et plus le glissement des dislocations est facilité. Le film mince a une limite d'élasticité 5 à 6 fois plus importante que l'échantillon de Jung. La Figure VI. 4 retrace les vitesses de déformation en normalisant ou en soustrayant la contrainte appliquée par la limite d'élasticité obtenues en traction avant irradiation ($\sigma_e = 260$ MPa pour le film de 500 nm et $\sigma_e = 40$ MPa pour les éprouvettes de Jung). Cette fois, les micromachines présentent des vitesses de fluage globalement plus élevées pour la même valeur de rapport ou de différence.

Ces limites d'élasticité ne tiennent pas compte du durcissement des matériaux par irradiation ou par écrouissage ni de la vitesse de déformation. De plus, le principe de fonctionnement des micromachines qui consiste en une relaxation de la contrainte en partant de la contrainte la plus élevée en début d'expérience, fait que les éprouvettes sont toujours déformées en dessous de leur limite d'élasticité obtenue en traction. La contrainte minimale nécessaire au glissement des dislocations peut donc être différente des limites d'élasticité retenues.

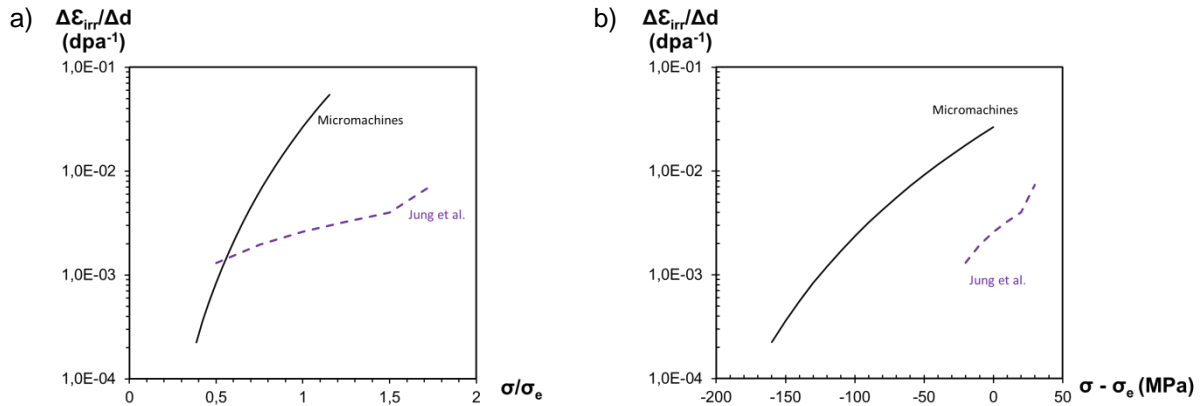


Figure VI. 4 : Comparaison entre les vitesses de fluage obtenues par micromachines et celles de Jung et al. [6], après (a) normalisation et (b) soustraction par les limites d'élasticité

Les observations microstructurales de l'échantillon de Tai après irradiation à 200 °C sous contrainte, montre une augmentation de la taille de grain. Les grains ont une taille initiale de 100 nm, avec une forte densité de nanomacles, et grandissent jusqu'à une taille de 400 nm. L'évolution hors contrainte de la taille de grain n'est pas mentionnée dans leur étude mais plusieurs auteurs rapportent des tailles de grains augmentant dans les films minces et matériaux nanocristallins simplement du fait de l'irradiation [8]–[12].

VI.3 Observations *in situ* sur cuivre OFHC

Des échantillons MET de cuivre OFHC ont pu être irradiés *in situ* sous contrainte pour observer l'évolution de la microstructure de cuivre sous irradiation. Seul un jour d'observation a pu être effectué.

Les échantillons se présentent sous la forme de languettes de 11,5 mm x 2,3 mm x 0,1 mm prélevées dans un feuillard de cuivre OFHC de 250 μm d'épaisseur. Les languettes sont percées électrolytiquement au centre afin d'avoir des zones amincies transparentes aux électrons. La contrainte est appliquée, à température ambiante, à l'aide d'un porte-objet de GATAN. Ce porte-objet effectue simplement des incréments de déformation et ne permet pas de mesurer la contrainte appliquée ou même la déformation précise de l'éprouvette. La zone observée est considérée sous contrainte lorsque le déplacement d'une dislocation est observé. Une fois le glissement observé, comme sur la Figure VI. 5, l'irradiation peut commencer.

Cette figure est obtenue en superposant l'image négative avant le déplacement des dislocations, à l'image positive après le déplacement. De cette manière, seules les différences entre les deux images ressortent. Pour un contraste initial noir, les anciennes positions des objets apparaissent en blanc et les nouvelles en noir. Si l'objet n'a pas bougé, la superposition des images donne un contraste moyen gris.

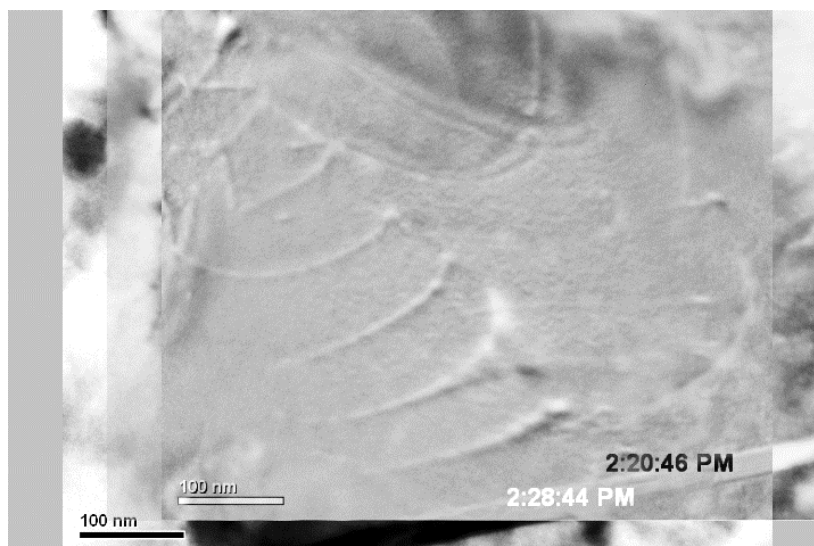


Figure VI. 5 : Glissement observé d'une dislocation lors de la mise sous contrainte. En blanc l'ancienne position, en noir la nouvelle.

L'irradiation est effectuée avec des ions cuivre d'énergie 300 keV à un flux maximum de 6.10^{10} ions.cm⁻².s⁻¹. Le profil SRIM d'endommagement est donné sur la Figure VI. 6. Si la zone observée est épaisse, supérieure à 200 nm, l'intégralité de la zone peut ne pas être totalement irradiée.

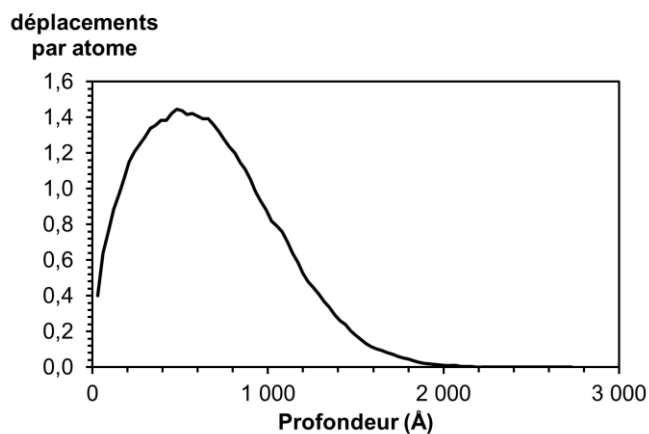


Figure VI. 6 : Profil d'endommagement dans le cuivre par des ions cuivre de 300 keV à une dose de $1,6.10^{14}$ ions.cm⁻².

La Figure VI. 7 présente l'évolution sur 40 s d'un empilement de dislocations. La création d'amas de défauts est très rapide dans le cuivre. Au pic de dommage et au flux utilisé, la dose atteinte n'est que de 0,02 dpa sur la dernière image.

Aucun seuil d'incubation n'est observé.

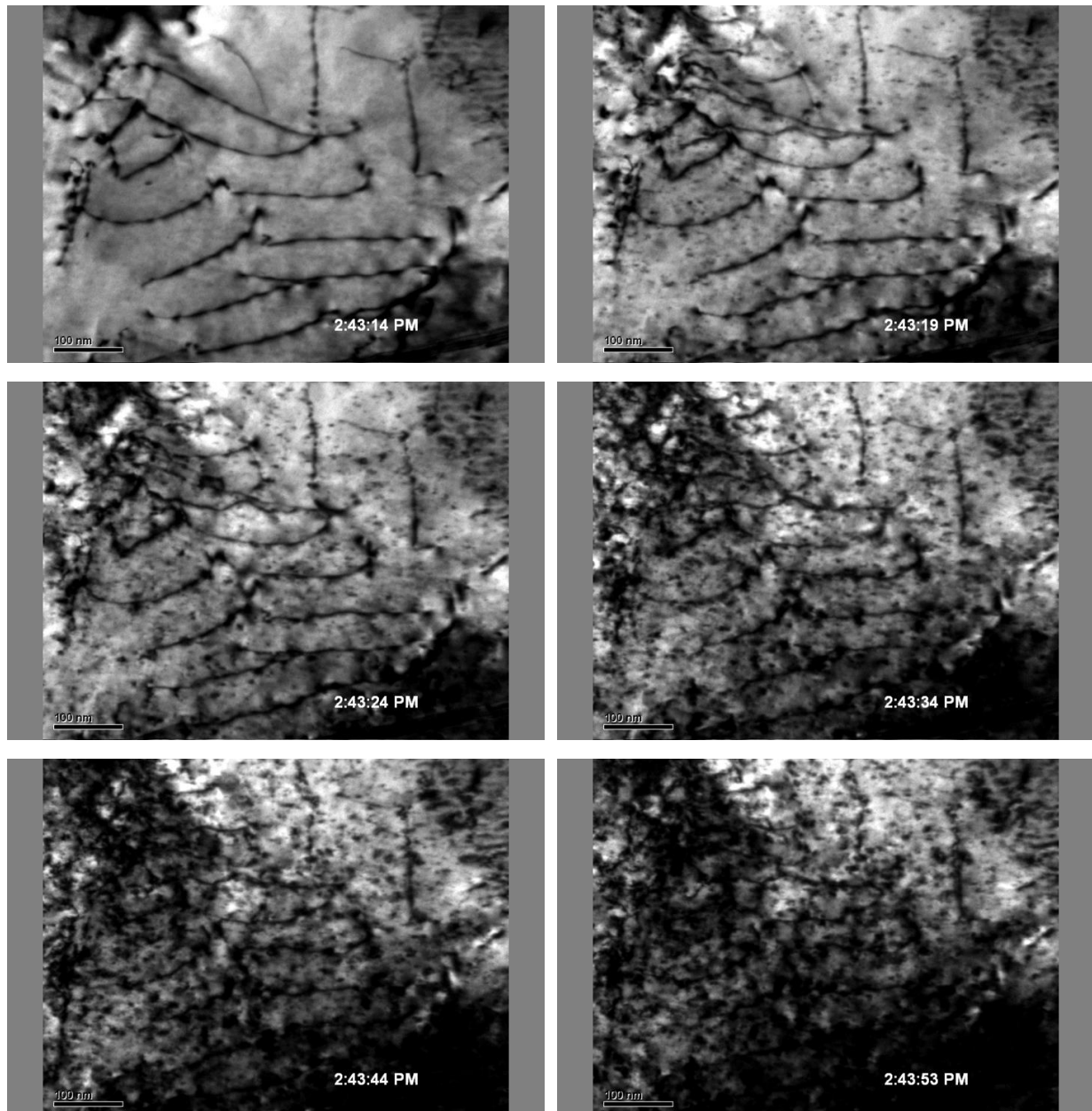


Figure VI. 7 : Evolution sur 40 s de l'empilement de dislocation choisi.

Dès le début de l'irradiation, des mouvements de dislocations sont observés. Dans les premiers instants, du fait d'une quantité d'obstacles faible, le glissement de l'intégralité d'une dislocation est possible sur une grande distance, Figure VI. 8 a). Au bout de quelques dizaines de secondes, seuls des courts segments de dislocations sont libérés et glissent sur de petites distances comme sur la Figure VI. 8 b).

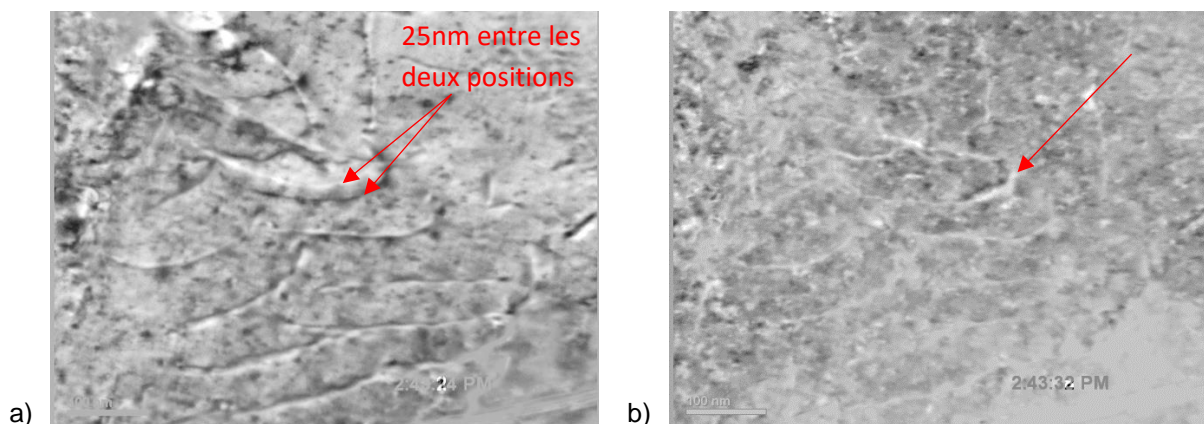


Figure VI. 8 : Exemples de glissement de dislocations observés sur l'empilement. En blanc ancienne position, en noir nouvelle position.

Après plusieurs minutes, la libération sous le faisceau d'ions des dislocations ancrées et le glissement de segments de dislocations continue de se produire dans l'échantillon, Figure VI. 9.

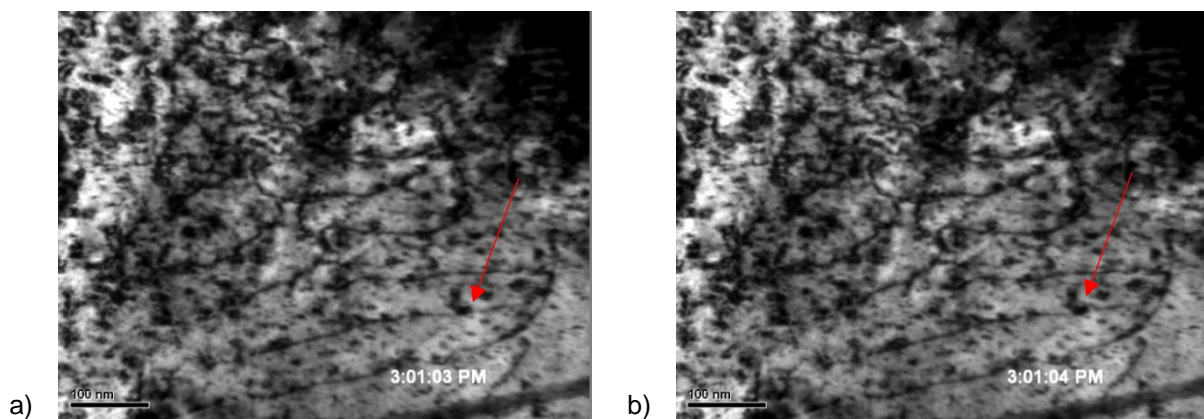


Figure VI. 9 : Exemples de glissement de dislocations observés sur l'empilement. En blanc ancienne position.

L'irradiation permet aux dislocations de franchir des obstacles, probablement par montée, pour continuer à glisser. Le mécanisme de glissement assisté par la montée semble donc bien se produire sous irradiation dans un cuivre à gros grains. En revanche, les observations ne sont pas suffisamment exhaustives pour affirmer qu'il s'agit du seul mécanisme de déformation expliquant le fluage d'irradiation dans le cuivre.

VI.4 Observations *post fluage irradiation* sur les micromachines

Les observations *in situ* similaires aux observations précédentes sur le cuivre OFHC, n'ont pas pu être menées sur des micromachines. Néanmoins, des observations des résidus des mécanismes de déformation ont été effectuées sur les échantillons après fluage d'irradiation.

VI.4.1 A la surface des éprouvettes

Sur les images MEB, la déformation de la poutre apparaît très homogène. Sur la Figure VI. 10, qui montre une éprouvette déformée à plus de 2,2 % sous irradiation, aucune localisation de la déformation n'est visible. Il n'y a pas non plus de bandes de glissement qui apparaissent nettement ou de modification quelconque de la surface après irradiation. La contamination de surface suite à l'irradiation pourrait masquer des bandes de glissements et expliquer leur absence.

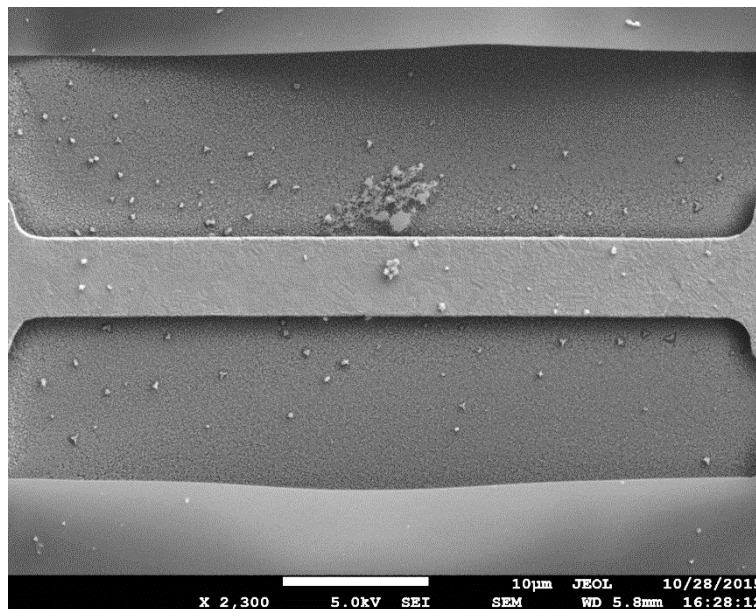


Figure VI. 10 : Epreuve de cuivre déformée à 3,6 %, 2,2 % sous irradiation (5,6 dpa).

Sur les structures présentant, avant irradiation, des séparations de grains marquées, la surface après irradiation reste inchangée. Cette morphologie de surface avait été attribuée dans le chapitre IV à un glissement aux joints de grain. Ce glissement ne semble donc pas se poursuivre sous irradiation.

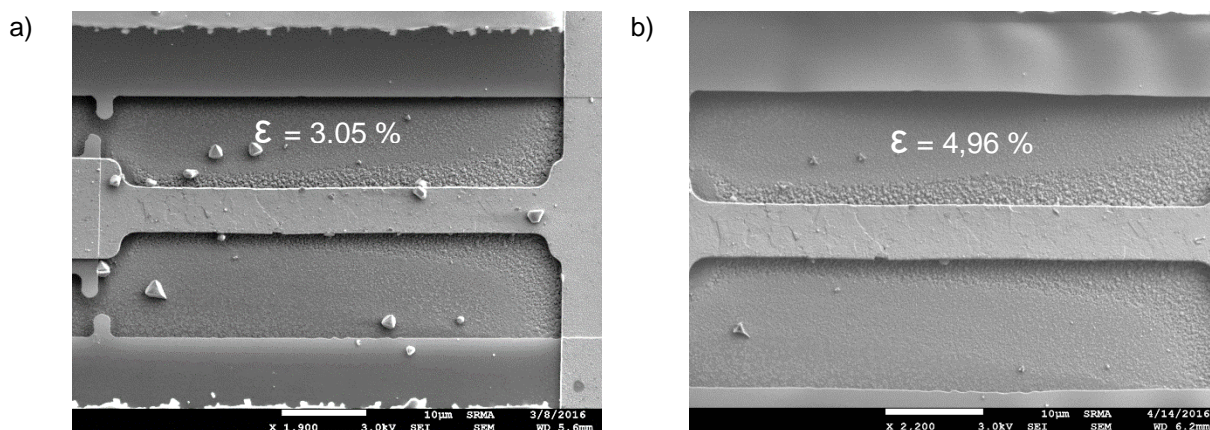


Figure VI. 11 : Epreuve de cuivre de 500 nm déformée a) avant irradiation à 3,05 % et b) après irradiation (8 dpa) à 4,96%.

De la même manière, les éprouvettes avec une forte localisation de la déformation plastique avant irradiation, comme sur la Figure VI. 12, n'ont pas un comportement sous flux différent des structures sans localisation et la zone fortement déformée avant irradiation ne semble pas évoluer de manière significative.

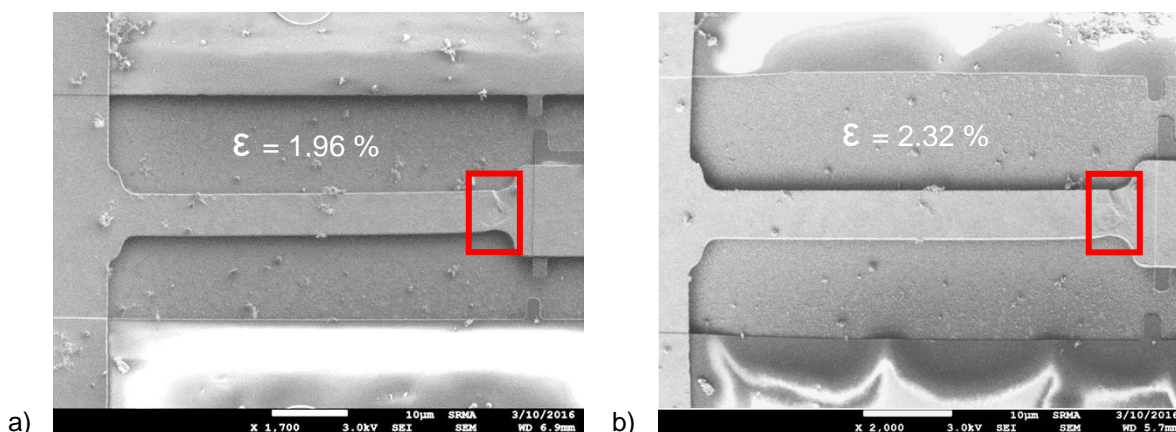


Figure VI. 12 : Epreuve de 500 nm déformée a) avant irradiation à 1,96% et b) après irradiation (5,6 dpa) à 2,32 %.

Ces observations confirment que le fluage d'irradiation obtenu par les micromachines est indépendant de l'historique de chargement et de la microstructure du film. La déformation observée sous flux ne dépend que de la contrainte appliquée, la déformation plastique de l'éprouvette avant l'irradiation n'a pas d'influence significative sur le comportement sous flux.

Du fait d'une activité homogène des mécanismes de déformation, la déformation atteignable sous flux est plus importante que la déformation atteignable hors flux. Des déformations de plusieurs % sont atteintes sans dégradation visible des éprouvettes. Ces observations sont cohérentes avec le fort exposant de sensibilité à la vitesse obtenu. En effet, un fort exposant retarde l'apparition de la striction dans les éprouvettes [13]. Cette absence de striction implique des mécanismes de déformation fortement viscoplastiques et donc des mécanismes thermiquement activés avec des volumes d'activation faibles [14].

Une étude par EBSD a également été effectuée pour observer l'évolution de la taille de grain après fluage d'irradiation. Pour cela, quatre cartographies ont été réalisées sur des éprouvettes de 500 nm d'épaisseur parmi les plus déformées sous irradiation et hors irradiation.

La Figure VI. 13 montre des cartographies d'orientations projetées sur la normale à la surface, sur une éprouvette témoin et sur une éprouvette déformée sous irradiation. Les joints de grains sont mieux définis sur les éprouvettes irradiées. Il n'est pas certain si cela est dû à une rotation des joints de grain durant l'irradiation ou à une contamination de la surface au carbone durant l'irradiation améliorant la conductivité du matériau et évitant ainsi les dérives du faisceau.

Les éprouvettes irradiées paraissent également plus maclées que les éprouvettes non irradiées, mais cela reste comparable aux observations faites sur des films de cuivre de 500 nm d'épaisseur déposés entièrement sur une tranche de silicium, chapitre III.1.2.

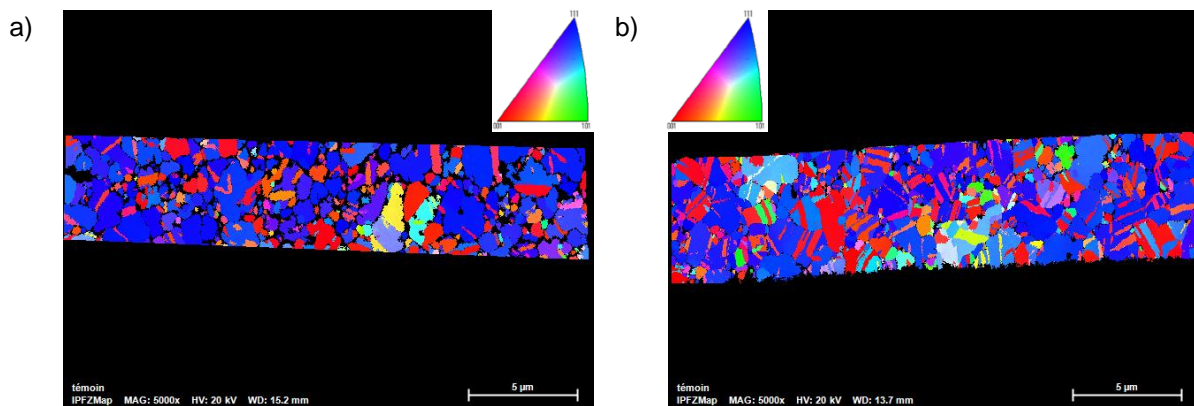


Figure VI. 13 : Cartographie d'orientation projetée sur la normale à la surface obtenue par EBSD sur a) une éprouvette non irradiée déformée à 0,9 %, b) une éprouvette déformée sous irradiation.

Les tailles moyennes de cristallites et de grains sont données dans le Tableau VI. 1. La taille de grain est légèrement plus élevée dans les éprouvettes irradiées, néanmoins l'écart est de l'ordre de la taille de sonde qui est de 30 nm. La différence ne peut donc pas être jugée significative.

	Eprouvettes non irradiées	Eprouvettes irradiées
Taille de cristallites (nm)	355	345
Taille de grains (nm)	515	545

Tableau VI. 1 : Tailles moyennes de cristallites et de grains mesurées par EBSD.

Le recuit effectué à 150 °C sur les échantillons permet de stabiliser la microstructure. L'irradiation n'influence pas alors dans ces conditions la taille de grain contrairement à l'expérience de Tai [7] sur une membrane non recuite de cuivre.

VI.4.2 Au cœur des éprouvettes

Des prélèvements FIB ont également été effectués dans des éprouvettes témoins et des éprouvettes irradiées. Les échantillons sont prélevés dans le sens de la longueur. La surface d'entrée des ions est située du côté inférieure de chaque image.

Aucune cavité n'est observée dans la lame irradiée confirmant une nouvelle fois l'absence de gonflement sous irradiation dans nos éprouvettes. De même, aucune bande claire n'est observée à l'intérieur des grains.

Les lames FIB sont assez minces, autour de 80 nm, ce qui rend les dislocations visibles assez courtes. La Figure VI. 14 montre des dislocations près du bord de lame où la zone d'observation est plus épaisse. Les deux dislocations, surlignées sur l'image, présentent des crans. Deux explications sont possibles. Soit ces crans sont formés par absorption de défauts ponctuels entraînant la montée d'un segment de la dislocation. Soit ce sont des points d'épinglages des dislocations sur les obstacles. Dans ce dernier cas, il y a eu un glissement de segments de dislocations après la création de ces points d'épinglage formant ainsi ces crans. Etant donné la pureté du matériau, ces obstacles sont très probablement dus à la création d'amas de défauts lors de l'irradiation. Ce glissement aurait donc eu lieu après la création de ces amas.

Bien que l'éprouvette ait continué de se déformer après la fin de l'expérience de fluage d'irradiation, la déformation *post* irradiation est beaucoup plus faible que la déformation s'étant produite sous irradiation. Il est donc très probable que les dislocations se soient déplacées par montée ou glissement sous irradiation.

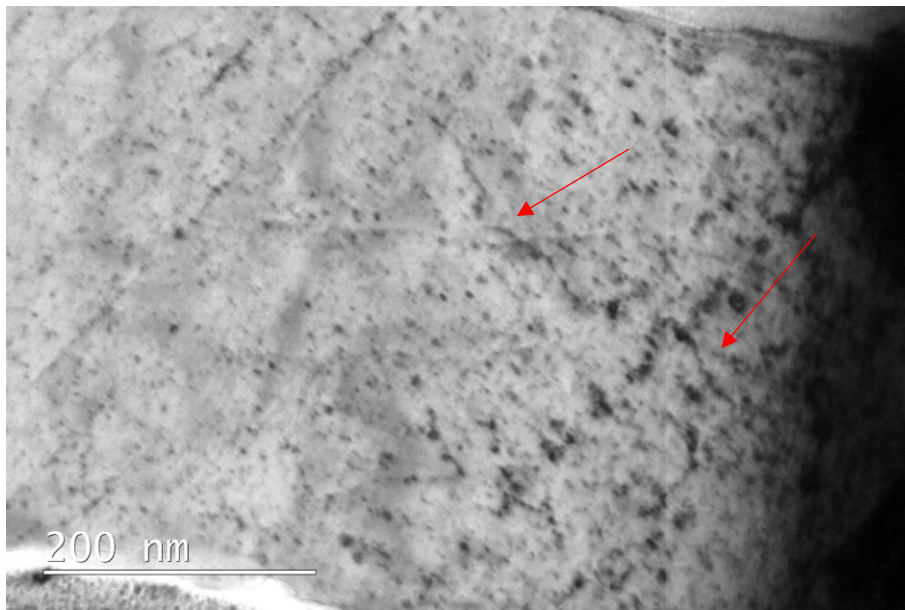
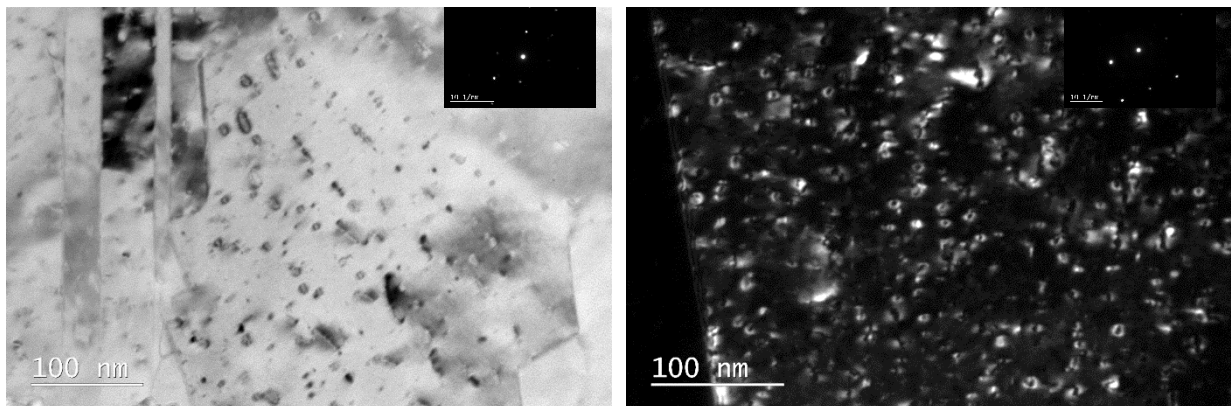


Figure VI. 14 : Exemples de dislocations visibles dans une éprouvette déformée sous irradiation

Quelques grains, Figure VI. 15, présentent une forte densité de boucles de dislocations contrairement aux observations faites pour caractériser les SFT dans le cuivre, et présentées au chapitre II. De telles observations n'ont pas été faites sur des films de cuivre irradiés hors contraintes, sur des éprouvettes moins déformées et moins irradiées, sur les éprouvettes témoins avec le dommage d'irradiation FIB. La raison de la présence de ces boucles n'est pas connue, est-ce un effet de la contrainte, de la dose ou encore un artefact ?



(a) (b)

Figure VI. 15 : Boucles de dislocations en forte densité observables dans certains grains. La direction d'application de la charge est proche de l'horizontale des images.

VI.5 Rôle des défauts ponctuels

Les défauts ponctuels créés lors de l'irradiation semblent avoir un rôle prépondérant dans le comportement sous flux des éprouvettes. En effet, c'est par leur absorption que les dislocations pourront monter et éventuellement poursuivre leur glissement.

La concentration de défauts ponctuels dans la matrice au cours de l'irradiation peut être connue par un simple modèle cinétique. L'évolution de la concentration est égale à la génération de défauts moins la disparition des défauts sur les puits ou par recombinaison. On peut alors écrire les équations de cinétique :

$$\begin{cases} \frac{dC_i}{dt} = G - \sum_n k_{i,n}^2 D_i C_i - K_{i,l} C_i C_l + K_i^e C_i^e \\ \frac{dC_l}{dt} = G - \sum_n k_{l,n}^2 D_l C_l - K_{i,l} C_i C_l + K_l^e C_l^e \end{cases} \quad (VI.5)$$

Les indices i et l font références aux interstitiels et lacunes, C est la concentration des défauts ponctuels, G est le terme de génération des défauts ponctuels sous irradiation, D le coefficient de diffusion, $k_{j,n}^2$ la force de puit du défaut de type n (dislocations, boucles, cavités, SFT, joints de grains, surfaces libres) pour le défaut ponctuel j . $K_{i,l} C_i C_l$ représente le taux de recombinaison des défauts ponctuels, $K_j^e C_j^e$ le taux d'émission thermique de défauts ponctuels j et $k_{j,n}^2 D_j C_j$ le flux de défauts ponctuel j vers le puit n . A température ambiante, l'émission thermique est négligeable.

La force de puits des dislocations peut s'exprimer comme le produit entre la densité de dislocations ρ_d et le biais d'absorption $Z_{j,d}$:

$$k_{j,dislocations}^2 = \rho_d Z_{j,d} \quad (VI.6)$$

Le biais d'absorption correspond à une efficacité d'absorption des dislocations différente pour les lacunes et les interstitiels.

De manière similaire, la force de puits des boucles de dislocations peut s'écrire en fonction de leur rayon r_b , de leur densité ρ_b et d'un biais d'absorption pour les lacunes ou les interstitiels :

$$k_{j,boucles}^2 = 2\pi r_b \rho_b Z_{j,b} \quad (VI.7)$$

Les amas 3D comme les SFT et les cavités sont traitées de la même manière à partir de l'expression :

$$k_{j,SFT}^2 = 4\pi r_{SFT} \rho_{SFT} Z_{j,SFT} \quad (VI.8)$$

Les forces de puits des joints de grains et des surfaces libres peuvent être exprimées d'après Bullough et al. [15] comme la racine de la somme des forces de puits intérieurs divisée par la taille de grain ou l'épaisseur du film. En première approximation, la surface libre est représentée comme un joint de grain. La force de puits des joints de gain est alors :

$$k_{j,dg}^2 = \frac{6}{d} (k_{j,dislocations}^2 + k_{j,boucles}^2 + k_{j,SFT}^2)^{1/2}. \quad (VI.9)$$

Enfin le terme de recombinaison est fonction du rayon de recombinaison $r_{i,l}$ et des coefficients de diffusion :

$$K_{i,l} = 4\pi r_{i,l} (D_i + D_l). \quad (VI.10)$$

A l'état stationnaire, la concentration en défauts ponctuels cesse d'évoluer dans la matière. La relation (VI.) devient alors un ensemble soluble de deux équations linéaires à deux inconnues.

Les valeurs des différents paramètres pour la résolution numérique sont données en annexe.

D'après le calcul, en régime stationnaire, la concentration de défauts ponctuels dans la matière est de $1,4 \cdot 10^{25}$ lacunes/m³ et $3,1 \cdot 10^{16}$ interstitiels/m³. A titre de comparaison, la densité atomique du cuivre est de $8,45 \cdot 10^{28}$ atomes/m³. L'efficacité de création des défauts ponctuels dans la cascade n'est pas prise en compte dans ce calcul, ici un dpa est équivalent à la création d'un interstitiel et d'une lacune par atome. Dans la réalité, de nombreuses recombinaisons interviennent lors de l'effondrement de la cascade conduisant à une création de paires de Frenkel plus faible que ce qui attendu par le calcul en dpa. Ces concentrations sont donc grandement surestimées. Une efficacité de 5 % conduit à diviser par un facteur 20 ces concentrations.

Les flux vers les puits donnés dans les équations (VI.5) sont reportés, à titre indicatif, dans le Tableau VI. 2. Le puit principal est constitué par les SFT à cause de leur forte densité. Cependant, ces amas 3D ne peuvent pas induire de déformation en absorbant des défauts ponctuels du fait de leur symétrie. Ces valeurs de flux sont obtenues hors contraintes. Elles ne tiennent donc pas compte des différents changements que peut introduire la contrainte comme par exemple l'élastodiffusion, ou la modification des biais d'absorption.

	Interstitiels (m ⁻³ .s ⁻¹)	Lacunes (m ⁻³ .s ⁻¹)
Flux vers les dislocations	$1,45 \cdot 10^{21}$	$1,32 \cdot 10^{21}$
Flux vers les joints de grains et surfaces	$3,51 \cdot 10^{23}$	$3,51 \cdot 10^{23}$
Flux vers les boucles	$2,28 \cdot 10^{21}$	$2,07 \cdot 10^{21}$
Flux vers les SFT	$2,59 \cdot 10^{24}$	$2,59 \cdot 10^{24}$

Tableau VI. 2 : Flux de défauts ponctuels absorbés aux puits

La formule d'Orowan permet de faire le lien entre la vitesse de déformation et la vitesse de glissement :

$$\dot{\epsilon} = \rho_m b v, \quad (VI.11)$$

où ρ_m est la densité de dislocation mobile et v la vitesse de glissement

Cette relation reste valable en montée et peut être modifiée pour décrire le glissement assisté par la montée sous la forme :

$$\dot{\epsilon} = \rho_m b \frac{L}{d} v_{montée}, \quad (VI.12)$$

L la distance parcourue par une dislocation induisant la déformation, d la distance de montée nécessaire pour franchir un obstacle, ρ_m la densité de dislocations mobiles. Cela revient à dire que la

déformation est donnée par le glissement mais que la cinétique de déformation est contrôlée par la montée qui libère les dislocations des obstacles.

Deux possibilités pour entrainer la montée sont alors possibles :

- (i) les défauts ponctuels se déplacent vers les dislocations par diffusion comme dans les flux calculés précédemment
- (ii) la dislocation est désépinglée par une interaction directe avec la cascade de déplacements.

Les équations (VI.6)-(VI.9) montrent une forte dépendance des forces de puits par rapport à leur densité et leur taille. Or, nous avons vu dans le chapitre V que le comportement de fluage sous irradiation obtenu était indépendant de :

- l'épaisseur et de la taille de grain, car nous avons démontré que le comportement était identique pour des films de 200 et 500 nm
- la densité initiale de dislocations, car le comportement des micromachines est identique pour tous les rapports L/L_a et les éprouvettes présentant une localisation initiale de la déformation.

Ceci montre que la concentration de défauts ponctuels dans la matrice et la diffusion ne jouent pas un rôle important sur le fluage d'irradiation. Dans le cas contraire, étant donné que les flux de défauts ponctuels vers les puits dépendent de la microstructure, la vitesse de montée serait différente pour deux microstructures différentes. Evidemment, ces conclusions sont limitées à la faible plage d'étude et peuvent ne pas être étendu au matériau massif à gros grains.

Par conséquent si le fluage d'irradiation observé sur les films de cuivre est le résultat de mécanismes de glissement assisté par la montée, ces mécanismes ne sont pas contrôlés principalement par des mécanismes de diffusion vers les dislocations mais par des interactions de la cascade de déplacements avec les dislocations ou les obstacles et des mouvements de diffusion très locaux. En effet, nous avons vu, dans le chapitre II, que les SFT interagissaient fortement avec les cascades de déplacements et pouvaient disparaître sous le faisceau d'ions. La montée de la dislocation se fait donc soit au cœur de la cascade soit par absorption de défauts ponctuels créés au voisinage immédiat de la dislocation. Des simulations de dynamique moléculaire sur l'aluminium ont montré la possibilité de montée d'une dislocation dans le cas d'une cascade créée au voisinage de la dislocation [16], [17].

La vitesse de montée apparaît alors directement proportionnelle au nombre de cascades créées par seconde et donc au flux de dommage dans le film de cuivre.

L'équation (VI.15) peut se récrire sous la forme :

$$\dot{\epsilon} = \rho_m b \frac{L}{t_{montée}}, \quad (VI.13)$$

Avec $t_{montée}$ le temps nécessaire pour franchir un obstacle.

Bien que la quasi-totalité des paramètres de (VI.17) dépende de la contrainte, on peut essayer de donner un ordre de grandeur pour le temps de montée. On considère :

- une vitesse de déformation de 0,5%/dpa, $\dot{\epsilon}=3,15 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$.
- une dislocation mobile de longueur 500 nm par grain, $\rho_m=1/(500 \cdot 10^{-9})^2=4 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-2}$
- une distance de glissement égale à la distance entre deux obstacles, une densité de $2,5 \cdot 10^{23} \text{ SFT/ m}^3$ donne une distance moyenne de 10 nm entre deux SFT.

Le temps moyen de montée avec ces valeurs est de 3,2 s. Ce temps peut paraître élevé par rapport au temps de vie d'une cascade qui est de l'ordre de la picoseconde. Néanmoins sur un grain cubique de 500 nm de côté, au flux ϕ utilisé de $1,3 \cdot 10^{11}$ ions.cm⁻².s⁻¹, il s'est produit seulement 1040 cascades sur ce laps de temps. C'est équivalent à une cascade tous les 9 nm à la surface du grain. Si la cascade doit se produire au voisinage des dislocations cela implique une faible probabilité d'intersection et peut expliquer le temps moyen élevé pour franchir un obstacle.

En effet, dans une zone de 1 nm autour d'une dislocation de 500 nm perpendiculaire au flux d'ions, il se produit $\phi \times 1 \text{ nm} \times 500 \text{ nm}$ cascades. Si toutes ces cascades entraînent la montée de la dislocation, il y a donc 0,64 montées par seconde. Le temps moyen de montée est alors de 1,6 s qui est du même ordre de grandeur que le premier temps calculé.

Il est intéressant de noter que la vitesse de fluage thermique à haute température d'un cuivre à gros grain suit déjà une loi de puissance avec un exposant 5 à la contrainte [18], Figure VI. 16. Le mécanisme avancé est souvent également un glissement des dislocations assisté par la montée. L'irradiation pourrait donc permettre l'activation des mécanismes de fluage thermique du cuivre à basse température. Toutefois, un modèle décrivant correctement ce fluage thermique n'a toujours pas été établi, notamment pour prédire l'exposant de contrainte [18], [19].

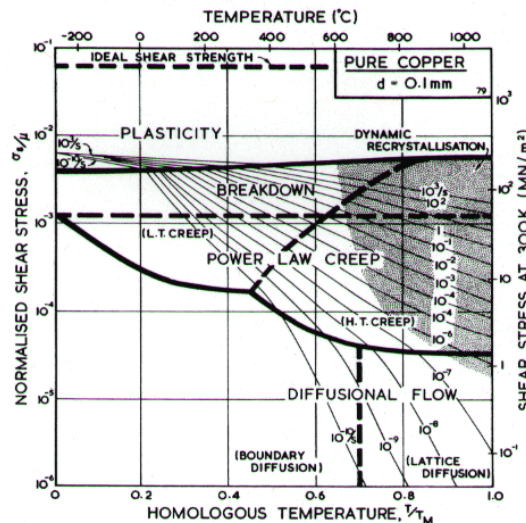


Figure VI. 16 : Carte des mécanismes de déformation pour le cuivre établi par Frost et Ashby [20].

Dans cette hypothèse, la vitesse de fluage sous irradiation pourrait s'écrire, en fonction du flux ϕ , de la section efficace S d'absorption des défauts ponctuel par la création d'une cascade au voisinage d'une dislocation et d'une dépendance identique au fluage thermique de la longueur de glissement L en σ^5 :

$$\dot{\epsilon} \propto \phi S L (\sigma^5). \quad (\text{VI.14})$$

VI.6 Conclusions

Le fluage d'irradiation observé se caractérise par une déformation homogène de l'éprouvette. Des déformations de plusieurs pourcents sont atteintes en quelques heures sans qu'une localisation marquée de la déformation ne soit visible au MEB. Il n'y a pas non plus d'évolution significative de la taille de grain sous irradiation.

Nous avons pu démontrer que l'échauffement sous le faisceau d'ions est négligeable prouvant ainsi que le fluage thermique restait négligeable sur la durée de l'expérience. Néanmoins, la vitesse de fluage présente la même dépendance en contrainte qu'un fluage thermique à haute

température d'un cuivre à gros grain. Les mécanismes de déformations pourraient donc être similaires et reposer sur le glissement des dislocations assisté par la montée. L'absence de dépendance forte du fluage avec la microstructure initiale pourraient être la preuve que le mécanisme n'est pas contrôlé par la diffusion comme le fluage thermique mais par des interactions directes entre les cascades de déplacements et les dislocations.

Les observations *in situ* sur cuivre OFHC montrent effectivement une activité des dislocations sous faisceau avec un glissement activé après franchissement d'obstacle. Les observations *post mortem* au MET sur des éprouvettes de cuivre montrent également un mouvement de dislocations sous flux. Les observations *in situ* des éprouvettes de films minces pourraient permettre d'apporter plus de précisions sur ce point.

Références bibliographiques VI

- [1] W. M. Haynes, *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, vol. 96th Edition. 2015.
- [2] "Brochure 3M." 2006.
- [3] S. A. Fabritsiev, S. J. Zinkle, and B. N. Singh, "Evaluation of copper alloys for fusion reactor divertor and first wall components," *J. Nucl. Mater.*, vol. 233–237, pp. 127–137, Oct. 1996.
- [4] S. Ibragimov, E. S. Aitkhozhin, and Y. S. Pyatiletov, "Radiation-induced creep of aluminium and copper," presented at the Influence of radiation on material properties: 13th international symposium (part II), Philadelphia, PA, 1987, vol. ASTM STP 956, p. 5.
- [5] E. S. Aitkhozhin and E. V. Chumakov, "Radiation-induced creep of copper, aluminium and their alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 233–237, pp. 537–541, Oct. 1996.
- [6] P. Jung and M. I. Ansari, "A correlation between irradiation creep strength and yield stress of FCC metals and alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 138, no. 1, pp. 40–45, Mar. 1986.
- [7] K. Tai, R. S. Averback, P. Bellon, and Y. Ashkenazy, "Irradiation-induced creep in nanostructured Cu alloys," *Scr. Mater.*, vol. 65, no. 2, pp. 163–166, Jul. 2011.
- [8] A. M. Ibrahim, "Analysis of grain growth due to ion irradiation of thin films," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 29, no. 4, pp. 650–652, Jan. 1988.
- [9] L. Jian, J. C. Liu, and J. W. Mayer, "Ar⁺ ion irradiation induced grain growth in Au and Pt thin films," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 36, no. 3, pp. 306–311, Mar. 1989.
- [10] N. Karpe, J. Bøttiger, N. Chechenin, and J. Krog, "Ion irradiation induced grain growth in nanocrystalline Fe and Fe (Zr)," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 179–180, pp. 582–586, May 1994.
- [11] J. C. Liu and J. W. Mayer, "Ion irradiation induced grain growth in Ni polycrystalline thin films," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 19–20, pp. 538–542, Jan. 1987.
- [12] J. C. Liu, J. Li, and J. W. Mayer, "Temperature effect on ion-irradiation-induced grain growth in Cu thin films," *J. Appl. Phys.*, vol. 67, no. 5, p. 2354, 1990.
- [13] J. W. Hutchinson and K. W. Neale, "Influence of strain-rate sensitivity on necking under uniaxial tension," *Acta Metall.*, vol. 25, no. 8, pp. 839–846, Aug. 1977.
- [14] M. A. Meyers, A. Mishra, and D. J. Benson, "Mechanical properties of nanocrystalline materials," *Prog. Mater. Sci.*, vol. 51, no. 4, pp. 427–556, May 2006.
- [15] R. Bullough, M. R. Hayns, and M. H. Wood, "Sink strengths for thin film surfaces and grain boundaries," *J. Nucl. Mater.*, vol. 90, no. 1–3, pp. 44–59, May 1980.
- [16] R. E. Voskoboynikov, "MD simulations of collision cascades in the vicinity of a screw dislocation in aluminium," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 303, pp. 104–107, May 2013.
- [17] R. E. Voskoboynikov, "Interaction of collision cascades with an isolated edge dislocation in aluminium," *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.*, vol. 303, pp. 125–128, May 2013.
- [18] M. E. Kassner and M.-T. Pérez-Prado, "Five-power-law creep in single phase metals and alloys," *Prog. Mater. Sci.*, vol. 45, no. 1, pp. 1–102, Jan. 2000.
- [19] M. E. Kassner, *Fundamentals of creep in metals and alloys*. 2015.
- [20] H. Frost and M. Ashby, *Deformation-Mechanism Maps, The Plasticity and Creep of Metals and Ceramics*. .

Conclusions

Dans cette thèse, une nouvelle méthode pour étudier le fluage d'irradiation sous un flux d'ions a été proposée et utilisée avec succès pour étudier le comportement sous irradiation de films de cuivre de 200 et 500 nm à température ambiante.

Cette méthode repose sur des micromachines de traction sur substrat de silicium pour déformer des films de cuivre. Leur utilisation sous irradiation nécessite un dispositif de masquage précis permettant de protéger l'actuateur du flux d'ions. En effet, les contraintes dans l'actuateur sont relaxées sous irradiation. L'apparition d'un gonflement sous irradiation dans le nitrure de silicium a même pu être mise en évidence.

Un fort accroissement de la vitesse de fluage sous irradiation a été observé. Il a été démontré que cet accroissement ne pouvait être dû qu'à un phénomène de fluage d'irradiation. En effet, durant l'irradiation, le fluage thermique reste négligeable et l'absence de gonflement a pu être confirmée. La vitesse de fluage obtenue suit une loi de puissance d'exposant 5 par rapport à la contrainte au-delà de 100 MPa. Le comportement à basse contrainte n'a pu être étudié.

Il est très probable que le mécanisme de déformation à l'origine du phénomène soit le glissement de dislocations assisté par la montée. Il s'agit du mécanisme avancé dans la littérature pour les comportements en fluage suivant une telle loi que ce soit sous irradiation ou simplement en fluage thermique. Les observations *in situ* MET sur un cuivre OFHC sous irradiation suggèrent que ce mécanisme se produit dans le matériau sous irradiation. Les analyses *post mortem* sur les éprouvettes de cuivre PVD montre également une activité des dislocations sous irradiation. Malheureusement des observations *in situ* sur des micromachines n'ont pas pu être effectuées pour confirmer ou infirmer ce mécanisme.

La loi de fluage obtenue est identique pour les deux épaisseurs de films testées et pour toutes les micromachines quelle que soit la déformation plastique initiale. Ce point démontre que la présence de puits comme les dislocations, les joints de grains ou les surfaces libres n'a qu'une influence limitée sur les mécanismes de déformation. Or ces puits ont une forte influence sur la concentration de défauts ponctuels dans les éprouvettes et donc sur les flux diffusifs de ces défauts. Ainsi, si le mécanisme de déformation est bien le glissement assisté par la montée, la montée est alors contrôlée non par la diffusion à longue distance mais par des interactions directes ou à très courte distance entre la cascade de déplacements et les dislocations.

De plus, la microstructure du cuivre après irradiation est identique dans un film mince et dans un cuivre à gros grains avec dans les deux cas une forte densité de SFT. Cela couplé au fait que la microstructure du film n'influence pas fortement le fluage d'irradiation pourrait laisser espérer que les résultats obtenus soient extensibles à un cuivre massif à gros grains. Néanmoins la littérature limitée sur le fluage d'irradiation du cuivre et la plage restreinte de taille de grain testée ne permettent pas d'affirmer ce point avec certitude.

Le comportement hors irradiation des films de cuivre a également pu être caractérisé. Les deux films à 200 nm et 500 nm d'épaisseur semblent avoir les mêmes comportements mécaniques en traction avec une limite d'élasticité à 0,2 % entre 250 et 300 MPa et une très faible ductilité. A ces vitesses de déformations modérées, les observations MEB et MET montrent que la déformation se fait par glissement des dislocations avec une forte localisation de la déformation plastique.

A plus basse vitesse, le comportement de tous les films reste similaire. Les volumes d'activation sont entre 10 et 35 Mb^3 . Aucune nouvelle trace de glissement de dislocation n'est observée sur les éprouvettes. Les faciès de rupture changent avec une propagation de la fissure intergranulaire plus marquée qu'aux plus fortes vitesses de déformation. De plus, des cavités aux joints triples et un nivellement des grains apparaissent. Ces points indiquent un changement de mécanisme de déformation vers les vitesses basses avec le passage d'une activité intragranulaire à des mécanismes plus axés sur les joints de grain. Un glissement aux joints de grains pourrait

intervenir mais les volumes d'activation et l'exposant de sensibilité montrent qu'il ne peut pas s'agir du mécanisme dominant de déformation. Des interactions entre joints de grain et dislocations sont plus probables.

Après irradiation, les éprouvettes de 200 nm d'épaisseur montrent un fort durcissement démontrant la qualité d'obstacles des SFT pour les dislocations. La relaxation de ces éprouvettes s'effectue en suivant des volumes d'activation identiques à la relaxation hors irradiation. Les mécanismes contrôlant la cinétique de déformation pourraient donc être identiques. La vitesse de fluage est plus faible que celle attendue hors irradiation aux mêmes contraintes. Ce point est cohérent avec un mécanisme de déformation par glissements des dislocations avec une force d'obstacle exercée par les SFT. Des analyses microstructurales plus poussées seraient nécessaires pour déterminer l'évolution exacte de la microstructure et en particulier l'éventuelle apparition de bandes claires qui pourrait indiquer une canalisation des dislocations après irradiation.

De nouvelles études à l'aide de ces micromachines seraient nécessaires pour affiner la connaissance des mécanismes de déformation sous irradiation. Des observations *in situ* seraient grandement profitables. De même, des conditions où le fluage d'irradiation est linéaire en contrainte seraient particulièrement intéressantes pour reproduire le phénomène observé en centrale nucléaire. Continuer l'étude à plus basse contrainte pourrait permettre d'atteindre cet objectif.

Une étude en température pourrait également permettre une meilleure caractérisation du phénomène mais cela nécessite la conception d'un nouveau dispositif de masquage adapté à un porte objet chauffant. Des optimisations de la géométrie des séries d'éprouvettes sont encore possibles pour gagner en précision. Par exemple, simplement augmenter le nombre de structures irradiées permet de multiplier le nombre d'expériences simultanées.

Un changement de matériau pourrait également être intéressant. Le nickel, le fer ou le zirconium dont les alliages sont utilisés dans l'industrie nucléaire seraient de bons candidats. Les mécanismes observés pourraient alors être transposés plus facilement aux conditions réelles d'intérêt du fluage d'irradiation.

De façon plus générale, nous avons montré avec cette thèse la faisabilité de l'étude du comportement mécanique sous irradiation grâce aux micromachines. Cette innovation permet, couplée avec un outil d'irradiation aux ions, d'envisager des études systématiques sur les effets microstructuraux et chimiques sur le comportement mécanique sous irradiation, sans être entravé par la lourdeur des essais sur matériaux actifs. Il s'agit d'un outil potentiellement intéressant pour guider le "développement d'alliages" mécaniquement résistants à l'irradiation. Il nécessite simplement une adaptation aux limites actuelles des technologies d'élaboration des MEMS.

Table des figures

Figure I. 1 : Représentation schématique d'une cuve de réacteur.	2
Figure I. 2 : Représentation schématique des internes de cuve.	2
Figure I. 3 : Assemblage combustible avec une vue d'une grille, un agrandissement sur les ressorts et une photographie de gaines.....	3
Figure I. 4 : Comparaison des vitesses de fluages sous irradiation, en rouge, et hors irradiation, en vert, sur (a) un acier 316 irradié aux neutrons [4], (b) sur un zircalloy 2 irradié aux neutrons [5] et (c) un inconel irradié aux protons [6].	3
Figure I. 5 : Relaxation de languettes sous irradiation de différents matériaux [9].....	4
Figure I. 6 : Vitesses de fluage pour différents métaux CFC irradiés aux protons [19].	5
Figure I. 7 : Evolution de la vitesse de fluage du cuivre en réacteur (1,2) et hors réacteur (3,4) et de la limite d'élasticité (5) en fonction de la température. Taille de grain : (1, 3) 35 μm , (2, 4) 50 μm [20]. .	6
Figure I. 8 : Mécanisme de fluage d'irradiation SIPN. Les interstitiels s'agglomèrent préférentiellement dans les plans orthogonaux à la contrainte tandis que les lacunes s'agglomèrent dans les plans parallèles.	7
Figure I. 9 : a) Montée anisotrope des dislocations du fait de l'absorption préférentielle des interstitiels et des lacunes b) Croissance des boucles de dislocation interstitielles	8
Figure I. 10 : Principe du modèle de Weertman [26].	9
Figure I. 11 : Déplacement des joints de grains par absorption de défauts ponctuels.	10
Figure I. 12: Dispositif de Witzig pour l'étude du fluage d'irradiation aux deutérons [28].	11
Figure I. 13 : Dispositif de Jung et al. [29] pour l'étude du fluage d'irradiation aux protons.....	11
Figure I. 14 : Dispositif de Xu et Was pour l'étude du fluage d'irradiation aux protons [30].....	12
Figure I. 15 : Dispositif de Tai et al. [31] pour l'étude du fluage d'irradiation aux ions.	12
Figure I. 16 : a) Dispositif de Özerinç et al. [32] pour l'étude du fluage d'irradiation aux ions. b) Principe de mise sous contrainte du micropilier.....	13
Figure II. 1: Valeur de l'énergie seuil de déplacement (eV) selon la direction de la vitesse de l'atome éjecté comme mesurée par King et al. [1] ; a correspond à la meilleure approximation et b à la sensibilité de l'approximation ; plus b est important et moins a est précis.	18
Figure II. 2 : (a) en rouge la trajectoire des ions Cu et en vert la trajectoire des atomes Cu de la cible, (b) les dommages calculés par SRIM.	19
Figure II. 3 : Mécanismes de migration dans les structures cubiques [3].	20
Figure II. 4 : Images MET de boucles de Frank dans le nickel après irradiation aux électrons [7] et représentation schématique de (a) une boucle de Frank lacunaire, (b) une boucle parfaite lacunaire, (c) une boucle de Frank interstitielle, et (d) une boucle parfaite interstitielle [8].....	21
Figure II. 5 : a) une observation MET d'une boucle de Frank interstitielle dans un alliage métallique irradié au proton avec deux boucles de Schockley, b) une représentation schématique [10].....	22
Figure II. 6 : a) SFT observés dans le cuivre irradié aux protons à 0.046 dpa ($g = 6g$, $g=200$) [11] b) tétraèdre de Thompson d'après [10].	22
Figure II. 7 : Mécanisme Silcox-Hirsch de formation des SFT. a) dissociation de la boucle triangulaire, b) les dislocations de Schockley sont repoussées le long des plans de glissement [8].....	23
Figure II. 8 : Projections orthogonales des SFT selon divers faisceaux incidents.....	24

Figure II. 9: Comparaison de la proportion d'amas visibles entre une lame fine et une lame épaisse après une irradiation aux neutrons 14 MeV. Environ 1500 amas ont été comptés dans les deux cas. [18]	25
Figure II. 10: Profils SRIM pour des ions cuivre de 600 keV sur une cible de cuivre incliné à 7° donnant » a) l'endommagement pour une dose de " 1 dpa et b) l'implantation.....	28
Figure II. 11 : Réalisation de lames MET irradiées dans le cuivre OFHC.	29
Figure II. 12 : Observation des lames FIB prélevées dans le cuivre OFHC.....	30
Figure II. 13: Endommagement observé sur des lames FIB non irradiées aux ions cuivre	30
Figure II. 14: SFT observés dans une lame OFHC irradiée à 1 dpa en champs clair et faisceau faible avec un vecteur de diffraction 200.....	31
Figure II. 15 : Observations MET en faisceau faible $g=200$ du cuivre OFHC et du film PVD à 1 et 7 dpa.	31
Figure II. 16 : Distribution en taille des SFT pour le cuivre OFHC 1 et 7 dpa et le cuivre PVD 1 et 7 dpa.	33
Figure II. 17 : Evènements observés sur une seconde. En rouge, les modifications de contrastes comptés.....	34
Figure II. 18: Création et disparition d'amas de défaut sous faisceau d'ions.....	35
Figure II. 19 : Disparition progressive sur plusieurs secondes d'une boucle de dislocation	36
Figure III. 1: a) géométrie des éprouvettes, b) vue de plusieurs micromachines de traction comprenant une poutre échantillon et une poutre actuatrice.....	42
Figure III. 2 : Principe de l'extraction de la loi de comportement.....	42
Figure III. 3 : Reconstitution de la loi de comportement. Deux courbes correspondant à deux actionneurs différents sont tracées. Les points rouges et bleus sont deux états d'équilibre à deux instants donnés, t_0 et t_1 , $t_1 > t_0$	43
Figure III. 4: Mesure du déplacement. Le déplacement retenu est la moyenne des quatre déplacements mesurés sur les deux curseurs.....	44
Figure III.5 : Etapes du procédé de fabrication (a) tranche de silicium vierge, (b) dépôt de la couche sacrificielle, (c) dépôt de l'actionneur, (d) gravure de l'actionneur, (e) dépôt du film métallique et (f) gravure du film métallique.	45
Figure III.6 : Etapes pour la gravure d'un motif sur le nitrure de silicium : (a) dépôt CVD du nitrure, (b) dépôt avec spin-coating de la résine, (c) exposition UV, (d) développement à l'aide d'un solvant, (e) gravure SF_6 , (f) retrait résine.	47
Figure III.7: Procédé "lift off", (a) substrat (SiO_2+Si), (b) dépôt d'une résine photosensible négative, (c) exposition UV avec masque, (d) développement, (e) dépôt d'un film de cuivre, (f) retrait de la résine.	48
Figure III. 8 : Représentation schématique d'une tranche terminée de lab-on chips.....	48
Figure III. 9 : Géométrie des structures de type (a) B, (b) BT.....	49
Figure III. 10 : Géométrie des séries de type (a) B, (b) T.	50
Figure III. 11 : Micromachines disponibles sur la tranche pour la mesure des contraintes internes dans le film avant et après relâchement des structures : a) les poutres libres, b) les structures autoactuées et c) les capteurs rotatifs.....	52
Figure III. 12 : Représentation schématique (a) d'un échantillon MET, (b) d'une poutre échantillon avec réduction de section.	53

Figure III. 13 : (a) Irradiation d'un échantillon de nitrure de silicium sur silice, (b) Création de micromachines dans le film irradié, (c) Relâchement des structures.	53
Figure III. 14 : Profil SRIM de (a) dommage et (b) d'implantation pour des ions cuivres de 600 keV sur une cible de nitrure de silicium et silice	54
Figure III. 15: Images SEM d'une micromachine après relâchement sur l'échantillon témoin non irradié (a), irradié à $1,6 \cdot 10^{13}$ ions/cm ² (b), irradié à $1,6 \cdot 10^{14}$ ions/cm ² (c).	54
Figure III. 16 : Evolution de l'angle de rotation de la poutre centrale en fonction de la distance d entre les deux bras.....	55
Figure III. 17 : Flambement du nitrure de silicium observé sur des micromachines entièrement irradiées.....	56
Figure III. 18 : (a) Vue du dispositif conçu sur SolidWorks®, (b) Photographie du montage usiné.....	57
Figure III. 19 : Micrographie optique de la procédure d'alignement du masque fait sur des structures autoactuées de cuivre par binoculaires (a) et par microscope 3D sur des séries B après une étape d'irradiation (b).	57
Figure III. 20 : Alignement parfait obtenu sur une série B irradiée.....	58
Figure III.21 : Choix du positionnement du masque sur les structures.....	59
Figure III. 22 : Représentation schématique d'une micromachine. Les pointillés blancs délimitent la zone gravée par la solution de HF. Les déplacements u sont notés relativement à la zone qu'ils représentent.....	60
Figure III. 23 : Courbe de traction d'un film de 190 nm de cuivre non recuit avec un traitement de données simple (en rouge), avec le traitement décrit en II.5 (en vert).	63
Figure IV. 1 : Croissance de grains observée au MET quelques heures après dépôt.....	66
Figure IV. 2 : Microstructure d'un film de 200 nm a) non recuit quelques heures après dépôt, b) cinq jours après dépôt.	66
Figure IV. 3 : Cartographie d'orientation projetée sur la normale obtenue par EBSD sur a) l'échantillon non recuit après plusieurs semaines, b) sur un échantillon recuit à 150 °C après dépôt. Les couleurs correspondent aux couleurs standards d'orientation.....	67
Figure IV. 4 : Distribution de la taille de grain dans un film de cuivre 200 nm non recuit et recuit à 150 °C.	67
Figure IV. 5 : Microstructure a) d'un film de 500 nm non recuit plusieurs semaines après dépôt, b) après recuit à 100 °C pendant une demi-heure, c) à 150 °C pendant une heure et d) à 250 °C pendant une heure.	68
Figure IV. 6 : Distribution de la taille de grain dans le film de 500 nm pour les quatre conditions de recuit.	69
Figure IV. 7 : Microstructure d'un film de 500 nm a) non recuit plusieurs semaines après dépôt, b) après recuit à 150 °C.	69
Figure IV. 8 : Courbe de traction du film de 200 nm non recuit (points noirs) et recuit à 150 °C (points rouges).....	71
Figure IV. 9 : a) Pentas de relaxation des actuateurs pour les séries T et b) les séries B de 25 et 50 μ m de long.....	72
Figure IV. 10 : a) localisation de la déformation plastique observée dans un grain du film de 200 nm non recuit, b) exemple de facies de rupture dans sur le film de 200 nm non recuit.....	73
Figure IV. 11 : a) localisation de la déformation plastique observée dans un grain du film de 200 nm recuit, b) exemple de facies de rupture dans sur le film de 200 nm recuit.	74

Figure IV. 12 : Empilements de dislocations visibles au MET sur une éprouvette brisée d'un film de 200 nm recuit.	74
Figure IV. 13 : Courbe de traction obtenue avec les séries T (en rouge), et les séries B (en noir).....	75
Figure IV. 14 : a) localisation de la déformation plastique observée dans le film de 500 nm recuit, b) exemple de faciès de rupture sur le film de 500 nm recuit.	76
Figure IV. 15 : Evolution de la déformation pour des structures autoactuées avec des éprouvettes de 25 μm de long.....	79
Figure IV. 16 : faciès de rupture de poutre de 2 μm de large a) à vitesse de déformation rapide, b) durant un essai de relaxation [27].	79
Figure IV. 17 : Evolution de (a) la déformation et (b) de la contrainte à température ambiante dans un film de 200 nm non recuit.	80
Figure IV. 18 : Volume d'activation et exposant de sensibilité à la vitesse de déformation extrait sur la relaxation d'un film de 200 nm de Cu non recuit.....	80
Figure IV. 19 : Localisation de la déformation plastique observée dans le film de 200 nm non recuit a) après 3 h sous contrainte, b) après 188 h.	81
Figure IV. 20 : Evolution de la déformation et de la contrainte au cours du temps respectivement dans l'échantillon 1 a-b) et l'échantillon 2 c-d).	82
Figure IV. 21 : (a) Volume d'activation et (b) exposant de sensibilité à la vitesse de déformation extrait sur la relaxation d'un film de 200 nm de Cu recuit.....	83
Figure IV. 22 : Volume d'activation en fonction de l'inverse de la contrainte initiale.	84
Figure IV. 23 : a) Etat de surface des structures échantillons recuites, b) faciès de rupture d'une poutre brisée en relaxation.	84
Figure IV. 24 : Evolution de la déformation et de la contrainte au cours du temps respectivement a-b) dans l'échantillon 1 et c-d) l'échantillon 2.	85
Figure IV. 25 : Volume d'activation et exposant de sensibilité à la vitesse de déformation extrait sur la relaxation d'un film de 500 nm de Cu recuit.....	86
Figure IV. 26 : a) film 500 nm recuit après plus de 3200 h sous contrainte, b-d) différents faciès de rupture de poutres brisées en relaxation.....	87
Figure IV. 27 : Ensemble des volumes d'activation et exposants de sensibilité à la vitesse de déformation extrait sur la relaxation des éprouvettes de cuivre tracé en fonction de l'inverse de la contrainte et de la déformation plastique au premier point de mesure.....	89
Figure V. 1: Gravure du nitrure de silicium irradié suite à un choix d'alignement ne protégeant pas l'intégralité de l'actuateur.	94
Figure V. 2 : Profils SRIM pour des ions cuivre de 600 keV sur une cible de cuivre incliné à 7° donnant a) l'endommagement pour une dose de " 1 dpa " et b) l'implantation.....	94
Figure V. 3 : Premiers points de mesures après 2h de relaxation sur la série irradiée et la série témoin.	95
Figure V. 4 : Faciès de rupture en traction de deux éprouvettes irradiées.....	95
Figure V. 5 : Evolution après irradiation à 1 dpa de a) la déformation et b) de la contrainte.	96
Figure V. 6 : a) Volume d'activation et b) facteur de sensibilité à la contrainte pour la série irradiée à 1 dpa et la série non irradiée.	96
Figure V. 7 : Vitesse de déformation plastique au premier point de mesure en fonction de la contrainte.....	97

Figure V. 8: Bandes claires observées dans un cuivre OFHC irradié aux neutrons à 0,3 dpa à 100 °C. Les lettres (a), (b), (c) correspondent à trois générations différentes de canaux suite à des changements de plans de glissement [6].	97
Figure V. 9 : Vue des micromachines après irradiation.	98
Figure V. 10 : Evolution de la déformation et de la contrainte au cours du temps sur l'échantillon irradié une fois. L'irradiation aux ions s'est produite 25 h après la gravure de l'oxyde de silicium.	99
Figure V. 11 : Déformation plastique de la partie irradiée sous irradiation en fonction de la contrainte moyenne durant la déformation.	99
Figure V. 12 : Effet de l'adhésion locale de l'actuateur sur le substrat sur la relaxation de la contrainte avec la déformation.	101
Figure V. 13 : Evolution au cours du temps de (a) la déformation totale et (b) de la contrainte sous irradiation dans les d'éprouvettes de 500 nm d'épaisseur où les actuateurs sont en partie collés sur le substrat.	101
Figure V. 14 : Evolution temporelle de la déformation observée sur des structures avec les deux MEB Zeiss.	102
Figure V. 15 : Evolution temporelle de la déformation après le passage sur le MEB Jeol.	103
Figure V. 16 : Evolution temporelle des structures témoins durant le transport des échantillons. ...	103
Figure V. 17 : Profils SRIM pour des ions cuivre de 1200 keV sur une cible de cuivre incliné à 7° donnant a) l'endommagement pour une dose de " 1 dpa " et b) l'implantation.	104
Figure V. 18 : Evolution a) de la déformation et b) de la contrainte au cours du temps dans le film après chaque étape d'irradiation dans le film de 200 nm d'épaisseur.	105
Figure V. 19 : Evolution de la déformation totale sous irradiation dans les éprouvettes du film de 200 nm d'épaisseur.	106
Figure V. 20 : Gain de la déformation totale en fonction de la contrainte moyenne sous irradiation.	106
Figure V. 21 : Evolution au cours du temps de (a) la déformation et (b) de la contrainte sous irradiation dans les éprouvettes de 500 nm d'épaisseur nm.	107
Figure V. 22 : Evolution de la déformation totale des éprouvettes sous flux en fonction de la dose.	108
Figure V. 23 : Vitesse de déformation totale sous flux en fonction de la contrainte pour les éprouvettes de 500 nm d'épaisseur.	108
Figure V. 24 : Evolution au cours du temps de (a) la déformation et (b) de la contrainte sous irradiation dans les éprouvettes de 500 nm d'épaisseur nm avec l'actuateur totalement protégé.	110
Figure V. 25 : Evolution de la déformation plastique sous flux en fonction de la dose.	110
Figure V. 26 : Evolution de la vitesse de fluage en fonction de la contrainte.	111
Figure V. 27 : Vitesses de fluage extraites sur les différentes expériences.	112
Figure V. 28 : Contraintes et déformations avant et après irradiation	113
Figure V. 29 : Comparaison entre le modèle en loi de puissance et l'expérience	114
Figure V. 30 : Volume d'activation sous irradiation	115
Figure VI. 1 : Système considéré pour l'évaluation de la température.	119
Figure VI. 2 : Profil d'implantation des ions cuivre d'énergie 1200 keV dans une cible de cuivre pour la dose de 1 dpa.	120
Figure VI. 3 : Comparaison entre les vitesses de fluages obtenues avec les micromachines et les vitesses de fluage obtenues dans la littérature.	122

Figure VI. 4 : Comparaison entre les vitesses de fluage obtenues par micromachines et celles de Jung et al. [6], après (a) normalisation et (b) soustraction par les limites d'élasticité.....	123
Figure VI. 5 : Glissement observé d'une dislocation lors de la mise sous contrainte. En blanc l'ancienne position, en noir la nouvelle.	124
Figure VI. 6 : Profil d'endommagement dans le cuivre par des ions cuivre de 300 keV à une dose de $1,6 \cdot 10^{14}$ ions.cm ⁻² .s ⁻¹	124
Figure VI. 7 : Evolution sur 40 s de l'empilement de dislocation choisi.	125
Figure VI. 8 : Exemples de glissement de dislocations observés sur l'empilement. En blanc ancienne position, en noir nouvelle position.....	126
Figure VI. 9 : Exemples de glissement de dislocations observés sur l'empilement. En blanc ancienne position.....	126
Figure VI. 10 : Eprouvette de cuivre déformée à 3,6 %, 2,2 % sous irradiation (5,6 dpa).....	127
Figure VI. 11 : Eprouvette de cuivre de 500 nm déformée a) avant irradiation à 3,05 % et b) après irradiation (8 dpa) à 4,96%.	128
Figure VI. 12 : Eprouvette de 500 nm déformée a) avant irradiation à 1,96% et b) après irradiation (5,6 dpa) à 2,32 %.	128
Figure VI. 13 : Cartographie d'orientation projetée sur la normale à la surface obtenue par EBSD sur a) une éprouvette non irradiée déformée à 0,9 %, b) une éprouvette déformée sous irradiation....	129
Figure VI. 14 : Exemples de dislocations visibles dans une éprouvette déformées sous irradiation..	130
Figure VI. 15 : Boucles de dislocations en forte densité observables dans certains grains. La direction d'application de la charge est proche de l'horizontale des images.	131
Figure VI. 16 : Carte des mécanismes de déformation pour le cuivre établi par Frost et Ashby [20].	134

ANNEXE A1 : Essais de nanoindentation

Le comportement post irradiation de films de cuivre de 500 nm d'épaisseur a pu être évalué par nanoindentation. Les essais de nanoindentation consistent ici à appliquer une pression sur l'échantillon à l'aide d'une pointe diamant Berkovich (pyramide tétraédrique) en imposant un contrôle soit sur la charge appliquée, soit sur la profondeur atteinte. Deux expériences ont pu être conduites. La première visait à mesurer sur des films "pleine plaque" de 500 nm non recuits un éventuel durcissement après irradiation. L'étude a été menée sur les plaquettes qui ont servi à l'étude des SFT après irradiation. Les films ont été irradiés avec des ions d'énergie 600 keV qui ont affecté seulement les 300 premiers nanomètres. La deuxième étude a été réalisée sur un échantillon recuit de micromachines irradiées à une énergie de 1200 keV afin d'observer des différences dans les comportements visqueux des films. Dans ces conditions, le cuivre est intégralement irradié. Dans ce dernier cas, les indentations ont été faites sur la base des éprouvettes encore attachées au substrat.

Les deux études sont des études qualitatives dont les objectifs étaient de repérer des comportements mécaniques significativement différents après irradiation.

A1.1 Durcissement après irradiation

Cinq mesures de dureté ont été effectuées à 3 profondeurs différentes : 50 nm, 100 nm et 150 nm. Il est généralement conseillé sur les films minces de ne pas dépasser 10 % de l'épaisseur du film afin de limiter l'influence du substrat sur la mesure de nanodureté (Saha et al., JMPS, 49 (9), pp 1997-2014). Dans nos expériences, une influence du substrat n'est donc pas à exclure.

Les mesures sont obtenues en mode standard, la charge augmente progressivement de manière constante pendant 30 s jusqu'au palier souhaité, le palier est maintenu pendant 10 s puis la charge est retirée progressivement. Le module d'Young est extrait de la décharge de l'indenteur par la méthode d'Oliver et Pharr (Oliver and Pharr, JMR, 7 (6), pp 1564-1583). Le protocole a été appliqué de manière similaire à un échantillon non irradié, un échantillon irradié à 0,1 dpa et un échantillon irradié à 1 dpa.

La dureté et le module d'Young sont donnés sur la Figure A. 1. Du fait de la faible statistique, il est évident qu'il n'est pas possible d'extraire de valeur quantitative suffisamment fiable. La contamination de surface lors de l'irradiation rend peu lisible la lecture du module d'Young lors de la décharge, ce qui explique les valeurs peu cohérentes de modules d'Young pour l'échantillon le plus irradié.

Il y a peu de différences en termes de dureté entre les échantillons irradiés et l'échantillon non irradié, en particulier entre l'échantillon non irradié et l'échantillon irradié à 1 dpa. L'échantillon à 0,1 dpa paraît bien plus dur que l'échantillon non irradié mais il est également plus dur que l'échantillon irradié à une dose dix fois plus importante. La mise en évidence d'un durcissement après irradiation n'est donc pas avérée à la vue de ce graphe contrairement à ce qui a pu être observé en traction, Figure V. 3. Une explication pourrait résider dans le fait que le matériau de base non recuit est déjà très dur. L'incrément ajouté par l'irradiation est alors trop faible pour être visible avec une faible statistique. Néanmoins, les essais sur micromachines, chapitre V, montrent un durcissement important après irradiation sur les films recuits. Cette différence entre micromachines et nanoindentation n'est pas encore bien comprise.

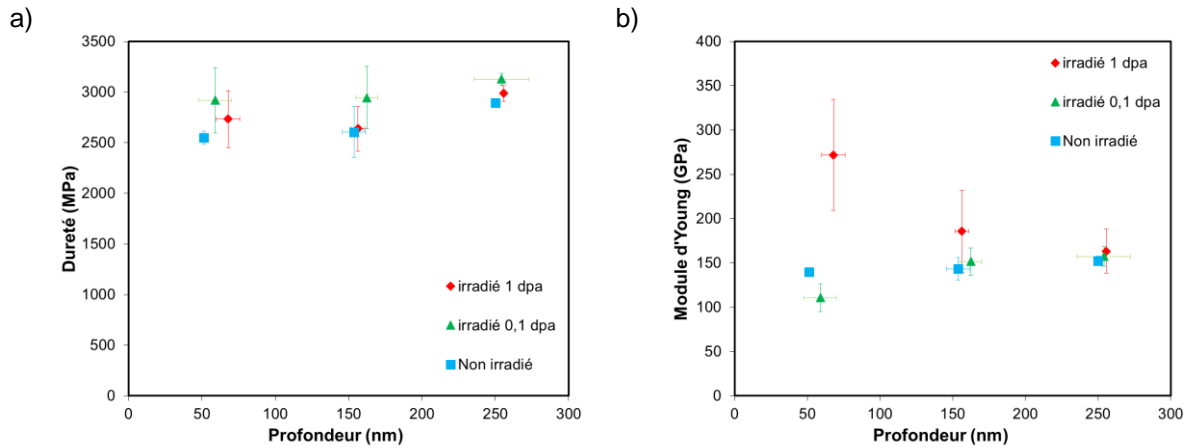


Figure A. 1: a) Dureté et b) module d'Young extraits par nanoindentation

A1.2 Fluage post irradiation

Des essais de fluage, avec maintien de la charge, ont été effectués sur des zones d'un échantillon de micromachines irradiées, Figure A. 2. Le matériau est un film de cuivre de 500 nm sur 4 nm de chrome encore sur une couche de silice et un substrat de silicium. L'échantillon a été irradié en suivant le protocole de masquage défini dans la partie II. Ainsi le comportement du film irradié a été évalué dans la zone irradiée à 3 dpa tandis que le comportement du film non irradié a été mesuré sur une zone placée sous le masque pendant l'irradiation. Les deux comportements comparés sont donc issus du même échantillon.

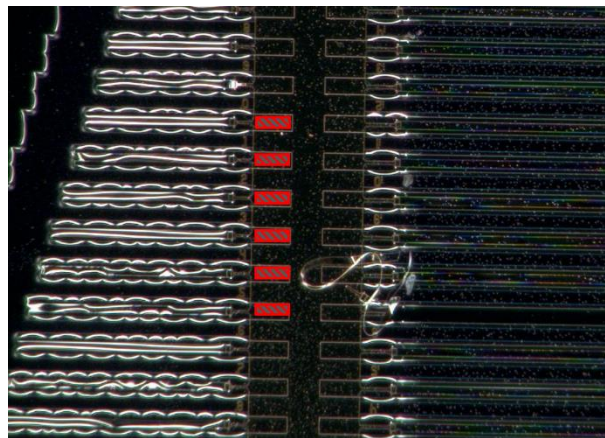


Figure A. 2: Régions, en rouge, où sont effectués les essais de nanoindentation

Les essais de fluage ont tous été effectués à une charge nominale de 1 mN. A cette charge, la profondeur atteinte dépasse les 100 nm, une influence du substrat n'est donc pas à exclure sur les mesures. Trois vitesses de chargement ont été testées : 1 mN/min, 2 mN/min et 3 mN/min. Une fois la charge de 1 mN atteinte, le chargement est maintenu pendant 100 s. Neufs essais sont réalisés dans chaque condition et pour chaque matériau.

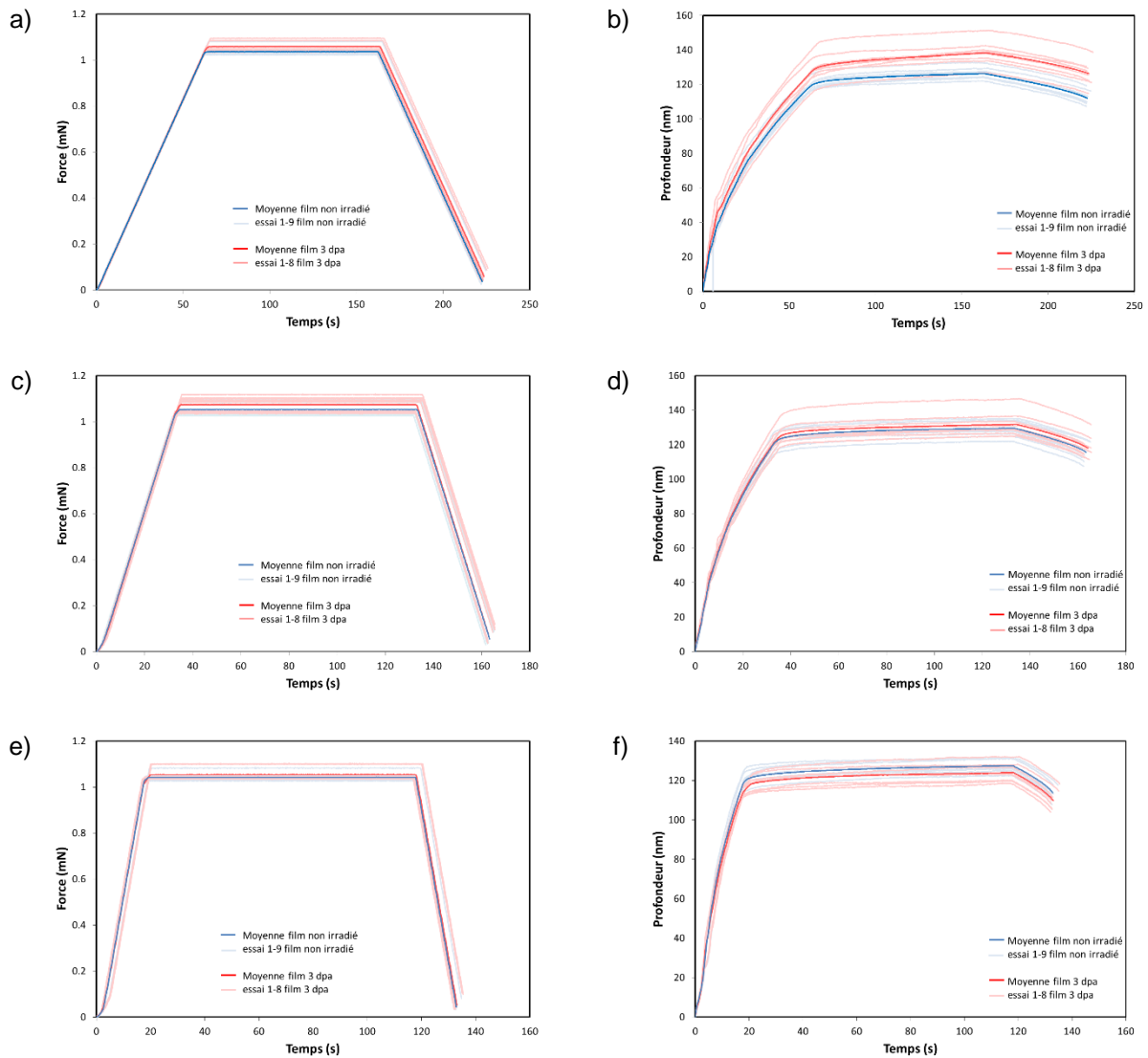


Figure A. 3: courbes de fluage pour les vitesses de chargement a) 1 mN/min, b) 2mN/min et c) 4 mN/min

La Figure A. 3 présente les courbes obtenues en fluage par nanoindentation pour les différentes vitesses de chargement. A des vitesses de 2 et 4 mN/min, les courbes sont quasi superposables pour le matériau irradié et non irradié montrant ainsi une dureté similaire dans les deux matériaux et un comportement visqueux proche. Une différence plus notable apparait avec la vitesse de chargement la plus faible, 1 mN/min. Les deux courbes moyennes ne sont plus parallèles et le matériau irradié semble fluer de manière plus importante durant le palier de chargement. Néanmoins une grande dispersion des données est présente, ce qui rend difficile l'interprétation de ces résultats.

Globalement le comportement après irradiation du film de cuivre de 500 nm dans ces conditions d'expérimentation est très proche de celui du cuivre non irradié.

ANNEXE A2 : Irradiation au MET THT

Le microscope électronique en transmission à très haute tension (MET THT) du CEA/SRMA opère à une tension de 1 MV. A cette tension, les électrons ont une énergie suffisante pour déplacer les atomes de la matière. Seul un atome reçoit suffisamment d'énergie pour être déplacé, il ne se crée donc pas de cascade de déplacements. Les électrons ne conduisent qu'à la formation de paires de Frenkel isolées.

La zone irradiée est également très localisée et peut être choisie selon la focalisation du faisceau d'électron. Il est donc facile avec un tel dispositif de définir avec précision la zone irradiée sur un échantillon. Ce type d'expérience peut donc constituer une alternative intéressante pour observer sur les micromachines la création des paires de Frenkel et les interactions de défauts ponctuels avec la microstructure.

Néanmoins une succession d'incidents sur l'équipement n'a pas permis de réaliser l'expérience sur des micromachines. Seules une lame MET de cuivre OFHC et une lame FIB de cuivre PVD ont pu être irradiées en avril 2014.

Un grain de la lame OFHC a été irradié sur plusieurs zones, Figure A. 4. Les amas de défauts ont un aspect différent des amas observés après irradiations aux ions. Ils semblent regroupés en structures distinctes de plusieurs amas. La nature de ces amas n'a pas été déterminée.

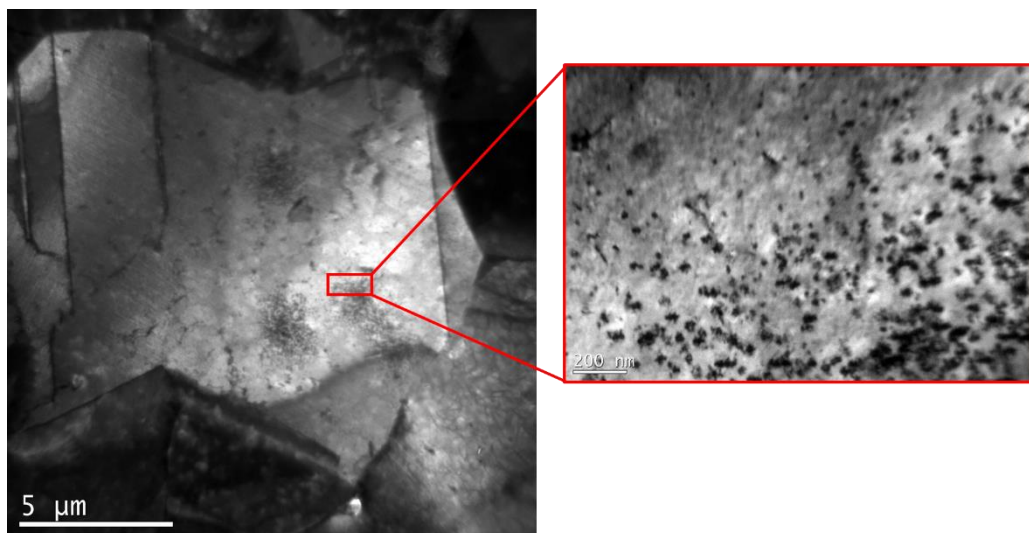


Figure A. 4 : Grain OFHC irradié aux électrons.

La lame FIB de cuivre PVD a été entièrement irradiée. Durant l'irradiation, aucun changement de contraste sur la lame n'est observé. Les observations après irradiation dans un MET classique de 200 kV montre la disparition de certains grains dans la lame, Figure A. 5. Très peu d'amas de défauts sont observés dans les grains restants. Il est possible que les défauts ponctuels créés aient migré vers les joints de grains et ont entraîné une décohésion à ces joints de grain.

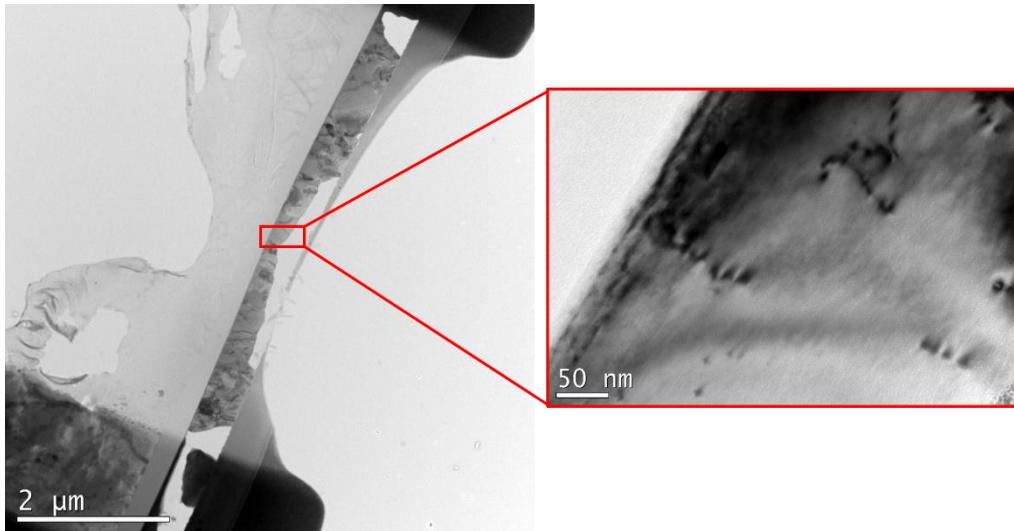


Figure A. 5 : Lamme FIB d'un cuivre PVD après irradiation aux électrons.

Les différences de comportement entre les deux lames pourraient être expliquées par la présence de puits plus importants dans la lame PVD. En effet, la taille de grain et l'épaisseur de lame sont beaucoup plus faibles que sur la lame OFHC. Les défauts ponctuels n'auraient alors pas le temps de former des amas visibles au MET avant de disparaître sur les surfaces libres ou les joints de grain.

ANNEXE A3 : Essais de flexion sous irradiation

En juin 2014, une journée d'irradiation aux ions cuivre d'énergie 600 keV a été consacrée à une expérience de flexion sur des languettes de cuivre OFHC. Le dispositif, Figure A. 6, permet d'appliquer une flexion quatre points aux échantillons. L'objectif de l'expérience est de réaliser une irradiation sous contrainte et de prélever des lames MET dans les éprouvettes afin de caractériser la microstructure sous contrainte et sous irradiation.



Figure A. 6 : Photographie du dispositif de flexion.

Le dispositif est constitué de blocs centraux de différentes hauteurs permettant de créer deux points de contact avec les éprouvettes. Le cadre supérieur forme les deux autres points de contact aux extrémités des éprouvettes, Figure A. 7. L'avantage de la flexion quatre points est de créer une pure flexion sans effort tranchant. La surface des éprouvettes exposées aux ions est alors en tension.

Avant d'être montée sur le dispositif, une cuvette est créée par polissage électrolytique sur les languettes. Le fond de cette cuvette et la première centaine de nanomètres sont considérés comme subissant une contrainte en tension. Après irradiation et poinçonnage, une deuxième cuvette est réalisée par électropolissage face arrière afin de réaliser une lame MET.

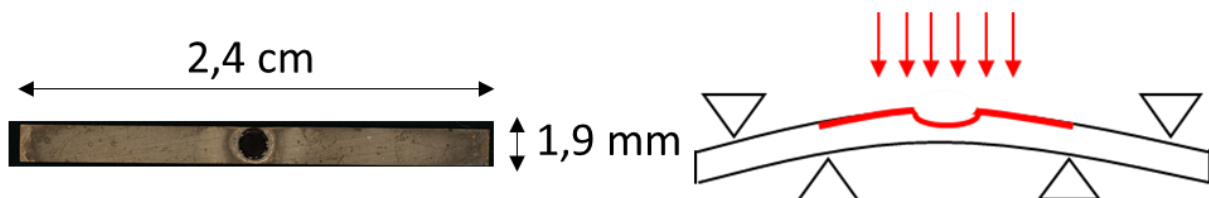


Figure A. 7 : Photographie d'une éprouvette et principe de l'expérience.

Cette expérience aurait pu aboutir à des observations intéressantes néanmoins plusieurs problèmes ont été rencontrés et ont empêché son bon déroulement.

Le premier problème est rencontré lors de la réalisation de la première cuvette. Le cuivre OFHC est suffisamment mou pour que le porte-objet d'électropolissage déforme plastiquement les éprouvettes. La forme des éprouvettes est donc altérée.

Un problème similaire est rencontré lors de la mise sous flexion des languettes. Les blocs centraux sont adaptés pour des alliages zirconium. Le plus petit bloc qui crée la plus faible contrainte suffit à déformer plastiquement les languettes. La contrainte appliquée est alors plus complexe à calculer.

Enfin une forte contamination de la surface est intervenue au cours de l'expérience empêchant de bonnes observations MET. Les protocoles standards de nettoyage par plasma n'ont pas permis de récupérer une qualité suffisante d'échantillon.

Aucun résultat quantitatif ou qualitatif n'a pu être extrait de cette expérience.

ANNEXE A4 : Paramètres pour le calcul des flux de défauts ponctuels vers les puits

Température	300 K	Taille des boucles de dislocations	10 nm
Volume atomique	$1,18 \cdot 10^{-29} \text{ m}^3$	Biais d'absorption des interstitiels par les boucles de dislocations	1,1
Enthalpie de formation des lacunes	1,28 eV	Biais d'absorption des lacunes par les boucles de dislocations	1
Enthalpie de formation des interstitiels	3 eV	Densité de SFT	$2,5 \cdot 10^{23} \text{ m}^{-3}$
Enthalpie de migration des lacunes	0,7 eV	Taille de SFT	2,5 nm
Enthalpie de migration des interstitiels	0,11 eV	Biais d'absorption des interstitiels par les SFT	1
Terme préexponentiel de diffusion des lacunes	$1,3 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	Biais d'absorption des lacunes par les SFT	1
Terme préexponentiel de diffusion des interstitiels	$7,5 \cdot 10^{-7} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	Taille de grains	500 nm
Rayon de recombinaison	0,79 nm	Taux de création	$6 \cdot 10^{-4} \text{ dpa} \cdot \text{s}^{-1}$
Densité de dislocations	$4 \cdot 10^{12} \text{ m}^{-2}$		
Biais d'absorption des interstitiels par les dislocations	1,1		
Biais d'absorption des lacunes par les dislocations	1		
Densité de boucles de dislocation	10^{20} m^{-3}		

ANNEXE A5 : Expérience *in situ*. Observations MET des micromachines sous irradiation

Les premières micromachines sur lame MET ont pu être réalisées avec succès en juin 2016. La dernière étape de fabrication, la gravure face arrière du silicium, est réalisée à l'Institut d'Electronique de Microélectronique et Nanotechnologie de Lille. Les épaisseurs des films déposés sont de 74 nm pour Si_3N_4 , 4 nm pour Cr et 200 nm pour Cu. Du fait de la très faible ductilité du cuivre, toutes les éprouvettes présentant des réductions de section ont atteint la rupture lors du relâchement. Seules les séries de type B sont utilisables, Figure A. 8.

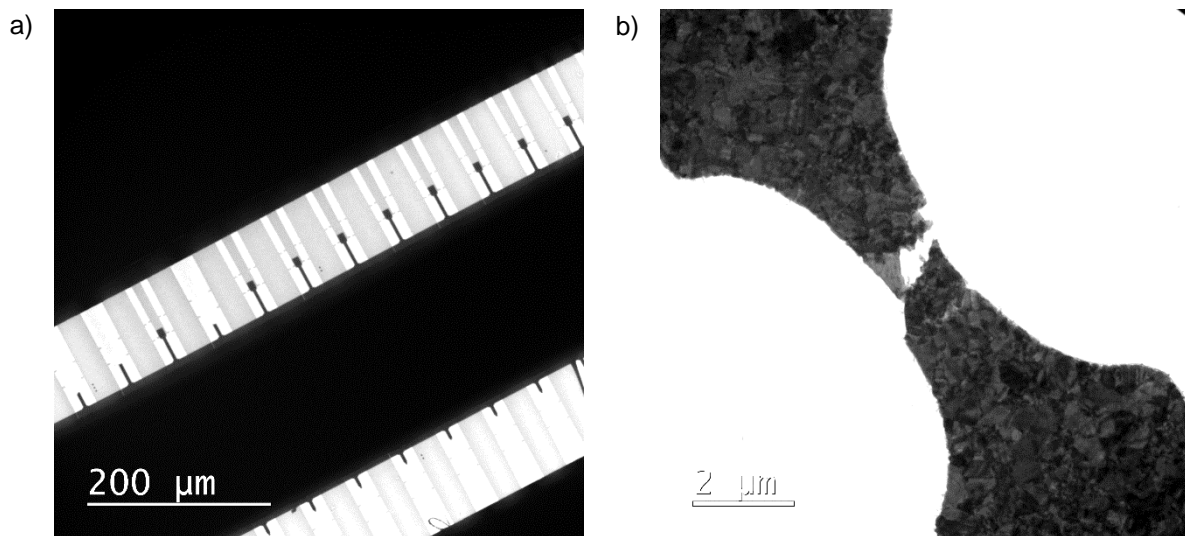


Figure A. 8: Observation MET a) d'une série B de micromachines et b) d'une éprouvette avec réduction de section.

Une demande de faisceau pour utiliser ces échantillons dans un MET sous irradiation a été déposée auprès de JANNUS Orsay. Cette demande a été acceptée et un créneau de deux journées a été obtenu pour les 11 et 12 octobre 2016. Malheureusement, suite à un incident sur le microscope électronique, les observations n'ont pas pu être effectuées. Néanmoins la réalisation de ces échantillons démontrent la faisabilité de l'étude sous irradiation dans un MET.

ANNEXE A6 : Article méthode

Journal of Nuclear Materials 476 (2016) 20–29



Contents lists available at ScienceDirect

Journal of Nuclear Materials

journal homepage: www.elsevier.com/locate/jnucmat



A novel on chip test method to characterize the creep behavior of metallic layers under heavy ion irradiation



P. Lapouge ^{a,*}, F. Onimus ^a, R. Vayrette ^{b,c}, J.-P. Raskin ^{c,d}, T. Pardoën ^{b,d}, Y. Bréchet ^e

^a Service de recherches Métallurgiques Appliquées, CEA Saclay 91191 Gif-sur-Yvette, France

^b Institute of Mechanics, Materials and Civil Engineering, Université catholique de Louvain, 1348, Louvain-la-Neuve, Belgium

^c Institute of Information and Communication Technologies, Electronics and Applied Mathematics, Université catholique de Louvain, 1348, Louvain-la-Neuve, Belgium

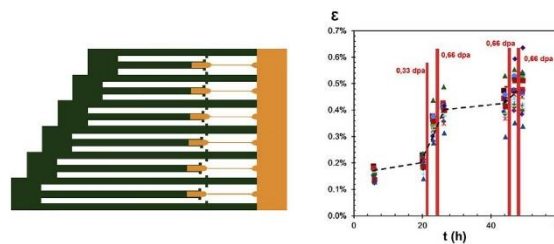
^d Research Center in Micro and Nanoscopic Materials and Electronic Devices, Université catholique de Louvain, 1348, Louvain-la-Neuve, Belgium

^e CNRS SIMAP/Univ. Grenoble Alpes, F-3800, Grenoble, France

HIGHLIGHTS

- On chip method developed to test freestanding films under ion irradiation.
- Several tens of *in situ* irradiation creep tests performed simultaneously.
- Technique successfully validated on 200 and 500 nm thick Cu films.
- Fast creep rates measured in Cu films due to irradiation.

GRAPHICAL ABSTRACT



ARTICLE INFO

Article history:

Received 18 January 2016

Received in revised form

31 March 2016

Accepted 9 April 2016

Available online 11 April 2016

ABSTRACT

An on chip test method has been developed to characterize the irradiation creep behavior of thin freestanding films under uniaxial tension. The method is based on the use of a long beam involving large internal stress protected from the irradiation flux that imposes a spring like deformation to a specimen. These elementary freestanding structures fabricated using a combination of deposition, lithography and release steps are multiplied with different dimensions in order to test different levels of stress and of initial plastic deformation. The method has been validated on 200 and 500 nm thick copper films under heavy copper ions irradiation. The irradiation creep rate is shown to be at least one order of magnitude larger than in the absence of irradiation.

© 2016 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

The creep deformation response under irradiation of metals and alloys is an important issue for structural materials used in nuclear applications. For instance, it can lead to dimensional instability of cladding tubes and to the decrease of the fastening torque of bolts.

The creep behavior of stainless steels, zirconium alloys or Inconel 718 is usually assessed by conducting experiments on bulk material samples in test reactors under combined fast neutron flux and applied mechanical load [1,2]. These experiments require long duration of irradiation in order to reach significant doses, are expensive and lead to the activation of the material with all the associated complications in subsequent handling and characterization of the samples. Furthermore, these experiments do not permit *in situ* observations of the deformation mechanisms at the

* Corresponding author.

E-mail address: pierre.lapouge@cea.fr (P. Lapouge).

<http://dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2016.04.014>

0022-3115/© 2016 Elsevier B.V. All rights reserved.

microscopic scale.

The use of ion irradiation and, in particular, heavy ion irradiation is a way to circumvent these problems. Indeed, the damage rate under heavy ion irradiation is several orders of magnitude higher than with neutrons [3,4], the materials are not activated and some facilities are compatible with *in situ* experiments such as at the JANNUS platform in France [5] coupled to Transmission Electron Microscopy (TEM). The main drawback is the limited penetration depth of the ions around a few tens of micrometers for light ions (typically 30 μm for 2 MeV protons in Zr) and usually not more than a few micrometers for heavy ions (typically 3 μm for 12 MeV Zr ions). Therefore, the mechanical tests must be adapted to probe the response of very small volumes of materials.

Nanoindentation is the first method of choice to characterize the mechanical response of micron or submicron sized volumes of irradiated material [6–11]. The limitations with nanoindentation are the difficulty to extract information about material failure as well as to identify complete viscoplastic hardening laws. Furthermore, it is still difficult to perform long term creep in an accurate way due to stability issues of the electronics or thermal drift effects. Several authors have conducted thermal creep experiments on various metals and alloys [12–14]. Nevertheless the extraction of the creep behavior from nanoindentation test remains tricky [15]. The complications to perform *in situ* nanoindentation measurements during exposure to the ion flux are also difficult to overcome. More recently, micro-pillar compression and micro-cantilever beam bending have been developed owing to the use of Focus Ion Beam (FIB) milling and of precise nanomechanical instrumentation [14,16–23].

However, these techniques have been essentially applied to assess the post-irradiation mechanical behavior of materials.

Very recently, Tai et al. [24] proposed a version of bulge test in which a pressure is applied, with a gas flow, on one side of a thin copper membrane while an ion beam irradiates the other side. The strain rate ($\dot{\epsilon}$) in the copper film normalized by the damage rate (in dpa. s^{-1}) under ion irradiation is equal to $0.5 \times 10^{-3} \text{ dpa}^{-1}$ under a stress of a few MPa.

At a larger scale, irradiation creep experiments have also been designed using light ions such as protons or helium ions [25,26] or even high energy xenon ions [27]. The irradiation depth may reach several tenth micrometers, allowing to test nearly a bulk material. However, in that case the issue of the deposited power must be addressed with care, the experiment is often limited to low doses and foreign species may also be implanted in the material. Furthermore, it is difficult to adapt this type of experiment inside a TEM.

In this work, an original extension of an on-chip tensile test method [28] has been developed, relying on thin film specimens to characterize the mechanical response under irradiation by heavy ions (self-ion irradiation) with a specific focus on irradiation creep. The objective of this paper is to describe the test method and to assess it in an application on copper films. Even though the most challenging and novel aspect is the creep under irradiation, the method can be used to address irradiation hardening but for which nanoindentation or other methods are also available.

2. Experimental methods

2.1. Description of the elementary on-chip deformation method

The test specimens are produced in the following way starting with a silicon substrate: (i) a sacrificial layer of silica, intended to be etched away, is deposited first; (ii) second, an amorphous silicon nitride (Si_3N_4) film is deposited with large internal stress in tension and patterned by photolithography in the form of a very long beam;

(iii) third, the specimen layer (here a copper film) is deposited and patterned with a dog bone shape. An overlap between the copper beam and the actuator beam ensures a sufficiently wide contact zone between the two beams [29]. The final geometry of the elementary test configuration is shown in Fig. 1. Small cursors are also introduced in the overlap region.

When the sacrificial layer is removed, the internal stress in the actuator relaxes leading to the contraction of the actuator and to the deformation of the specimen beam until force equilibrium is attained, see Fig. 1 a. The displacement, after reaching the equilibrium position, of the overlap between the copper beam and the actuator is measured at high magnification using a Field Emission Gun (FEG) Scanning Electron Microscope (SEM). The deformation (ϵ) and the applied stress (σ) of the specimen can be extracted based on the measured displacement (u) and mismatch strain in the actuator prior to release (ϵ_a^{mis}) with the following relationship:

$$\begin{cases} \epsilon = \frac{u}{L} \\ \sigma = \frac{S_a}{S} E_a \left(-\frac{u}{L_a} - \epsilon_a^{mis} \right) \end{cases} \quad (1)$$

where L and S are the specimen beam length and cross-section area respectively, L_a and S_a the actuator beam length and cross-section area respectively, E_a the actuator Young's modulus. The mismatch strain, also called misfit strain or transformation strain [30] represents the change of dimensions of the film independent of the stress such as due to thermal expansion, microstructure evolution or epitaxial strain. Due to the constraint imposed by the substrate, this mismatch strain is compensated by an equal and opposite elastic strain which leads to the internal stress.

The actuator acts thus also as a stress sensor. As a consequence, one structure gives one point in the specimen stress-strain response. The longer is the actuator beam, the larger is the deformation imposed to the specimen. By designing several test structures with various actuator lengths, several equilibrium points can be obtained and therefore several points of the stress-strain curve, see Fig. 1 b. The further stress relaxation of the specimen beams will still be following the linear behavior of the actuator, see grey points in Fig. 1 c. Hundreds to thousands of tests are performed at the same time "on a chip". Further information on the method can be found in Refs. [29,31,32]. This method was, for instance, already used with success to assess the stress relaxation of palladium films at room temperature [33–35]. SEM micrographs showing one array of test structures and a zoom on one specimen are provided in Fig. 2.

In order to determine accurate stress and strain values in the test specimen, the results were analyzed by taking into account some correcting factors in the data reduction scheme as explained in Ref. [32]. In this approach, the system is decomposed into smaller sections to take into account the deformation of the irradiated parts and the elastic deformation of the junction regions. As explained in Refs. [33,36], the technique can be extended to creep analysis by letting the structure deform with time while measuring the displacements at different time intervals.

2.2. Extension to irradiation conditions

In the present study, the on-chip method is particularized to the following set of parameters and of configurations. Each tensile test structure is a member of a series of 40 structures. In each series, every specimen beam has the same length and the same width. Two arrays of structures with 6 μm -wide specimen beams are addressed: one with 50 μm -long and the other one with 100 μm -long specimen beams. The choice was made to irradiate the 50 μm -

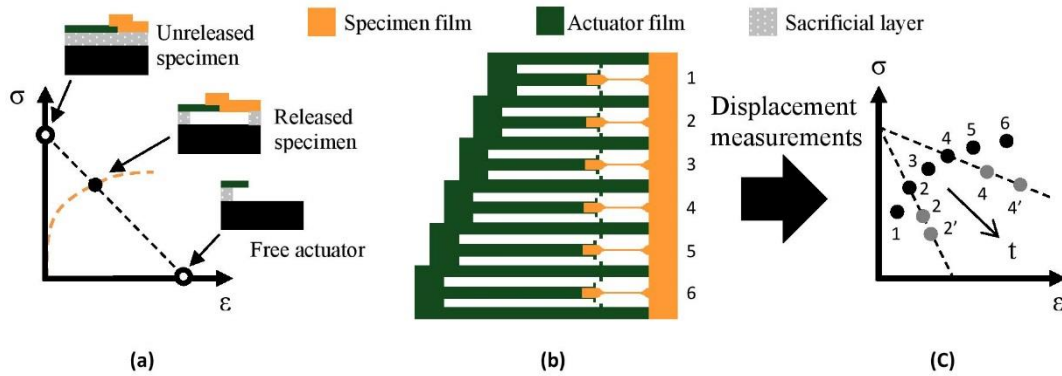


Fig. 1. Basic principle of the method for the extraction of the stress-strain curve up to the fracture.

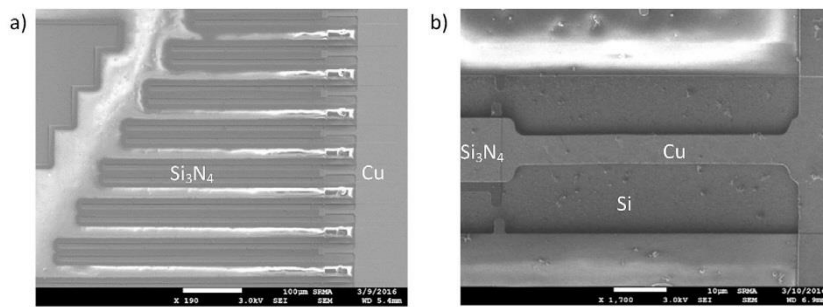


Fig. 2. SEM observations of a part of (a) the full array, and (b) a specimen beam.

long array while protecting with a masking device the 100 μm -long array from the irradiation, see Fig. 3.

The masking device was specifically designed for this experiment. This device, shown in Fig. 4, allows the alignment of a steel sheet a few hundreds of micrometers above the sample with a precision of 5 μm in translation and less than 1° in rotation. The idea is not only to entirely mask one array of test structures but also to protect the actuator beams involved in the structures undergoing the irradiation. The importance of masking the actuator beam will be justified in details later.

Starting from the on-chip unreleased test structures, the different steps of an irradiation creep experiment are described hereafter. After the initial etching of the sacrificial layer, a first measurement of the displacement of each beam is performed by SEM. This first measurement, performed just after the release of the

actuator, provides the initial stress-strain curve of the material. Then, the samples are installed on the masking device and the mask is carefully aligned to protect the actuators of the specimen beams of interest. The set of test structures is irradiated at room temperature with ions (Cu^+) at CSNSM/IN2P3/CNRS [5]. After irradiation, the displacements of the cursors are measured again for each beam. These measurements correspond to the new equilibrium positions of the cursors after stress relaxation that occurred in the test beams under irradiation. The sample is installed again on the masking device and a new irradiation step is performed. Thanks to this procedure, the progressive deformation under irradiation of the copper beams can be studied. In the same time, the control samples, fully protected by the mask, provide the deformation evolution without irradiation.

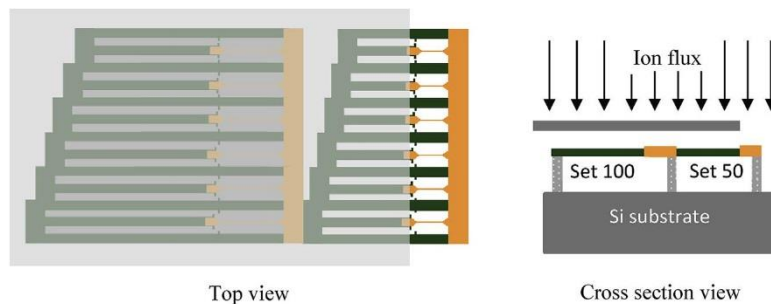


Fig. 3. Test configuration for ions irradiation of the on-chip test specimens. The array with the specimen beams of 50 μm length is irradiated while the array with the 100 μm -long specimen beams is left unirradiated.

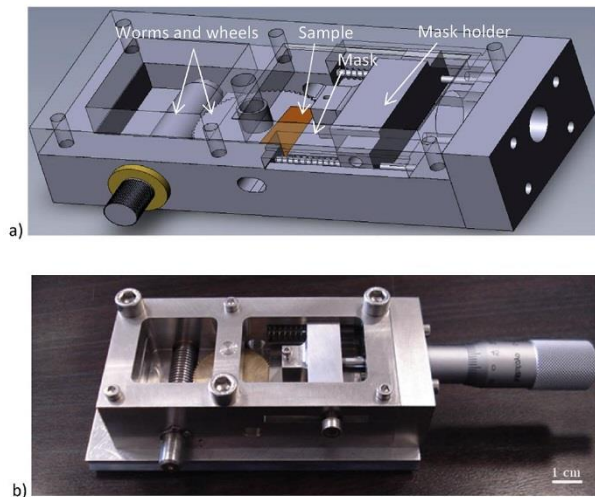


Fig. 4. (a) Schematic of the masking device drawn with Solidworks®, (b) picture of the masking device.

copper has been selected as the specimen material for the present proof-of-concept investigation. Copper was chosen mainly because its behavior under irradiation has been investigated in some details in the past [41–43] and for its easiness of deposition in thin film form. More details concerning the processing of the different materials layers are given in the Appendix.

Two types of copper film were tested: one with 200 nm thickness (experiment #1) and another one with 500 nm thickness (experiment #2). The microstructures obtained after the processing of the two types of samples are quite similar. The grain orientation distribution follows a fiber texture with one plane {111} parallel to the surface of the sample. Furthermore, the grains exhibit a columnar shape along the thickness direction, see later Fig. 9-a. The mean grain size obtained by electron backscatter diffraction (EBSD) for the 200 nm-thick films is about 120 nm and about 530 nm for the 500 nm-thick film, see Fig. 5 a–d.

2.4. Determination of the internal stress evolution in the silicon nitride after irradiation

The behavior of the silicon nitride after irradiation was investigated in a preliminary study in order to determine the possible

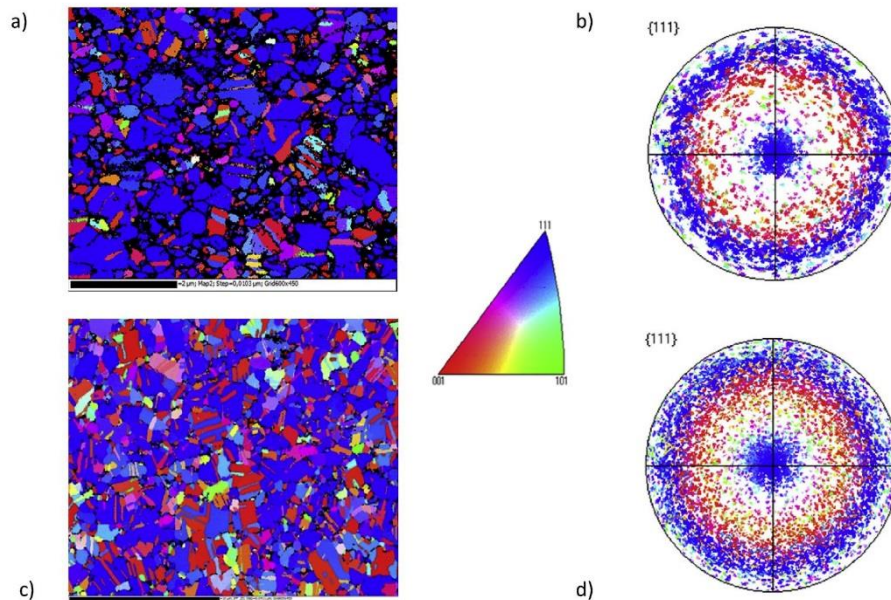


Fig. 5. Inverse pole figure map along the vertical direction and {111} pole figure for (a)–(b) a 200 nm-thick copper film annealed at 150 °C for 25 min and for (c)–(d) a 500 nm-thick copper film annealed at 150 °C for 60 min.

2.3. Description of the materials

The material selected for the actuator is LPCVD (Low Pressure Chemical Vapor Deposition) silicon nitride, which involves large internal elastic strain of around 0.3% (hence the mismatch strain is equal to $\epsilon_d^{mis} \approx -0.3\%$) upon deposition [37–39], corresponding to ~1 GPa internal stress. This material has also the advantages to exhibit purely linear elastic behavior and to involve no internal stress gradient. The sacrificial layer is a 1 μm -thick PECVD (Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition) silicon dioxide. The selectivity between the LPCVD silicon nitride and the PECVD silicon dioxide in concentrated HF etchant is very high [40]. Finally, PVD

impact of the ion beam on internal stress. A 210 nm-thick LPCVD Si_3N_4 layer was deposited on a silicon wafer under the same conditions as for the on-chip tensile test structures. The wafer was then diced in several smaller samples. Two samples were respectively irradiated at room temperature up to a dose of either 1.6×10^{13} or 1.6×10^{14} ions/cm² with 600 keV copper ions at CNSM/IN2P3/CNRS in the ARAMIS facility. The SRIM (Stopping and Range of Ions in Matter) damage profile, in the full cascade mode calculation, is given in Fig. 6. The threshold displacement energy (E_d) for the silicon nitride was taken as 15 eV for Si and 28 eV for N.

After irradiation, microtest structures specifically designed to measure the mismatch strain in the films were fabricated by

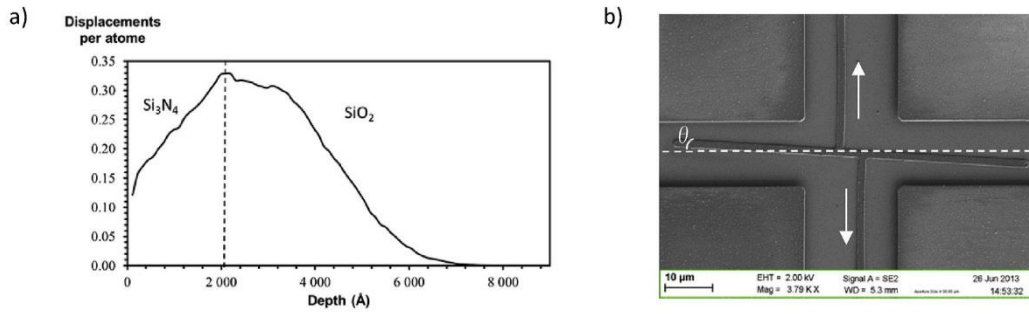


Fig. 6. (a) Damage profile at 1.6×10^{14} ions/cm² with 600 keV copper ions in Si_3N_4 , (b) Example of one rotating sensor used for the determination of the internal stress.

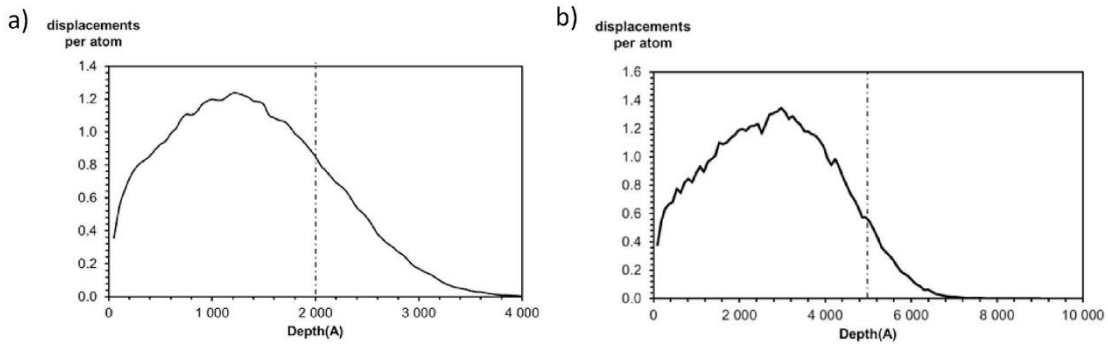


Fig. 7. (a) Damage profile at 1.6×10^{14} ions/cm² with 600 keV copper ions in copper, (b) Damage profile at 2×10^{14} ions/cm² with 1200 keV copper ions in copper.

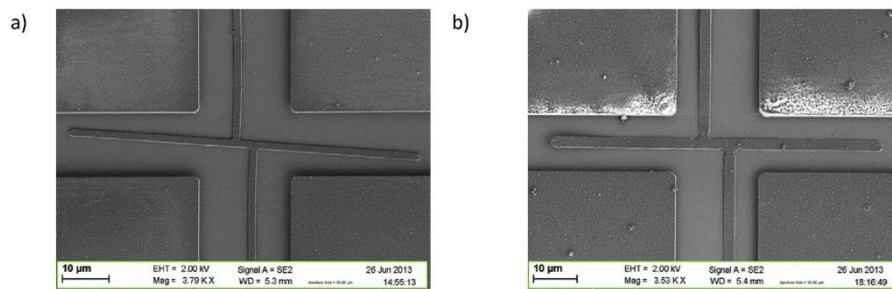


Fig. 8. Rotating sensor for (a) the unirradiated Si_3N_4 , (b) Si_3N_4 irradiated to 1.6×10^{14} ions/cm².

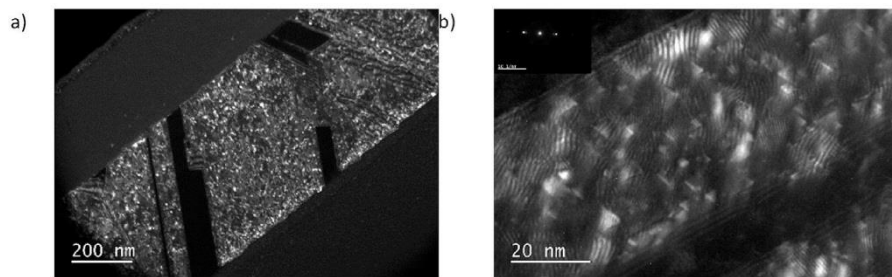


Fig. 9. TEM observations in cross section of the irradiated 500 nm sample: (a) 3 dpa and (b) 1 dpa.

lithography. The mismatch strain (ϵ_{mis}) must be known with high precision in order to determine accurately the stress value using Eq.

(1). These structures, named “rotating sensor”, are represented in Fig. 6–b. After release, two arms attached to a transverse beam

contract leading to the rotation of the beam. The higher the internal stress the more important is the rotation angle of the central beam. The mismatch strain can be extracted based on the following relationship (2):

$$\epsilon_{mis} = \frac{1}{2} \frac{d\theta \left(1 + \frac{4}{3} \frac{w^2}{d^2}\right)}{l - d\theta} \quad (2)$$

where ϵ_{mis} is the mismatch strain, w is the width of the beams, d is the distance between the two arms attached to the central beam, l the length of the arms, and θ the rotation angle of the central beam [44].

2.5. Description of the irradiation creep test campaign

Two campaigns were performed to assess the method described in this paper. First, a sample with a copper film thickness of 200 nm and an actuator thickness of 80 nm (the width of the beams being, respectively, 6 μm and 15 μm) was irradiated in a single step up to a dose of 1 dpa with 600 keV Cu ions at room temperature at CNSM/IN2P3/CNRS on the ARAMIS facility [5]. The damage profile calculated by SRIM with $E_d = 25$ eV, is given in Fig. 7-a. Then, based on the experience gained during the first campaign, a second sample with a 500 nm thick Cu film and a 50 nm thick actuator was irradiated in 5 steps up to a dose of 2.66 dpa with 1200 keV Cu ions. The damage profile calculated by SRIM is given in Fig. 7-b. The indicated doses correspond to the mean value given by SRIM through the thickness of the film. As can be seen in Fig. 7, the damage is not uniform in the sample. The damage gradient in the thickness may have an impact on the deformation of the film. A better uniformity could be achieved by using a higher ion energy at the expense of the damage rate. Hence the choice was made to maximize the damage rate in the film to allow shorter irradiation duration.

The thickness of the film was measured by profilometry after etching of the sacrificial layer. The displacements of the cursors of each beam are systematically measured before and after every irradiation step.

The conditions of the two experiments are summarized in Table 1.

3. Results

3.1. Irradiation induced internal stress relaxation in the actuator

The rotating sensors patterned in the silicon nitride film, before or after irradiation, exhibit a significant change of the rotation angle before and after irradiation as shown in Fig. 8. Accurate measurements of the rotation angle prove that the initial mismatch strain in the silicon nitride is equal to -0.36% which corresponds to an internal stress around 1 GPa. After an irradiation up to a dose of 1.6×10^{13} ions/cm² with 600 keV copper ions, the mismatch strain drops down to -0.25% . After a dose of 1.6×10^{14} ions/cm² the relaxation is almost complete, the mismatch strain measured being equal to -0.03% (Fig. 8 a–b). Since it is of prime importance that the actuator can apply a sufficiently large deformation to the Cu specimen, the actuator must thus be protected to maintain the

mismatch strain to the original level. Therefore, the actuator in (Si_3N_4) was systematically screened from the ion beam by the masking device.

Moreover, it was found that during the etching in HF of the sacrificial silica layer, the silicon nitride beam irradiated at a dose of 1.6×10^{14} ions/cm² was also etched at a rate higher by at least a factor of 3 compared with the etching rate of the unirradiated silicon nitride. If the irradiation takes place before the release, this can lead to a significant decrease of the thickness of the actuator that must be carefully measured after etching in order to accurately quantify the actual applied stress on the specimen, see eq (1).

The internal stress relaxation and the etching rate increase measured in the irradiated silicon nitride are consistent with the data given in the literature [37,45,46]. Further experiments, using self-actuated silicon nitride beams, tested under irradiation, could also be done, in a future prospect, to confirm these results.

3.2. Effect of irradiation on the microstructure of the copper film

After irradiation of a 500 nm-thick film irradiated up to 1 dpa, Focus Ion Beam milling (FIB) was used to prepare TEM thin foil. The irradiation defects were then imaged in the thickness of the film, using a 200 kV JEOL TEM. By using weak beam dark field technique, with a $g = \{200\}$ diffraction vector, Stacking Fault Tetrahedra (SFT) are observed similar to bulk Cu [47–49]. No difference in the density and size of the SFT were found when comparing a 100 nm grain size Cu films and a bulk Cu sample with a grain size of the order of 20 μm irradiated in the same condition. This proves that there is no particular size effect on the irradiation defects related to the small grain size of the Cu film. This does obviously not mean that the small grain size has no effect on the plasticity and the creep behavior.

3.3. Irradiation creep results

After release, only the first 10 specimens with the smallest actuator lengths out of the 40 structures of the irradiated array did not break on the 200 nm-thick sample, while for the 500 nm-thick samples, none of the structures reached failure. This is due to the fact that thicker samples resist better to the contraction of the actuator beam and deform thus much less.

Fig. 10 a–b show the variation as a function of time, of the strain and of the stress for the 10 structures of the irradiated array with the 200 nm-thick samples. The time “ $t = 0$ h” corresponds to the time at the end of the release. The samples were irradiated about 27 h after the release of the structures. It can be seen that the irradiation at a dose of 1 dpa leads to a clear increase of the deformation, between 0.4 and 0.8% and a significant decrease of the applied stress (by 100–200 MPa). This stress drop comes from the spring type behavior of the actuator. Indeed, an increase of the deformation leads to a decrease of the applied stress on the specimen beam, see eq (1).

It has been checked on the unirradiated arrays of each sample that there is no change of slope before and after each irradiation step. The thermal creep of these arrays is identical to the thermal creep observed on the irradiated arrays before irradiation. Hence, the steps observed in Fig. 10 are the result of the ion irradiation

Table 1
Summary of the conducted experiments at room temperature.

	Number of irradiation steps	Energy of copper ions	Maximum dose reached	Maximum damage reached	Damage rate
Experiment #1	1	600 keV	1.6×10^{14} ions/cm ²	1 dpa	2.26×10^{-4} dpa/s
Experiment #2	4	1200 keV	4.6×10^{14} ions/cm ²	2.33 dpa	7.8×10^{-4} dpa/s

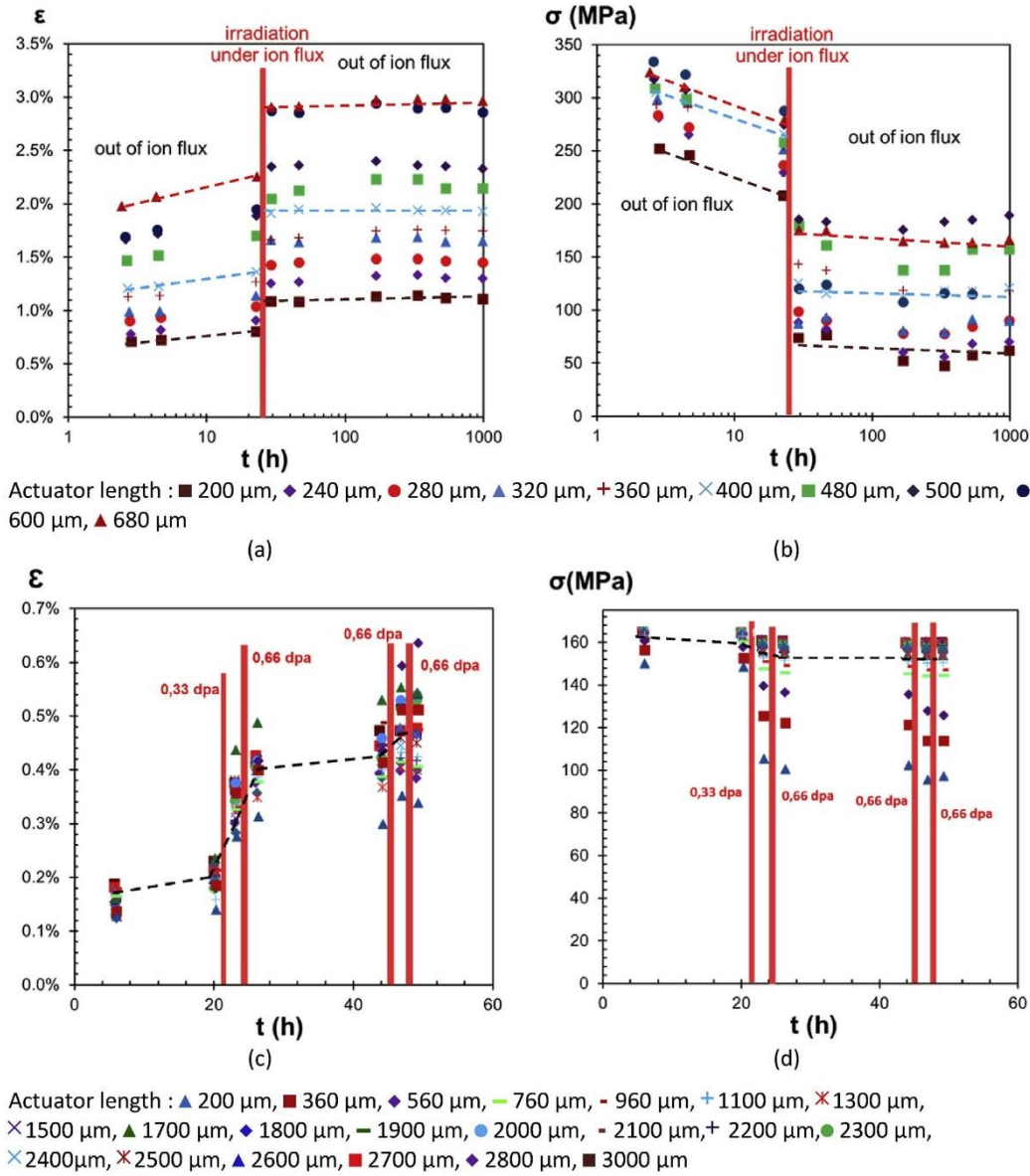


Fig. 10. Variation of the specimen strain and of the applied stress as a function of time (a–b) for the 200 nm-thick copper film and (c–d) for the 500 nm-thick copper film.

only.

The results for the 500 nm film are displayed in Fig. 10 c–d. This time, the use of test structures with longer actuators leads to only very small variations of the applied stress, less than 10 MPa. The loading is thus close to a pure creep test. These structures were not available on the 200 nm-thick sample because of failure occurring for the longest actuators.

The irradiation creep response can be extracted from these data, see Fig. 11. Indeed, the irradiation creep strain increment can be defined as the difference between the measured strains before and after one irradiation step. Hence, the irradiation creep strain ϵ_{irr} can be defined as:

$$\begin{cases} \epsilon_{irr}(t_0) = 0 \\ \epsilon_{irr}(t_{i+1}) = \epsilon_{irr}(t_i) + \epsilon(t_{i+1}) - \epsilon(t_i) \end{cases} \quad (3)$$

where $\epsilon(t_i)$ is the total strain of sample at the given time t_i .

This assumes that the thermal creep contribution at room temperature during the short irradiation step is negligible and that the entire creep strain is due to an irradiation effect. Once again the creep contribution in unirradiated conditions is much smaller than under irradiation as can be observed from the long interval between two irradiations.

The line drawn in Fig. 10 corresponds to the mean value for the fifteen longest irradiated structures. Indeed, there is a difference of less than 5 MPa among all those specimens which makes the

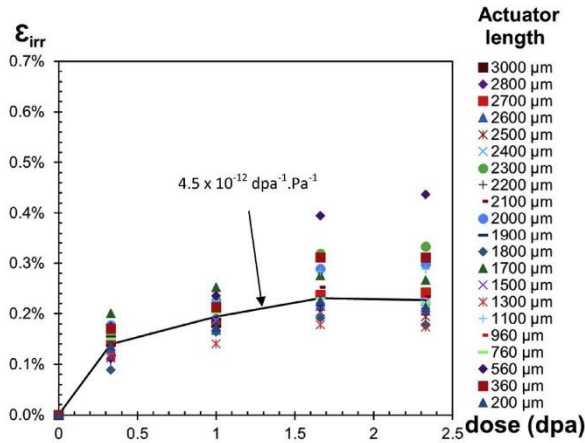


Fig. 11. Irradiation creep curve for the 500 nm-thick copper films.

average value relevant to represent the overall behavior. After what seems to be a primary transient creep regime (<0.3 dpa), the strain rate seems relatively constant, at least up to a dose of 1.67 dpa (within the experimental scatter). In the absence of void swelling, the strain rate in the secondary creep regime is often represented as linear in stress σ and flux ϕ [50], $\dot{\epsilon}_{irr} = K\phi\sigma$. Assuming this phenomenological relationship, the irradiation creep compliance K is found equal to $4.5 \times 10^{-12} \text{ (dpa Pa)}^{-1}$.

4. Discussion

A first key point of discussion is whether the observed accelerated creep response is due to an irradiation creep phenomenon or to an enhancement of the thermal creep due to a possible heating of the sample under the ion beam. In order to estimate the temperature evolution during the experiment, a one-dimensional thermal resistance model has been worked out. The model relies on the linear relationship between the temperature difference of two surfaces and the flux through the surfaces if there is no produce energy between the two surfaces. This model does not account for heat losses by convection, as the experiment is performed under vacuum, and by radiation, the experiment being performed at low temperature. With these minor assumptions, the temperature difference between the surface A and B can be written as:

$$T_A - T_B = \sum \frac{e_i}{\lambda_i S} \phi \quad (4)$$

where T_A and T_B are respectively the temperature of the surface A and B of area S ; e_i , λ_i are respectively the thickness and the thermal conductivity of the layer i between A and B; and ϕ is the heat flux through the layers.

The heat flux towards the sample is equal to the deposited power during irradiation. The maximal deposited power per unit of surface is around 210 W/m^2 which is reached for the highest flux at 1200 keV , $1.2 \times 10^{15} \text{ ions/(m}^2 \cdot \text{s)}$. We assume that the wheel, made of bronze, on which the sample is glued with a carbon tape remains at 293 K . As a matter of fact, this wheel is almost not exposed to the ion beam and has a large volume compared to the sample. Between the copper layer and the wheel, a $1 \mu\text{m}$ silica film, a $300 \mu\text{m}$ silicon wafer and a $300 \mu\text{m}$ carbon tape constitute the intermediated layers. The conductivities of silica and silicon are respectively of 1.4 and $148 \text{ W m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ [51], for the carbon tape a value of $1 \text{ W m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ was selected within the expected good order of magnitude

[52]. With this simple model, it can be shown that the temperature increase of the copper film under irradiation on the substrate is only of 0.07 K at the interface between the copper and the silica. This low value is in good agreement with the recommendations of the ARAMIS facility indicating that for a deposited power below 3000 W m^{-2} , the temperature increase under the ion beam is negligible [53,54].

The freestanding beams are linked to the substrate by a copper layer serving as anchor. The same kind of calculation as the one described above shows that the temperature increase at the end of a $50 \mu\text{m}$ long free beam is still below a value of 0.07 K . So the heating of the sample under irradiation is negligible thanks to the low chosen flux and the small geometries of the copper beams.

Tai et al. [24] found a compliance of $1.2 \times 10^{-10} \text{ (dpa Pa)}^{-1}$ with a bulge test applied on thin Cu film irradiated with Kr ions at $200 \text{ }^\circ\text{C}$ whereas Jung [55] obtained a compliance of $6.2 \times 10^{-11} \text{ (dpa Pa)}^{-1}$ for a Cu sheet irradiated under a tension load with protons at a temperature of $150 \text{ }^\circ\text{C}$. The compliance in our work is one order of magnitude lower than the one obtained by Jung at $150 \text{ }^\circ\text{C}$. This could be explained by the fact that our experiment is performed at room temperature which makes all the thermally activated mechanisms, such as dislocation glide, considerably slower. In this respect, the measured compliance seems consistent with the results given in the literature.

The strain associated to the irradiation creep is about three times larger in the 200 nm -thick film compared to the 500 nm -thick one. This can probably be attributed to the fact that the initial plastic deformation imposed before creep is larger in the 200 nm film, and therefore a higher dislocation density in the 200 nm -thick film may exist. Furthermore, the grain size is about 120 nm for the 200 nm thick film and about 530 nm for the 500 nm -thick film. The smaller grain size should also induce a higher irradiation creep rate as it is often reported in the literature [1] by favoring the grain boundary mediated mechanisms. More in depth investigations are under way to analyze the physical mechanisms of irradiation driven viscoplastic deformation in these films, involving more tests as *in situ* TEM studies.

The results on the 500 nm -thick films show that a quasi-irradiation creep experiment can be reliably performed with this on-chip tensile test. It also provides a relatively easy way to access the viscoplastic properties of a thin material under irradiation with heavy ions. Furthermore, since the present measurements do not show any strong size effects and are rather consistent with data given in the literature for bulk material irradiated with neutrons [1], the results obtained with this technique could be extrapolated, at least to some extent, to the materials used in nuclear reactors. Nevertheless, this extrapolation should be conducted with care, considering the small size of the specimen and the strong surface effects especially on the absorption of point defects under irradiation.

This technique provides an easy way to apply pure uniaxial loading conditions to a sample fully and quite homogeneously irradiated by heavy ions. The use of heavy ions has the advantage, compared to protons and of course neutrons, to leave the material non-radioactive. Hence the sample can be analyzed as soon as the experiment is over. Moreover, the damage rate is high enough to simulate several years of damage in a nuclear core within a few hours time. It is only limited by the choice of materials which are restricted to materials that can be deposited in the form of thin films. Nowadays, most metallic materials can be deposited, even with complex chemical compositions.

5. Conclusion

An original on-chip method has been extended to characterize

the irradiation creep of freestanding thin film test specimens. The first results obtained under heavy ion irradiation validate the feasibility of this new test method to generate quantitative data. It was shown that the irradiation of the specimen beams of 200 and 500 nm-thick copper films involves significant increase of a few tenths percent of the deformation at room temperature whereas without irradiation, during the same duration, the strain change recorded is almost equal to zero. The extracted creep compliance is consistent when compared to the few other available data.

This novel approach is very promising to acquire *in situ* data on the relaxation or creep phenomena under irradiation. Even if it is limited to materials that can be deposited as thin film, the study of the deformation mechanisms on model materials can be extended to others materials used in nuclear reactors such as nickel alloys. The first interest is for fundamental understanding of the creep mechanisms under irradiation and the validation or the development of physically based model. The second interest is in the case of nanostructured bulk alloys for which thin films constitute acceptable model in terms for instance of grain size. The perspectives of this work involve performing tests at higher temperatures, on other materials and other loading conditions (e.g. notched specimens) while supplementing the results with more microstructural characterization.

Acknowledgments

The authors would like to thank C. Bachelet and S. Picard for their help in conducting the irradiation experiments on the ARAMIS facility at the CNSM/IN2P3/CNRS in Orsay. The authors are also grateful to P. Bonnaille and F. Barcelo for their contribution in the SEM observations at CEA. The authors acknowledge E. Tooten and S. Faniel for their help in operating in clean room at UCL.

Appendix. Details concerning the fabrication process of the samples

The process starts with the deposition of the 1 μm -thick PECVD silicon dioxide on a 3-inch Si wafer at 300 °C and 675 mTorr. The $\text{SiH}_4/\text{N}_2\text{O}/\text{N}_2$ gas flow is set at a proportion of 100/700/300 sccm. Then the LPCVD silicon nitride is deposited at 790 °C and 250 mTorr with $\text{SiH}_2\text{Cl}_2/\text{NH}_3$ gas flow in the proportion of 75/49 sccm. A densification step at 800 °C of the silicon oxide before the deposition of the silicon nitride is required to decrease the internal stress in the sacrificial layer and prevent the crack formation in the actuator film. Afterwards, the silicon nitride is patterned by photolithography and SF_6 plasma etching.

Eventually, the PVD copper film is deposited at room temperature under a pressure of 0.1 mTorr and a deposition rate of a few $\text{\AA}/\text{s}$. A very thin layer of PVD chrome is deposited just before the copper to promote the adherence of the copper on the silicon nitride. The pattern is revealed after a lift off process. Since the microstructure of the deposited copper was found to be evolving at room temperature, an annealing at 150 °C is performed to stabilize the grain size. The samples are finally immersed in 73% HF solution (release step) and dry in a critical point dryer to set the test structures free standing.

References

- [1] E.S. Aitkhozhin, E.V. Chumakov, Radiation-induced creep of copper, aluminium and their alloys, *J. Nucl. Mater.* 233–237 (Oct. 1996) 537–541.
- [2] S. Carassou, C. Duguay, P. Yvon, F. Rozenblum, J.M. Cloué, V. Chabretou, C. Bernaudat, B. Levasseur, A. Maurice, P. Bouffieux, K. Audic, P. Barberis, S.W. Dean, REFLET experiment in OSIRIS: relaxation under flux as a method for determining creep behavior of zirconium assembly components, *J. ASTM Int.* 7 (8) (2010) 103065.
- [3] L. Tournadre, F. Onimus, J.-L. Béchade, D. Gilbon, J.-M. Cloué, J.-P. Mardon, X. Feugas, O. Toader, C. Bachelet, Experimental study of the nucleation and growth of c-component loops under charged particle irradiations of recrystallized Zircaloy-4, *J. Nucl. Mater.* 425 (1–3) (Jun. 2012) 76–82.
- [4] G.S. Was, Z. Jiao, E. Getto, K. Sun, A.M. Monterrosa, S.A. Maloy, O. Anderoglu, B.H. Sencer, M. Hackett, Emulation of reactor irradiation damage using ion beams, *Scr. Mater.* 88 (Oct. 2014) 33–36.
- [5] Y. Serruys, P. Trocellier, S. Miro, E. Bordas, M.O. Ruault, O. Kaïtasov, S. Henry, O. Leseigneur, T. Bonnaille, S. Pellegrino, S. Vaubailon, D. Uriot, JANNUS: a multi-irradiation platform for experimental validation at the scale of the atomistic modelling, *J. Nucl. Mater.* 386–388 (Apr. 2009) 967–970.
- [6] P. Dayal, D. Bhattacharyya, W.M. Mook, E.G. Fu, Y.-Q. Wang, D.G. Carr, O. Anderoglu, N.A. Mara, A. Misra, R.P. Harrison, L. Edwards, Effect of double ion implantation and irradiation by Ar and He ions on nano-indentation hardness of metallic alloys, *J. Nucl. Mater.* 438 (1–3) (Jul. 2013) 108–115.
- [7] C.D. Hardie, S.G. Roberts, A.J. Bushby, Understanding the effects of ion irradiation using nanoindentation techniques, *J. Nucl. Mater.* 462 (Jul. 2015) 391–401.
- [8] Y. Yang, S.H. Kang, C. Zhang, J. Jang, Nanoindentation on an oxide dispersion strengthened steel and a ferritic/martensitic steel implanted with He ions, *J. Nucl. Mater.* 455 (1–3) (Dec. 2014) 325–329.
- [9] L.L. Snead, S.J. Zinkle, D. Steiner, Radiation induced microstructure and mechanical property evolution of SiC/C/SiC composite materials, *J. Nucl. Mater.* 191–194 (Sep. 1992) 560–565.
- [10] P. Hosemann, J.G. Swadener, D. Kiener, G.S. Was, S.A. Maloy, N. Li, An exploratory study to determine applicability of nano-hardness and micro-compression measurements for yield stress estimation, *J. Nucl. Mater.* 375 (1) (Mar. 2008) 135–143.
- [11] H. Oka, Y. Sato, N. Hashimoto, S. Ohnuki, Evaluation of multi-layered hardness in ion-irradiated stainless steel by nano-indentation technique, *J. Nucl. Mater.* 462 (Jul. 2015) 470–474.
- [12] W. Fei, X. Kewei, An investigation of nanoindentation creep in polycrystalline Cu thin film, *Mater. Lett.* 58 (19) (Jul. 2004) 2345–2349.
- [13] C.L. Wang, Y.H. Lai, J.C. Huang, T.G. Nieh, Creep of nanocrystalline nickel: a direct comparison between uniaxial and nanoindentation creep, *Scr. Mater.* 62 (4) (Feb. 2010) 175–178.
- [14] Z. Huang, A. Harris, S.A. Maloy, P. Hosemann, Nanoindentation creep study on an ion beam irradiated oxide dispersion strengthened alloy, *J. Nucl. Mater.* 451 (Aug. 2014) 162–167.
- [15] R. Goodall, T.W. Clyne, A critical appraisal of the extraction of creep parameters from nanoindentation data obtained at room temperature, *Acta Mater.* 54 (20) (Dec. 2006) 5489–5499.
- [16] P. Hosemann, C. Shin, D. Kiener, Small scale mechanical testing of irradiated materials, *J. Mater. Res.* (Apr. 2015) 1–15.
- [17] D. Kiener, P. Hosemann, S.A. Maloy, A.M. Minor, In situ nanocompression testing of irradiated copper, *Nat. Mater.* 10 (8) (Jun. 2011) 608–613.
- [18] S. Özerinç, R.S. Averback, W.P. King, In situ creep measurements on micro-pillar samples during heavy ion irradiation, *J. Nucl. Mater.* 451 (Aug. 2014) 104–110.
- [19] J.A. Sharon, K. Hattar, B.L. Boyce, L.N. Brewer, Compressive properties of $\langle 110 \rangle$ Cu micro-pillars after high-dose self-ion irradiation, *Mater. Res. Lett.* 2 (2) (Apr. 2014) 57–62.
- [20] J.D.M.F.M. Halliday, D.E.J. Armstrong, S.G. Roberts, Nanoindentation and micromechanical testing of iron-chromium alloys implanted with iron ions, *Adv. Mater. Res.* 59 (2009) 304–307.
- [21] J. Gibson, D. Armstrong, S. Roberts, The micro-mechanical properties of ion irradiated tungsten, *Phys. Phys. Scr.* T159 (Apr. 2014) 014056.
- [22] D.E.J. Armstrong, C.D. Hardie, J.S.K.L. Gibson, A.J. Bushby, P.D. Edmondson, S.G. Roberts, Small-scale characterisation of irradiated nuclear materials: Part II nanoindentation and micro-cantilever testing of ion irradiated nuclear materials, *J. Nucl. Mater.* 462 (Jul. 2015) 374–381.
- [23] J.-Y. Kim, D. Jang, J.R. Greer, Tensile and compressive behavior of tungsten, molybdenum, tantalum and niobium at the nanoscale, *Acta Mater.* 58 (7) (Apr. 2010) 2355–2363.
- [24] K. Tai, R.S. Averback, P. Bellon, Y. Ashkenazy, Irradiation-induced creep in nanostructured Cu alloys, *Scr. Mater.* 65 (2) (Jul. 2011) 163–166.
- [25] C. Xu, G.S. Was, In situ proton irradiation creep of ferritic–martensitic steel T91, *J. Nucl. Mater.* 441 (1–3) (Oct. 2013) 681–687.
- [26] J. Chen, P. Jung, J. Henry, Y. de Carlan, T. Sauvage, F. Duval, M.F. Barthe, W. Hoffelner, Irradiation creep and microstructural changes of ODS steels of different Cr-contents during helium implantation under stress, *J. Nucl. Mater.* 437 (1–3) (Jun. 2013) 432–437.
- [27] J. Huguët-Garcia, A. Jankowiak, S. Miro, T. Vandenberghe, C. Grygiel, I. Monnet, J.-M. Costantini, In situ characterization of ion-irradiation enhanced creep of third generation Tyranno SA3 SiC fibers, *J. Mater. Res.* 30 (09) (May 2015) 1572–1582.
- [28] D. Fabrègue, N. André, M. Coulombier, J.P. Raskin, T. Pardoën, Multipurpose nanomechanical testing machines revealing the size-dependent strength and high ductility of pure aluminium submicron films, *Micro Nano Lett.* 2 (1) (2007) 13.
- [29] S. Gravier, M. Coulombier, A. Safi, N. Andre, A. Boe, J.-P. Raskin, T. Pardoën, New on-chip nanomechanical testing laboratory - applications to aluminium and polysilicon thin films, *J. Microelectromech. Syst.* 18 (3) (Jun. 2009) 555–569.
- [30] L.B. Freund, S. Suresh, *Thin Film Materials, Stress, Defect Formation and*

- Surface Evolution, Cambridge University Press, 2008.
- [31] U. Bhaskar, V. Passi, S. Hourii, E. Escobedo-Cousin, S.H. Olsen, T. Pardoën, J.-P. Raskin, On-chip tensile testing of nanoscale silicon free-standing beams, *J. Mater. Res.* 27 (03) (Feb. 2012) 571–579.
- [32] R. Vayrette, J.-P. Raskin, T. Pardoën, On-chip fracture testing of freestanding nanoscale materials, *Eng. Fract. Mech.* 150 (Dec. 2015) 222–238.
- [33] M. Coulombier, G. Guisbiers, M.-S. Colla, R. Vayrette, J.-P. Raskin, T. Pardoën, On-chip stress relaxation testing method for freestanding thin film materials, *Rev. Sci. Instrum.* 83 (10) (2012) 105004.
- [34] M.-S. Colla, B. Amin-Ahmadi, H. Idrissi, L. Malet, S. Godet, J.-P. Raskin, D. Schryvers, T. Pardoën, Dislocation-mediated relaxation in nanograined columnar palladium films revealed by on-chip time-resolved HRTEM testing, *Nat. Commun.* 6 (Jan. 2015) 5922.
- [35] G. Guisbiers, M.-S. Colla, M. Coulombier, J.-P. Raskin, T. Pardoën, Study of creep/relaxation mechanisms in thin freestanding nanocrystalline palladium films through the lab-on-chip technology, *J. Appl. Phys.* 113 (2) (2013) 024513.
- [36] M.-S. Cola, *Plasticity and Creep in Thin Free-standing Nanocrystalline Pd Films*, UCL, Louvain-La-Neuve, 2014.
- [37] O. Tabata, S. Sugiyama, M. Takigawa, Control of internal stress and Young's modulus of Si₃N₄ and polycrystalline silicon thin films using the ion implantation technique, *Appl. Phys. Lett.* 56 (14) (1990) 1314.
- [38] A. Boé, A. Safi, M. Coulombier, T. Pardoën, J.-P. Raskin, Internal stress relaxation based method for elastic stiffness characterization of very thin films, *Thin Solid Films* 518 (1) (Nov. 2009) 260–264.
- [39] J. Laconte, F. Iker, S. Jorez, N. André, J. Proost, T. Pardoën, D. Flandre, J.-P. Raskin, Thin films stress extraction using micromachined structures and wafer curvature measurements, *Microelectron. Eng.* 76 (1–4) (Oct. 2004) 219–226.
- [40] K.R. Williams, K. Gupta, M. Wasilik, Etch rates for micromachining processing-part II, *J. Microelectromech. Syst.* 12 (6) (Dec. 2003) 761–778.
- [41] S.J. Zinkle, Radiation-induced Effects on Microstructure," in *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier, 2012, pp. 65–98.
- [42] M. Li, S.J. Zinkle, Physical and Mechanical Properties of Copper and Copper Alloys," in *Comprehensive Nuclear Materials*, Elsevier, 2012, pp. 667–690.
- [43] M. Victoria, N. Baluc, C. Bailat, Y. Dai, M. Luppó, R. Schaublin, B. Singh, The microstructure and associated tensile properties of irradiated fcc and bcc metals, *J. Nucl. Mater.* 276 (1–3) (Jan. 2000) 114–122.
- [44] M. Kasbari, C. Rivero, S. Blayac, F. Cacho, O. Bostrom, R. Fortunier, Direct local strain measurement in damascene interconnects, *MRS Proc.* 990 (Jan. 2007).
- [45] I. Yamamoto, N. Kasai, S. Nishimoto, Effect of low-dose ion implantation on the stress of low-pressure chemical vapor deposited silicon nitride films, *Jpn. J. Appl. Phys.* 37 (Mar. 1998) 1256–1259 no. Part 1, No. 3B.
- [46] W. Shi, H. Zhang, G. Zhang, Z. Li, Modifying residual stress and stress gradient in LPCVD Si₃N₄ film with ion implantation, *Sens. Actuators Phys.* 130–131 (Aug. 2006) 352–357.
- [47] R. Schaeublin, Z. Yao, N. Baluc, M. Victoria, Irradiation-induced stacking fault tetrahedra in fcc metals, *Philos. Mag.* 85 (4–7) (Jan. 2005) 769–777.
- [48] J. Pakarinen, Quantitative Analysis of Irradiation Defects of In-reactor Tested Copper by Weak Beam Method in TEM, VTT, 2010 research report VTT-R-07064-10.
- [49] N. Li, K. Hattar, A. Misra, In situ probing of the evolution of irradiation-induced defects in copper, *J. Nucl. Mater.* 439 (1–3) (Aug. 2013) 185–191.
- [50] V. Fidleris, The irradiation creep and growth phenomena, *J. Nucl. Mater.* 159 (Oct. 1988) 22–42.
- [51] W.M. Haynes, *CRC Handbook of Chemistry and Physics*, 96th Edition, 2015.
- [52] J.F. Feller, P. Chauvelon, I. Linossier, P. Glouanec, Characterization of electrical and thermal properties of extruded tapes of thermoplastic conductive polymer composites (CPC), *Polym. Test.* 22 (7) (Oct. 2003) 831–837.
- [53] R. Espiau de Lamaestre, H. Béa, H. Bernas, J. Belloni, J.L. Marignier, Irradiation-induced Ag nanocluster nucleation in silicate glasses: analogy with photography, *Phys. Rev. B* 76 (20) (Nov. 2007).
- [54] R. Espiau de Lamaestre, H. Bernas, Ion beam-induced quantum dot synthesis in glass, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B Beam Interact. Mater. At.* 257 (1–2) (Apr. 2007) 1–5.
- [55] P. Jung, Irradiation creep of 20% cold-worked copper, *J. Nucl. Mater.* 200 (1) (Mar. 1993) 138–140.

Résumé

Les matériaux de structure utilisés dans le cœur des REP, comme par exemple les aciers austénitiques ou bien les alliages de zirconium, sont soumis à la fois à une forte irradiation neutronique ainsi qu'à divers chargements mécaniques. A l'échelle macroscopique, le comportement mécanique sous irradiation de ces matériaux est bien caractérisé. Cependant, à l'échelle microscopique, les mécanismes de déformation sous irradiation restent encore mal connus. De nombreux mécanismes de fluage d'irradiation ont été envisagés du point de vue théorique mais les données expérimentales existantes n'ont pu, pour l'heure, permettre de déterminer le mécanisme pertinent contrôlant la déformation.

L'objectif de ce travail de thèse est justement d'apporter une contribution à la compréhension des mécanismes de fluage d'irradiation des métaux et alliages par la mise en œuvre d'une méthode expérimentale originale. Les irradiations sont reproduites par des irradiations aux ions lourds. Ces irradiations ont l'avantage de créer un dommage rapide sans activer la matière. Cependant l'épaisseur irradiée n'est que de plusieurs centaines de nanomètres. De telles épaisseurs nécessitent un dispositif expérimental spécifique pour l'application d'une charge sur l'échantillon. Le dispositif utilisé est basé sur l'utilisation de contraintes internes dans un film mince de nitrure de silicium pour déformer des films minces métalliques. Cette méthode a été conçue et développée par les équipes de Thomas Pardoën et Jean-Pierre Raskin à l'université catholique de Louvain, en Belgique.

Après une démonstration de la faisabilité de l'étude et une adaptation du dispositif aux conditions d'irradiation, cette méthode a pu être utilisée avec succès pour reproduire une expérience de fluage d'irradiation à température ambiante sur un matériau modèle, le cuivre. Une loi de fluage en puissance 5 selon la contrainte a été trouvée sous irradiation sur des films de 200 et 500 nm d'épaisseur. Les observations au microscope électronique à balayage et en transmission suggèrent que les mécanismes de déformation reposent sur le glissement assisté par la montée.

Cette loi apparait indépendante de la microstructure et de l'historique de chargement des éprouvettes. La montée, si elle intervient, ne semble pas contrôlée par des mécanismes de diffusion à longue distance mais par des interactions directes entre la cascade déplacements et les dislocations.

Hors irradiation et après irradiation, le comportement mécanique des films a également pu être évalué. Les mécanismes de déformation semblent identiques dans les deux conditions. A vitesse de déformation modérée, la déformation est contrôlée par le glissement intragrannulaire des dislocations tandis qu'à basse vitesse un changement de mécanisme se produit. Le nouveau mécanisme reste toujours basé sur les dislocations mais une composante de glissement aux joints de grains semble apparaître. Un durcissement *post* irradiation est observé du fait d'une densité importante de SFT dans les éprouvettes irradiées qui agissent comme des obstacles au glissement des dislocations.

Abstract

Structural materials used in the PWR cores, such as austenitic stainless steels or zirconium alloys, are exposed to a significant neutron flux and, at the same time, a stress from various mechanical loadings. At the macroscopic scale, the mechanical behavior under irradiation is well characterized. However, at a microscopic scale, the deformation mechanisms under irradiation still remain unknown. Many irradiation creep mechanisms have been proposed from a theoretical point of view but the available experimental data have not, for now, permitted to identify the relevant mechanism leading to the deformation.

The objective of this thesis is precisely to improve our understanding of the irradiation creep mechanisms of metals and alloys by the development of a novel experimental method. In this method, the irradiation is produced by the use of heavy ions. This kind of irradiation has the advantage of a fast damage rate without an activation of the material. However the irradiated area is confined in a few hundreds of nanometers. Such thickness requires a specific experimental device to apply a stress on the specimen. This device is based on the release of internal stress in a silicon nitride film to deform a metallic thin film. This method was designed and developed at the Université Catholique de Louvain in Belgium by the teams of Thomas Pardoën and Jean-Pierre Raskin.

After proving the feasibility of the study and adapting the device to the irradiation environment, the method has been used with success to reproduce an irradiation creep experiment at room temperature on a model material: copper. A single creep power law with a stress exponent of 5 has been found under irradiation on 200 and 500 nm thick films. The SEM and TEM observations suggest that the deformation mechanism rely on the glide of dislocations assisted by climb.

This law seems to be independent of the microstructure and the loading history. The dislocation climb, if it occurs, would not be controlled by diffusion process at long distance but by direct interaction between displacement cascades and dislocations.

The mechanical behavior of unirradiated and irradiated copper films have also been assessed. The deformation mechanisms seem to be the same in both cases. At a moderate strain rate, the deformation is controlled by the intragranular glide of dislocations whereas at slow strain rate a change of mechanism takes place. The new mechanism still remains based on dislocations but a component of grain boundary sliding may appear. A post irradiation hardening has been observed on a 200 nm thick film due to the presence, in the irradiated samples, of a high density of SFT which act as obstacles against dislocation glide.

