



HAL
open science

Caractérisation in situ et à différentes échelles de l'évolution sous traction de nanomacles dans un film d'or monocristallin

Julien Drieu La Rochelle

► **To cite this version:**

Julien Drieu La Rochelle. Caractérisation in situ et à différentes échelles de l'évolution sous traction de nanomacles dans un film d'or monocristallin. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Université de Poitiers, 2020. Français. NNT : 2020POIT2253 . tel-04117339

HAL Id: tel-04117339

<https://theses.hal.science/tel-04117339v1>

Submitted on 5 Jun 2023

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 l'obtention du grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE POITIERS

Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées

École doctorale : SIMME

Domaine de recherche : Milieux Denses, Matériaux et Composants

Présentée par

Julien DRIEU LA ROCHELLE

Caractérisation in situ et à différentes échelles de l'évolution sous traction de nanomacles dans un film d'or monocristallin

Directeurs de thèse : **Pierre-Olivier RENAULT, Pierre GODARD**

Soutenance prévue le 04 Février 2020

JURY

Damien FAURIE	Professeur, Université Paris 13	<i>Rapporteur</i>
Stéphane LABAT	Maitre de Conférences, Université Aix-Marseille	<i>Rapporteur</i>
Marie-France BEAUFORT	Directeur de recherche CNRS, Université de Poitiers	<i>Examinatrice</i>
Sandrine BROCHARD	Professeur, Université de Poitiers	<i>Examinatrice</i>
Cristian MOCUTA	Chercheur, Synchrotron SOLEIL, Saint-Aubin	<i>Examineur</i>
Frédéric MOMPIOU	Chargé de recherche CNRS, CEMES, Toulouse	<i>Examineur</i>
Pierre GODARD	Maître de Conférences, Université de Poitiers	<i>Examineur</i>
Pierre-Olivier RENAULT	Professeur, Université de Poitiers	<i>Examineur</i>

« *Nous saurons qui nous sommes quand nous verrons ce que nous avons fait.* »

Pierre Drieu La Rochelle, *Le chef* (1933)

Remerciements

Je souhaite tout d'abord remercier mes rapporteurs de thèse Stephane Labat et Damien Faurie, pour leur lecture du manuscrit et les discussions qui s'en sont suivies lors de la soutenance. Je remercie également Marie-France Beaufort, Sandrine Brochard, Cristian Mocutat et Frédéric Momprou d'avoir accepté de faire partie de mon jury et pour les discussions lors de la soutenance.

Je remercie énormément mes directeurs de thèse, Pierre-Olivier Renault et Pierre Godard, de m'avoir pris en thèse avec eux. J'ai adoré toutes nos réunions et toutes les discussions scientifiques que nous avons pu avoir au cours de ces années. Ils m'ont également permis d'accéder à des expériences uniques et de voir plusieurs techniques sur synchrotron. Je les remercie aussi grandement pour toutes les aides, tous les conseils et toutes les connaissances qu'ils ont pu m'offrir au cours de ma thèse. Au cours de cette aventure à l'institut P', j'ai été amené à travailler avec un grand nombre de personnes, et ce fut des moments fort agréables. Tout d'abord avec Michel Drouet pour l'élaboration des échantillons, et avec Guillaume Amiard pour les analyses FIB/MEB. Je remercie également les microscopistes, Marie-France Beaufort et Julien Nicolai, avec qui j'ai pu travailler lors de différentes expériences de microscopie électronique en transmission. Merci également à Tarric Sadat pour les moments passés ensemble au cours des expériences de diffractions de rayons X, que ce soit aux Seiferts ou sur synchrotron. Je tiens à remercier enfin l'ensemble du personnel de P' que j'ai pu croiser dans les couloirs ou à la cafétéria ainsi que l'équipe du service administratif.

Je remercie l'ensemble des personnes qui m'ont permis de réaliser les expériences nécessaires à la réalisation de cette thèse. Tout particulièrement Dominique Thiaudière et Christiant Mocutat de la ligne DiffAbs du synchrotron SOLEIL, Manfred Burghammer de la ligne ID13 de l'ESRF et Jean-Sébastien Micha de la ligne BM32 de l'ESRF, et pour finir Frédéric Momprou au CEMES.

Je remercie chaleureusement l'ensemble des doctorants que j'ai pu rencontrer au cours de ces années et l'AESM pour les différentes sorties et activités organisées, que ce soit pour se tirer dessus au cours de laser-game, de paintball et d'airsoft, ou lors de sortie sportive ou culturelle ... et bien sûr lors de fin de journée au Moes autour d'une (ou plusieurs) bonne bière. Je remercie affectueusement mes trois collègues et amis qui ont partagé mon bureau au cours de ces années de thèse, pour toutes nos longues soirées au bureau (et pour toutes les autres soirées partout ailleurs aussi); Dimitri pour toutes nos soirées de films, de jeux ... Et pour notre parcours ensemble depuis la première année de licence, on l'a fait! Clarisse, pour la motivation et toutes nos discussions tardives, ainsi que pour toutes les émotions que l'on a partagé. Bertrand pour les splendides cadeaux que l'on s'est échangés, et pour la narration de ses palpitantes aventures.

Je remercie également ma famille qui m'a soutenu tout au long de mon parcours. Merci à toutes les personnes présentes lors de ma soutenance. Et merci aux absents également pour tous vos messages d'encouragements. Merci également à Morgane, d'avoir supporté mon absence (et qui va maintenant devoir supporter ma présence).

Table des matières

Remerciements	iii
Introduction	1
1 Etat de l'art	5
1.1 Défauts et plasticité dans les CFC	5
1.1.1 Les dislocations	6
Définition	6
Dislocations parfaites	6
Dislocations partielles	7
1.1.2 Les macles dans les CFC	8
Définition	8
Macles de croissance	9
Maclage mécanique	11
Démaclage	13
1.1.3 Interactions dislocations-macles	14
Transmission de dislocations à travers un joint de macle	15
Stockage de dislocations au joint de macle	16
1.1.4 Effet de taille et d'orientation sur la plasticité	16
Effet de taille	16
Effet de l'orientation cristalline lors de sollicitations mécaniques	17
1.2 Expériences de déformation dans les films minces	19
1.2.1 Effets de taille lors d'essais mécaniques	19
1.2.2 Influence de la direction de traction sur l'or	22
1.3 Objectifs de l'étude	22
2 Elaboration et caractérisation des films minces d'or	25
2.1 Synthèse d'échantillons	26
2.1.1 Dépôts par pulvérisation ionique	26
2.1.2 Création d'une éprouvette de traction	27
2.2 Caractérisation d'échantillons	27
2.2.1 Le principe des figures de pôles	27
2.2.2 Figures de pôles des échantillons d'or déposés sur sel	30

2.2.3	Effet de la température de dépôt	32
2.2.4	Microscopie électronique	35
2.3	Conclusion	41
3	Figures de pôles in situ au cours d'essais de tractions biaxiaux	43
3.1	Dispositif expérimental	43
3.1.1	La ligne de lumière DiffAbs	43
3.1.2	La machine de traction	44
3.1.3	La corrélation d'images numériques	45
3.1.4	L'acquisition des figures de pôles	47
3.2	Observations	47
3.2.1	Les deux essais mécaniques	47
3.2.2	Évolution des figures de pôles	49
	Évolutions des distances interréticulaires	52
	Traction dans la direction [110]	55
	Traction dans la direction [100]	56
3.2.3	Expériences post mortem	57
3.3	Analyse et discussion	58
3.3.1	Intensité des pôles et volume de macles	58
	Traction selon la direction [110]	59
	Traction selon la direction [100]	62
	Conclusion sur l'évolution du volume des macles	63
3.3.2	Formes, positions et évolutions des pics	63
	Difficultés liées à la forme des pics de diffraction	64
	Rotation des macles	64
	Déformations élastiques au cours des essais	65
	Conclusion : mise évidence des différents domaines mécaniques	69
3.3.3	Décharge et démaclage	70
3.4	Conclusion	71
4	Tractions uniaxiales in situ en microscopie électronique en transmission	73
4.1	Dispositif expérimental	73
4.2	Observations	76
4.2.1	Traction dans la direction [110]	76
	Les dislocations parfaites	77
	Macles	78
	Dissociation et recombinaison de dislocations parfaites	79
	Interaction dislocation macle	80
	Région du cristal inclinée	80
4.2.2	Traction dans la direction [100]	81

4.3	Analyses et Discussions	81
	Traction [100] : Fissuration	81
	Traction [110] : Maclage	84
	Traction [110] : Dislocations	85
	Traction [110] : Fissuration	87
	Comparaison des tractions [110] et [100]	88
4.4	Conclusion	89
	Conclusion générale et perspectives	91
	A Indexation des figures de pôles	97
	B DiffAbs, donnés supplémentaires	99
	C Calculs de déformation élastique	105
	C.1 Repères et déformation dans l'or	105
	C.2 Hypothèse	106
	C.3 Essai de traction dans la direction [100]	107
	C.4 Essai de traction dans la direction [110]	108
	C.5 Opérations appliquées aux courbes	110
	Bibliographie	113
	Résumé	122

Table des figures

1.1	Schéma de dislocations	6
1.2	Schémas de Macles	8
1.3	Courbe d'énergie de défaut d'empilement	10
1.4	Courbe d'énergie de défaut d'empilement de l'argent	12
1.5	Maclage-démaclage dans un nanofil	14
1.6	Maclage-démaclage dans un film mince en DM	15
1.7	Densité de macle en fonction de l'épaisseur	20
1.8	Clichés MET d'or épitaxié sur NaCl	21
1.9	Contrainte d'écoulement en fonction de l'épaisseur	21
1.10	Cliché de microscopie de J.W. Matthews	23
2.1	Schéma du battit de dépôt	26
2.2	Schéma du diffractomètre Seifert 3000	28
2.3	Figure de pôles dans l'espace réciproque	29
2.4	Construction d'une figure de pôles par projection stéréographique	31
2.5	Orientation des pôles des différentes macles	33
2.6	Figure de pôles (111) de film de 200 nm	34
2.7	Effet de la température sur l'orientation cristalline	35
2.8	Schéma du microscope	36
2.9	Vue transverse d'échantillons en microscopie électronique en transmission	38
2.10	Vue plane en microscopie électronique en transmission à balayage	39
2.11	Observation des différentes familles de macles en microscopie électronique en transmission	40
3.1	Goniomètre 6 cercles	44
3.2	Machine de traction biaxiale	46
3.3	Schéma des rotations effectuées pour les figures de pôles	46
3.4	Traitement des données synchrotron	48
3.5	Essais mécaniques	49
3.6	Orientations des macles par rapport à la direction de traction	50
3.7	Figure de pôles avec un détecteur bidimensionnelle	51
3.8	Retrait du fond	52
3.9	Intensité au court de l'essai en fonction de la région intégré	53

3.10	Courbe en 2 θ du pic de diffraction lié aux macles	54
3.11	Courbe en 2 θ du pic de diffraction lié à la matrice	54
3.12	Figures de pôles 110	56
3.13	Courbes en Psi pour plusieurs états de déformation	57
3.14	Intensité des pics des macles au cours de l'essai 110	58
3.15	Intensité des pics des macles au cours de l'essai 100	59
3.16	Cliché MET Post Mortem	60
3.17	Courbe de l'intensité des pics des macles en fonction de la déformation	61
3.18	Schéma de déformation plastique par maclage	62
3.19	Schéma d'une tige de tronçage	65
3.20	Schéma des plans de glissement dans une macle	66
3.21	Caractérisation de l'essai de traction 110	67
3.22	Intensité des macles en fonction de la déformation plastique	68
4.1	Schéma de l'éprouvette de traction TEM	74
4.2	Géométrie de l'essai de déformation TEM	75
4.3	Micrographie TEM-BF lors d'un traction 110	77
4.4	Micrographie TEM-BF montrant des dislocations parfaites	77
4.5	Micrographies TEM-BF montrant une macle en face d'une fissure	79
4.6	Micrographies TEM-BF montrant des dislocations partielles de macle	80
4.7	Micrographies TEM-BF d'une dislocation parfaite assimilé par une macle	81
4.8	Micrographie TEM-BF et Cartographie ASTAR de régions maclées amincies	82
4.9	Micrographies TEM-BF traction 100	83
4.10	Région plastique autours d'une fissure	84
4.11	Micrographies HRTEM de macle en tête de fissure dans de l'aluminium	86
4.12	Schéma des plans de glissement dans une macle	88
4.13	Schéma de conclusion	93
A.1	Figure de pôles 111/200/220/311	98
B.1	Courbe en 2 θ du pic de diffraction lié au macles (-111)	99
B.2	Courbe en 2 θ du pic de diffraction lié au macles (111)	100
B.3	Courbe en 2 θ du pic de diffraction (1-11) de la matrice	100
B.4	Courbe en 2 θ du pic de diffraction (-1-11) de la matrice	101
B.5	Courbe en 2 θ du pic de diffraction lié au macles (-1-11)	101
B.6	Courbe en 2 θ du pic de diffraction lié au macles (-111)	102
B.7	Courbe en 2 θ du pic de diffraction (111) de la matrice	102
B.8	Courbe en 2 θ du pic de diffraction (1-11) de la matrice	103
C.1	Déformation élastique en fonction de la déformation appliquée	110
C.2	Déformation plastique en fonction de la déformation appliquée	110

Liste des tableaux

1.1	Facteurs de Schmid maximaux par type d'événement plastique et en fonction de la direction de sollicitation. [42]	18
1.2	Mécanismes de déformation observés en fonction du type de sollicitation et de la géométrie de l'échantillon (<direction de traction>{surface du fil à section carrée}). [42]	18
2.1	Tableau des positions théoriques en ψ des intensités observées sur les figures de pôles, selon l'orientation des plans (h_1, k_1, l_1) parallèles à la surface du grain diffractant et selon les plans (h_2, k_2, l_2) diffractants	30

Liste des Abréviations

CFC	Cubique (à) F aces C entrées
DM	D ynamique M oléculaire
TEM	T ransmission E lectron M icroscopy
MET	M icroscopie E lectronique (en) T ransmission
STEM	S canning T ransmission E lectron M icroscopy
HRTEM	H igh R esolution T ransmission E lectron M icroscopy
BF	B right F ield
DF	D ark F ield

Dedicated to the child that I used to be ...

Introduction

L'or, qualifié par certains de "*the noblest of all metal*" (le plus noble des métaux - en référence à sa non réactivité chimique)[1], est un métal possédant des propriétés exceptionnelles dans différents domaines. C'est notamment un des métaux les plus ductiles, donc macroscopiquement facile à travailler, et il est également biocompatible, il est ainsi utilisé par exemple en tant que prothèse dentaire. C'est aussi un des meilleurs conducteurs électrique et thermique (à température et pression ambiante), et il est de plus inerte chimiquement (inoxydable), ainsi il est grandement utilisé en microélectronique.

Dans un soucis d'économies, de performances et à l'aide du perfectionnement de la technologie, on a cherché à miniaturiser de plus en plus les différents dispositifs microélectroniques. Avec cette miniaturisation, et le développement d'un nouveau pan de la physique, on a vu émerger de nouvelles propriétés au sein des matériaux. Ainsi, aux échelles nanométriques, l'or développe de nouvelles caractéristiques. On observe l'apparition de plasmon lorsqu'il est sous forme de nanoparticules, ce qui peut par exemple être utilisé en optique [2][3]. On le retrouve également utilisé sous forme de nanoparticules en temps que catalyseur pour des réactions chimiques [4][5]. Les effets de taille perturbent également la façon dont l'or se déforme (plastiquement) lorsqu'il est soumis à une sollicitation mécanique, cela permet le développement nouveaux dispositifs équipés de composants conducteurs et transparents [6][7] et de microélectronique souple, comme des écrans flexibles, ou encore des biocapteurs devant se déformer pour suivre les mouvements de tissus biologiques [8][9].

Les facteurs de Schmid régissent habituellement la plasticité dans les matériaux massifs [10]. Mais lorsque l'on diminue la taille des nano-fils et des films minces qui peuvent composer ces dispositifs sous sollicitation mécanique, les phénomènes plastiques observés ne sont pas toujours en accord avec ces facteurs. En effet les effets des surfaces deviennent importants lorsque le ratio volume-surface diminue au sein d'objets de petites dimensions, puis ces effets de surfaces se répercutent sur l'ensemble du volume. Il est donc nécessaire d'étudier les phénomènes plastiques à ces échelles pour les comprendre et pour pouvoir dans le futur optimiser les dispositifs au sein desquels ils apparaissent.

L'or cristallise dans un réseau cubique à faces centrées et il a la possibilité de générer des macles. Les macles sont des défauts cristallins volumiques, impliquant une relation de symétrie entre l'orientation cristalline du réseau initial (que l'on appellera la matrice) et l'objet cristallin appelé macle [11]. Les joints de macles ont des propriétés différentes de celle des joints de grains, autant sur la plasticité que sur la conductivité électrique [12]. Là où un joint de grain est un frein à la circulation d'un courant à cause du désordre

de sa structure, la cohérence du joint de macle avec le réseau de la matrice en fait une barrière minime à la circulation de ce courant [13]. Du point de vue de la plasticité, les matériaux de faibles dimensions et nanomaclés cumulent deux propriétés habituellement antagonistes : une haute limite de contrainte élastique et une bonne ductilité ; par rapport à leurs équivalents massifs sans macle [14]. En effet, les joints de macles ralentissent les mouvements de dislocation, ce qui augmente la contrainte d'écoulement plastique. De plus dans le cas du maclage mécanique, les macles contribuent en partie la déformation plastique.

Ces travaux de thèse ont comme objectif l'étude *in situ* de la plasticité et de l'évolution de nanomacles au sein de films d'or monocristallin sous différentes sollicitations mécaniques. Ces échantillons sont étudiés à l'aide de rayons X dans le but d'avoir une information statistique sur le comportement et l'évolution des échantillons, et à l'aide de microscopie électronique en transmission pour obtenir une information locale et observer en temps réel les phénomènes plastiques. Le couplage de ces deux techniques permet une meilleure compréhension des phénomènes liés au maclage dans ce genre de films. Au cours de cette thèse, il a été utilisé un système permettant de suivre l'évolution du volume maclé des échantillons au cours d'une sollicitation mécanique, à l'aide de figures de pôles en diffraction de rayons X, couplé à la machine de traction biaxiale de la ligne de lumière DiffAbs de la source de rayonnement synchrotron SOLEIL. Les échantillons étaient alors des films minces d'or sur des substrats flexibles de polyimide en forme de croix. En microscopie électronique en transmission, l'étude s'est focalisée sur des films minces auto-portés lors de tractions uniaxiales. Lors des différents essais plusieurs orientations cristallines de sollicitation ont également été effectuées afin de les comparer pour observer l'anisotropie du système étudié.

Ce manuscrit s'articule en quatre chapitres :

En s'appuyant sur des articles de la littérature scientifique, le premier chapitre aborde dans un premier temps les notions de plasticités utilisées au cours de ces travaux de thèse, décrivant des phénomènes liés aux dislocations, pour ensuite décrire des phénomènes liés aux macles qui sont le sujet principal de cette thèse. Dans un second temps ce chapitre décrit la problématique de l'étude : les effets de tailles et de surfaces des objets aux dimensions nanométriques sont discutés d'une manière générale, pour ensuite être observés dans le cas de films minces monocristallins, notamment lors de tractions dont l'orientation par rapport au cristal joue un rôle aussi important que la taille des objets étudiés.

Le deuxième chapitre présente l'élaboration des échantillons et les méthodes de caractérisations utilisées au cours de la thèse. Il présentera également les résultats obtenus en laboratoire des caractérisations initiales des échantillons, dans le but de préparer les expériences et de discuter du choix des échantillons utilisés par la suite.

Le troisième chapitre expose une expérience de déformation biaxiale *in situ* effectuée à la source de rayonnement synchrotron SOLEIL sur la ligne de lumière DiffAbs. Cette expérience utilise un système qui permet grâce à la diffraction des rayons X d'observer l'évolution du volume maclé des échantillons à l'aide de l'évolution de figures de pôles au

cours d'essais de traction biaxial. Ce chapitre présente ensuite les résultats des essais selon les différentes orientations de sollicitation et discute des phénomènes qui y sont liés.

Le quatrième chapitre présente une expérience de traction *in situ* en microscopie électronique en transmission sur des échantillons préparés dans les mêmes conditions. D'une même manière, l'étude présente l'influence de l'orientation de traction sur la plasticité, puis discute des phénomènes observés selon les conditions des essais. Les résultats sont ensuite comparés avec ceux de l'expérience par diffraction de rayons X.

Enfin une conclusion fait la synthèse des résultats précédents, puis organise les différents phénomènes observés pour expliquer les observations. De plus des perspectives sont proposées pour donner une suite à cette étude.

Chapitre 1

Etat de l'art

Les films minces possèdent de nombreuses applications en micro-électronique. Analyser leurs modes de déformation permet de mieux comprendre ces matériaux dans le but d'optimiser leurs durées de vie et leurs propriétés (électrique, mécanique). Certains matériaux comme l'or sont de bons candidats pour l'élaboration de système électroniques biocompatibles (inerte chimiquement), mais ce genre de système demande d'être flexible tout en conservant ses propriétés (conductivité). La microélectronique souple est donc une application directe de l'intérêt d'étudier la plasticité des films minces.

Nous étudierons ici dans un premier temps les propriétés générales des matériaux cubiques à faces centrées (CFC). Nous nous concentrerons notamment sur les défauts et leurs évolutions individuelles puis collectives lors de sollicitations mécaniques. De plus nous analyserons les phénomènes observés sur ces matériaux lorsqu'une ou plusieurs de leur dimensions sont inférieures au micron, allant même jusqu'aux dimensions nanométriques. À ces petites échelles, les phénomènes plastiques activés peuvent changer par rapport aux phénomènes observés sur des matériaux massifs pour des sollicitations identiques. Notre recherche s'orientera sur le cas des films minces de l'ordre de quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur. Les objets à ces échelles ont notamment tendance à favoriser la présence de macles de croissance, ainsi que le maclage mécanique, et c'est ce sur quoi nous allons nous concentrer.

1.1 Défauts et plasticité dans les CFC

Les matériaux massifs ayant une structure CFC se déforment plastiquement principalement à l'aide de dislocations, et dans certains cas on peut observer du maclage mécanique ce qui génère une partie de cristal désorienté. Dans cette partie nous allons décrire les différents phénomènes plastiques et leurs interactions. De plus un matériau peut présenter des défauts initiaux lors de leur élaboration, il est ainsi possible d'observer la présence de macles de croissance.

1.1.1 Les dislocations

Définition

D'après le Larousse une dislocation est un "défaut géométrique linéaire dans l'arrangement périodique des atomes à l'intérieur d'un milieu cristallin". On peut par exemple visualiser le phénomène comme la suppression d'un demi plan d'atome, la dislocation correspond alors à la ligne de défaut causée par le demi plan supprimé (Figure 1.1). Une dislocation est ainsi définie par trois paramètres, son vecteur de Burgers, \mathbf{b} , qui correspond à la déformation élémentaire causée par la dislocation, son plan de glissement, et sa ligne de dislocation. L'angle entre le vecteur de Burgers et la ligne définissant la dislocation permet ensuite de définir le caractère de la dislocation, si l'angle est nul la dislocation est dite vis, si l'angle est de 90° elle est appelée coin, et si l'angle est quelconque, la dislocation est dite mixte. La théorie des dislocations est décrite par J.P. Hirth et J. Lothe dans leur ouvrage *Theory of Dislocations* [15], je reprend dans la suite les points qui me sont utiles.

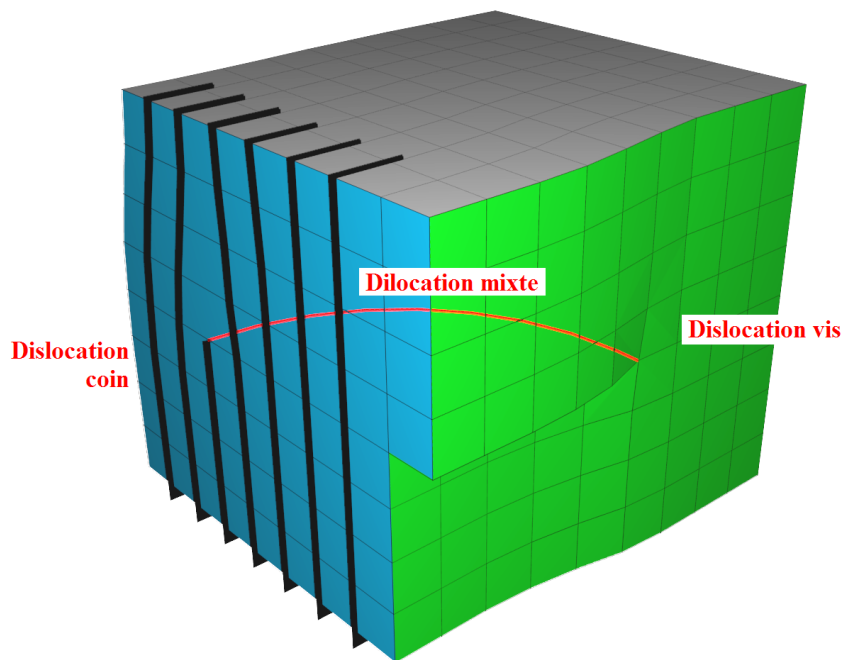


FIGURE 1.1 – Schéma d'un quart de boucle de dislocation, où la dislocation passe, le long de sa ligne de dislocation, d'un type coin à un type vis (en passant par mixte)

Dislocations parfaites

Une dislocation parfaite est une dislocation dont le vecteur de Burgers relie deux positions atomiques équivalentes du réseau cristallin. Dans les matériaux CFC, ces vecteurs de Burgers sont de type $1/2\langle 110 \rangle$, et les dislocations qui en résultent peuvent appartenir à deux systèmes de glissement différents. Le système de glissement le plus courant se trouve

dans les plans denses $\{111\}$ de la structure CFC et donne lieu à 12 systèmes de glissement, et un second système plus rare se trouve dans les plans $\{100\}$, mais n'est activé que lors de déformations extrêmes (hautes températures, hautes vitesses).

Dislocations partielles

Dans les matériaux CFC, les dislocations parfaites $\{111\}\langle 110\rangle$ peuvent se dissocier en deux dislocations partielles de Shockley $1/6\langle 112\rangle$. Effectivement, l'énergie élastique d'une dislocation est proportionnelle au carré du vecteur de Burgers et l'on a $b_{110}^2 > 2 \cdot b_{112}^2$. Une dissociation de parfaite en partielles de Shockley peut donc par exemple s'écrire :

$$\frac{1}{2} [1\bar{1}0] \rightarrow \frac{1}{6} [2\bar{1}1] + \frac{1}{6} [1\bar{2}\bar{1}] \quad (1.1)$$

Ces dislocations sont donc appelées partielles puisqu'elles ne sont pas des translations parfaites du réseau atomique. De plus, contrairement aux dislocations parfaites qui n'influencent pas l'alternance des différents plans denses cristallins, les deux dislocations partielles causent un défaut planaire entre elles. Ce défaut est appelé défaut d'empilement intrinsèque, et il correspond à la suppression d'un plan dense dans la succession des trois plans denses de la structure CFC (Figure 1.2.a). On nomme ainsi lors de déformation "dislocation partielle de tête" et "dislocation partielle de queue", respectivement la dislocation partielle qui crée le défaut d'empilement et celle qui le referme. Les dislocations partielles de Shockley augmentent ainsi le nombre de systèmes de glissement dans les plans $\{111\}$ à 24.

Les dislocations parfaites à caractère vis (angle entre le vecteur de Burgers et la ligne de dislocation nul) peuvent glisser dans plusieurs plans $\{111\}$, ainsi il est possible d'observer une dislocation possédant plusieurs segments dans différents plans, et ce phénomène est appelé glissement dévié. Chacun des segments de la dislocation est donc susceptible de se dissocier en partielles de Shockley. La jonction entre les segments d'une ligne de dislocation résultant du glissement dévié se recombine pour donner une dislocation appelée dislocation stair-rod, comme par exemple :

$$\frac{1}{6} [\bar{1}2\bar{1}] + \frac{1}{6} [2\bar{1}1] \rightarrow \frac{1}{6} [110] \quad (1.2)$$

Shockley + Shockley → StairRod

Ces dislocations stair-rod sont sessiles (impossibilité de glisser dans un plan) et elles sont de plus un obstacle au glissement d'autres dislocations, et contribuent donc au durcissement des matériaux.

Il existe aussi un type de dislocations partielles de vecteur de Burgers $1/3\langle 111\rangle$, elles sont appelées dislocations partielles de Frank et sont elles aussi sessiles. Les dislocations partielles de Frank peuvent elles aussi se dissocier et former une dislocation partielle de Shockley et une dislocation stair-rod, comme par exemple :

$$\frac{1}{3} [111] \rightarrow \frac{1}{6} [211] + \frac{1}{6} [011]$$

Frank \rightarrow *Shockley* + *StairRod*

(1.3)

1.1.2 Les macles dans les CFC

Définition

Dans les matériaux CFC, on appelle macle une région du cristal qui possède une relation de symétrie miroir avec le cristal initial par rapport à un plan $\{111\}$. En effet on peut représenter la structure CFC parfaite comme l'alternance des plans denses : "... A B C A B C A B C ..."(Figure 1.2.a), avec A, B et C représentant les différents plans empilés selon une direction $\langle 111 \rangle$ et décalés selon 3 différentes positions dans une direction $\langle 112 \rangle$ perpendiculaire. Cette alternance de plans denses peut présenter des défauts, comme : "... A B C B C A B C ...". C'est ce que l'on appelle un défaut d'empilement intrinsèque (Figure 1.2.b), il manque un plan dense par rapport à la configuration parfaite. Dans le cas où un plan est ajouté (Figure 1.2.c), on appelle ceci un défaut d'empilement extrinsèque "... A B C B A B C ...". On remarque que l'on peut continuer d'ajouter successivement des défauts d'empilement les uns à la suite des autres, "... A B C B A C B A C A B C ...", ainsi on appelle "macle" la région où l'ordre des plans est inversé "C B A", au sein de la matrice "A B C" (Figure 1.2.d). On appelle joint de macle cohérent le plan dense $\{111\}$ qui est le plan de la symétrie miroir et qui fait la jonction entre la macle et la matrice initiale. On constate que l'alternance des plans denses au niveau du joint de macle cohérent forme une région ayant un empilement hexagonal (comme "B C B" ou "A C A"). Par opposition, on appelle joint de macle incohérent les autres surfaces de la macle se terminant dans le cristal initial. Les joints de macle incohérents sont composés de dislocations partielles dans des plans adjacents.

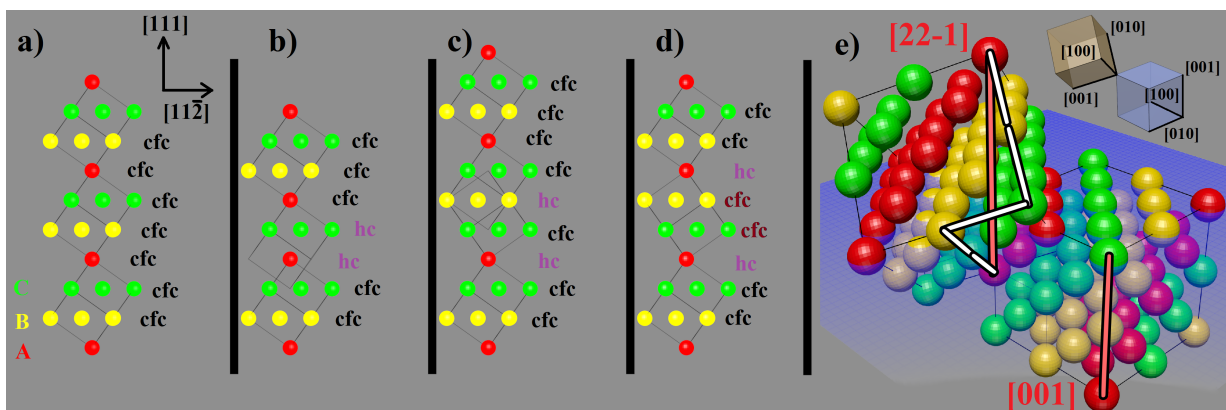


FIGURE 1.2 – a) Schéma du cristal parfait vue dans le plan (1-10) (représenté par les vecteurs [111] et [11-2]); b) Schéma d'un défaut d'empilement intrinsèque; c) Schéma d'un défaut d'empilement extrinsèque; d) Schéma d'une macle; e) Orientation cristalline d'une macle en 3 dimensions

Comme dit précédemment une macle dans un CFC est définie par l'opération de symétrie miroir par rapport au joint de macle cohérent ; mathématiquement on préférera définir l'orientation du cristal maclé à l'aide d'une rotation de π radiant autour de la normale au plan de maclage, l'opération rotation présente l'avantage de conserver un repère direct, contrairement à l'opérateur de symétrie. Une rotation d'un angle θ autour de la direction $[h,k,l]$ est définie par l'opérateur :

$$R_{[hkl]}^\theta = \begin{pmatrix} h'^2(1 - \cos(\theta)) + \cos(\theta) & h'k'(1 - \cos(\theta)) - l' \sin(\theta) & h'l'(1 - \cos(\theta)) + k' \sin(\theta) \\ h'k'(1 - \cos(\theta)) + l' \sin(\theta) & k'^2(1 - \cos(\theta)) + \cos(\theta) & k'l'(1 - \cos(\theta)) - h' \sin(\theta) \\ h'l'(1 - \cos(\theta)) - k' \sin(\theta) & k'l'(1 - \cos(\theta)) + h' \sin(\theta) & l'^2(1 - \cos(\theta)) + \cos(\theta) \end{pmatrix} \quad (1.4)$$

avec $[h', k', l']$ le vecteur normalisé de la direction $[h, k, l]$, $h' = h/\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}$, $k' = k/\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}$ et $l' = l/\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}$. Ainsi pour une rotation de π radiant autour de la direction $[111]$ on obtient l'opérateur rotation suivant :

$$R_{[111]}^\pi = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} -1 & 2 & 2 \\ 2 & -1 & 2 \\ 2 & 2 & -1 \end{pmatrix} \quad (1.5)$$

avec lequel on peut observer l'invariant de la rotation (la direction $[111]$), et différentes orientations résultant de la rotation (par exemple $[11-2]$ et $[1-10]$ qui définissent respectivement un vecteur du plan dans lequel on observe la macle en Figure 1.2 et la direction perpendiculaire à ce plan) :

$$R_{[111]}^\pi \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} \quad R_{[111]}^\pi \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad R_{[111]}^\pi \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ -2 \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ -2 \end{pmatrix} \quad (1.6)$$

Et par exemple, on observe dans le cas d'un cristal orienté $[001]$ par rapport à la surface, que les macles (111) ont une orientation $[22-1]$ par rapport à la surface (Illustré en Figure 1.2.e) :

$$R_{[111]}^\pi \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} 2 \\ 2 \\ -1 \end{pmatrix} \quad (1.7)$$

Macles de croissance

Lors de la croissance de matériaux CFC, que ce soit par dépôt physique en phase vapeur [18] ou par dépôt électrolytique [19], il est possible d'obtenir des matériaux nanomaclés. K. Lu et al. [20] ont même contrôlé la densité de défaut plan dans un film mince en faisant varier la vitesse de dépôt, une vitesse élevée génère plus de joints de macles et donc des

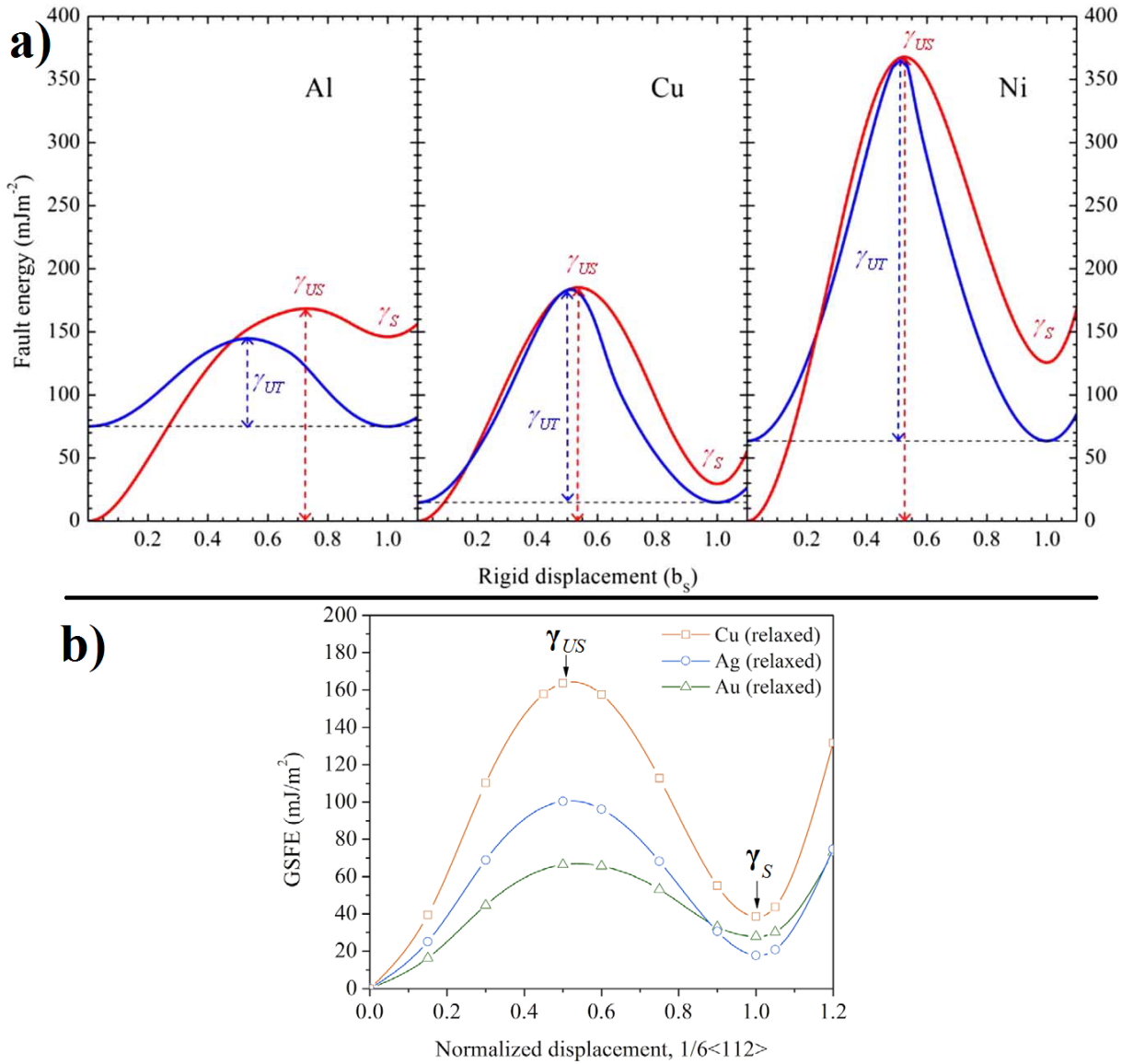


FIGURE 1.3 – a) Courbes d'énergie de défaut d'empilement en fonction d'un déplacement rigide dans un plan de glissement dans une direction $\langle 112 \rangle$, en rouge dans le cas du cristal parfait vers un cristal avec un défaut d'empilement intrinsèque, en bleu le long d'un joint de macle (macle infinie vers macle infinie). (Aluminium, Cuivre et Nickel) avec γ_S l'énergie de défaut d'empilement et γ_{US} la barrière d'énergie liée à la position la plus défavorable du système [16] et γ_{UT} la barrière d'énergie dans le cas d'un déplacement rigide le long d'un joint de macle cohérent b) Courbes d'énergie de défaut d'empilement en fonction d'un déplacement rigide dans un plan de glissement dans une direction $\langle 112 \rangle$ (Cuivre, Argent et Or) [17].

macles plus fines. Dans le cas de dépôt de cuivre élaboré par dépôt physique en phase vapeur à température ambiante, on observe des macles parallèles à la surface au sein de grains colonnaires orientés [111] par rapport à la surface [21]. La formation de macles est liée à la facilité que possèdent certains matériaux CFC à créer des défauts d'empilement. On définit l'énergie de défauts d'empilement γ_S en mJ.m^{-2} (Figure 1.3.a) comme l'énergie stockée dans un défaut d'empilement qui modifie l'alternance des plans denses par rapport au cristal parfait. Les matériaux comme le cuivre, l'or et l'argent ont de faibles énergies de défaut d'empilement (avec γ_S respectivement 51 mJ.m^{-2} , 25 mJ.m^{-2} et 20 mJ.m^{-2} : moyennes des mesures expérimentales rassemblée par N. Bernstein et al. [22]), et sont donc plus à même de contenir des macles et des défauts d'empilement, par rapport à l'aluminium ou au platine qui ont de hautes énergies de défaut d'empilement (avec γ_S respectivement 163 mJ.m^{-2} et 322 mJ.m^{-2}).

Maillage mécanique

Lorsqu'une dislocation partielle de Shockley glisse seule, elle génère derrière elle un défaut d'empilement intrinsèque. Si une deuxième dislocation partielle de Shockley glisse dans le plan adjacent au défaut plan, le défaut d'empilement devient extrinsèque. Ainsi, si des dislocations partielles de Shockley glissent successivement dans des plans adjacents les uns aux autres, une macle est générée (Figure 1.2 passage de a à d) et gagne en épaisseur (nombre de plans maclés). Dans le cas du maillage lors de déformations, les matériaux ayant de faibles énergies de défaut d'empilement γ_S , sont susceptibles de permettre aux dislocations partielles de Shockley de glisser au sein du matériau et de stocker des défauts d'empilement. Lors de la déformation, le cristal doit passer par une position instable (au niveau de la dislocation partielle), cette position est définie à partir de la barrière d'énergie γ_{US} (Figure 1.3.b). Le passage d'autres dislocations partielles le long d'un défaut d'empilement (ou d'un joint de macle cohérent) est soumis à une seconde barrière d'énergie γ_{UT} (Figure 1.4) permettant de définir l'énergie d'un joint de macle γ_{T^*} [23]. La facilité qu'a un matériau à mailler donc déterminée par la hauteur de ces barrières énergétiques et par la compétition avec le passage de dislocations partielles de queue refermant le défaut d'empilement en reproduisant le cristal parfait derrière elles [22][24][25][26].

Lors de déformations, la nucléation de macle peut se produire selon plusieurs mécanismes. Dans un premier temps la nucléation à partir d'une région de cristal parfait est possible mais nécessite de très hauts niveaux de contrainte, observés par exemple lors d'essais à basse température ou à haute vitesse de déformation. C'est ce que l'on appelle la nucléation homogène. Par opposition, la nucléation hétérogène correspond à la nucléation à partir de défauts cristallins. Les défauts pouvant être des sources de dislocations partielles sont multiples, on y retrouve notamment des boucles de dislocations ancrées, des joints de grains ou encore des surfaces libres. Il existe par exemple le cas où une dislocation parfaite ancrée en 2 points peut se dissocier en une dislocation partielle de Frank (sessile)

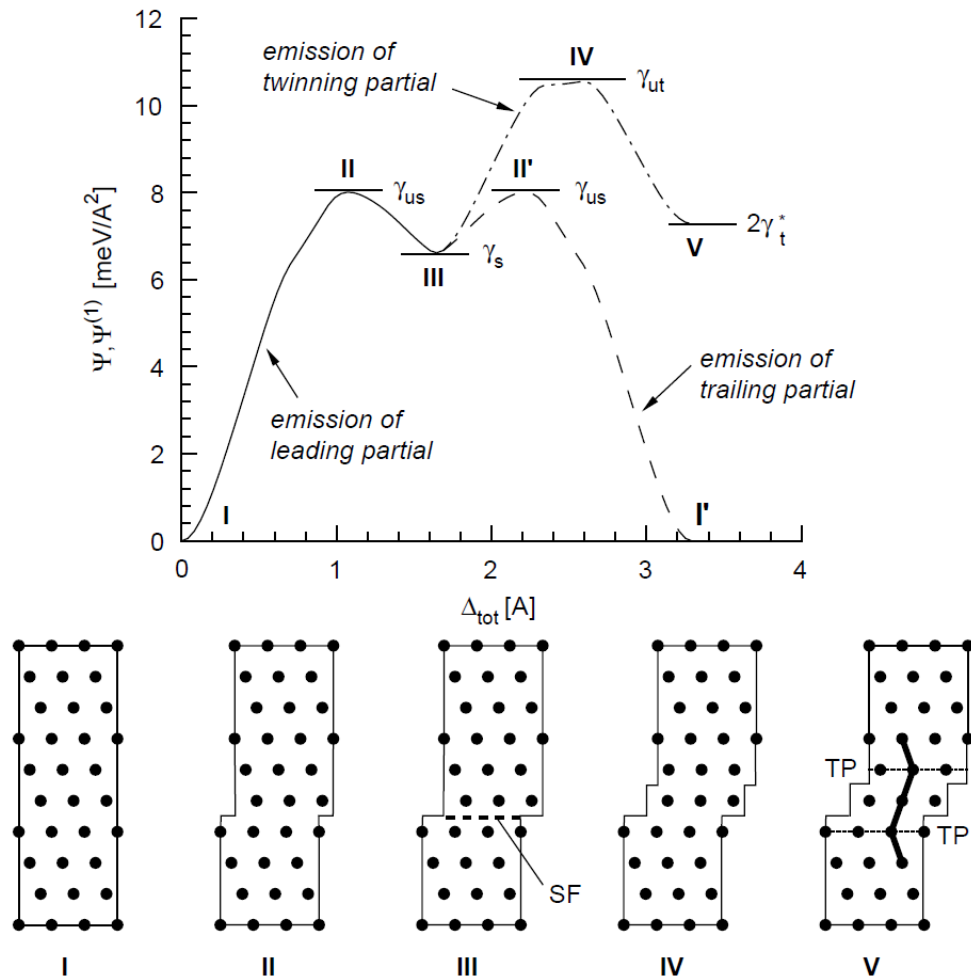


FIGURE 1.4 – Courbe d'énergie de défaut d'empilement de l'argent pour différentes configurations de défauts d'empilements. I : Cristal parfait, II : Défaut d'empilement instable, III : Défaut d'empilement intrinsèque Stable, IV : Position instable d'une dislocation partielle de macles, V : Défaut d'empilement extrinsèque (Ce qui peut être vu comme deux joints de macles bordant un plan maclé) [27]

et une dislocation partielle de Shockley (glissile). Cette dernière, en effectuant une rotation complète, se recombine avec la dislocation partielle de Frank, ce qui permet de créer une seconde dislocation partielle de Shockley dans un plan adjacent à la première à cause de la formation d'un cran. À chaque nouvelle dislocation partielle la macle gagne un plan d'épaisseur [28]. La formation d'une macle peut aussi avoir lieu lors de la nucléation simultanée de plusieurs dislocations partielles de Shockley. Ce genre de nucléation simultanée a lieu lors de fortes concentrations de contrainte, notamment sur des surfaces comme des joints de grains, ou sur des marches de surface libre ou d'interface.

On trouve quelques exceptions, comme par exemple la migration de joints de grain, qui crée une importante région maclée en formant d'un seul coup 2 joints de macles (un joint de macles avec chaque grain) [29]. Mais le maclage mécanique est principalement basé sur la dynamique des dislocations partielles de Shockley dans un matériau, autant pour la nucléation des macles que pour leur propagation dans la matière que pour leur croissance (épaississement).

Démaclage

Il est possible de passer d'un état maclé vers un état non maclé lors d'une déformation, et ce phénomène est appelé démaclage. Dans l'aluminium, B.Q. Li et al. [31] présentent, lors d'une traction in situ en microscopie électronique en transmission haute résolution, la propagation et l'épaississement d'une macle à partir d'une fissure. Puis, lorsqu'ils relâchent la contrainte à la fin de leur essai, ils observent des marches revenir vers la fissure le long du joint de macle cohérent. Ces marches sont composées de dislocations partielles, et contribuent à l'affinement de la macle, puis au bout de 6 min la macle a totalement disparu. Ce phénomène est causé par la haute énergie de défaut d'empilement de l'aluminium qui exerce une force de rappel sur les dislocations partielles.

Dans le cas des matériaux à faible énergie de défaut d'empilement, qui sont susceptibles de stocker facilement des macles, S. Lee et al. [30] ont observé un cycle de maclage-démaclage au sein de nanofils d'or. Ils ont observé ce phénomène au cours de cycles de traction-compression à l'aide d'un microscope électronique en transmission (Figure 1.5.a) et ont confirmé leurs observations à l'aide de simulations par dynamique moléculaire. Ils observent dans un premier temps des macles se former au sein des nanofils lors de traction dans la direction [110] (traction jusqu'à 20% de déformation). Dans un second temps lors de la compression, la présence de joint de macle permet le glissement dislocations partielles de queue à cause de leur grand facteur de Schmid (0.471). Ces dislocations partielles de queue viennent ainsi supprimer plan par plan la macle, au final la compression permet à l'ensemble de l'échantillon de démacler (compression jusqu'à -5% de déformation). Le cycle tension-compression-maclage-démaclage cause tout de même un déplacement latéral résiduel du fil à la fin de l'essai (Figure 1.5.c).

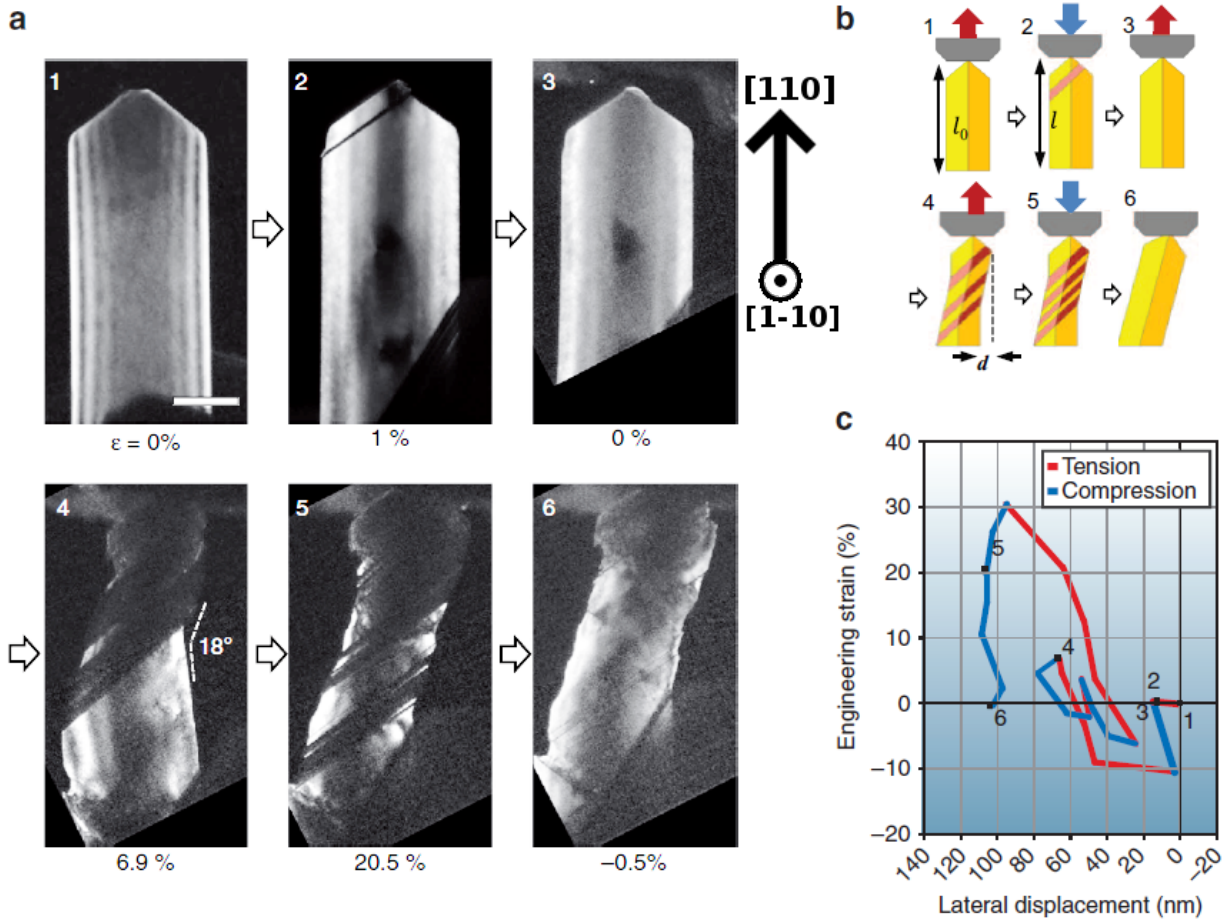


FIGURE 1.5 – a) Série de clichés de microscopie électronique en transmission en champ sombre au cours de 2 cycles de déformation (barre d'échelle 100 nm); b) Schéma illustrant les clichés en (a); c) Courbe de la déformation appliquée en fonction du déplacement latéral observé au cours de l'essai. [30]

Sur ce principe, C. Deng et F. Sansoz [32] ont construit en dynamique moléculaire un film mince d'or avec des nanomacles régulièrement espacées (Figure 1.6) dans le but d'effectuer des cycles de déformations tensions-compressions. Ils observent ainsi une succession de maclages-démaclages pour une gamme de déformation allant de -6.25% à 20%. Ils montrent alors qu'ils observent un régime pseudo-élastique de grande envergure grâce à la transition entre 3 structures remarquables (*faceted cristal FT*, *faceted twin FT*, *zigzag twin ZT* : Figure 1.6) et que ces transitions dépendent de la géométrie initiale et des facettes de l'échantillon.

1.1.3 Interactions dislocations-macles

Les deux types de défauts plastiques que nous venons de voir, à savoir : les défauts plans appelés joints de macles et les dislocations, sont susceptibles d'interagir entre eux au cours d'une déformation. Il est communément considéré que les macles sont d'importants obstacles au glissement des dislocations. Nous allons ainsi analyser l'évolution des macles

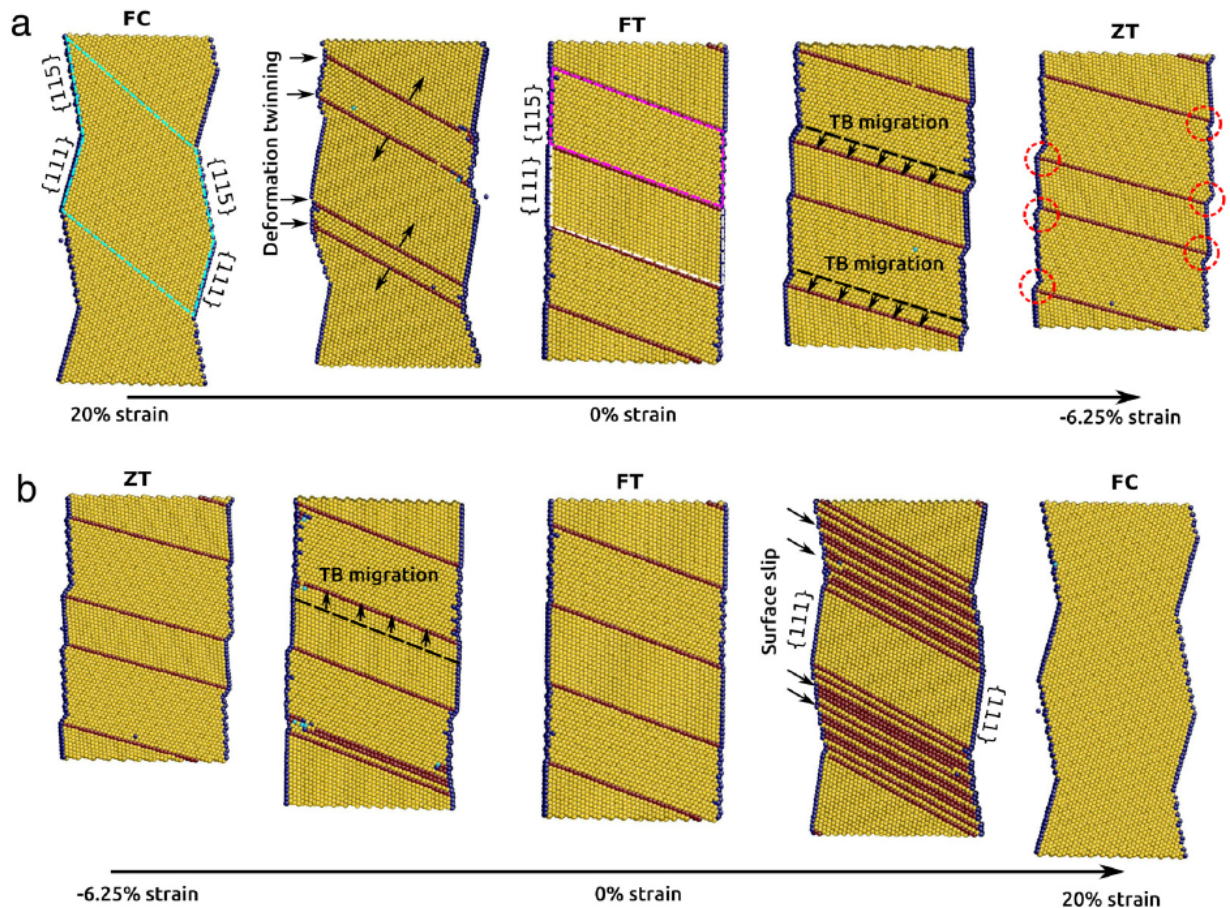


FIGURE 1.6 – a) Évolution du film au cours de la compression ; b) Évolution du film au cours de la tension. (Dans la configuration FT (*Flat Twinned*) les macles sont espacé de 4 nm) (FC : *Faceted single-Crystal*, ZT : *Zigzag Twinned*)[32]

perturbées par des dislocations ainsi que les mécanismes permettant aux dislocations d'interagir avec ces objets.

Transmission de dislocations à travers un joint de macle

Lorsqu'une dislocation arrive au contact d'un joint de macle elle peut le traverser totalement, partiellement, voire pas du tout [33]. Ces phénomènes dépendent des caractéristiques de la dislocation comme son caractère vis ou coin, le fait qu'elle soit parfaite ou partielle, etc. Chaque situation a un coût en énergie, et Y.T. Zhu et al. [34] ont effectué les calculs d'un grand nombre de réactions possibles sur ces interfaces. Ces interactions peuvent avoir des conséquences opposées vis à vis du joint de macle et de son évolution. Une dislocation parfaite peut, en arrivant sur un joint de macle, se dissocier et former différentes dislocations partielles. Dans le cas où une des dislocations partielles formées est sessile, l'opération a pour conséquence de réduire la mobilité de ce joint de macle [35]. On trouve également le

cas contraire, où une dislocation parfaite vis va, selon l'orientation de la contrainte, seulement glisser dans la macle sans en modifier le joint de macle, ou générer des dislocations partielles de macles (glissiles), ce qui conduit à l'épaississement de la macle [16].

Stockage de dislocations au joint de macle

Une dislocation peut être stockée dans un joint de macle, ce qui a pour effet de stocker de l'énergie dans le système considéré, contrairement au cas des joints de grains que l'on considère comme des puits de dislocations pouvant absorber les dislocations et ainsi réduire l'énergie élastique du système. Dans le cas où un grand nombre de dislocations est accumulé sur un même joint de macle, ce dernier peut être détruit et transformé en joint de grain. Dans le cas de macles épaisses [36], le joint de macle cohérent devient un joint de grain entre deux grains fortement désorientés, et l'orientation entre les deux cristaux peut alors ne plus être celle de la relation de symétrie initiale liée au maclage. Dans le cas de macles nanométriques (jusqu'à 10nm) [37], la macle est supprimée, ce qui donne un joint de grain entre deux grains faiblement désorientés.

1.1.4 Effet de taille et d'orientation sur la plasticité

Lors de la déformation d'un matériau massif, le maclage peut être observé au sein des matériaux à faible énergie de défaut d'empilement. Il reste cependant un phénomène relativement rare par rapport au glissement pur lié au mouvement de dislocations. En revanche, dans des objets de petites dimensions (de l'ordre du micron ou inférieur), des changements de mécanismes plastiques sont observés à cause de l'influence des surfaces de ces objets. En effet la proximité des surfaces avec l'ensemble du volume, ainsi que l'orientation cristalline de ces surfaces vont perturber les caractéristiques de ces objets. Ces perturbations sont liées aux énergies de surfaces et aux concentrations de contrainte induites à ces dimensions. Le maclage est ainsi un phénomène pouvant devenir dominant dans certaines situations.

Effet de taille

Du point de vue des propriétés mécaniques dans un premier temps, on observe une forte évolution des grandeurs telle que la limite d'élasticité ou la contrainte d'écoulement plastique lorsque l'on diminue la taille des objets. M.D. Uchic et al. [38] ont étudié ces caractéristiques lors de compressions de micropilier (Ni et Ni₃Al-Ta), et ils rapportent une augmentation de la contrainte d'écoulement plastique lorsque la taille de leurs micropiliers (respectivement de 5 à 40 μm et de 0,5 à 20 μm) diminue en dessous de la dizaine de micromètre. Une des interprétations possible de ce phénomène est liée au fait que la diminution du volume des échantillons modifie le stockage des défauts ce qui réduit leurs interactions,

limitant ainsi leur multiplication. Ces mécanismes étant à la base de l'écoulement plastique, si leurs apparitions sont diminuées, l'écoulement plastique est alors mis en difficulté.

M. Chen et al. [39] ont décrit le changement de mécanisme plastique au sein de système nanocristalin d'aluminium. Pour cela ils ont posé un modèle où ils définissent une taille critique de grains D_c selon laquelle le matériau se déforme par glissement de dislocations partielles ou par glissement de dislocations parfaites :

$$D_c = \frac{2\alpha\mu(b_N - b_p)b_p}{\gamma} \quad (1.8)$$

avec α entre 0,5 et 1,5 définissant le caractère de la dislocation (vis - coin), γ l'énergie de défaut d'empilement, μ le module de cisaillement, b_N et b_p les normes des vecteurs de Burgers des dislocations parfaites et partielles.

Dans le cas de compressions sur des nanoparticules d'or de diamètre compris entre 300 nm et 550 nm [40], il est observé deux régimes de déformation plastique. Le premier est une déformation partant d'un cristal parfait pour aboutir à un second cristal parfait. Ce phénomène est causé par la faible chance pour les dislocations d'interagir entre elles et de former des verrous. Au cours de ce régime la contrainte atteint des valeurs proches de la résistance théorique d'un cristal parfait. Le second régime est ensuite causé par le support de déformation offrant une plus grande surface de contact, et ainsi une plus grande région nucléant des dislocations. Ces dislocations interagissent entre elles puis forment des sources au sein des échantillons.

Au sujet des macles, X.L. Wu et al. [41] observent un effet de la taille des grains dans des systèmes nanocristallins de nickel (avec des grains compris entre 10 et 75 nm) sur la nucléation de macles. En effet ils montrent une relation entre le taux de macles et l'inverse de la taille des grains, relation liée à l'évolution des énergies de défaut plan en fonction des tailles de grains. D'un autre côté ils observent que la diminution de la taille des grains augmente l'énergie d'émission de dislocations partielles de macle. Du fait de cette compétition, ils en déduisent qu'il doit exister une taille de grains optimale pour favoriser le maclage. Leurs recherches proposent ainsi une explication aux différences entre les observations expérimentales et les observations de dynamique moléculaire qui se concentrent sur les tailles de grain les plus petites (inférieures à 15nm).

Effet de l'orientation cristalline lors de sollicitations mécaniques

H.S. Park et al. [42] ont fait une étude en dynamique moléculaire sur l'influence de l'orientation cristalline de nanofils métalliques (Nickel, Cuivre et Or) lors de sollicitations mécaniques de tension et de compression. Leur objectif était de comparer les phénomènes plastiques dans des objets de petite taille par rapport aux prédictions que peuvent fournir les facteurs de Schmid dans des massifs selon l'orientation cristalline de la sollicitation mécanique (Tableau 1.1). Ils ont ainsi effectué des calculs pour des sollicitations dans

TABLE 1.1 – Facteurs de Schmid maximaux par type d'événement plastique et en fonction de la direction de sollicitation. [42]

Orientation	dislocation parfaite	dislocation partielle de macle de tension	dislocation partielle de macle de compression
$\langle 100 \rangle$	0.42	0.24	0.47
$\langle 110 \rangle$	0.41	0.48	0.25

les directions $\langle 110 \rangle$ et $\langle 100 \rangle$. Ils ont utilisé pour leurs simulations des fils de section carrée de 6 mailles atomiques de côté (section rhombique pour la direction $\langle 110 \rangle$ avec des surfaces $\{111\}$), ce qui leur a permis d'observer également l'effet de l'orientation cristalline des surfaces des nanofils sur la plasticité à ces échelles. Leurs observations montrent des orientations de nanofils se déformant par glissement de dislocations partielles, ce qui génère des défauts d'empilement ou du maclage, contrairement aux attentes basées sur les facteurs de Schmid (Tableau 1.2). De plus, pour une même direction de sollicitation, l'orientation de la surface détermine l'apparition de maclage. Lors d'une traction $\langle 110 \rangle$ par exemple, si les surfaces du fil ont une orientation $\{111\}$, elles favorisent le maclage, contrairement à l'autre situation où les surfaces sont de types $\{110\}$ et $\{100\}$, ce qui ne génèrent que des dislocations partielles et donc seulement des défauts d'empilement.

TABLE 1.2 – Mécanismes de déformation observés en fonction du type de sollicitation et de la géométrie de l'échantillon (\langle direction de traction \rangle {surface du fil à section carrée}). [42]

Orientation	Chargement	Prédiction	Observation
$\langle 100 \rangle / \{100\}$	Tension	Glissement	Dislocations partielles
$\langle 100 \rangle / \{100\}$	Compression	Maclage	Maclage
$\langle 100 \rangle / \{110\}$	Compression	Maclage	Dislocations partielles
$\langle 110 \rangle$	Tension	Maclage	Dislocations partielles
$\langle 110 \rangle / \{111\}$	Tension	Maclage	Maclage
$\langle 110 \rangle$	Compression	Glissement	Dislocations parfaites et partielles
$\langle 110 \rangle / \{111\}$	Compression	Glissement	Pas de défauts linéaires

En 2010 Y.H. Wen et al. présentent une étude similaire [43], où ils étudient des nanofils d'or de section hexagonale avec différentes orientations cristallines ($\langle 100 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$). Ils concluent leur étude en montrant que les prédictions faites par le facteur de Schmid sont valides dans le cas de la compression mais pas dans le cas de la tension, où le glissement par dislocations partielles est majoritairement activé pour toutes les orientations que ce soit avec du maclage ou des défauts d'empilement.

Les différences de résultats entre ces deux études en simulations montrent donc que l'orientation des surfaces couplée à la forme des nano-fils joue un rôle important sur la nature des phénomènes plastiques activés au cours des différentes déformations. En effet pour des compressions dans la direction $\langle 110 \rangle$ par exemple, en fonction du type de

surface ou de la section, 3 mécanismes plastiques différents sont observés (dislocations parfaites, combinaison de dislocations parfaites et partielles, ou encore une absence de défaut linéaire).

1.2 Expériences de déformation dans les films minces

L'or est étudié mécaniquement depuis très longtemps ; sa structure CFC, le fait qu'il soit chimiquement inerte et ses excellentes propriétés électriques en font un matériau modèle avec beaucoup d'applications. Nous allons nous intéresser principalement aux cas de films minces monocristallins, notamment dans le cas de traction. En effet ce genre de matériaux a, comme nous l'avons vu, de nouveaux comportements aux petites échelles, comme l'augmentation de la limite de déformation élastique et le changement du mécanisme de déformation dominant, notamment avec la compétition entre le glissement simple et le maclage.

1.2.1 Effets de taille lors d'essais mécaniques

G. Dehm et al. [44] ont déposé des films minces d'or sur des monocristaux de NaCl et ont montré un effet de l'épaisseur du film déposé sur la proportion de macles au sein du film. En effet ils expliquent l'apparition de macles au sein de leur film mince d'or par la compression équibiaxiale causée par le refroidissement du substrat de NaCl et l'écart important de coefficient de dilatation thermique entre l'or et le sel. Ils observent ainsi en microscopie électronique en transmission que la densité de macles augmente quand l'épaisseur du film diminue (Figure 1.7), pour des films compris entre 40 et 160 nm d'épaisseur. Les films les plus fins ont tendance à favoriser le maclage. Ils expliquent que cet effet de taille est lié à la minimisation de l'énergie de déformation de macle et de l'énergie de joint de macle.

Au sein de films minces d'or similaires, S.H. Oh et al. [45] ont montré un changement de mécanisme de déformation en fonction de l'épaisseur des films d'or monocristallins lors d'une traction dans la direction [100]. Leurs échantillons sont épitaxiés à 300 °C par pulvérisation magnétron sur des substrats monocristallins de NaCl, puis transférés sur polyimide. Ces dépôts permettent d'obtenir des films monocristallins avec une épitaxie cube sur cube de l'or sur le sel : $\text{NaCl}(001)[100]||\text{Au}(001)[100]$. Les films d'or possèdent cependant un réseau de macles sur leurs plans inclinés $\{111\}$. Les macles ont une épaisseur de quelques nanomètres seulement (Figure 1.8.a .b) et leur densité varie en fonction de l'épaisseur (la densité de macles diminue quand l'épaisseur augmente). Il est aussi notable que leurs films sont parsemés de trous rectangulaires, qu'ils associent au retrait du substrat de NaCl. Ils ont ensuite effectué des essais de traction in situ en microscopie électronique en transmission sur leurs films de différentes épaisseurs (40, 60, 80 et 160 nm) dans la direction [100]. Ils ont ainsi observé que dans leurs films les plus épais (160 nm), le mécanisme de

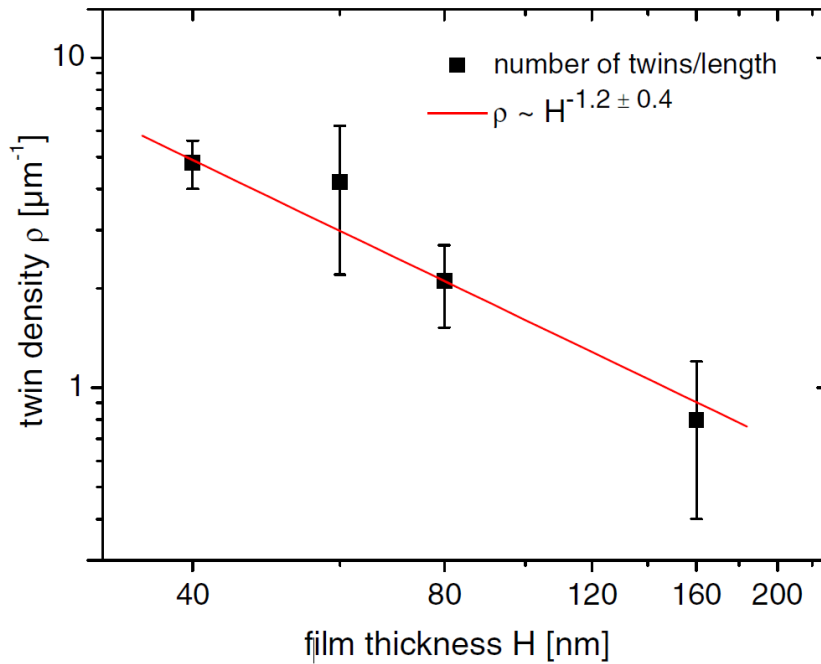


FIGURE 1.7 – Densité de maclage au sein de film mince d'or déposé à 300 ° C sur monocristal de NaCl, en fonction de l'épaisseur du film [44]

déformation principal est le glissement de dislocations parfaites $1/2 \langle 110 \rangle$ dans les plans $\{111\}$. En revanche à partir de 80 nm d'épaisseur, plus les films sont minces (80 / 60 puis 40 nm), plus le glissement de dislocations partielles de Shockley est privilégié par rapport au glissement de dislocations parfaites. Pour les films de 40 nm le glissement de dislocations partielles semble même être le mode de déformation dominant. Cependant ils relèvent uniquement la formation de défaut d'empilement et ne mentionnent pas la présence de maclage au cours de leur traction, contrairement à J.W. Matthews [46] qui observe du maclage mécanique dans des films minces d'or lors de traction [100] (cf partie 1.2.2).

Dans une autre expérience [47], P. A. Gruber et al. ont étudié, à l'aide de diffraction de rayons X en synchrotron, des films d'épaisseur variant entre 31 nm et 858 nm lors de traction uniaxiale [100]. Les films étudiés sont obtenus de la même manière que dans l'étude précédente (pulvérisation magnétron sur des monocristaux de NaCl à 300 ° C) et possèdent donc les mêmes caractéristiques : films épitaxiés $\text{NaCl}(001)[100]||\text{Au}(001)[100]$ avec la présence de macles et de trous pour les films les plus minces (Figure 1.8.c). Ils ont ensuite acquis des clichés de diffraction Laue au cours d'essais de traction. Puis à partir de la position de leurs pics de diffraction, ils obtiennent les différentes contraintes d'écoulement plastique de leurs films. Ils en concluent ainsi que la contrainte d'écoulement varie en fonction de l'épaisseur (Figure 1.9), plus le film est mince plus la contrainte d'écoulement plastique est grande.

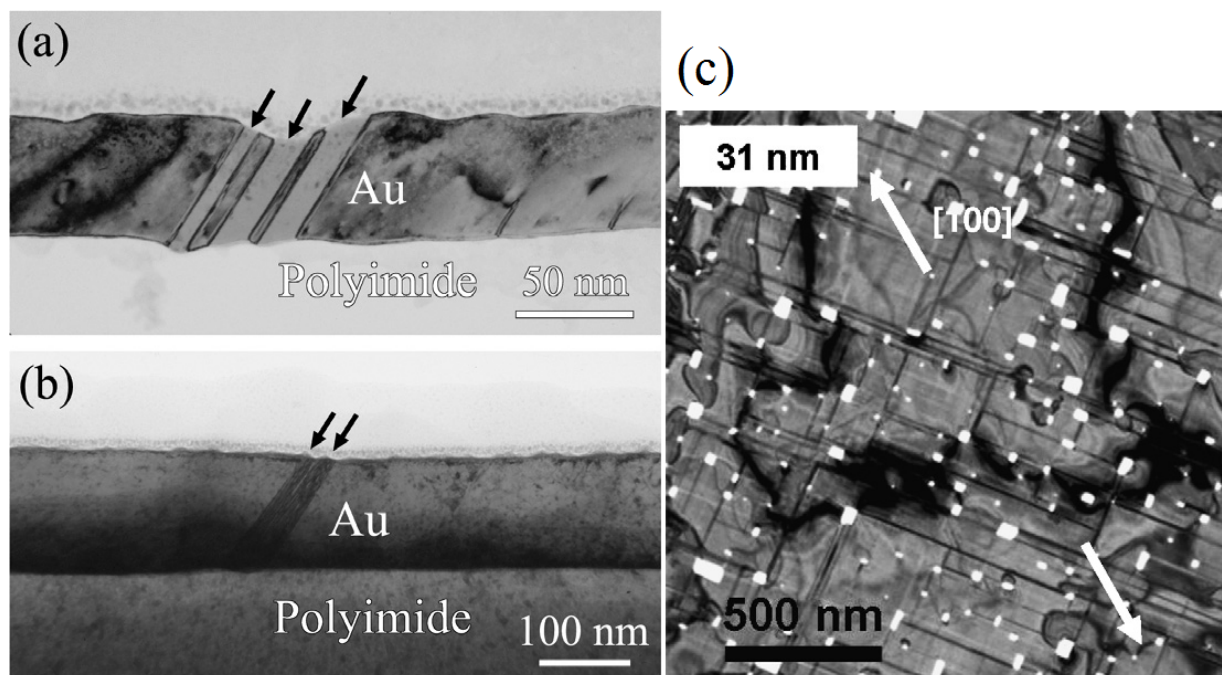


FIGURE 1.8 – Film d’or épitaxié sur NaCl puis transféré sur polyimide avant déformation, a) coupe transverse 60 nm d’épaisseur[45] ; b) coupe transverse 160 nm d’épaisseur[45] ; c) vue plane 31 nm d’épaisseur [47]

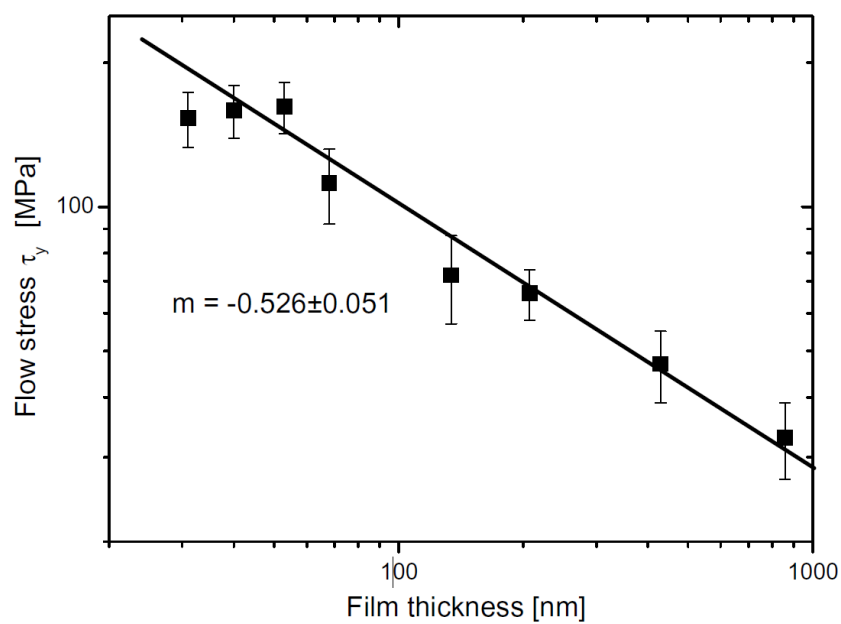


FIGURE 1.9 – Contrainte d’écoulement en fonction de l’épaisseur du film d’or monocristallin [47]

1.2.2 Influence de la direction de traction sur l'or

Les facteurs de Schmid permettent de prévoir que les phénomènes plastiques activés ne sont pas les mêmes selon l'orientation des matériaux, que ce soit pour des matériaux massifs, des films ou des nanofils [43]. Dans notre étude nous allons nous intéresser aux cas des films minces. J.W. Matthews [46] a notamment comparé des films monocristallins (platine, palladium, or, argent, cuivre, nickel) déformés lors de tractions dans les directions [110] et [100]. Ses films d'or sont obtenus par évaporation sur un substrat de NaCl monocristallin chauffé entre 300 et 360 ° C, malheureusement J.W. Matthews ne fait pas mention de l'épaisseur de ses films dans son article. Il observe que ses échantillons possèdent initialement un réseau de macles de croissance dans les différents plans $\{111\}$ (Macles notées G Figure 1.10.a). Ces macles sont beaucoup moins longues que celles observées dans la section 1.2.1. Il déforme ensuite ses films dans un premier temps à l'aide de ruban adhésif, puis dans un second temps par clivage du substrat de sel. Il effectue ensuite des analyses post mortem sur ses échantillons déformés ou clivés. Les échantillons déformés à l'aide de ruban adhésif sont déformés aux alentours de 1%. Après une traction dans la direction [110], ces échantillons présentent de grandes macles lenticulaires perpendiculaires à la direction de traction, d'une dizaine de microns de long et d'un micron de large (Figure 1.10 b), et les macles peuvent être parcourues d'une fissure en leur centre. Dans le cas de traction dans la direction [100], les échantillons montrent des macles allongées dans les 2 directions $\langle 110 \rangle$ du plan du film, et des fissures au centre de certaines macles (Figure 1.10 a et c). En observant les échantillons clivés selon la direction [100], il est alors observé que le profil de rupture est en dent de scie avec les arêtes orientées selon les mêmes directions que les macles. J.W. Matthews en vient ensuite à la conclusion qu'un système de glissement $\{111\}\langle 110 \rangle$ est activé dans les macles, et que cela conduit à l'affinement du film au niveau des macles, menant aux fissures puis à la rupture.

1.3 Objectifs de l'étude

Comme montré dans les paragraphes précédents, les échantillons d'une épaisseur de quelques dizaines de nanomètres possèdent des phénomènes plastiques qui diffèrent de ceux des massifs notamment à cause des effets des surfaces entrant en jeu puisque le ratio surface/volume devient non négligeable. Une compétition entre le glissement de dislocations partielles et le glissement de dislocations parfaites est attendue. Dans l'or, une épaisseur de films de 50 nm semble être une épaisseur de transition de mécanisme de déformation plastique. On peut souligner que différentes études n'observent pas forcément le maillage malgré des échantillons et des sollicitations similaires.

Outre les changements de mécanismes de déformation causés par les petites dimensions, une fois un matériau maillé, dans certains cas il est possible d'observer de la plasticité

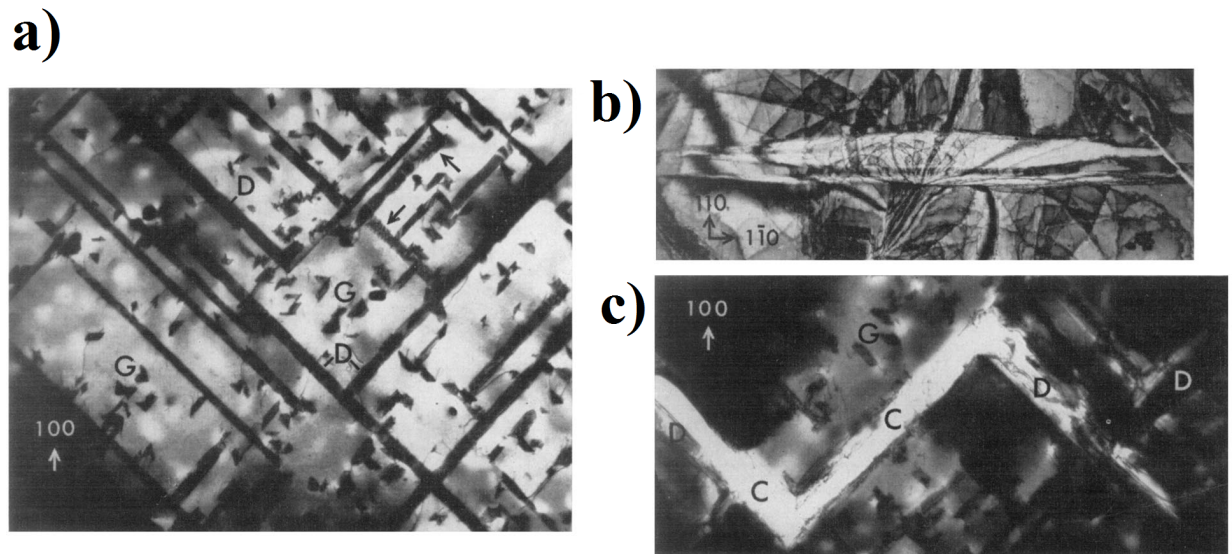


FIGURE 1.10 – Micrographies de microscopie électronique en transmission de J.W. Matthews; a) Film déformé dans la direction $[100]$ (G : macles de croissance (petites) / D : macles de déformation (longues)) (Or); b) Film déformé dans la direction $[110]$ (macle lenticulaire au centre) (Palladium); c) Fissure (C) dans un film déformé dans la direction $[100]$ (Or) [46]

réversible telle que le démaclage, qui est un comportement mécanique recherché. Les matériaux nanomaclés peuvent présenter des propriétés pseudo-élastiques grâce à des cycles de maclage-démaclage. Ce genre de régime possédant de la plasticité réversible repousserait la fatigue causée lors de cycle de déformation tout en augmentant l'amplitude de déformation de ses matériaux.

Nous nous sommes intéressés aux films minces d'or monocristallins (notamment de 50 nm) déposés sur NaCl en température, pour effectuer des essais de traction. Nous avons dans un premier temps élaboré différents échantillons pour sélectionner des échantillons relativement modèles, dans l'objectif d'avoir le moins de défauts initiaux possible (dislocations, macles, trous, marches). Puis dans un second temps, cette étude présente l'évolution de ces films minces au cours de différents essais de tractions. Nous nous concentrons notamment sur l'évolution des macles au cours de ces essais, et la direction de traction sera dans cette étude un paramètre clef. Nos échantillons nous permettent d'utiliser comme techniques d'analyse : la diffraction des rayons X grâce au grand nombre d'électrons de l'or ($Z = 79$) et la microscopie électronique en transmission grâce aux faibles épaisseurs des échantillons. Cela nous permet d'avoir des informations à différentes échelles : des informations statistiques dans un premiers temps à l'aide des rayons X, comme l'évolution relative du volume de macles ou la déformation élastique des différents plans ; puis des informations locales à l'échelle des défauts cristallins, pour observer leurs nucléations, leurs interactions et leurs différentes évolutions.

Chapitre 2

Elaboration et caractérisation des films minces d'or

De nombreuses études ont analysé la croissance de films minces d'or déposés par évaporation sur des substrats de monocristaux d'halogénures alcalins tels que le chlorure de sodium (NaCl)[48][49][50]. Elles ont permis de mettre en évidence les différentes relations d'épitaxies obtenues en fonction des conditions de dépôts, telles que la température et la vitesse de dépôt, ou encore l'état de surface du substrat. L'or et le sel sont deux matériaux de structure cristallographique cubique à faces centrées (CFC) avec des paramètres de maille très différents, respectivement, 0,408 nm et 0,564 nm. Malgré tout, des couches minces d'or épitaxiées sur le NaCl peuvent être fabriquées selon les conditions de dépôts. Ainsi, il a été montré que l'un des facteurs essentiels pour obtenir une croissance en épitaxie était la température de dépôt. Il existe différents domaines de température avec une transition du polycristal au monocristal en passant par une évolution des composantes de texture cristallographique qui passent d'une composante majoritaire [111] à une composante majoritaire [001] dans le cas de l'or [51]. D'autres ont observé qu'une vitesse de dépôt importante permettait d'obtenir des films épitaxiés sur sel contrairement à une vitesse de dépôt plus lente qui conduit plutôt à des films polycristallins [52]. L'influence de l'état de surface du substrat a également été analysée afin de mieux comprendre comment ces relations d'épitaxies sont influencées par la forte tendance du sel à adsorber des éléments [53].

Ce chapitre présente la technique d'élaboration des échantillons ainsi que leurs caractérisations structurales réalisées principalement par diffraction des rayons X (mesure de figure de pôles) et microscopie électronique en transmission. Les films minces d'or ont été élaborés par pulvérisation ionique en faisant notamment varier la températures de dépôt. L'objectif était d'élaborer des films minces monocristallins le plus homogène possible, sans gradient dans l'épaisseur, avec une densité de défauts relativement faible, et ce, afin d'étudier leur comportement mécanique et les événements plastiques associés. En outre, il fallait aussi que les couches monocristallines puissent être transférées sur un substrat étirable afin de pouvoir réaliser les essais de déformation in situ sous diffraction des rayons X.

2.1 Synthèse d'échantillons

2.1.1 Dépôts par pulvérisation ionique

La procédure d'élaboration de nos échantillons commence par la préparation du substrat, que nous obtenons à partir d'un barreau monocristallin de NaCl de $10 \times 10 \times 50$ mm³ orienté {100} sur chaque face. Nous clivons ensuite le monocristal afin d'obtenir une surface fraîchement clivée de 10×10 mm². Le clivage est effectué à l'air libre ; les substrats obtenus sont immédiatement placés dans un bâti de dépôt conçu et élaboré au laboratoire et dénommé EVASION (Figure 2.1). Ce bâti d'un volume d'environ 184 litres est relié à un groupe de pompage turbo-moléculaire permettant d'atteindre en quelques heures un niveau de vide de l'ordre de 10^{-6} mbar. Les monocristaux de sel sont ensuite chauffés à une température donnée (entre 100 °C et 400 °C) pendant au moins 2 heures pour désorber et subir une certaine reconstruction thermique, puis sont maintenus à cette même température au cours du dépôt.

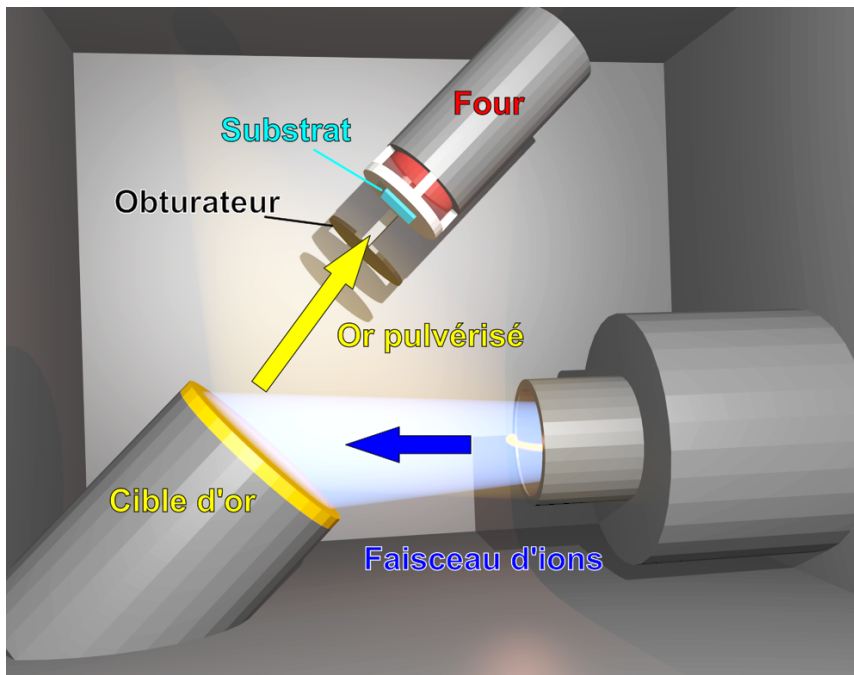


FIGURE 2.1 – Schéma du bâti de dépôt par pulvérisation ionique : EVASION

Les échantillons sont synthétisés par dépôt physique en phase vapeur (ou PVD pour *Physical Vapor Deposition*), par pulvérisation ionique. La pulvérisation ionique consiste dans notre cas à ioniser puis accélérer de l'argon, puis de le projeter sur une cible d'or. Dans le cas présent, nous avons utilisé une source Kaufman où un gaz d'argon est inséré à raison de $1,2 \pm 0,2$ ml/min dans la source, puis il y est ionisé par un filament de tantale dans lequel passe un courant de 10 ± 1 A. Ce plasma est ensuite soumis à une différence de potentiel de 50 ± 5 V puis une grille de carbone applique une seconde différence de potentiel de 150 ± 1

V pour canaliser les ions hors de la source. Enfin une dernière différence de potentiel de 1200 ± 1 V est appliquée pour projeter les ions sur la cible d'or avec un courant de faisceau maintenu à 40 ± 1 mA. Lors du dépôt, la pression dans le bâti est de 1×10^{-4} mbar et il est également notable qu'un filament neutraliseur en tantale est présent pour rendre le faisceau électriquement neutre. Il résulte de ces paramètres un dépôt d'une vitesse de 0.06 nm/sec caractérisé par profilométrie optique et par réflectométrie en rayons X. L'or pulvérisé par l'argon se condense sur des substrats placés face à la cible d'or à une distance de 21 cm sur un porte-échantillon chauffant permettant des températures de dépôt comprises entre la température ambiante et 700°C . Lors de nos études, nous avons utilisé comme substrat des monocristaux de NaCl sur lesquels nous avons déposé des couches minces d'or à diverses températures (100°C à 400°C) d'épaisseur allant de 20 nm à 200 nm.

2.1.2 Création d'une éprouvette de traction

Une fois les dépôts effectués, il est possible de dissoudre le sel dans de l'eau déionisée pour le récupérer sur un autre support. En effet, mis en contact avec l'eau, le film d'or se décolle très facilement du sel. Comme la tension de surface de l'eau suffit à maintenir le film à la surface, il est relativement aisé de récupérer le film monocristallin d'or en plongeant le support choisi dans l'eau. Nous avons ainsi utilisé comme support des éprouvettes cruciformes en polyimide (Kapton[®]) pour nos expériences de déformations biaxiales in situ au synchrotron, et des grilles en cuivre pour les observations en microscopie électronique en transmission (MET). Il est intéressant de noter que l'or est très adhérent au support en polyimide ; il résiste à l'épreuve du scotch et ne peut être dissocié simplement du Kapton[®] pour d'éventuelles observations post-mortem (après un essai de déformation) en MET.

2.2 Caractérisation d'échantillons

2.2.1 Le principe des figures de pôles

Dans un premier temps, nos échantillons ont été analysés à l'aide de la diffraction de rayons X en laboratoire sur 2 diffractomètres 4 cercles Seifert 3000 et Seifert Space TS-4 (Figure 2.2.b), équipés d'une anode de cuivre comme source de rayons X et d'un monochromateur (graphite courbe) permettant de filtrer la raie K_β .

Lors de mesures de rayons X en mode $\theta/2\theta$ qui ne sondent que les distances interréticulaires (d_{hkl}) des plans parallèles à la surface, nous avons constaté que nos échantillons étaient très texturés et possédaient de fortes composantes de textures cristallographiques $\langle 111 \rangle$ ou $\langle 002 \rangle$ perpendiculaires à la surface, variables selon la température de dépôt. D'une façon générale, il y a diffraction lorsque le vecteur de diffusion \mathbf{q} , est un vecteur du

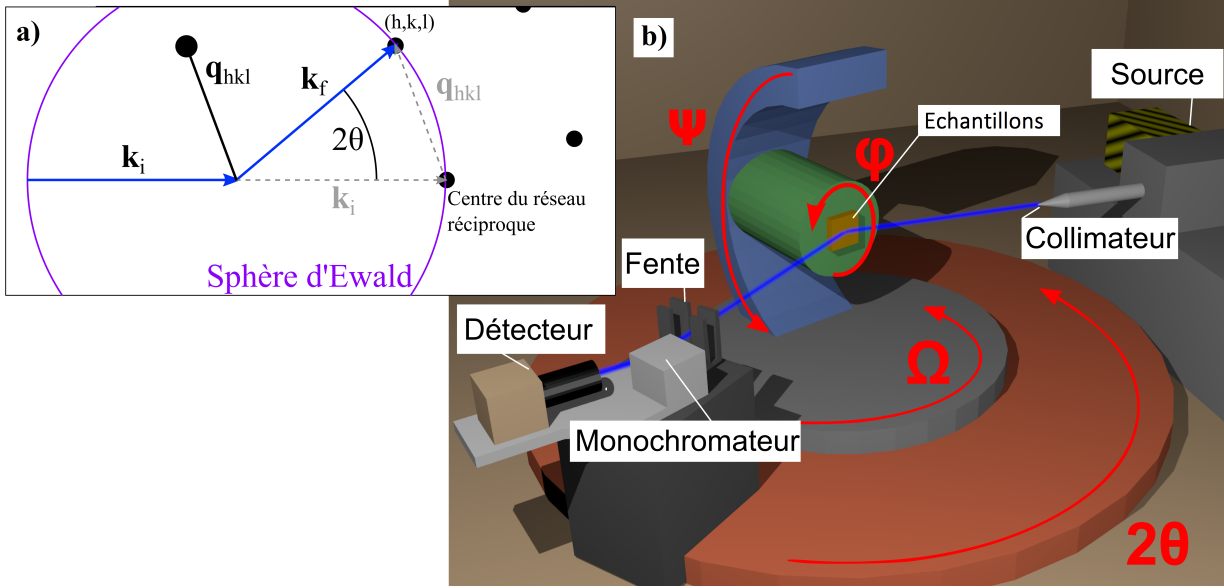


FIGURE 2.2 – a) Condition de diffraction lorsque \mathbf{q}_{hkl} est un vecteur du réseau réciproque ; b) Schéma du diffractomètre Seifert 3000 et des rotations utilisées lors des mesures.

réseau réciproque (Figure 2.2.a). On note alors \mathbf{q}_{hkl} avec h, k et $l \in \mathbb{Z}$ dans la relation :

$$\mathbf{q}_{hkl} = \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i \quad (2.1)$$

avec $|\mathbf{k}_f| = |\mathbf{k}_i| = \frac{2\pi}{\lambda}$ respectivement le vecteur d'onde du faisceau diffracté et le vecteur d'onde du faisceau incident (Figure 2.2.a). Ceci permet d'obtenir la loi de Bragg :

$$2d_{hkl} \sin \theta = n \cdot \lambda \quad (2.2)$$

avec θ l'angle entre les plans diffractants et \mathbf{k}_i , n l'ordre de réflexion, et λ la longueur d'onde des rayons X égale à 0,154 nm dans le cas d'une anode de cuivre (8,04 keV pour $K_{\alpha 1}$).

Pour caractériser nos échantillons, nous avons voulu connaître plus précisément l'orientation des grains dans nos échantillons, et pour ce faire, nous avons effectué des figures de pôles. Une figure de pôles s'effectue à $\theta/2\theta$ constant pour ne sonder qu'une seule famille de plans (ou bien une seule distance interréticulaire). On définit ensuite ϕ l'angle de la rotation autour de la normale à la surface de l'échantillon, appelé azimuth, et ψ l'angle entre la normale à la surface de l'échantillon et le vecteur \mathbf{q}_{hkl} , appelé déclinaison (Figure 2.2.b). En faisant une suite de mesures en ϕ , couplée à une suite de positions en ψ , on parvient à sonder toutes les orientations possibles d'une famille de plans dans un échantillon, le résultat étant une carte à deux dimensions, de l'intensité mesurée à chaque points $(\phi\psi)$, représentée en coordonnées polaires (Figure 2.3.b). Dans l'espace réciproque, cela revient à

sonder la surface d'une demi sphère de rayon (Figure 2.3.a) :

$$\|\mathbf{q}_{hkl}\| = \sqrt{h^2 + k^2 + l^2} \times \frac{2\pi}{a_{Au}} \quad (2.3)$$

avec a_{Au} le paramètre de maille de l'or en nanomètre donc $\|\mathbf{q}_{111}\|$ en nm^{-1} . Soit pour une figure de pôles des plans $\{111\}$:

$$\|\mathbf{q}_{111}\| = \sqrt{3} \times \frac{2\pi}{a_{Au}} = 26,67 \text{ nm}^{-1} \quad (2.4)$$

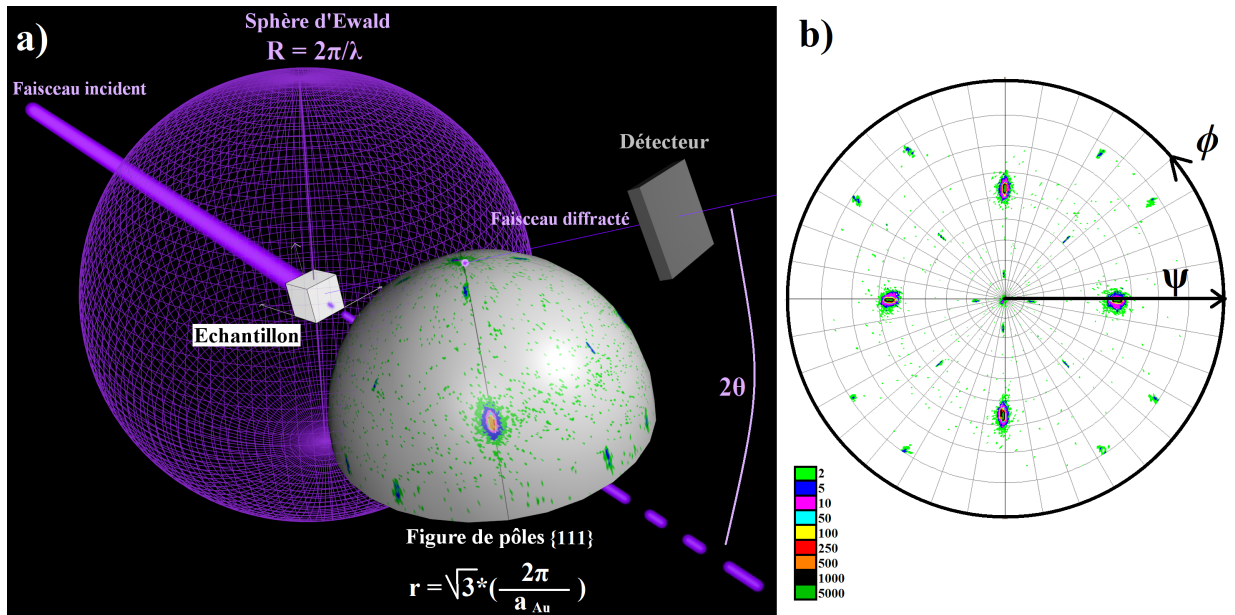


FIGURE 2.3 – a) Schéma d'une figure de pôles $\{111\}$ dans l'espace réciproque; b) Exemple typique d'une figure de pôles $\{111\}$ d'un échantillon d'or, avec les angles de rotation azimutal ϕ et de déclinaison ψ .

Nous avons commencé par effectuer des figures de pôles sur les plans $\{111\}$, $\{200\}$, $\{220\}$ et $\{311\}$ puis nous nous sommes concentrés sur les figures de pôles des plans $\{111\}$ pour effectuer une analyse relative des évolutions entre les échantillons. Dans une figure de pôles, la position des pics de diffraction en ψ peut être calculée ainsi :

$$\psi = \arccos\left(\frac{h_1 \times h_2 + k_1 \times k_2 + l_1 \times l_2}{\sqrt{h_1^2 + k_1^2 + l_1^2} \times \sqrt{h_2^2 + k_2^2 + l_2^2}}\right) \quad (2.5)$$

avec (h_1, k_1, l_1) les indices des plans sondés et (h_2, k_2, l_2) les indices liés à l'orientation par rapport à la surface d'un grain diffractant.

2.2.2 Figures de pôles des échantillons d'or déposés sur sel

Au sein des échantillons d'or déposés sur sel et d'après la formule 2.5, nous observons des pics de diffraction aux orientations reportées dans le tableau 2.1. Ceci permet de connaître l'orientation des différentes composantes cristallines d'un échantillon par rapport à sa surface.

TABLE 2.1 – Tableau des positions théoriques en ψ des intensités observées sur les figures de pôles, selon l'orientation des plans (h_1, k_1, l_1) parallèles à la surface du grain diffractant et selon les plans (h_2, k_2, l_2) diffractants

h_2, k_2, l_2	ψ $h_1 k_1 l_1$ (1,1,1)	h_2, k_2, l_2	ψ $h_1 k_1 l_1$ (0,0,2)	h_2, k_2, l_2	ψ $h_1 k_1 l_1$ (2,2,0)	h_2, k_2, l_2	ψ $h_1 k_1 l_1$ (3,1,1)
1, 1, 1	0°	1, 1, 1	54.74°	1, 1, 1	35.26°	1, 1, 1	29.50°
1,-1, 1	70.53°			1,-1, 1	90°	1,-1, 1	58.52°
						1,-1,-1	79.98°
0, 0, 1	54.74°	0, 0, 1	0°	0, 0, 1	90°	0, 0, 1	72.45°
		1, 0, 0	90°	1, 0, 0	45°	1, 0, 0	25.24°
2, 2, 1	15.79°	2, 2, 1	70.53°	2, 2, 1	19.47°	2, 2, 1	25.24°
2, 2,-1	54.74°	1, 2, 2	48.19°	2, 1, 2	45°	2, 2,-1	45.29°
2,-2,-1	78.90°			2,-1, 2	76.37°	1, 2, 2	45.29°
				2,-2, 1	90°	2,-2, 1	59.83°
						2,-2,-1	72.45°
						1, 2,-2	72.45°
						-1, 2, 2	84.23°

La distribution en ϕ des grains au sein de l'échantillon est déterminée à partir des symétries de pics observées sur les figures de pôles. À l'aide de projections stéréographiques, nous affichons la position des pôles théoriques d'une orientation cristalline donnée, puis par addition de projections stéréographiques, nous pouvons reconstruire nos figures de pôles expérimentales. Dans le cas des figures de pôles $\{111\}$, nous avons par exemple les projections stéréographiques de la figure 2.4 (Les autres figures de pôles sont traitées en annexe A). La figure 2.4.a représente sur une projection stéréographique les 4 pôles $\{111\}$ pour une orientation cristalline $[001]$ normale à la surface. Les plans $\{111\}$ sont représentés par les surfaces du tétraèdre de Thompson dans l'espace direct sur la figure 2.4.d. Cela justifie les pics sur la figure de pôles à $\psi = 54.7^\circ$ avec une orientation de grain unique, correspondant à la relation d'épitaxie $\text{Au}(001)[100]||\text{NaCl}(001)[100]$ de l'or avec le substrat de NaCl (cf figure 2.4.h). Par ailleurs, les figures 2.4.c et .f présentent les pôles $\{111\}$ pour une orientation cristalline $[111]$ normale à la surface. Cela explique la présence du pic central et de 8 pics supplémentaires sur la figure de pôles $\{111\}$ de la figure 2.4.h. Les pics aux $\psi = 0^\circ$ et $\psi = 70.5^\circ$ sont associés à 4 orientations de grains différentes ayant pour relation d'épitaxie avec le substrat : $\text{Au}(111)\langle 110 \rangle || \text{NaCl}(001)\langle 110 \rangle$. La figure 2.4.c représente les plans $\{111\}$ au sein d'une de ces orientations. Enfin, les pics restants à $\psi = 15.8^\circ$ et

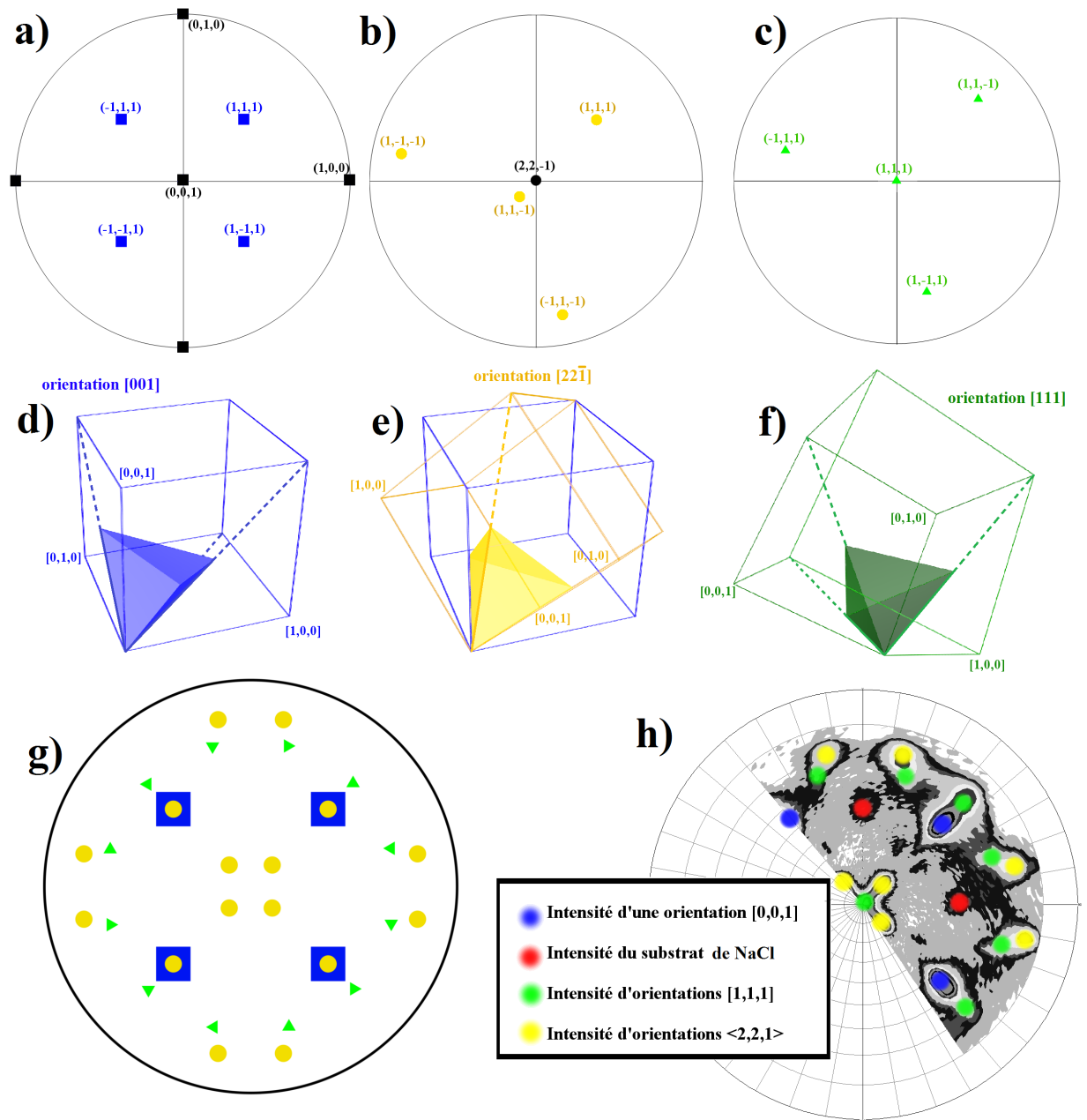


FIGURE 2.4 – Construction d'une figure de pôles $\{111\}$ à l'aide de projections stéréographiques ; a) projection stéréographique d'une orientation cristalline $[001]$; b) projection stéréographique d'une orientation $[22-1]$ (macle (111)) ; c) projection stéréographique d'un grain $[111]$; d) Représentation de la maille cristalline associée à son tétraèdre de Thomson dans l'espace réel, en bleu pour l'orientation $[001]$, e) en jaune pour une macle (maclé selon les plans (111) de l'orientation bleu $[001]$), et f) en vert pour l'orientation $[111]$; g) Schéma de la somme des projections stéréographiques correspondant à la figure de pôles $\{111\}$ d'un échantillon ; h) Figure de pôles $\{111\}$ expérimentale d'une couche mince d'or de 200 nm déposée à 225°C et les orientations cristallines associées aux pics. (En rouge intensité de plans $[220]$ du substrat monocristallin de NaCl orienté $[001]$)

$\psi = 78.9^\circ$ proviennent d'orientations cristallines ayant une orientation $\{221\}$ par rapport à la surface du film. Ces orientations $\{221\}$ correspondent à des macles incluses dans un cristal orienté $[001]$. Une projection stéréographique des plans $\{111\}$ contenus dans une macle (111) est présentée sur la figure 2.4.b avec les plans $\{111\}$ schématisés sur la figure 2.4.e. L'orientation des macles est définie par la relation de symétrie par rapport à leur plan de maillage, plan de type $\{111\}$. Cristallographiquement, cela correspond à une rotation de 180° du réseau autour de la direction $\langle 111 \rangle$ perpendiculaire au plan de maillage. On obtient ainsi pour une macle selon le plan (111) par exemple, une orientation cristalline $(22-1)$. Lors de cette rotation, les plans (111) ne changent pas d'orientation (couple (ϕ, ψ)), et on observe donc la superposition des pics des plans (111) de la matrice $[001]$ et des macles $(22-1)$ sur une figure de pôles à $\psi = 54.7^\circ$ (Figure 2.4). Il s'agit du plan de maillage, plan dans lequel on trouve le joint de macle cohérent. Lors de la croissance des échantillons, les 4 types de macles sont équiprobables selon les 4 plans $\{111\}$ de la matrice ; ceci explique la symétrie d'ordre 4 pour ces pôles. La figure 2.4.g représente ainsi l'addition des projections stéréographiques avec les symétries associées à chaque orientation. Le raisonnement présenté ci-dessus permet d'indexer la figure de pôles d'un échantillon d'or de 200 nm déposé à 225°C représentée en Figure 2.4.h.

Dans le reste de la thèse, nous nommons les différents macles par rapport à leur plan de maillage au sein de la matrice monocristalline. Nous orientons la matrice monocristalline comme indiqué sur les figures 2.4.a et 2.5 et nous distinguons les 4 familles de macles présentes dans l'échantillon, ces 4 familles de macles correspondent à 4 orientations distinctes (représentées par 4 couleurs en Figure 2.5).

2.2.3 Effet de la température de dépôt

Les figures de pôles des plans $\{111\}$ révèlent plusieurs pics à différents ψ en fonction de la température de dépôt. Les dépôts à température peu élevée (100°C , Figure 2.6.a) présentent des pics à $\psi = 0^\circ$ et $\psi = 70,5^\circ$, ce sont les plans d'un cristal orienté avec des plans $\{111\}$ parallèles à la surface. De plus on constate que les grains déposés respectent une symétrie d'ordre 4 correspondant à l'orientation du substrat monocristalin de NaCl $[001]$. Cette orientation correspond à la relation d'épitaxie $\text{Au}(111)\langle 110 \rangle \parallel \text{NaCl}(001)\langle 110 \rangle$.

À plus haute température (400°C), les figures de pôles $\{111\}$ (Figure 2.6.b) présentent des pics intenses à $\psi = 54,7^\circ$. Ces pics correspondent à une orientation ayant des plans (001) parallèles à la surface. Ces pics sont donc caractéristiques d'une croissance d'or ayant une relation d'épitaxie cube sur cube avec le substrat, soit $\text{NaCl}(001)[100] \parallel \text{Au}(001)[100]$. Cependant, la figure de pôles contient également des pics d'intensité plus faible, en $\psi = 15,8^\circ$ et $\psi = 78,9^\circ$. Ces pics sont caractéristiques de régions cristallines orientées $\text{NaCl}(001)[100] \parallel \text{Au}(22-1)[-122]$ et de la symétrie d'ordre 4 qui s'en suit autour de $[001]$ dans la matrice monocristalline. Ces orientations correspondent aux orientations de

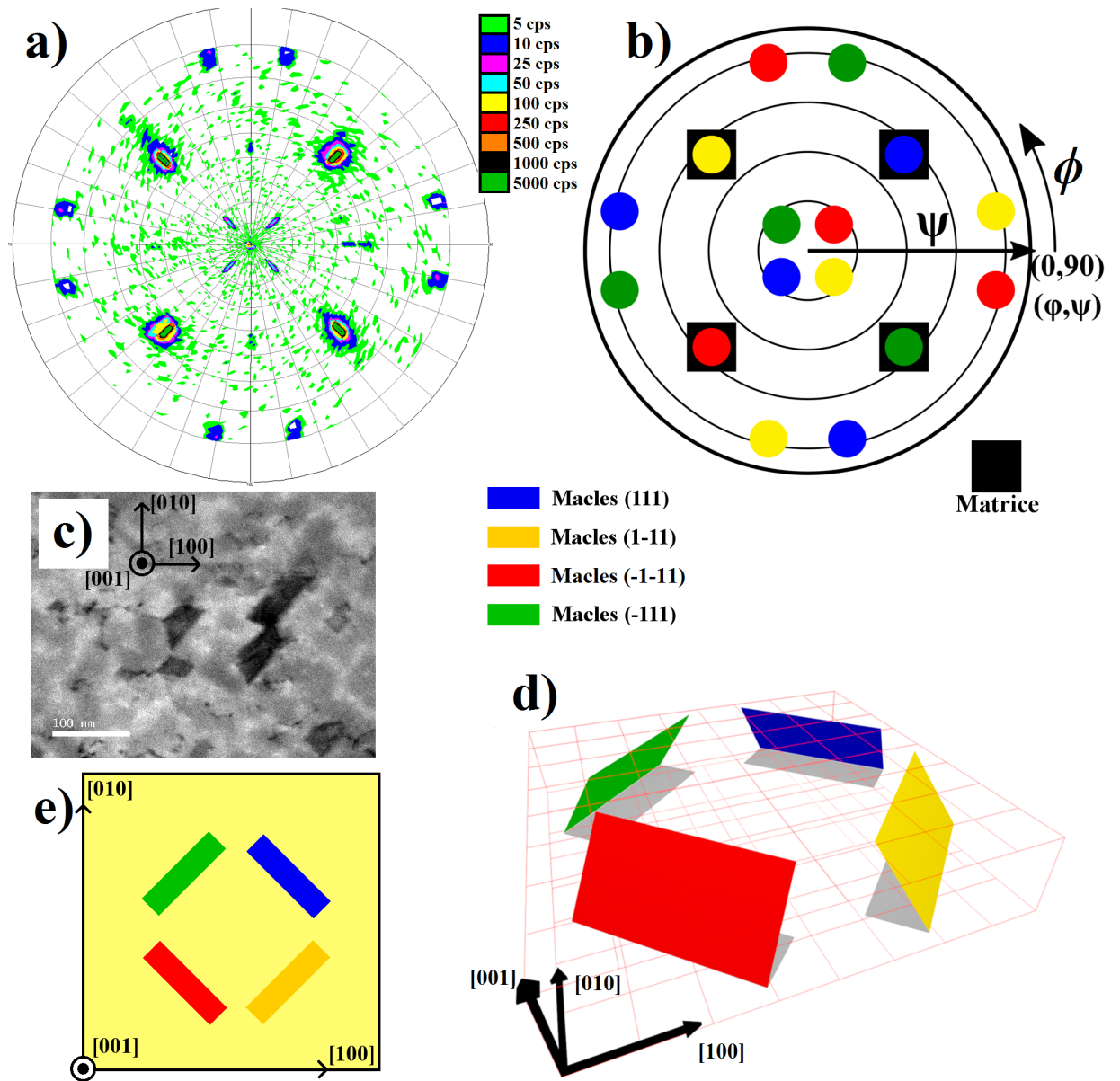


FIGURE 2.5 – a) Figure de pôles $\{111\}$ d'un échantillon d'or de 50 nm déposé à 400°C ; b) Projection stéréographique des plans $\{111\}$ associés aux 4 macles et à la matrice d'or; c) Micrographie STEM-DF d'un échantillon d'or de 50 nm déposé à 400°C (en vue plane); d) Schéma des plans de maillage (plans $\{111\}$) dans le film; e) Schéma des macles vue de dessus.

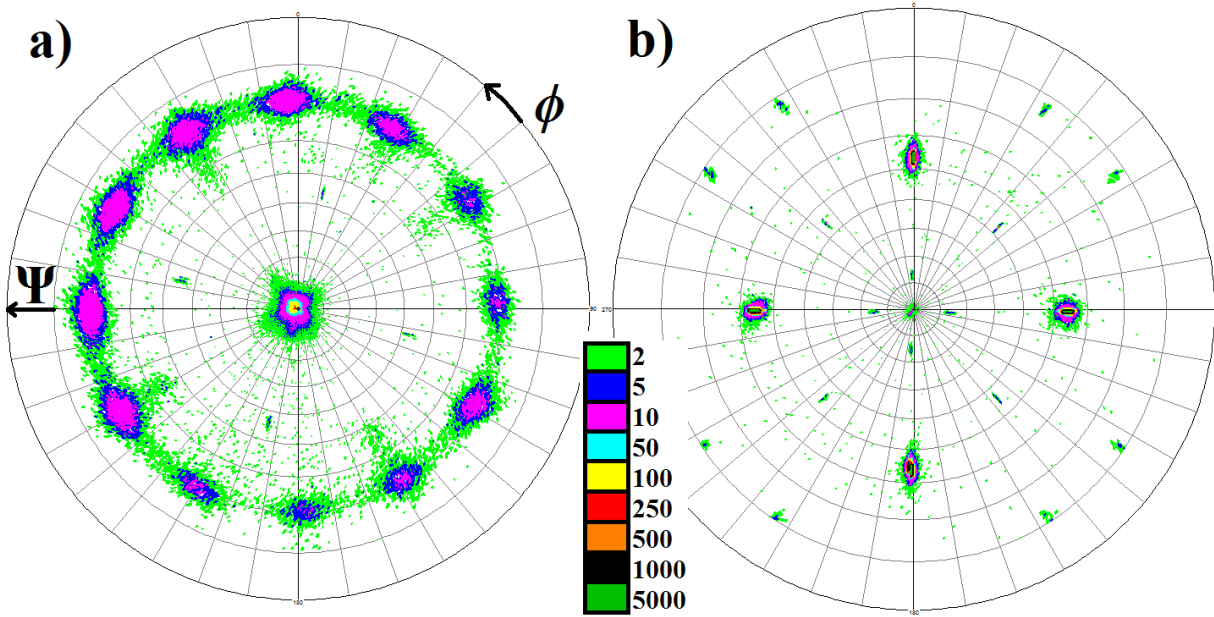


FIGURE 2.6 – a) Figure de pôles $\{111\}$ d'un échantillon de 200 nm déposé à 100°C sur un substrat monocristallin de NaCl; b) Figure de pôles $\{111\}$ d'un échantillon de 200 nm déposé à 400°C sur un substrat monocristallin de NaCl

macles incluses dans un monocristal d'or épitaxié $\text{NaCl}(001)[100]||\text{Au}(001)[100]$. Il y a en effet 4 plans de maillage $\{111\}$ aux mêmes ψ dans un monocristal d'or ayant cette orientation, ce qui explique la symétrie d'ordre 4 des pics liés aux macles. On peut à nouveau noter que chaque macle possède un pôle qui diffracte aux mêmes angles (ϕ, ψ) qu'un pic de la matrice monocristalline, c'est le plan de maillage (plan du joint de macle cohérent).

Nous avons ensuite effectué des dépôts à des températures intermédiaires pour observer la transition entre les 2 textures. Pour un dépôt à 225°C (Figure 2.4.h) nous observons une double texture mêlant les 2 orientations, toutefois l'orientation majoritaire du film est une orientation $[001]$, avec des pics liés aux macles très prononcés. Sur la figure 2.7.a on peut observer le changement de texture lié à la température. Pour des dépôts à une température de 300°C , on observe que le film est orienté $[001]$ avec des pics liés aux macles moins intenses que ceux des échantillons déposés à 225°C . Nous avons choisi d'observer l'évolution du rapport entre le pic lié aux macles et le pic lié à la matrice monocristalline $[001]$ pour mettre en évidence une évolution relative de la proportion de macles au sein des échantillons en fonction de la température de dépôt. On observe ainsi sur la figure 2.7.b, l'évolution du ratio des intensités des macles sur l'intensité de la matrice monocristalline. L'or déposé et le substrat de sel présentent des coefficients de dilatation thermique éloignés, $14.2 \cdot 10^{-6} \text{K}^{-1}$ pour l'or et entre $39.80 \cdot 10^{-6} \text{K}^{-1}$ à $T=300 \text{K}$ et $51.80 \cdot 10^{-6} \text{K}^{-1}$ à $T=700 \text{K}$ pour le substrat de sel [54]. Au cours du refroidissement à température ambiante, une compression équibiaxiale de l'ordre de 1% de déformation est donc soumise par le substrat

au film d'or. Selon Dehm et al., cette compression pourrait générer des macles [44]. Nous observons cependant l'inverse ; en effet, plus la température du dépôt est élevée, moins le volume de macles est important (par rapport au volume de la matrice).

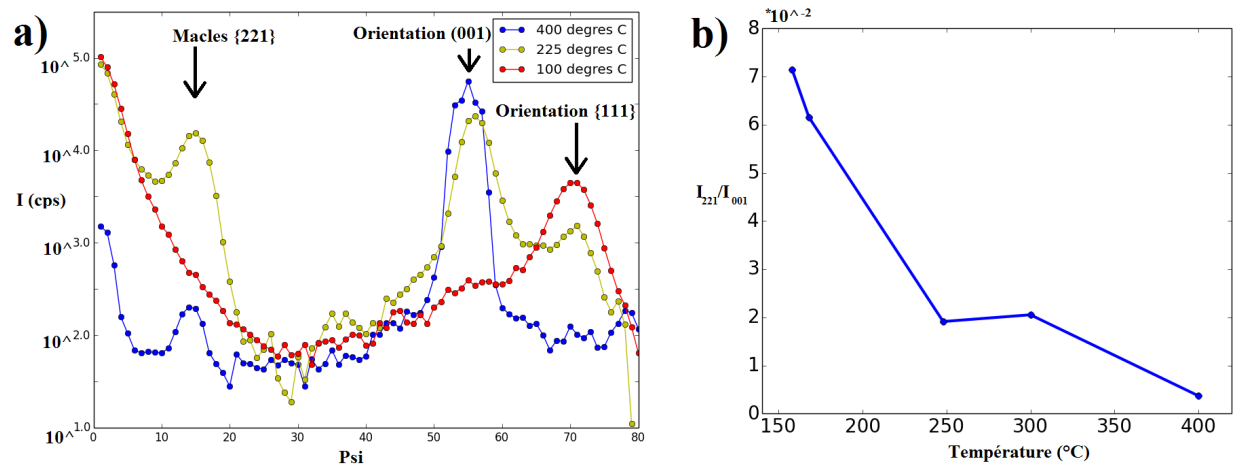


FIGURE 2.7 – a) Coupes de figures de pôles {111} en fonction de la déclinaison ψ , d'échantillons de 200 nm déposés à différentes températures. Les coupes sont réalisées en intégrant sur tous les ϕ ; b) Ratio de l'intensité des pics liés aux macles (orientation (22-1)) par rapport aux pics liés à la matrice (orientation (001)) pour des films de 50 nm d'épaisseur en fonction de la température de dépôt.

2.2.4 Microscopie électronique

Pour approfondir nos analyses, nous avons voulu obtenir des images de nos échantillons aux échelles micrométrique et nanométrique. Pour se faire nous avons employé un microscope électronique en transmission JEOL 2200 FS (Figure 2.8). Les échantillons sont préparés de deux manières différentes selon l'observation désirée : coupe transverse ou vue plane.

Pour préparer un échantillon pour une observation en vue plane, nous avons dissous le substrat de NaCl dans de l'eau déionisée, puis récupéré l'échantillon sur une grille de microscopie en cuivre grâce à la tension de surface de l'eau permettant au film d'or de rester en surface.

Pour préparer un échantillon pour une observation en vue transverse, nous avons utilisé un faisceau d'ions gallium focalisé (FIB : Focused Ion Beam) pour découper puis extraire une lame mince d'un échantillon. L'appareil utilisé est un Helios NanoLab G3 CX Dual-Beam de FEI, permettant d'alterner entre de l'imagerie électronique à balayage, de l'imagerie par faisceau d'ions et de la découpe par faisceau d'ions. Les paramètres d'amincissement ont varié selon les échantillons et selon le type de substrat au moment des coupes, mais ils respectaient les étapes suivantes : une protection de la surface à l'aide de platine déposé

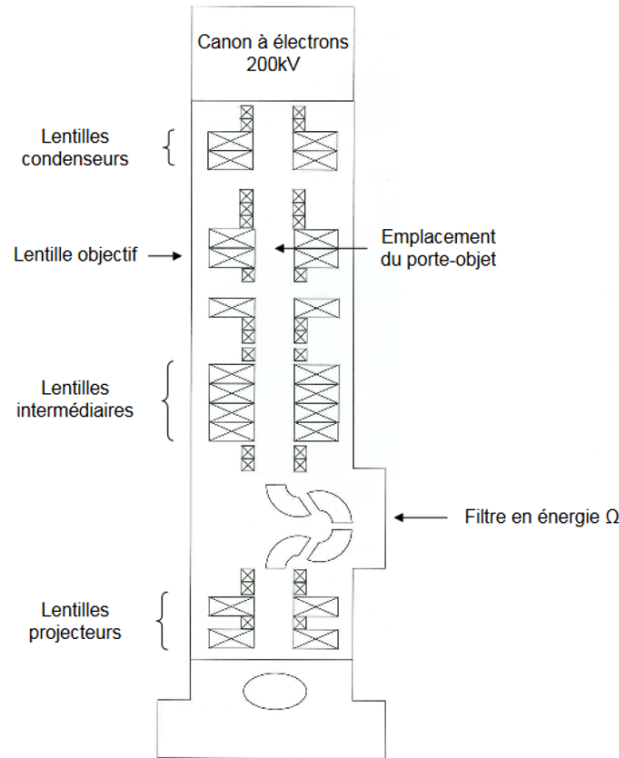


FIGURE 2.8 – Schéma du microscope électronique en transmission JEOL 2200 FS

à l'aide du faisceau électronique de la colonne du microscope puis déposé à l'aide du faisceau d'ions, une première découpe à 30 kV, et pour finir un amincissement se terminant à 5 kV. (méthode d'amincissement tiré de Langford et al. [55]).

Le microscope électronique en transmission utilisé émet des électrons grâce à une source Schottky constituée d'une pointe de tungstène. L'émission Schottky consiste à chauffer la source tout en lui appliquant un champ électrique. Les électrons émis sont ensuite accélérés jusqu'à 200 kV dans la colonne du microscope sous ultravide (10^{-6} mbar).

Un microscope électronique en transmission utilise les électrons comme utiliserait des photons un microscope optique. Ainsi pour gérer le grandissement, le microscope utilise des lentilles électromagnétiques pour focaliser le faisceau électronique. Il est alors possible en modifiant le courant dans ces lentilles, de passer de l'observation de l'image de la projection de l'échantillon dans l'espace réel, à une observation dans l'espace réciproque de la diffraction de l'échantillon. À partir de l'ouvrage de microscopie rédigé par D. B. Williams and C. B. Carter [56], nous décrivons ci dessous les techniques que nous avons utilisé.

Le microscope possède différents modes d'acquisition utilisant le faisceau électronique comme une onde plane éclairant l'échantillon. Tout d'abord, il est nécessaire d'obtenir le cliché de diffraction électronique lié à l'échantillon analysé. Une fois le cliché de diffraction observé, le microscope électronique en transmission offre la possibilité de sélectionner une région du cliché de diffraction à l'aide d'un diaphragme pour obtenir par la suite différents

types d'imagerie. En sélectionnant la tache central du cliché de diffraction (faisceau transmis), on observe ce qui est appelé un champ clair (BF : Bright Field). Ce mode d'imagerie projette une image de l'échantillon sur le détecteur où apparaissent en sombre les éléments en condition de diffraction, et en blanc les régions où les électrons n'ont pas été déviés (centre du cliché de diffraction). Au contraire, si l'on sélectionne à l'aide du diaphragme de contraste une autre tache du cliché de diffraction (\mathbf{g} non nul), on effectue ce que l'on appelle un champ sombre (DF : Dark Field). La micrographie de la projection de l'échantillon révèle alors en clair les régions possédant des plans en condition de diffraction, pour le vecteur de diffusion sélectionné. En utilisant un diaphragme de sélection plus grand, et lorsque l'échantillon est en axe de zone (i.e. lorsque l'échantillon est orienté par rapport à une direction du réseau cristallin de bas indice), on peut sélectionner le centre du cliché de diffraction en incluant les premiers \mathbf{g} non nuls. Avec un grandissement suffisant, la micrographie peut alors représenter la position des colonnes atomiques de la région en axe de zone, et ce après simulation des interférences entre les \mathbf{g} , c'est ce que l'on appelle la haute résolution.

Le microscope peut ensuite être utilisé dans un second mode de fonctionnement avec un faisceau électronique focalisé sur l'échantillon. Une micrographie est alors effectuée en balayant la région à acquérir (STEM pour scanning transmission electron microscopy). L'intensité pour chaque position du faisceau est ensuite enregistrée sur des détecteurs. Le détecteur pour champ clair est un disque alors que ceux pour les champs sombres sont des détecteurs annulaires : ADF (annular dark field) et HAADF (high angle annular dark field).

Lors d'observations de coupes transverses, nous avons pu mesurer la taille des macles de nos échantillons. Pour un échantillon de 200 nm déposé à 300 ° C, nous observons des macles de 10 nm \pm 2 nm d'épaisseur et ces macles ne traversent pas la totalité des 200 nm d'épaisseur des films d'or. Dans des échantillons déposés à 400 ° C, on observe moins de macles, et les macles présentes sont plus fines, celles observées mesurent environ 5 nm d'épaisseur (Figure 2.9.a .b). Une lame provenant d'un échantillon de 50 nm déposé à 400 ° C présente une quantité de macles plus importante qu'un échantillon de 200 nm déposé dans les mêmes conditions (Figure 2.9.d), mais les macles sont aussi fines (de 2 à 5 nm d'épaisseur). En revanche, on observe les macles traverser les 50 nm d'épaisseur de l'échantillon contrairement aux macles des échantillons de 200 nm. Dans le cas d'un dépôt à 100 ° C, l'échantillon présente une croissance colonnaire dans une orientation {111} par rapport à la surface. On y observe aussi des macles de croissance mais cette fois-ci, elles sont parallèles à la surface et réparties sur la hauteur des grains colonnaires (Figure 2.9.c).

Pour des observations en vue plane (Figure 2.10), nous avons seulement utilisé des échantillons déposés à 400 ° C faisant 50 nm d'épaisseur pour être transparent aux électrons car l'or est un élément lourd (79^{ème} élément du tableau périodique). Les vues planes nous permettent d'observer la distribution et la forme des macles au sein des échantillons.

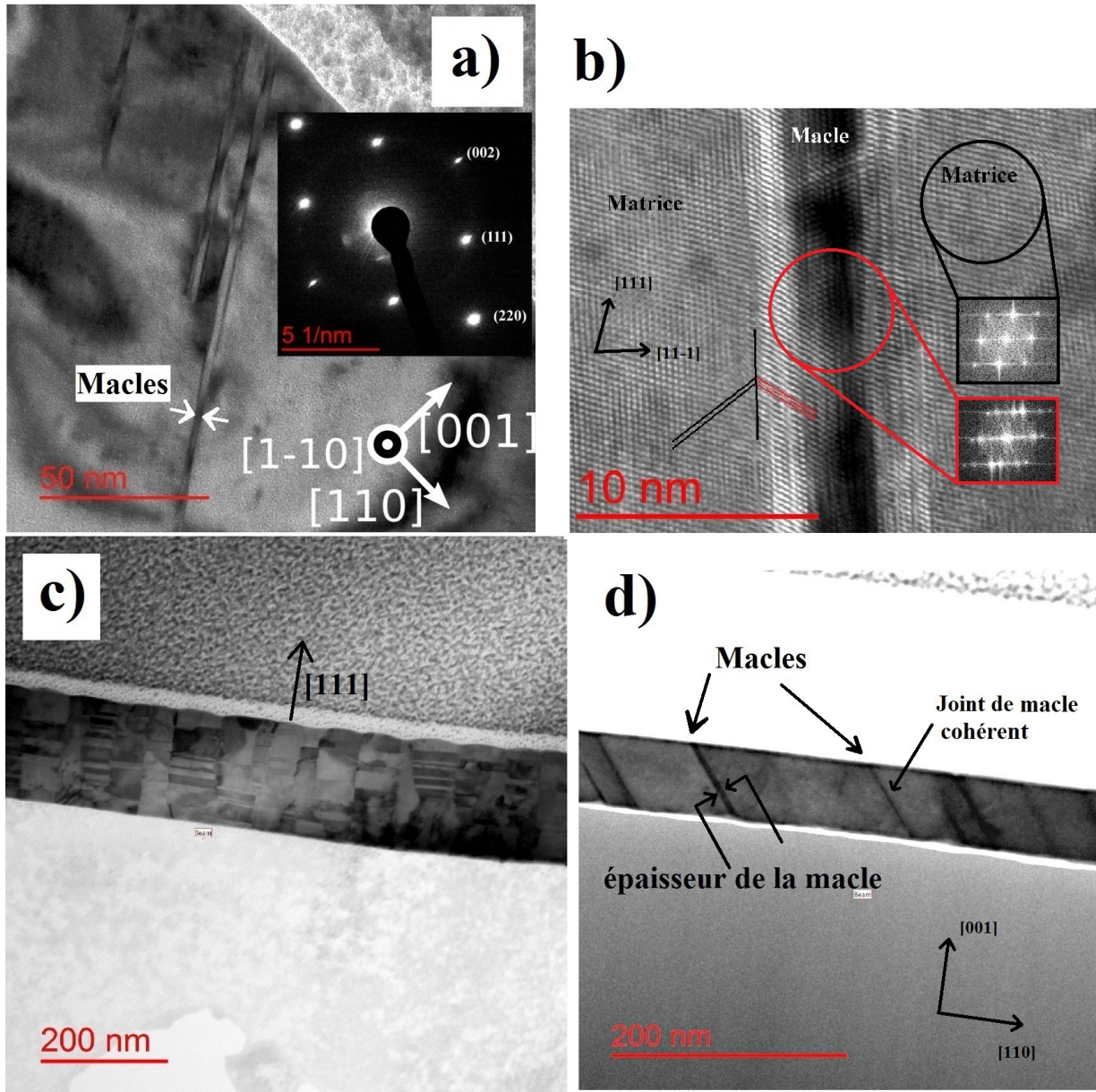


FIGURE 2.9 – a) Micrographie TEM-BF en vue transverse d'un film d'or de 200 nm déposé à 400 ° C (et cliché de diffraction associés). Une macle est représentée entre les 2 flèches blanches ; b) Micrographie HRTEM d'une macle d'un film d'or de 200 nm déposé à 400 ° C, et Transformée de Fourier des régions encerclé ; c) Micrographie STEM-DF d'un film de 200 nm d'or déposé à 100 ° C, on observe une croissance colonnaire possédant des macles parallèles à la surface ; d) Micrographie STEM-BF d'un film d'or de 50 nm déposé à 400 ° C, les macles sont les contrastes noirs obliques.

D'après la Figure 2.10.a, pour un échantillon de 50 nm déposé à 400 ° C, nous observons des macles de 50 nm de longueur en moyenne (allant de 15 nm à 100 nm) et l'on observe autour de 120 macles par μm^2 .

Les macles dans nos couches minces monocristallines sont donc beaucoup plus petites que celles observées par P.A Gruber et al. [47] ou S.H. Oh et al. [45] (cf Figure 1.8). En effet, leurs macles ont des longueurs de l'ordre du micromètre et des épaisseurs supérieures à la dizaine de nanomètres. De telles différences sont probablement liées aux recuits des échantillons effectués au cours de l'élaboration de leurs échantillons (cf partie 1.2.1).

Les macles que nous observons sont tellement fines qu'elles ont l'aspect de défauts d'empilement lors de vue plane en champ clair en microscopie électronique en transmission. Il est cependant possible de sélectionner des pics additionnels sur un cliché de diffraction électronique qui révèlent la présence de macles (Figure 2.11.a), et de montrer que les contrastes observés correspondent bien à un volume diffractant de macles. Nous observons ainsi en champ sombre que nous avons dans nos échantillons, les différentes orientations de macles possibles liées à la matrice monocristalline orientée [001] (Figure 2.11.b.c.d). Ceci corrobore parfaitement les observations effectuées par diffraction de rayons X, autant du point de vue de la matrice monocristalline que du points de vue des macles et de leurs répartition en 4 familles de macles.

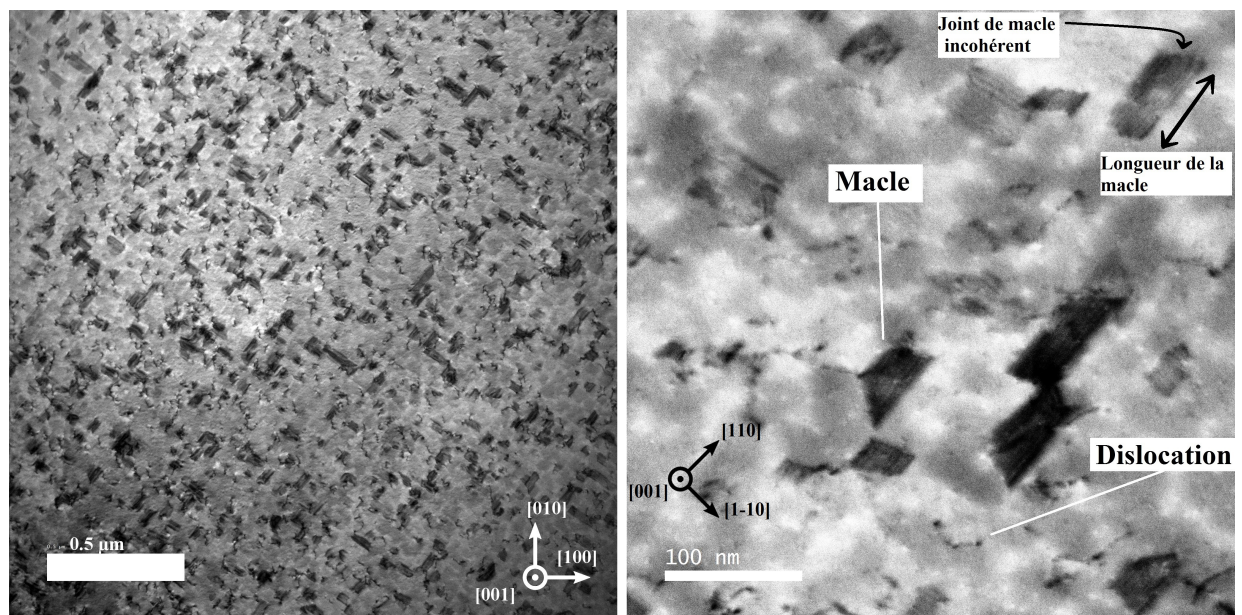


FIGURE 2.10 – Micrographies STEM-ADF d'un échantillon en vue plane, les contrastes rectangulaires foncés sont des macles, les contrastes en filaments noirs sont des dislocations. Film d'or de 50 nm d'épaisseur élaboré à 400 ° C

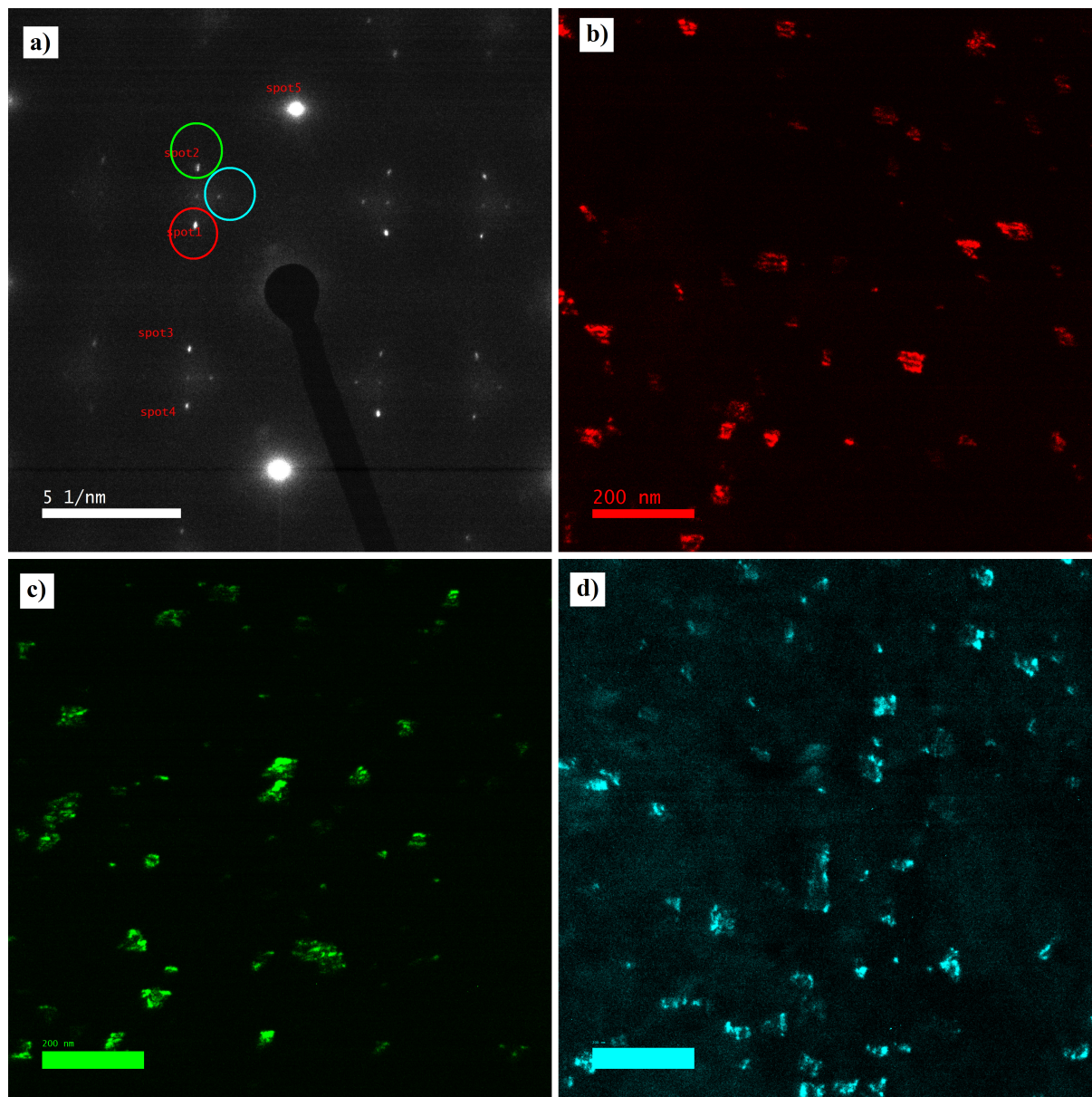


FIGURE 2.11 – a) Cliché de diffraction, avec l'intensité majoritaire provenant du film d'or (50 nm d'épaisseur élaboré à 400 ° C) et les taches plus faibles provenant des macles, et avec la position du diaphragme de contraste utilisé pour les micrographies TEM-DF suivantes représentés par des cercles : b) 1 en rouge c) 2 en vert d) 3 en bleu. ; b)c)d) Micrographies TEM-DF réalisées à l'aide d'un petit diaphragme de contraste pour illuminer une à une les familles de macles.

2.3 Conclusion

Comme le rapporte la littérature, nous avons mis en évidence l'importance de la température de dépôt sur la microstructure de couches minces d'or élaborées par pulvérisation ionique. Les dépôts à haute température fournissent des films ayant moins de défauts initiaux par rapport aux températures plus basses, en terme de densité de macles, d'épaisseur des macles et de quantité de dislocations.

Dans la suite de ce travail, nous avons choisi de travailler sur des échantillons de 50 nm d'épaisseur déposés à 400 ° C :

- cette température de dépôt de 400 ° C permet d'obtenir une couche mince d'or monocristalline ; ceci nous permet de nous affranchir des phénomènes plastiques liés aux joints de grains. Ces films monocristallins contiennent des macles traversant totalement l'épaisseur du film de la surface à l'interface avec le substrat. Ces macles sont réparties de façon homogène et sont de dimensions réduites de 15 à 100 nm de longueur pour une épaisseur voisine de 5 nm.

- d'un point de vue fondamental, S.H. Oh et al. [45] ou encore P.A Gruber et al. [47] ont mis en évidence une épaisseur critique de mécanismes de plasticité pour des films d'or monocristallin aux alentours de 50 nm - 80 nm (cf chapitre 1). L'épaisseur de 50 nm nous permet donc d'être situé à la limite de ce seuil et nous pouvons anticiper que la plasticité est gouvernée par des dislocations partielles plutôt que des dislocations parfaites. En outre, cette épaisseur facilite, d'un point de vue expérimental, les observations en microscopie électronique en transmission car aucune préparation spécifique pour des observations en vue plane n'est nécessaire.

Il est, par ailleurs, important de souligner que les films minces d'or de 50 nm d'épaisseur déposés à 400 ° C possèdent très peu de trous qui seraient des sources de localisation de contraintes.

Chapitre 3

Figures de pôles in situ au cours d'essais de tractions biaxiaux

Cette étude réalisée sur la ligne de lumière DiffAbs de la source de rayonnement synchrotron SOLEIL a pour objectif d'observer l'évolution du volume maclé de film mince d'or de 50 nm lors de différentes tractions. Pour évaluer les variations de volume cristallin, nous utilisons des figures de pôles effectuées au cours des essais de tractions. Deux essais de déformation sont effectués dans cette étude, un premier essai de traction dans la direction $[110]$ du film. Dans ce cas, l'intersection des joints de macles cohérents avec la surface forment un angle de 90° avec la direction de traction pour des macles (111) et $(-1-11)$ et un angle de 0° pour des macles $(1-11)$ et (-111) (Comme dans le Chapitre 2, on définit les macles par rapport à leur joints de macles cohérents). L'orientation de cet essai crée une forte dissymétrie entre les facteurs de Schmid des différentes dislocations partielles de Shockley associées à la formation et propagation des macles ; ceci doit mener à une différence de comportement entre les 2 familles de macles évoquées précédemment. Un second essai est effectué dans la direction $[100]$ du film, dans ce cas, les 4 types de macles ((111) , $(-1-11)$, $(1-11)$ et (-111)) ont des orientations équivalentes par rapport à l'axe de sollicitation mécanique ; l'intersection des joints de macles cohérents avec la surface forme un angle de 45° avec la direction de traction.

L'étude effectuée au sein de ce chapitre a fait l'objet d'une publication en 2019 [57].

3.1 Dispositif expérimental

3.1.1 La ligne de lumière DiffAbs

La ligne de lumière DiffAbs est une des lignes de lumière du synchrotron de troisième génération SOLEIL. Située sur un aimant de courbure de l'anneau, elle a accès à un large panel d'énergies (de 3 à 23 keV) et peut en sélectionner une grâce à son monochromateur avec une résolution spectrale de 10^{-4} ($\Delta E/E$). Le faisceau possède alors un flux compris entre 10^{11} et 10^{12} photons par seconde. Nous avons choisi de travailler à $E = 9,000 \text{ keV} \pm 1 \text{ eV}$ pour être proche des expériences effectuées en laboratoire à l'aide d'une anode de

cuire. L'optique de la ligne DiffAbs nous a ensuite permis d'avoir un faisceau de rayons X de $316 \times 271 \mu\text{m}^2$ de largeur à mi-hauteur (horizontale \times verticale) et une divergence de $3,5 \times 0,24 \text{ mrad}^2$. La taille de faisceau projeté sur l'échantillon va ensuite varier lors des mesures de figures de pôles. Ainsi, pour les plans $\{111\}$ à $\theta = 17,00^\circ$, le faisceau s'étend sur 0,85 mm pour $\Psi = 0^\circ$ et sur 5,84 mm pour $\Psi = 80^\circ$. Le goniomètre utilisé lors de cette expérience est un goniomètre 6 cercles en géométrie Kappa (Figure 3.1) permettant la stabilité et l'espace nécessaire aux expériences embarquées lourdes et volumineuses. Nous travaillons en revanche à l'aide de pseudo-moteurs permettant de coupler les cercles *Komega*, *KPhi* et *Kappa* pour travailler en géométrie Eulérienne (Ψ , Φ et Ω)[58].

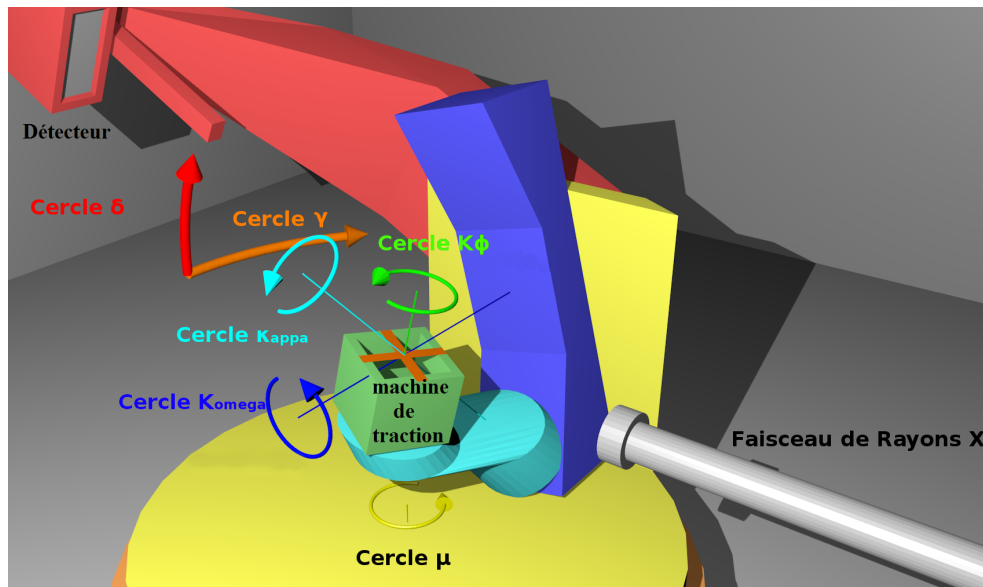


FIGURE 3.1 – Schéma du goniomètre utilisé sur la ligne DiffAbs et représentation des 6 cercles : Cercle δ et γ pour les rotations du détecteur et $K\phi$, $Kappa$, $Komega$ et μ pour les rotations de l'échantillon

3.1.2 La machine de traction

Notre expérience de déformation a utilisé une machine de traction biaxiale (Figure 3.2.a .b) pour effectuer la déformation de nos films d'or. Des éprouvettes en forme de croix en Kapton[®], sur lesquelles nos films minces d'or sont fixés, sont tirés par quatre moteurs indépendants que nous faisons fonctionner par paire. G. Geandier et al. [59] ont montré, à l'aide de calculs d'éléments finis, que ces éprouvettes de traction fournissaient une déformation biaxiale relativement homogène en son centre, dans une région de l'ordre d'une dizaine de millimètre de diamètre. Sur les figures 3.2.c .d on observe le champ de déformation ainsi que la contrainte de Von Mises sur le quart d'une éprouvette de traction (le reste étant symétrique) lors d'une sollicitation équi-biaxiale. Les courbes montrant les profils des

composantes de déformation et de contrainte le long de la flèche représentée sur l'éprouvette permettent de vérifier que la région où la déformation est homogène est plus grande que nos échantillons ($1 \times 1 \text{ cm}^2$). De plus S. Djaziri et al. [60] ou P.O. Renault et al. [61] ont observé que la déformation est intégralement transmise lors des déformations biaxiales pour différents types de chargement à l'aide de diffraction de rayons X et de corrélation d'images numériques. On précisera que dans notre cas les échantillons ne sont pas déposés directement sur le Kapton[®] lors du dépôt, mais qu'ils sont transférés ultérieurement selon la procédure décrite en partie 2.1.2. En revanche leurs faibles épaisseurs les rendent très sensibles aux forces électrostatiques, si bien qu'une fois mis en place sur l'éprouvette, un effort abrasif est nécessaire pour décoller les échantillons (opération destructrice). Lors de notre expérience, nous avons piloté la machine de traction à l'aide d'incrément de déplacement moteur. C'est-à-dire que nous avons appliqué des incréments de déplacement dans les branches de l'éprouvette de traction, puis nous maintenons ces positions tout au long des mesures des figures de pôles. La déformation appliquée au centre est ensuite vérifiée par corrélation d'images numériques grâce à un enregistrement optique de la face arrière de l'éprouvette.

3.1.3 La corrélation d'images numériques

La corrélation d'images numériques permet de mesurer l'évolution de la déformation macroscopique d'un échantillon en comparant deux images d'une même surface au cours d'un essai mécanique. Pour ce faire un mouchetis de fort contraste optique est déposé sur la face arrière de l'éprouvette de traction, de la peinture blanche composée notamment de particule de TiO_2 . Une caméra CCD Pixelfly (PCO AG, Kelheim, Allemagne) est utilisée pour enregistrer le mouchetis. Elle a une résolution de 1392×1024 pixels de $6.45 \times 6.45 \mu m^2$ (12 bits) et la caméra est utilisée à l'aide d'un microscope optique composé d'un objectif télécentrique permettant d'obtenir une grande profondeur de champ, minimisant ainsi les erreurs causées par la perspective liée aux variations de hauteur de la surface. Les images acquises sont ensuite traitées numériquement, le logiciel *CORRELI*^{Q4} divise une image enregistrée en plusieurs zones d'intérêt pour constituer un maillage. Le déplacement de ces zones d'intérêt les unes par rapport aux autres permet de déterminer la déformation de l'échantillon par analyse du gradient de déplacement [62][63]. Dans notre expérience la corrélation d'images numériques nous permet donc de mesurer directement la déformation au centre de l'éprouvette. Le champ de vue est de quelques millimètres carrés ($9 \times 6 \text{ mm}^2$). Selon la qualité des images enregistrées et de la surface photographiée, la précision de la déformation mesurée varie autour de 10^{-5} .

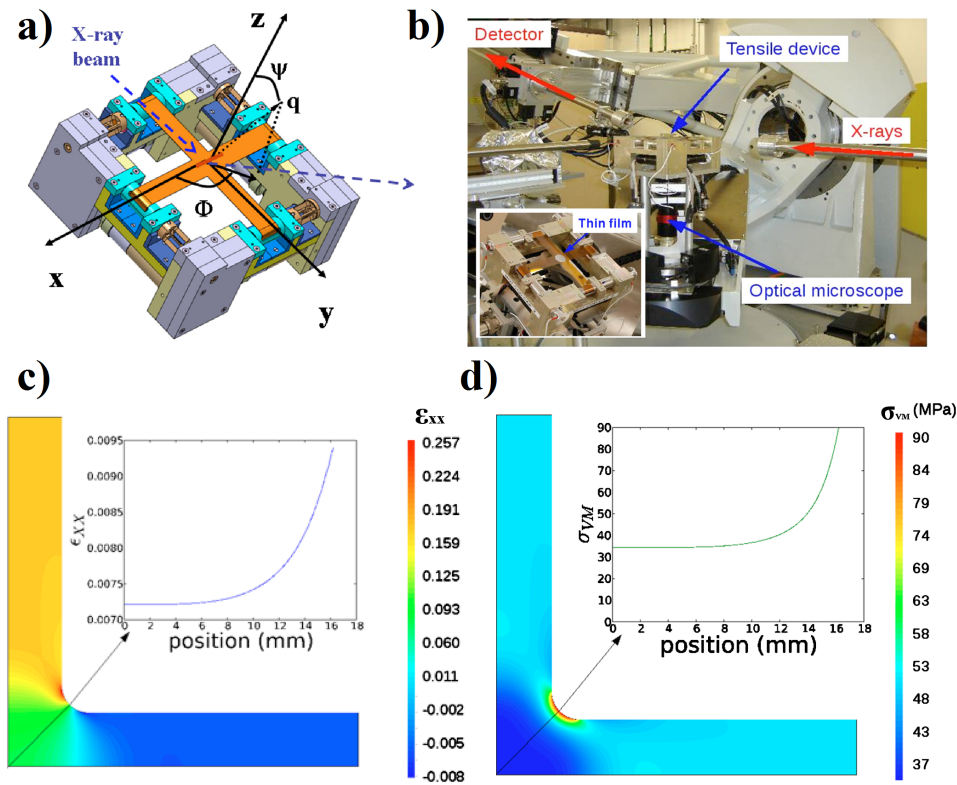


FIGURE 3.2 – a) Schéma de la machine de traction ; b) Position de la machine de traction sur la ligne de lumière DiffAbs ; Simulation par éléments finis d'une traction équi-biaxiale de 100 N d'une éprouvette cruciforme de Kapton[®] de 125 μm d'épaisseur (1/4 représenté) : c) Champ de déformation ϵ_{xx} de l'éprouvette de traction et profil au centre ; d) Champ de contrainte de Von Mises dans l'éprouvette de traction et profil au centre. [59]

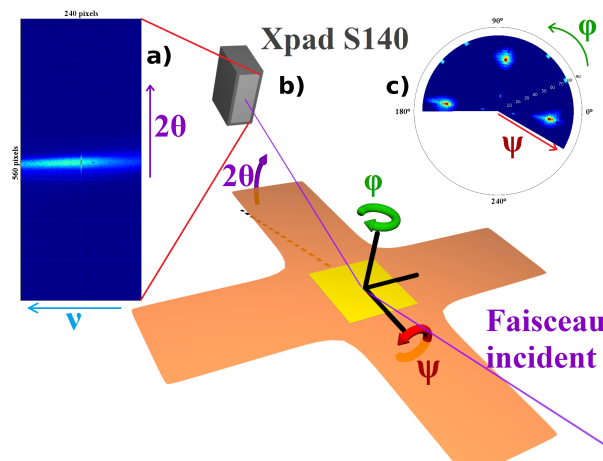


FIGURE 3.3 – a) Cliché obtenu à l'aide du détecteur Xpad S140 ; b) Rotations d'un échantillon pour construire une figure de pôles à DiffAbs ; c) Axes d'une figure de pôles

3.1.4 L'acquisition des figures de pôles

Les Figures de pôles sont acquises à l'aide d'un goniomètre 6 cercles, lors de mesure autour de l'axe ϕ de l'échantillon, ainsi que de l'axe ψ (Figure 3.3.b .c). Chaque point de la figure de pôles est créé à partir de l'intégration d'un cliché 2D enregistré au couple d'angles (ψ, ϕ) associé (Figure 3.3.a). C. Mocuta et al. [64] ont présenté en 2013 une étude sur l'acquisition de figures de pôles à l'aide d'un détecteur bidimensionnel. Ils montrent que ce système permet de gagner de un à deux ordres de grandeur en temps d'acquisition, ce qui est nécessaire pour le bon déroulement d'étude *in situ* comme la notre. Les clichés 2D sont obtenus à l'aide d'un détecteur Xpad S140 (240×560 pixels hybrides de 130×130 μm^2) placé à 60 cm, correspondant à une plage angulaire de 3,0° sur 6,9°. Les clichés de diffraction sont acquis depuis la position $\psi = 0$ et $\phi = -30^\circ$. Tout d'abord le détecteur acquiert en continue lors d'une rotation en ϕ (jusqu'à +180°), puis transmet 250 clichés répartis sur la rotation. Le goniomètre passe ensuite au ψ suivant et l'acquisition recommence à $\phi = -30^\circ$ et ainsi de suite jusqu'à $\psi = 81^\circ$ par pas de 3°. Il est notable que lors d'une rotation en ϕ les moteurs ne sont pas à leur vitesse maximale en début et fin de course, les sept premières et dernières acquisitions de chaque rotation en ϕ ne seront donc pas prises en compte lors de la construction de la figure de pôles. Nous avons ainsi 236 × 28 clichés de diffraction qui vont nous permettre de construire une figure de pôles. L'acquisition d'une figure de pôles dure ainsi une trentaine de minutes, puis l'on passe au chargement suivant.

Les clichés bruts (Figure 3.4.c) sont ensuite corrigés des imperfections du détecteur (pixels défaillants et pixels de taille double) en divisant le cliché brut par un cliché supposé homogène en photons (obtenue à partir d'un rayonnement de fluorescence), ce qui révèle les aberrations (cliché corrigé en Figure 3.4.d). Nous sélectionnons ensuite une région du détecteur de manière à éviter le recouvrement entre deux positions en ψ , et pour éviter les anneaux de diffraction du TiO_2 en 2θ (Figure 3.4.e). Nous intégrons ensuite cette région pour calculer la valeur du pixel associé au couple d'angles (ψ, ϕ) sur la figure de pôles.

3.2 Observations

3.2.1 Les deux essais mécaniques

Lors de cette expérience nous avons effectué des essais de traction uniaxiaux en déformation appliquée (Figure 3.5), c'est à dire que grâce à la machine de traction biaxiale, nous avons tiré principalement dans une direction, et grâce à l'axe de traction perpendiculaire, nous avons contrebalancé l'effet de Poisson en tirant dans cette direction également. Nous avons piloté la machine par incrément de pas de déplacement, en effectuant 4 fois plus de pas de déplacement dans une direction que dans l'autre. La vitesse de déformation lors des pas en déplacement est de l'ordre 0,06% s^{-1} dans la région supportant le film. Le rapport

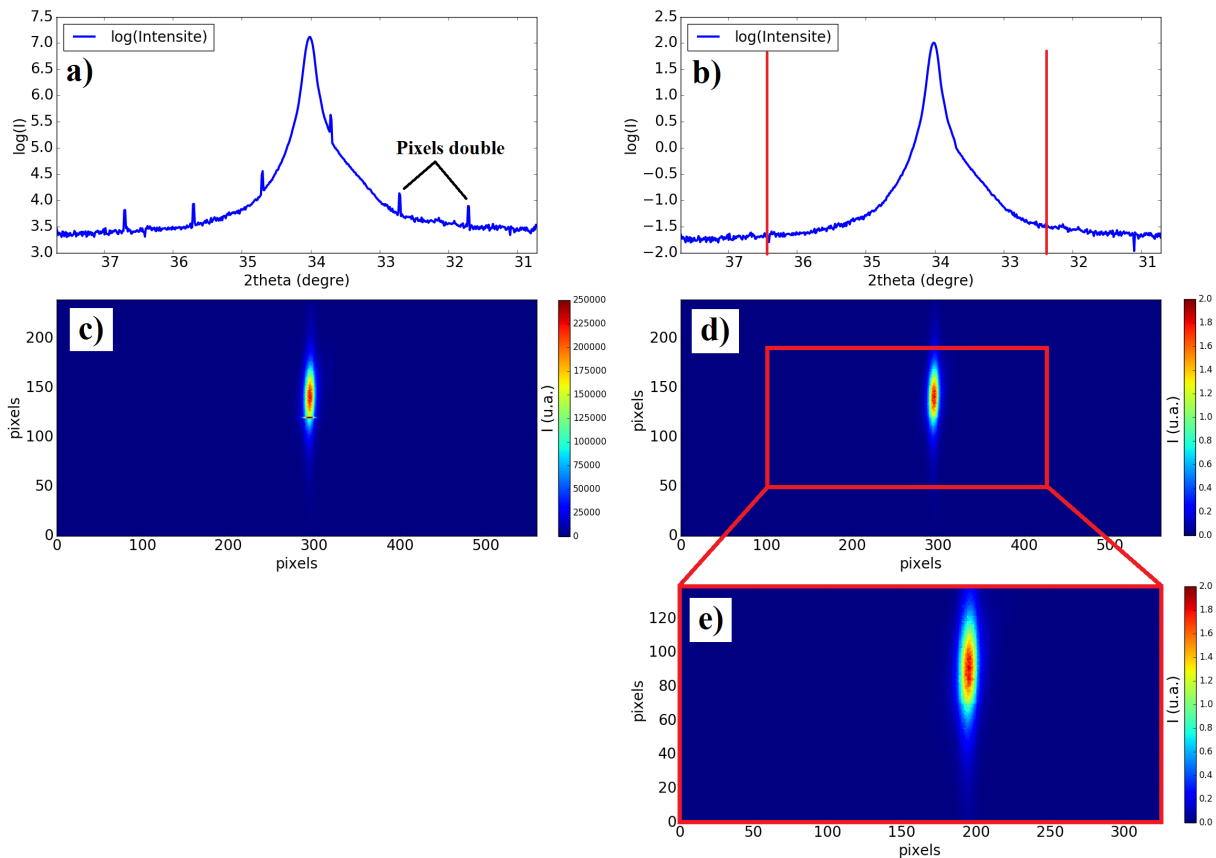


FIGURE 3.4 – Traitement utilisé sur les données du synchrotron : a) profil du détecteur selon son grand axe (2θ) avant correction / b) après correction (échelle logarithmique sur a) et b)); c) Cliché de diffraction brut provenant du détecteur Xpad S140; d) Cliché de diffraction corrigé des imperfections intrinsèques au détecteur; Dans l'encadré en rouge, e) la région du détecteur sommée pour faire un pixel d'une figure de pôle; (échelle linéaire sur c) d) et e))

de force résultant de cet essai sur ces éprouvettes de Kapton[®] de $50\ \mu\text{m}$ d'épaisseur est d'environ un pour deux Newton. Les essais de traction se déroulent ensuite en deux étapes, une étape de chargement où l'on atteint 4% de déformation puis une étape de décharge où l'on observe une déformation résiduelle de 2%. La déformation résiduelle est causée par la déformation plastique irréversible du substrat de Kapton[®] dans les régions les plus contraintes qui sont notamment les congés de l'éprouvette cruciforme. La déformation est confirmée après l'expérience par une analyse par corrélation d'images numériques opérée grâce à un enregistrement de la face arrière du Kapton[®] au cours de l'expérience. Dix images sont enregistrées avant et après la mesure de la figure de pôles pour chaque pas de déformation. L'enregistrement d'une figure de pôles dure une demi heure, et lorsque l'on dépasse 2.5% de déformation, on observe sur ce laps de temps grâce à la corrélation d'images numériques une relaxation de l'éprouvette (Figure 3.5.c). En effet, durant la mesure d'une figure de pôles pour les grandes valeurs de déformation, la déformation décroît

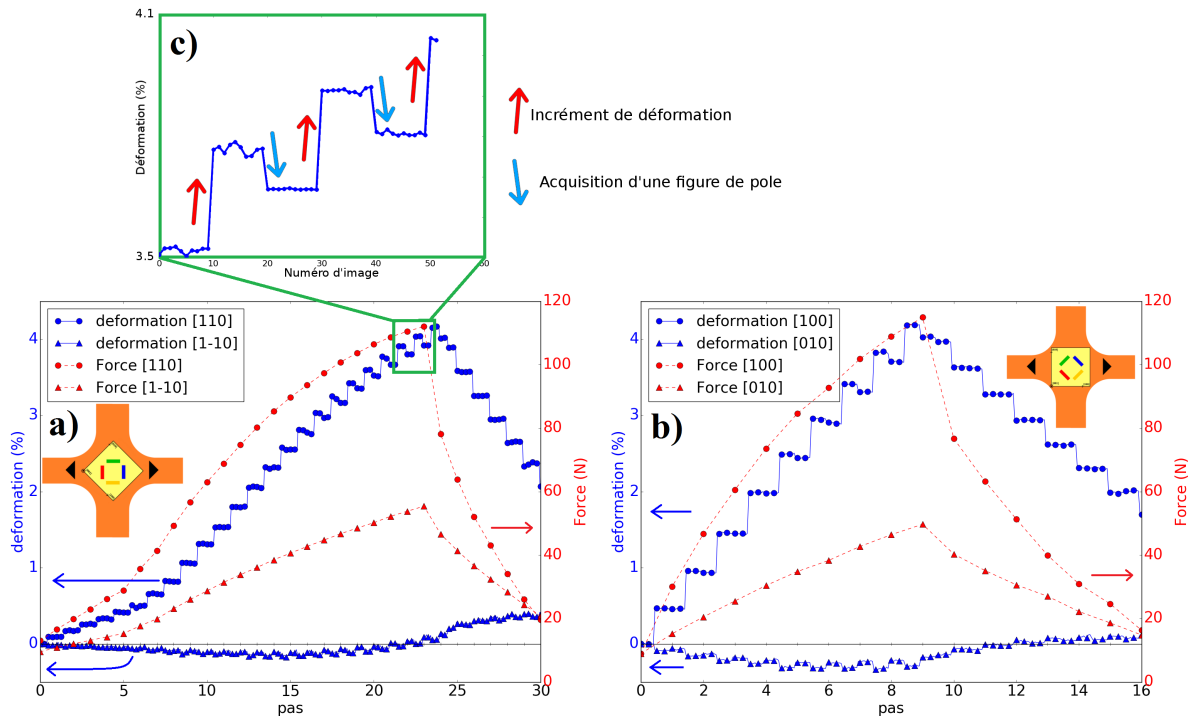


FIGURE 3.5 – Essais mécaniques : force appliquée à l'éprouvette de Kapton[®] (rouge), et déformation de l'éprouvette obtenue par corrélation d'images numériques (bleu), a) traction dans la direction [110], b) traction dans la direction [100], c) effet de relaxation lors des grandes déformations

d'un peu plus d'un tiers de l'incrément initial de déformation au cours de la mesure. Cela crée une incertitude de $\pm 0,1\%$ lorsque l'on atteint 4% de déformation. On constate aussi que dans la direction perpendiculaire à la direction de traction principale, la déformation reste bien autour de $0\% \pm 0,25\%$ dans la montée. De plus il est notable qu'en début d'expérience, nous appliquons une pré-tension de 10 N dans chaque direction des éprouvettes de Kapton[®] pour minimiser toute courbure ou changement de hauteur au début de l'essai de traction. Le premier essai (Figure 3.5.a) comporte 24 incréments de déformation lors de la charge et 7 lors de la décharge de l'échantillon, le second essai (Figure 3.5.b) possède 9 incréments lors de la charge, puis 7 lors de la décharge.

3.2.2 Évolution des figures de pôles

Nous avons décidé d'observer les figures de pôles des plans $\{111\}$ de nos échantillons pendant une traction uniaxiale en déformation appliquée et nous avons choisi d'étudier deux directions de traction différentes, la direction [110] et la direction [100]. De ces 2 directions de traction sur la matrice du film, il résulte une orientation très différente des différentes macles par rapport à la direction de traction. Dans le cas de la traction dans la direction [110] : on observe des macles (-111) et (1-11) parallèles à la direction de traction et des macles (111) et (11-1) parallèles à la direction [1-10] (c'est à dire que l'intersection

de leur joint de macle cohérent avec la surface du film est perpendiculaire à la direction de traction) (Figure 3.6). Dans le cas de la traction dans la direction $[100]$: toutes les macles ont une orientation similaire par rapport à la direction de traction, avec leur joint de macle formant un angle de 45° avec la direction de traction. Les figures de pôles $\{111\}$ vont ensuite permettre d'observer des pics de diffraction uniquement liés aux macles tout en gardant suffisamment d'intensité. Comme vue précédemment dans la partie 2.2.2, les figures de pôles présentent des pics majoritaires ayant une symétrie d'ordre 4 à $\psi = 54,7^\circ$, ce sont les 4 types de plans $\{111\}$ du monocristal d'or. Au centre, toujours avec une symétrie d'ordre 4 à $\psi = 15,8^\circ$, on trouve des pics plus faibles correspondant chacun à un plan $\{111\}$ chacun dans une des 4 familles de macles. Enfin, à $\psi = 78,9^\circ$ on trouve d'autres pics liés à des plans $\{111\}$ provenant des macles. Il est aussi notable qu'au sein de chaque macle, le plan de maillage diffracte aux mêmes angles que le plan $\{111\}$ de la matrice monocristalline correspondante ($\psi = 54,7^\circ$), par exemple une macle $(-1-11)$ diffracte au même endroit sur la figure de pôle que les plans $(-1-11)$ de la matrice monocristalline.

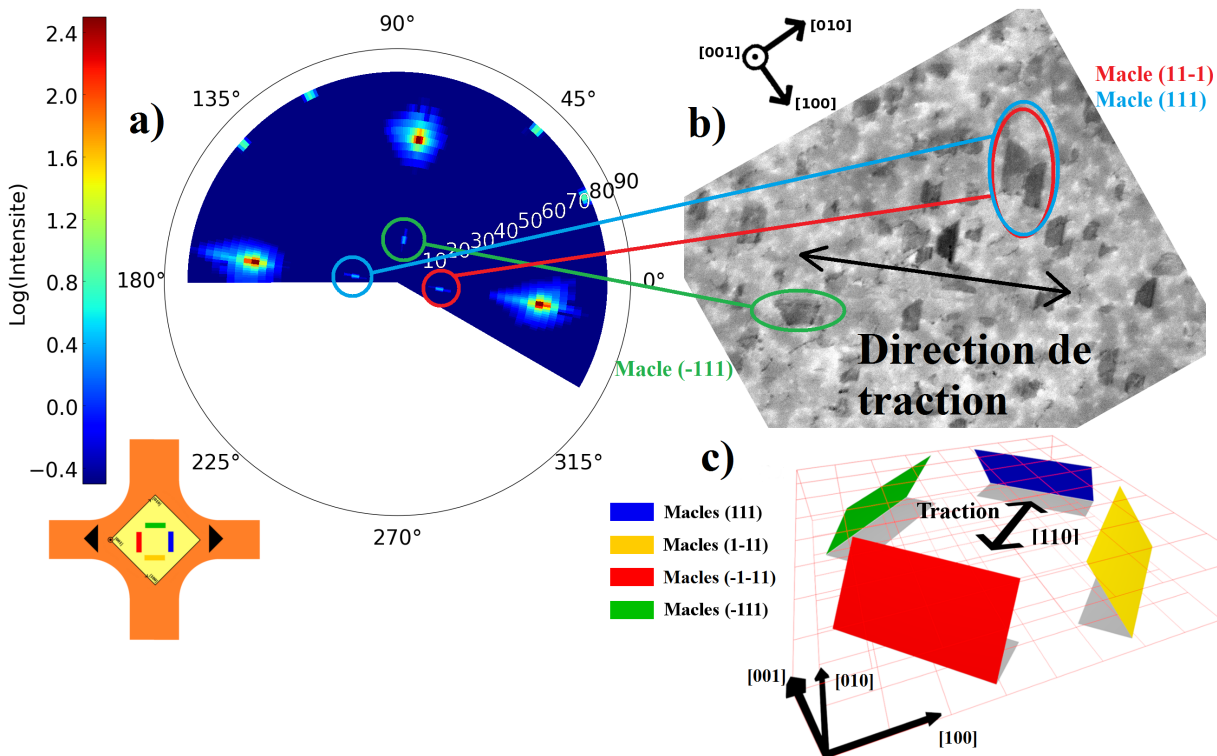


FIGURE 3.6 – Orientations des macles dans le film (b,c) et positions sur la figure de pôle (a) par rapport à la direction de traction $[110]$

Remarquons tout d'abord qu'une analyse des clichés 2D constituant une figure de pôles avant déformation révèle une forme très particulière des pics de diffraction sur le détecteur 2D. Pour les pics centraux liés aux macles, on observe une inclinaison et un allongement des pics de diffraction sur le détecteur (Figure 3.7.a). De même pour les pics liés à la matrice du film, on observe plusieurs directions d'allongement. Ces trainées de diffusion

correspondent à des tiges de troncature, révélant la surface du volume diffractant associé. Puisque les tiges de troncature sont perpendiculaires aux surfaces les générant, dans le cas des macles, cela permet de confirmer l'orientation des joints de macle cohérents.

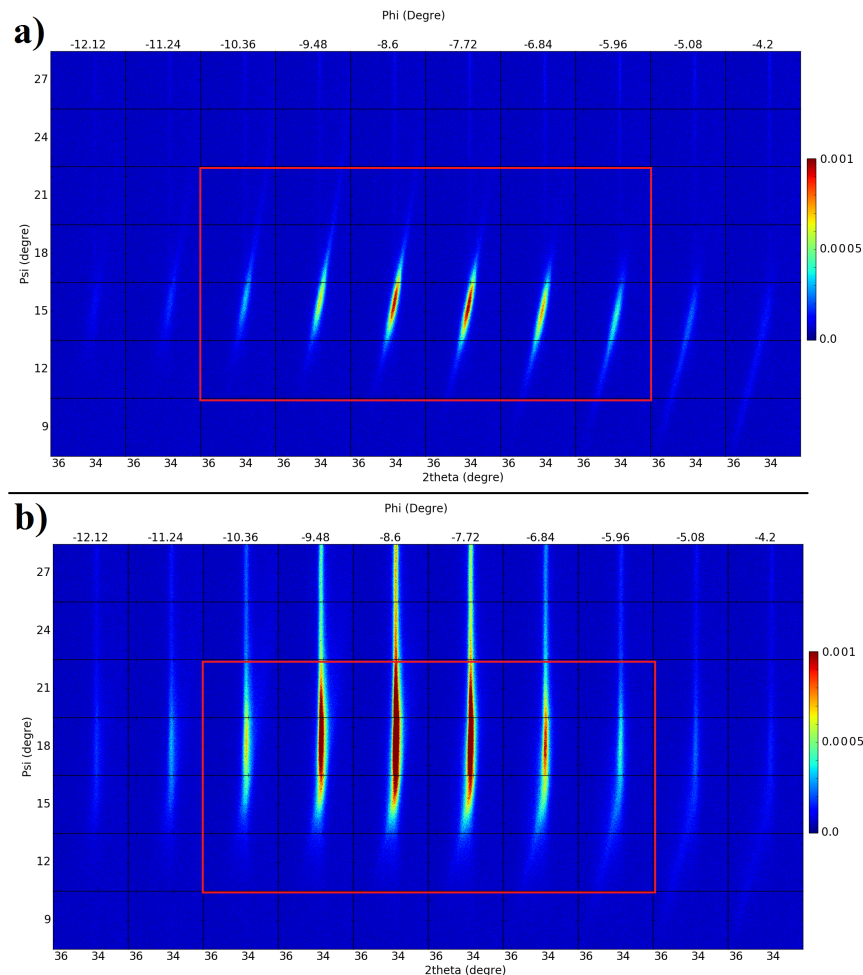


FIGURE 3.7 – Séries de clichés de diffraction selon ϕ et ψ obtenue sur le détecteur 2D puis utilisé pour une figure de pôles d'un échantillon a) non déformé; b) à 4% de déformation. Le Cadre rouge correspond à la région sélectionnée et intégrée pour obtenir la position en 2θ des pics de diffraction

Lorsque l'on trace les courbes selon l'axe ϕ de la figure de pôles, on constate que le pic de diffraction nous intéressant est superposé à un fond. Nous avons considéré ce fond comme étant linéaire, et nous l'avons retiré de nos courbes. Pour ce faire, nous avons défini le fond comme étant la droite linéaire passant par la moyenne des trois premiers et des trois derniers points de la région à intégrer, ce choix de traitement nous donne les résultats les moins bruités (Figure 3.8.a). On peut ainsi observer l'évolution des pics liés aux macles sur l'axe ϕ . On voit ainsi pour le pic des macles (111) et (-1-11) que leur intensités augmentent au cours de l'essai tout en élargissant le pic; en revanche, pour les macles (1-11), on observe que l'intensité maximale diminue alors que le pic s'élargit.

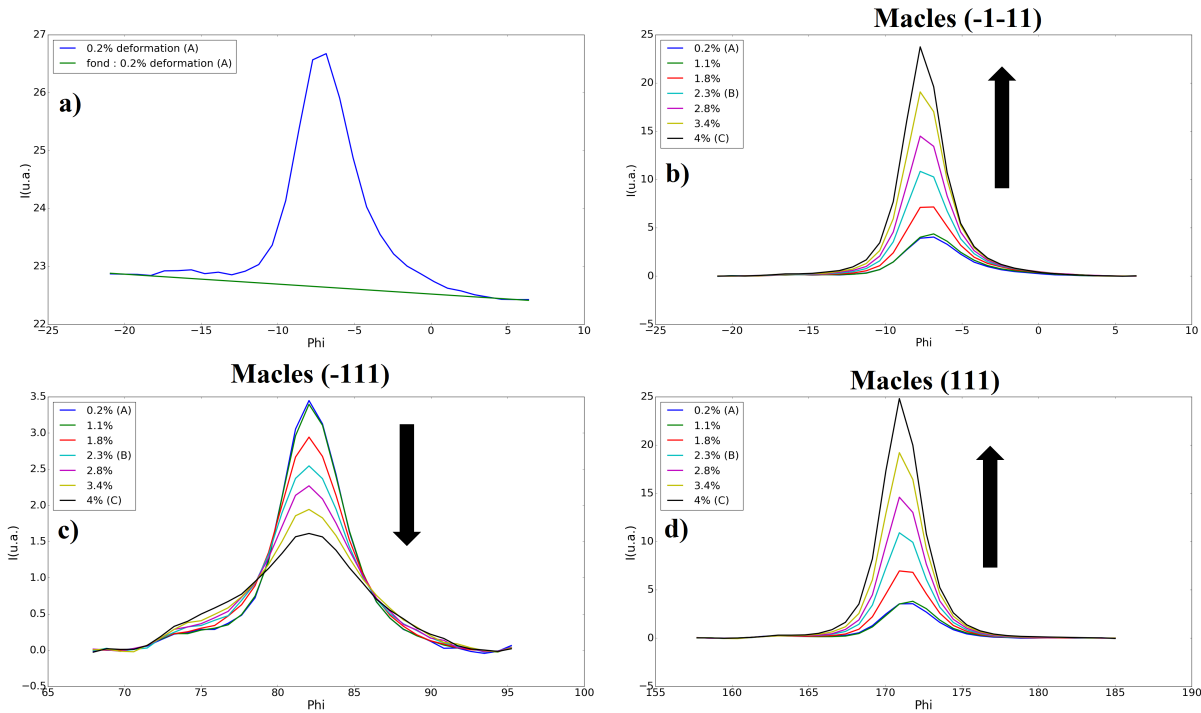


FIGURE 3.8 – a) Courbes brutes de l'intensité en fonction de ϕ intégrées selon ψ sur 24° et fond associé ; Courbes corrigées du fond pour plusieurs états de déformation : b) Macles (-1-11) ; c) Macles (-111) ; d) Macles (111). (La flèche noir représentant l'évolution de l'intensité au cours de l'essai)

Au vu des largeurs des pôles observés dans les différentes direction de l'espace réciproque, nous avons intégré de larges régions sur les figures de pôles correspondant aux orientations que nous voulons suivre pour observer l'évolution de nos films. De plus, les pôles des macles (-1-11) et (111) s'élargissent grandement en ψ au cours de l'essai [110], ce qui nous oblige à élargir d'autant plus la fenêtre d'intégration sur l'axe ψ . Nous traçons ensuite les variations de l'intensité de chaque pôles au cours de l'essai. Nous avons choisi d'intégrer les pôles des macles à $\psi = 15,8^\circ$, en choisissant une région allant jusqu'au points de rencontre des 2 pôles s'élargissant (pôle partant de $\psi = 15,8^\circ$ et pôle partant de $\psi = 54,7^\circ$). Une région d'intégration plus grande prendrait en compte de l'intensité provenant du pôle à $\psi = 54,7^\circ$, et une région plus petite passerait par une étape ou une partie du pôle sortirait de la région intégrée (Figure 3.9). Au final la région intégrée fait $32^\circ \times 24^\circ$ ($\phi \times \psi$).

Évolutions des distances interréticulaires

L'utilisation d'un détecteur 2D nous permet d'obtenir une information supplémentaire. Nous sommes en mesure d'observer l'évolution des pics de diffraction dans la direction 2θ . Cela correspond aux variations des distances interréticulaires des plans diffractants, soit : la composante de déformation élastique dans la direction normale à ces plans. Nous suivons

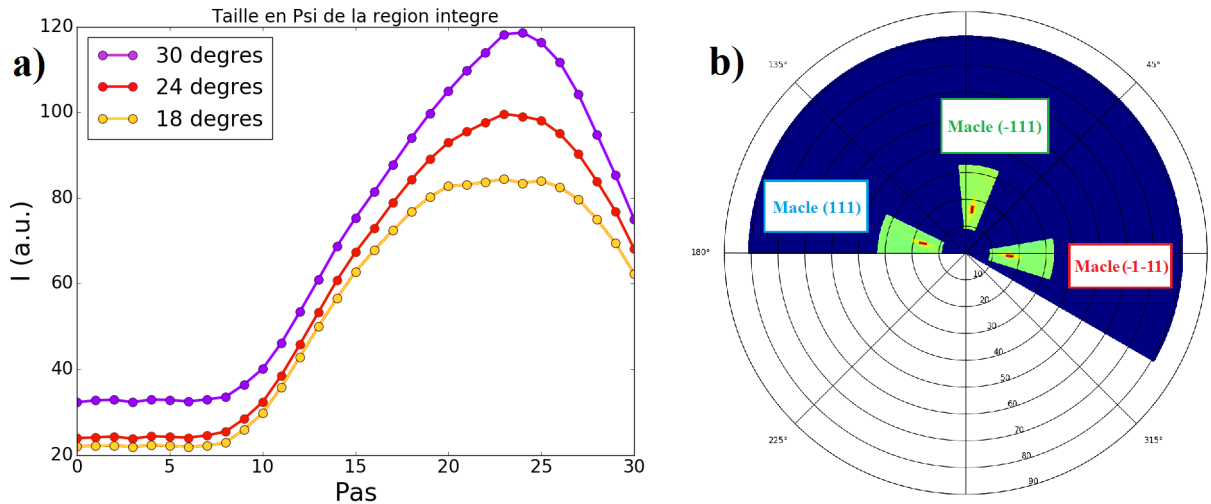


FIGURE 3.9 – a) Intensité intégrée du pôle des macles (-1-11) au cours de l’essai en fonction de la taille de la région intégrée pour la traction [110], b) Région intégrée pour chaque pôle correspondant à la sélection sur 24 degrés

ainsi l’évolution des plans $\{111\}$ à 15° en ψ des différentes macles, ainsi que l’évolution des plans $\{111\}$ à 55° en ψ de la matrice d’or orientée [001]. Cependant, les pics de diffraction des figures de pôles sont relativement larges et se déplacent dans l’espace réciproque (et donc sur les figures de pôles) au cours de la déformation. Ceci nous oblige à sommer plusieurs clichés de la figure de pôles pour nous permettre de suivre correctement les évolutions des pics et de les comparer entre eux. De plus les clichés 2D montrent que certains pics, notamment ceux liés aux macles, possèdent des tiges de troncature liées aux interfaces macles-matrice. Ces composantes de troncature ont un fort impact sur la largeur des pics lorsque ces pics sont de faible intensité, ce qui augmente notre incertitude sur ces mesures. Dans le cas des macles, nous avons intégré sur 4 positions en ψ différentes et sur 6 positions en ϕ (encadré rouge Figure 3.7). De ces clichés intégrés nous en tirons les courbes de l’intensité en fonction de 2θ pour chaque état de déformation. De ces courbes nous pouvons ensuite obtenir les positions des barycentres des pics de diffraction,

$$(\text{Barycentre}) = \frac{\sum (\text{Position}) \times (\text{Intensité})}{\sum (\text{Intensité})} \quad (3.1)$$

que nous relierons ensuite à la déformation élastique dans ces plans avec la loi de Bragg, ainsi que l’écart type de ces pics au cours de l’essai de déformation (Figure 3.10).

$$(\text{Ecart type}) = \sqrt{\frac{\sum (\text{Ecart au barycentre})^2 \times (\text{Intensité})}{\sum (\text{Intensité})}} \quad (3.2)$$

La même procédure est ensuite appliquée aux pics provenant de la matrice, avec 3 positions en ψ (51° , 54° et 57°) et 4 positions en ϕ (Figure 3.11).

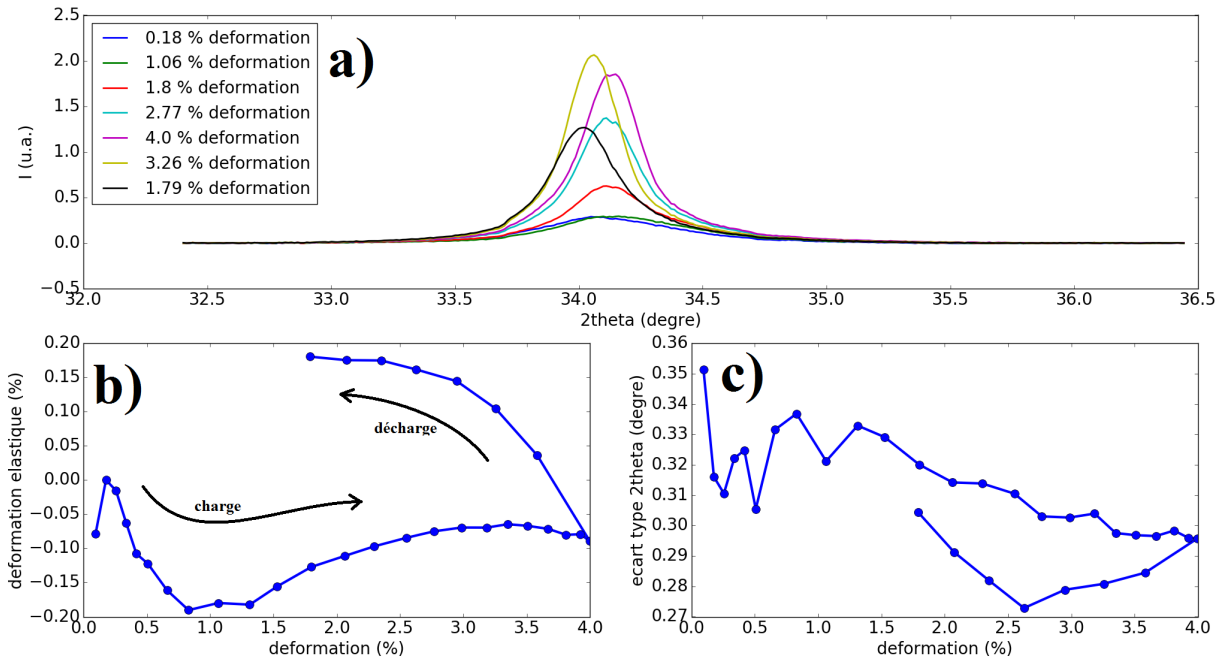


FIGURE 3.10 – a) Pic de diffraction du pôle des macles (-1-11) dans la direction 2θ pour plusieurs états de déformation ; b) Position du barycentre du pic lié aux macles (-1-11) en 2θ au cours de l'essai ; c) écart type du pic lié aux macles (-1-11) ; Traction dans la direction [110] de la matrice

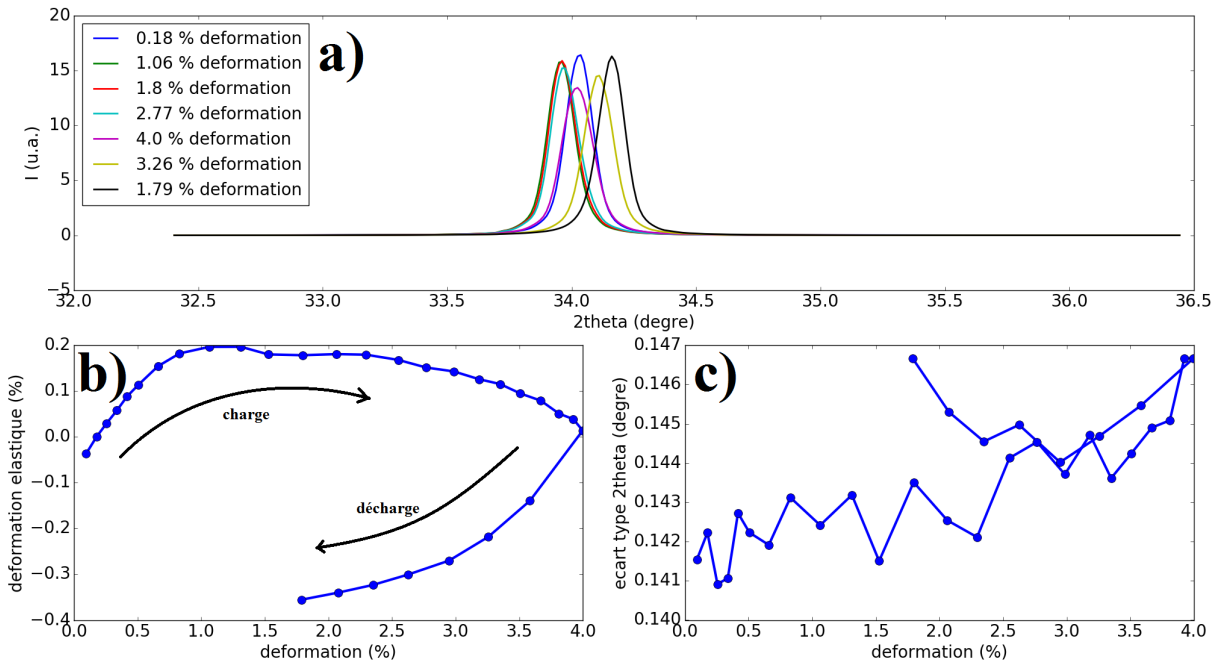


FIGURE 3.11 – a) Pic de diffraction du pôle (111) de la matrice du film dans la direction 2θ pour plusieurs états de déformation ; b) Position du barycentre du pic lié aux plans (111) de la matrice du film en 2θ au cours de l'essai ; c) écart type du pic lié aux plans (111) de la matrice du film ; Traction dans la direction [110] de la matrice

Traction dans la direction [110]

À partir des figures de pôles (initialement la figure de pôles **A** figure 3.12), on peut définir les différents pôles par rapport à leur couple (ψ, ϕ) du repère des figures de pôles. Les pics au centre ($\psi = 15,8^\circ$) correspondent à des familles différentes de macles qui ne possèdent pas la même orientation par rapport à la direction de traction. Si l'on analyse la figure de pôles par rapport à la direction de traction, en effet les pics en $\phi = -8,5^\circ$ et $171,5^\circ$ proviennent de macles ayant respectivement pour joint de macles cohérents les plans $(-1-11)$ et (111) , le troisième pic en $\phi = 81,5^\circ$ correspond à une famille de macles avec pour joint de macles cohérent le plan (-111) parallèle à la direction de traction (Figure 3.6). La direction de traction se faisant selon un axe de la croix de Kapton[®] ($\phi = 0^\circ ; 180^\circ$), on constate que l'orientation de l'échantillon ne correspond pas exactement à l'orientation [110] souhaitée, une erreur de $8,5^\circ$ est présente.

Lors de la traction d'un film dans la direction [110], les figures de pôles montrent une forte évolution de l'intensité et de la forme de certains pics (Figure 3.12). Dans un premier temps les pics liés aux macles $(-1-11)$ et (111) voient leur intensités augmenter en **B** (Pics à $\psi = 15,8^\circ$). Lorsque la déformation se poursuit, ces pics continuent de s'intensifier tout en s'élargissant vers les grands ψ en **C** (vers les pics à $\psi = 54,7^\circ$). On constate aussi que les pics à $\psi = 54,7^\circ$ s'élargissent eux aussi vers les pics des macles à $\psi = 15,8^\circ$. On peut notamment comparer des portions intégrées selon une direction des figures de pôles pour constater l'augmentation de l'intensité entre les deux pics initiaux (Figure 3.13).

En intégrant les pics liés aux macles ($\psi = 15,8^\circ$) à partir des courbes corrigées du fond, on peut ainsi tracer leur évolution au cours de l'essai. La figure 3.14 présente l'évolution au cours de l'essai de l'intensité intégrée des pics liés aux macles ($\psi = 15,8^\circ$). Ce faisant, on observe l'intensité des pics liés aux macles $(-1-11)$ et (111) augmenter à partir de 1,1% de déformation, puis atteindre une intensité de 400% et de 500% de l'intensité initiale du pôle, pour 4% de déformation appliquée. En revanche le pôle lié aux macles (-111) (macles orientées parallèlement à la direction de traction) voit son intensité diminuer de 20% au cours de la traction. Lors de la redescente un artéfact vient perturber la région de la figure de pôles proche de ce pôle lié aux macles (-111) . Un élément du dispositif expérimental vient couper le faisceau et diffuse lorsque le dispositif passe par les angles compris entre $\phi = 55^\circ$ et 80° . Un traitement supplémentaire sera donc nécessaire pour cette courbe là. Lors de la décharge l'intensité liée au volume des macles $(-1-11)$ et (111) diminue et l'on observe également l'élargissement du pôle vers les grands ψ revenir en arrière en **D**. Le phénomène observé paraît donc réversible, dans une certaine mesure puisqu'à la fin de l'essai l'éprouvette conserve une déformation d'environ 1.8%.

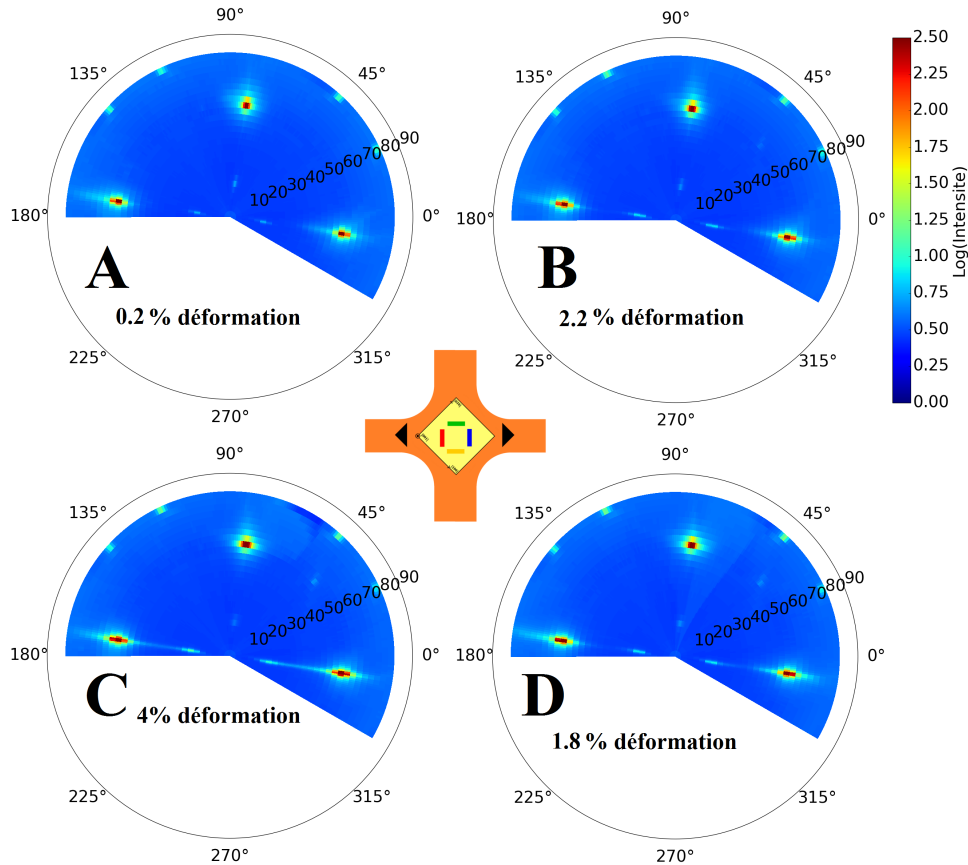


FIGURE 3.12 – Figures de pôles $\{111\}$ d'un échantillon orienté lors d'une traction $[110]$. on nomme ainsi : **A** l'état initial, **B** une position en cours de déformation, **C** le chargement maximal, **D** l'état après la décharge. On remarque que les pôles au centre de la figure de pole ($\psi = 15.8^\circ$ et $\phi = -8.5^\circ$ et 171.5°) s'intensifient en **B** et s'allonge vers les grand ψ en **C**. Puis ces deux évolutions font machine arrière lors de la décharge en **D**. Ces pôles proviennent de macles

Traction dans la direction $[100]$

Nous avons ensuite effectué la même expérience sur un échantillon en changeant de 45° son orientation initiale, c'est à dire que l'axe de traction est orienté selon la direction cristalline $[100]$ de l'échantillon. On observe lors de cet essai que l'intensité liée aux différentes macles n'évolue que de $\pm 17\%$ selon le pôle observé (Figure 3.15). Dans cet essai toutes les macles ont une orientation de plus ou moins 45° par rapport à la direction de traction, on notera tout de même que le film mince est collé sur le substrat avec une erreur de 5° par rapport à la direction de traction souhaitée (erreur plus faible que dans l'essai précédent). Du côté de la déformation élastique, les deux pics liés à la matrice révèlent deux comportements différents alors que les pics liés aux macles sont similaires. Lors de la traction, le pic $(-1-11)$ de la matrice révèle une forte augmentation de la déformation élastique au début de l'essai (jusqu'à $0,1\%$) puis l'évolution atteint un plateau ($0,15\%$ de

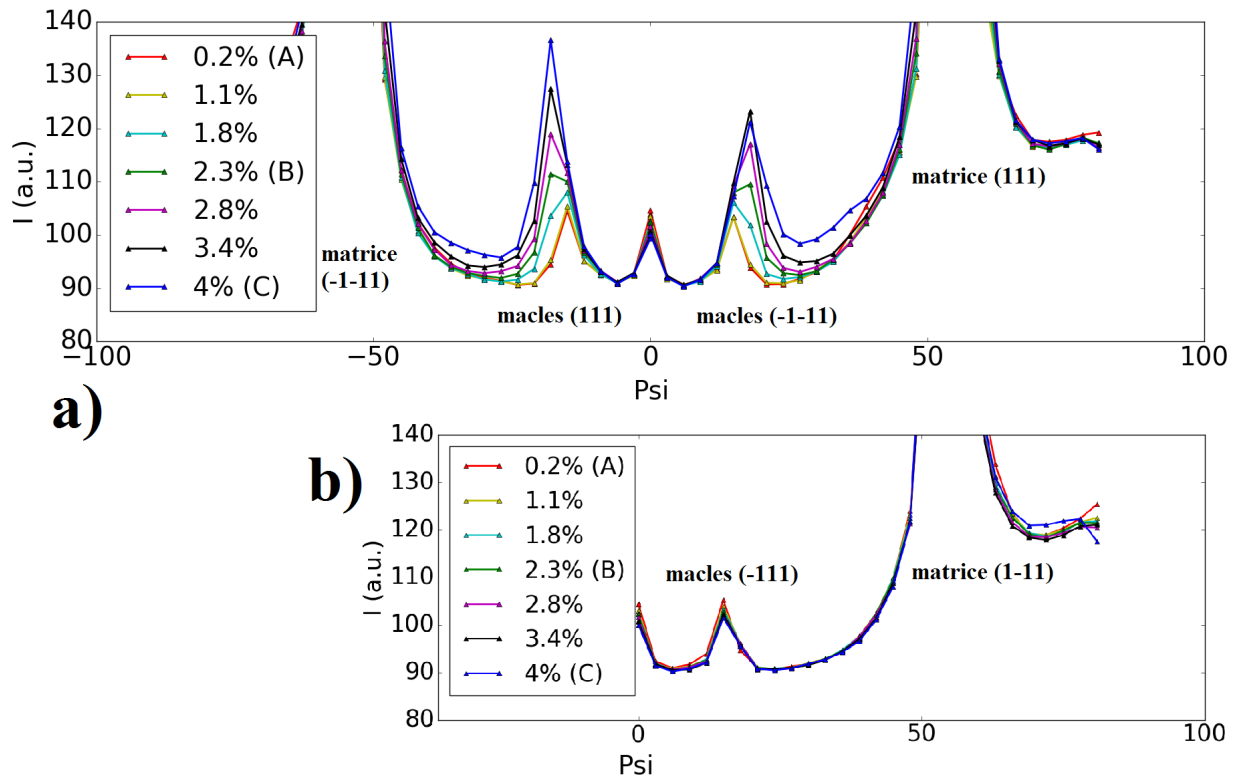


FIGURE 3.13 – Courbes de l’intensité en fonction de ψ pour une plage intégrée de 32 degrés en ϕ , pour une traction [110] à différents états de déformation, a) rotation en ψ autour de l’axe [1-10], b) rotation en ψ autour de l’axe [110]

déformation élastique) et finit par décroître légèrement (1,2% de déformation élastique), alors que le pic (1-11) révèle que la déformation élastique croît lentement tout au long de l’essai (cf Annexe B figures B.7 et B.8). Lors de la décharge, les courbes ont également deux allures différentes, la première décroît jusqu’à passer en compression alors que la seconde ne décroît quasiment pas. Les deux pics liés aux macles révèlent en revanche deux évolutions similaires de leur déformation élastique, une diminution rapide (compression : -0,2%), puis un plateau (-0,3%), avant d’augmenter lors de la décharge (passage en tension : 0,35%) (cf Annexe B figures B.5 et B.6).

3.2.3 Expériences post mortem

Suite à l’expérience de diffraction, nous avons observé en microscopie électronique à transmission, l’un des échantillons utilisé sur synchrotron et tiré dans la direction [110] (Figure 3.16). Nous avons aminci le Kapton[®] sous l’échantillon à l’aide d’un PIPS (*Precision ion polishing system*) dans le but de le rendre transparent aux électrons. Nous observons ainsi que l’échantillon tiré dans la direction [110] présentent des macles allongées dans la

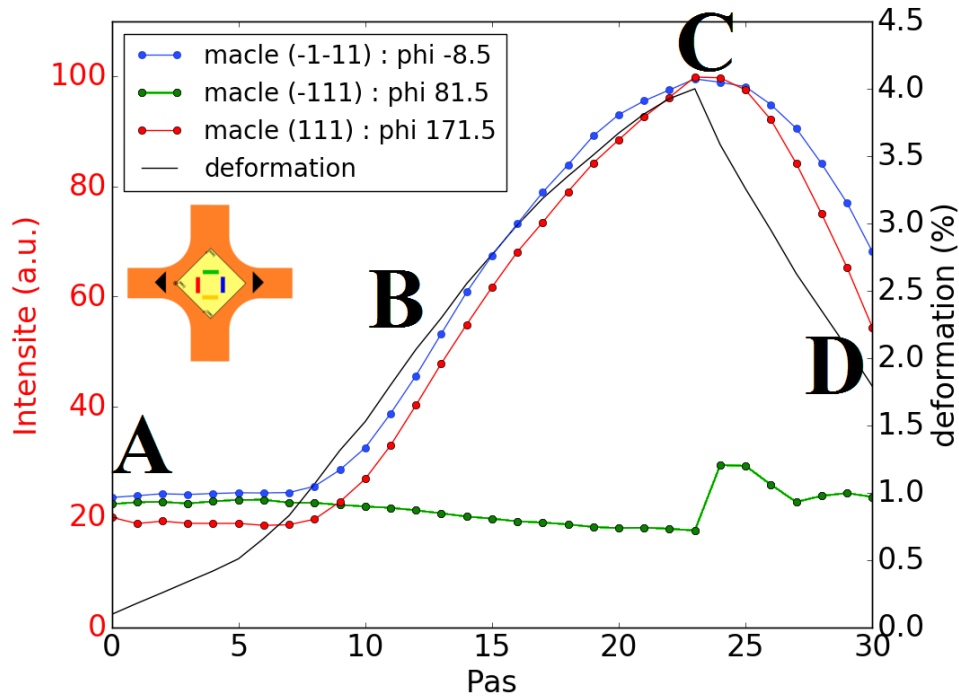


FIGURE 3.14 – Évolution de l'intensité des pics liés aux macles lors d'une traction dans la direction $[110]$.

direction perpendiculaire à l'axe de traction. Les macles dans ces directions voient leur longueur augmenter, l'augmentation pouvant aller d'un facteur deux jusqu'à un facteur dix. En revanche, ces clichés ne permettent pas de connaître l'épaisseur des macles (nombre de plans maclés). En effet, lors d'une vue plane en microscopie électronique, nous sommes sensible aux évolutions dans le plan du film, et beaucoup moins aux évolutions ayant une composante selon l'épaisseur. On regarde une projection de l'épaisseur sur le plan perpendiculaire. De plus les éléments que nous observons sont fins, et l'incertitude sur l'orientation et l'épaisseur du film ainsi que la résolution du microscope ne permet pas une mesure de l'évolution de l'épaisseur des macles.

3.3 Analyse et discussion

3.3.1 Intensité des pôles et volume de macles

Le phénomène le plus visible sur nos figures de pôles est donc l'évolution de l'intensité des pôles diffractant à $\Psi = 15.8^\circ$ liés aux macles, et la différence des comportements observés en fonction de leur orientation par rapport à la direction de traction. En diffraction de rayons X, l'intensité intégrée d'un pic est proportionnelle au volume diffractant. Dans notre cas nous associons donc l'évolution des intensités sur les figures de pôles à l'évolution

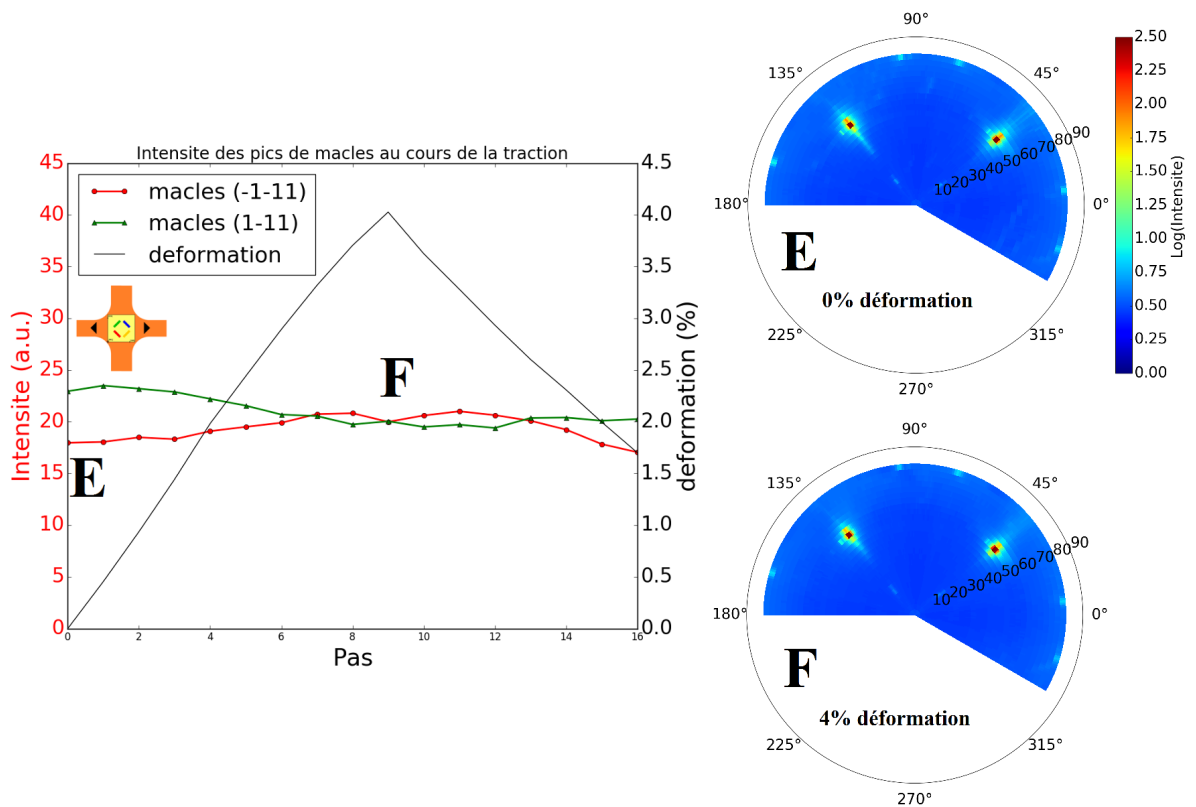


FIGURE 3.15 – Évolution de l'intensité des pics liés aux macles lors d'une traction dans la direction $[100]$, macles $(-1-11)$ et $(1-11)$ orienter à 45° de la direction de traction $[100]$

des différents volumes cristallins de nos échantillons au cours des essais de traction. Et nous associons notamment l'évolution de l'intensité intégrée des pôles à $\Psi = 15.8^\circ$ à l'évolution du volume des différentes macles de nos films (Figure 3.17). Cependant le fait que nous travaillons sur des monocristaux, nous oblige à être particulièrement attentif à la position des pics de diffraction et à leurs déplacements au cours des essais mécaniques. Ces déplacements nous obligent à choisir et intégrer une région des figures de pôles pour pouvoir comparer les pics de diffraction au cours d'un essai mécanique. Il est aussi important de rappeler que la projection du faisceau de rayons X sur l'échantillon varie selon les angles Ψ et 2θ , mais nous négligeons cet aspect pour les angles que nous avons utilisés.

Traction selon la direction $[110]$

Lors de la traction dans la direction $[110]$ on observe une très forte anisotropie du comportement des macles. Sur la Figure 3.17.a, nous avons tracé l'évolution de l'intensité de chacun des pics à $\Psi = 15,8^\circ$ en fonction de la déformation appliquée. Nous observons dans un premier temps que le volume des macles reste constant jusqu'à $1,1\%$ de déformation. L'or étant un matériau très ductile, à $1,1\%$ de déformation la limite d'élasticité est dépassée. Nous en déduisons que les premiers événements plastiques dans ces échantillons

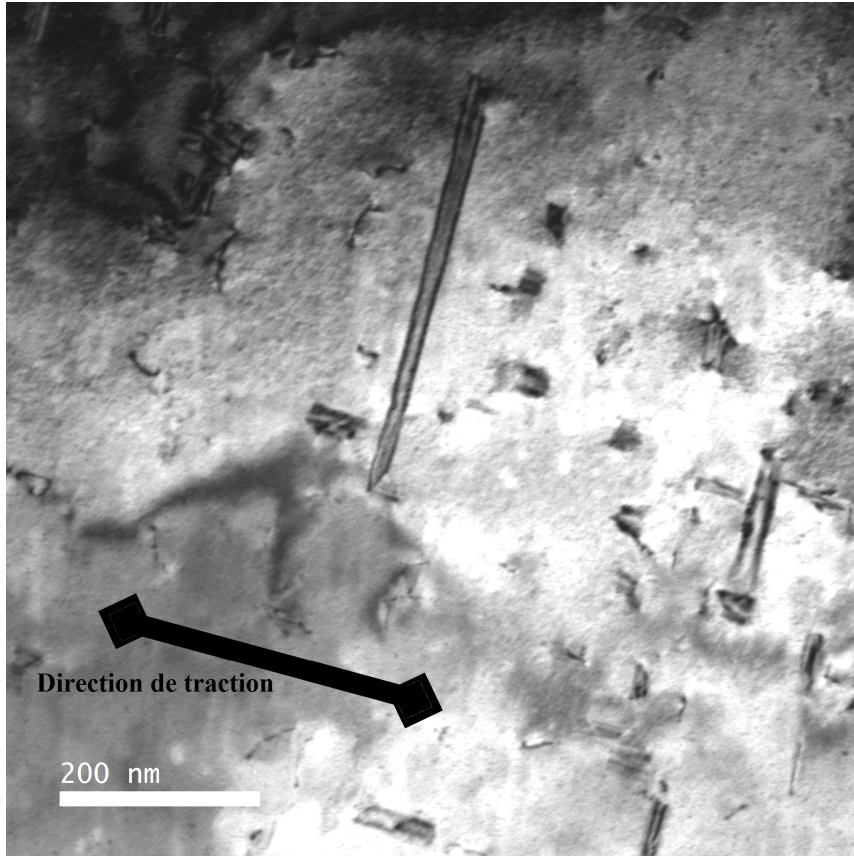


FIGURE 3.16 – Cliché de microscopie électronique en transmission d'un échantillon tiré dans la direction $[110]$. On observe une macle allongée perpendiculairement à la direction de traction

ne génèrent pas de nouvelles macles et n'amplifient pas les macles existantes. Ce régime peut correspondre à ce qu'ont observé S.H. Oh et al.[45], c'est à dire un régime où des dislocations parfaites et/ou des dislocations partielles glissent sans interagir avec les macles existantes et sans en générer de nouvelles.

En revanche, après 1,1%, on observe que le volume des macles $(-1-11)$ et (111) commence à augmenter, puis à partir de 1,8% le volume de ces macles augmente proportionnellement avec la déformation. A la fin de la traction, à 4% de déformation, les macles $(-1-11)$ ont vu leur volume augmenter de 400% et les macles (111) de 500%. Lors de tractions dans la direction $[110]$, J.W. Matthews [46] observe de grandes macles lenticulaires, allongées perpendiculairement à la direction de traction (Figure 1.10.b), cela correspond à des macles (111) et $(-1-11)$. D'un autre côté, pour les macles (-111) parallèles à la direction de traction on constate une diminution de leur volume de l'ordre de 25% au cours de l'essai, entre 1,1% et 4% de déformation appliquée. Cette diminution d'intensité peut être causée par différents phénomènes. Par exemple du démaclage peut être causé par des mouvements de dislocations partielles transformant la macle dans une autre orientation. Ou bien par exemple une macle d'une épaisseur inférieure à la dizaine de nanomètres peut se transformer

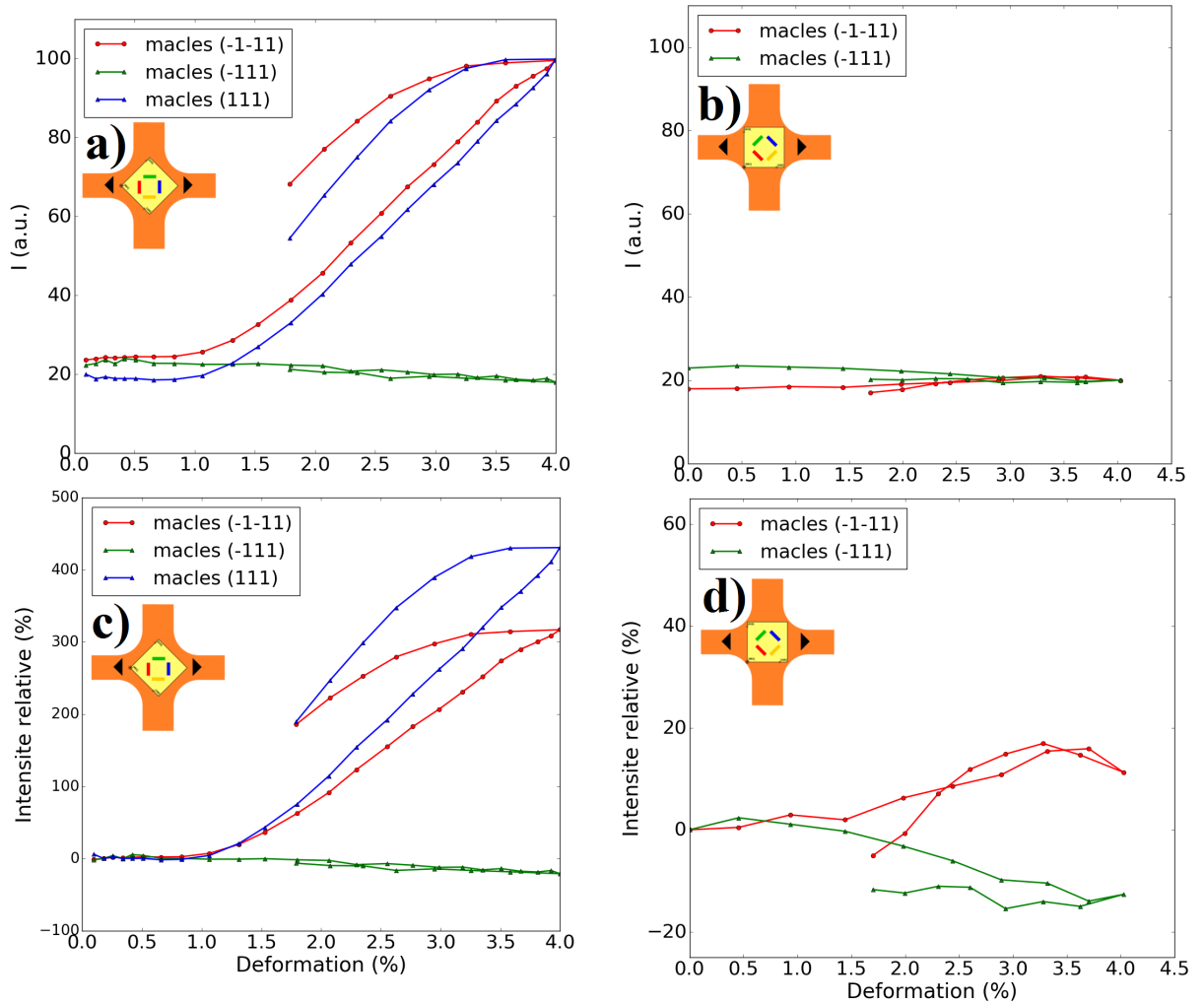


FIGURE 3.17 – Intensité du pic lié aux macles en fonction de la déformation :
 a) Traction selon la direction $[110]$, b) Traction selon la direction $[100]$

en joint de grain [37] à cause du stockage de dislocations dans les joints de macles (Le réseau cristallin au sein des macles est détruit, alors elles ne diffractent plus). Ce dernier phénomène indiquerait que le maclage n'est pas le seul phénomène plastique lors de ces essais de traction $[110]$, mais que du glissement de dislocations parfaites ou partielles a lieu et que certaines dislocations finissent capturées dans des joints de macles. Dans le cas où la totalité d'un monocristal maclerait lors d'une traction $[110]$, le cristal s'allongerait de 33% dans la direction $[110]$ (en utilisant la projection sur l'axe $[110]$ du vecteur de Burgers $1/6[11-2]$ correspondant à une dislocation partielle de macle, figure 3.18). En considérant les intensités des pôles des macles par rapport à l'intensité des pôles de la matrice, on peut donner comme estimation qu'initialement dans le film, entre 1% et 2% du volume du film est maclé (macle de croissance, le ratio d'intensité en Figure 2.7 donne un ordre de grandeur). Une augmentation du volume de deux type de macles de 500% justifie alors seulement une déformation plastique de 1.33% (si $1\% \times (500\% - 1) = 4\%$ du volume se met à macler, alors

on observe $4\%/3 = 1.33\%$ de déformation plastique) alors que nous verrons plus tard que nous observons une déformation plastique de 3.7% à la fin de la traction (Figure 3.22). D'après ces estimations le maclage ne peut pas être le seul phénomène plastique.

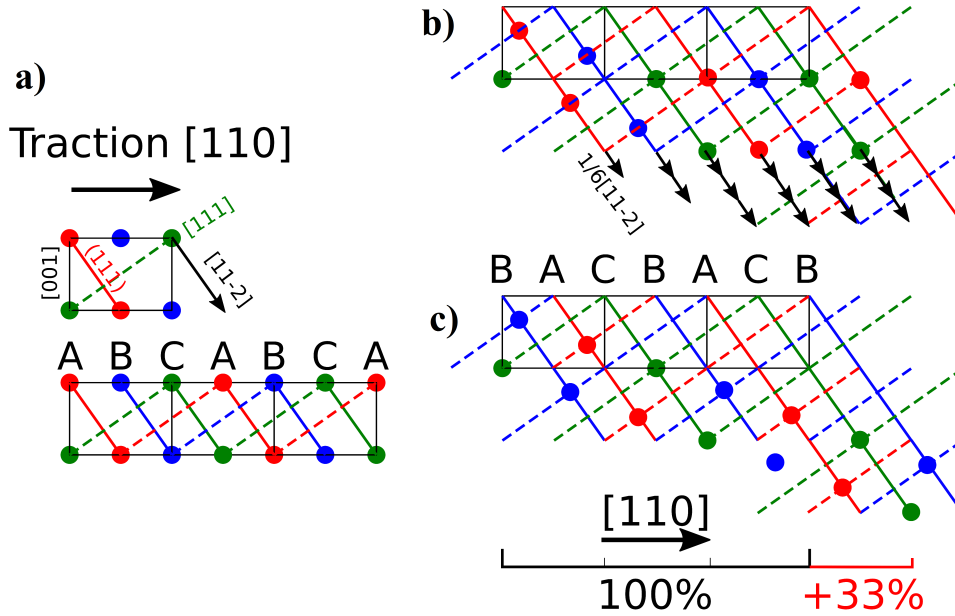


FIGURE 3.18 – a) Schéma d'un film non maclé d'une maille atomique d'épaisseur (orientation [001]) pour une traction dans la direction [110]; b) Schéma (dans le même film d'une maille d'épaisseur) du maclage mécanique par glissement d'une dislocation partielle dans chaque plan (111); c) Schéma du film totalement maclé et observation de la déformation en résultant (33% de déformation). Les plans denses (111) sont représentés par les lignes colorées continues (couleur selon l'alternance des plans appelés A, B, C); la maille de l'orientation initiale en noir; les lignes discontinues de couleur représentent des directions [111], c'est à dire les colonnes des atomes d'un même type de plans (A, B, ou C). Le passage d'une dislocation partielle $1/6[11-2]$ correspond au glissement du réseau dans le plan (111) (le long d'une ligne continue) d'une distance équivalant à l'espace entre 2 lignes discontinues

Traction selon la direction [100]

Lors d'une traction dans la direction [100], toutes les macles ont une orientation équivalente par rapport à la direction de traction, on s'attend donc à ce que les deux pôles des macles aient des évolutions similaires. On observe ainsi figure 3.17.b que le volume maclé n'évolue pas ou peu. Les faibles évolutions observées de +18% dans un cas et de -15% dans l'autre, sont peut être liées aux erreurs d'orientation de l'échantillon par rapport à la direction de traction. En effet on observe un écart de 5° entre la direction cristalline [100] et la direction de traction réelle de la machine. Il semblerait donc que l'on soit principalement dans le même type de mécanisme de déformation que dans l'expérience de S.H. Oh et al.

[45], c'est à dire principalement du glissement simple et du glissement de dislocations partielles ne développant pas les macles de croissance et ne générant pas de nouvelles macles. C'est différent de ce qu'observe J.W Matthews [46] dans la direction [100], où l'on retrouve des macles allongées pour les 4 types de macles dans son échantillon (Figure 1.10.a).

Conclusion sur l'évolution du volume des macles

Notre essai dans la direction [110] paraît donc similaire à celui de Matthews, avec du maclage ayant un rôle important dans la déformation. En revanche notre essai dans la direction [100] est très différent puisque Matthews, contrairement à nous, observe également le maclage des 4 types de macles. Notre essai se rapprocherait donc de ce qu'ont observé S.H. Oh et al. dans la direction [100], c'est à dire du glissement simple et du glissement de dislocations partielles sans maclage. On notera tout de même que les macles observées dans cette direction par Matthews paraissent moins épaisses que celles qu'il observe lors de la traction [110]. Dans notre cas, nous avons mis en évidence l'importance de la direction de traction sur le maclage dans ce genre de films minces. Si l'on définit les macles à l'aide de l'angle entre leur ligne d'intersection avec la surface et la direction de traction, on peut décrire le panel d'évolutions suivant : un fort maclage pour les macles à 90° , une évolution nulle pour les macles à 45° et une faible diminution pour les macles parallèles à la traction.

Lors d'une traction dans la direction [110] de 4% de déformation appliquée, le volume total des macles (-1-11) et (111) augmente de 400% et 500% (macles dont l'intersection du joint de macle cohérent avec la surface du film est perpendiculaire à la direction de traction). Les macles (-111) (et en toute logique, les macles (1-11) également) voient leur volume total diminuer de 20% (macles parallèle à la direction de traction). Dans le cas de la traction [100] (toujours en appliquant 4% de déformation), les macles évoluent peu, $\pm 17\%$ selon la famille observée (l'intersection du joint de macle cohérent avec la surface du film forme un angle de 45° pour les 4 types de macles) Dans le cas des macles (-1-11) et (111) lors de la traction [110], on distingue clairement trois régimes lors de l'augmentation des macles. Jusqu'à 1,1% de déformation appliquée, le volume des macles n'augmente pas. De 1,1% à 1,8% de déformation appliquée, le volume des macles augmente de plus en plus (augmentation de 70%). Après 1,8% de déformation le volume de macle augmente linéairement avec la déformation appliquée, jusqu'au 4% de déformation appliquée marquant la fin de la traction (pour un volume final de 400% et 500% du volume de macles initial).

3.3.2 Formes, positions et évolutions des pics

Maintenant que nous nous sommes intéressés au volume maclé d'une manière générale, nous allons nous pencher sur le comportement des macles au cours des essais de traction d'un point de vue cristallographique. Nous nous concentrons sur la forme et la position des pics au sein des figures de pôles, ce qui est lié à l'orientation des éléments diffractants.

De plus, comme nous avons vu précédemment le détecteur bidimensionnel nous permet d'obtenir une information sur la position du pic en 2θ , soit la composante de déformation élastique (Figures 3.10 et 3.11).

Difficultés liées à la forme des pics de diffraction

Nous observons que les pics de diffraction sur le détecteur 2D possèdent des tiges de troncatures, notamment pour les pics liés aux macles. Ces tiges de troncature augmentent la largeur de nos pics sur la direction 2θ , de plus elles rendent difficile la sélection d'une région autour du pic de diffraction, puisqu'elles ont une portée relativement importante et sortent facilement des régions sélectionnées (Figure 3.7.a). Les tiges de troncature observées sur le détecteur bidimensionnel correspondent à des tiges de troncature liées à des surfaces orientées selon des plans $\{111\}$ de la matrice du film. Ces surfaces proviennent des macles de nos échantillons, et nous pouvons voir géométriquement en Figure 3.19 comment une tige de troncature liée à la forme du volume diffractant d'une macle intersecte la sphère d'Ewald, et est mesurée sur le détecteur. D'après les orientations observées, les tiges de troncature sont liées aux joints de macles cohérents des macles en condition de diffraction. Sur la figure 3.7.b qui correspond à 4% de déformation appliquée on constate que le pic de diffraction a gagné en intensité et c'est élargie. On distingue toujours la tige de troncature sur les clichés, mais la tige de troncature est moins bien définie (plus faible et plus diffuse). Cette évolution peut traduire le fait que les joints de macle cohérents sont perturbés au cours de la traction, que ce soit par des rotations du joint de macles, ou par du stockage de dislocations altérant le plan du joint de macles cohérents.

Rotation des macles

Lors de la traction $[110]$, les figures de pôles et notamment les courbes de l'intensité en fonction de ψ (Figures 3.12 et 3.13) révèlent que lors de la déformation, la position des pics liés aux macles se développant est décalée vers les grands ψ . En effet, à 4% de déformation ces pics se sont décalés d'environ 3° . Ce mouvement des pics traduit une rotation des macles $(-1-11)$ et (111) de 3° autour de l'axe $[1\bar{1}0]$. De plus sur les figures de pôles, on observe un allongement du pic dans cette même direction. Cet allongement traduit la présence de plans $\{111\}$ provenant de macles tout au long de ces inclinaisons. Cette large répartition des plans des macles aurait tendance à indiquer que les macles dans le film tournent progressivement et non de manière collective et simultanée. Ce phénomène de rotation rappelle la désorientation que peut subir un nano-fil qui macle à cause de l'angle généré entre le fil initial et la macle [30]. Ce qui dans notre cas correspond à l'adhésion du film mince au substrat, la traction induit une rotation des régions maclées (Figure 3.20). Ce genre de rotation à lieu grâce à de nouveaux plans de glissement activés au sein des macles [46], ce qui de plus causerait l'amincissement du film au niveau des macles, Si les macles

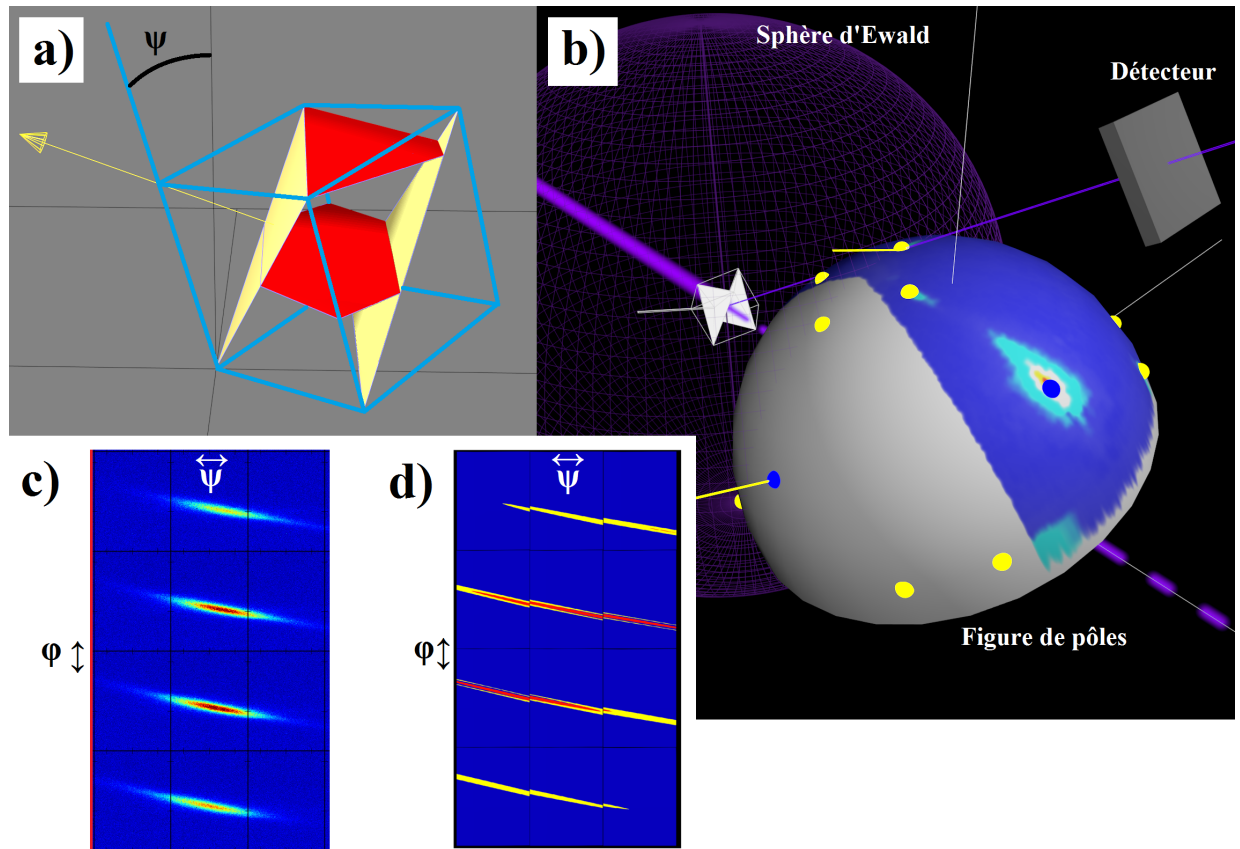


FIGURE 3.19 – a) Schéma d’une macle en condition de diffraction à $\psi = 15,8^\circ$: en rouge les plans diffractants, en jaune les joints de macles cohérents, en bleu la matrice. b) Schéma d’une tige de troncature coupant la sphère d’Ewald et la sphère de la figure de pôles pour les mêmes conditions de diffraction qu’en a). c) Série de clichés de diffraction expérimentaux pour quelques couples (ψ, ϕ) , d) Schéma de l’intersection d’une tige de troncature avec la sphère d’Ewald vue depuis la position d’un détecteur pour plusieurs couples (ψ, ϕ) .

sont suffisamment épaisses (supérieures à la dizaine de nanomètres), ce phénomène de rotation peut également provenir de la rotation des macles à cause de dislocations stockées dans les joints de macles [36]. Cela transformerait petit à petit le joint de macle en un joint de grain entre deux grains fortement désorientés, les grains résultant des macles ayant des orientations proches de celle des macles initiales.

Déformations élastiques au cours des essais

L’utilisation d’un détecteur 2D permet d’étudier le déplacement des pics sur l’axe 2θ traduisant la distance interréticulaire. Nous pouvons ainsi suivre les différents plans d’une même famille de plans enregistrée lors des figures de pôle, le tout au cours de la déformation (cf Annexe B). Les plans $\{111\}$ analysés des macles sont initialement à $\psi = 15,8^\circ$ de la surface de l’échantillon. Ils sont alors relativement soumis à l’effet Poisson hors plan

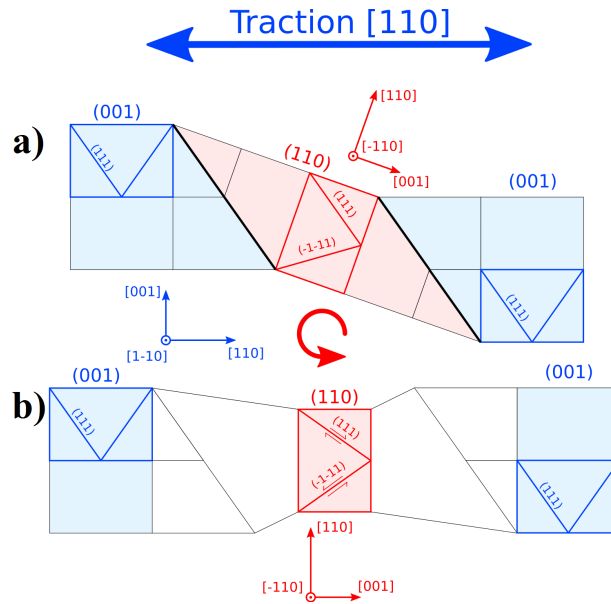


FIGURE 3.20 – a) Schéma d'une coupe transverse d'une macle (en rouge) lors d'une traction dans la direction $[110]$ de la matrice (en bleu) sans restriction sur la position des extrémités ; b) Schéma d'une coupe transverse d'une macle lors d'une traction dans la direction $[110]$ en restreignant la position des extrémités dans le même plan, ce qui induit une rotation du cristal maclé par rapport à la situation en a). Au sein des schémas, il est représenté en plus épais les mailles cristallographiques de chaque région ainsi que leurs plans $\{111\}$ perpendiculaires au schéma.

causé par l'essai de traction. Nous pouvons ainsi comparer ces déplacements de pics de macles avec les déplacements des pics de la matrice pour obtenir les états de déformation caractéristique des différents événements plastiques, pour chaque orientation cristalline. En revanche le système macle-matrice possède plusieurs orientations cristallines, ces différentes orientations vont générer des inhomogénéités de contraintes locales, ce qui ajoute une inconnue sur la contrainte (hors plan) et nous empêche d'effectuer des calculs de déformation élastique dans les macles. A.M. Vodnick et al. [65] ont montré ce genre d'inhomogénéité au sein de film de cuivre possédant une double texture ((111)/(100)) à l'aide de diffraction des rayons X. Dans la suite nous nous permettons tout de même d'effectuer des calculs de déformation élastique dans la matrice, en considérant que la matrice à un volume beaucoup plus important que les macles et est donc moins sujette aux inhomogénéités.

Lors des essais de traction, nous avons observé les déplacements des pics de diffraction liés à la matrice du film dans la direction 2θ . Nous sommes ainsi remontés à la déformation élastique du film d'or dans la direction de traction (Calculs en Annexes C), et par extension nous obtenons également la déformation plastique du film. Nous pouvons ainsi voir les différents régimes de déformation lors de l'essai mécanique. Au début de la traction $[110]$, nous observons un régime élastique, où nous observons une évolution linéaire de la déformation élastique par rapport à la déformation appliquée (Figure 3.21). On montre

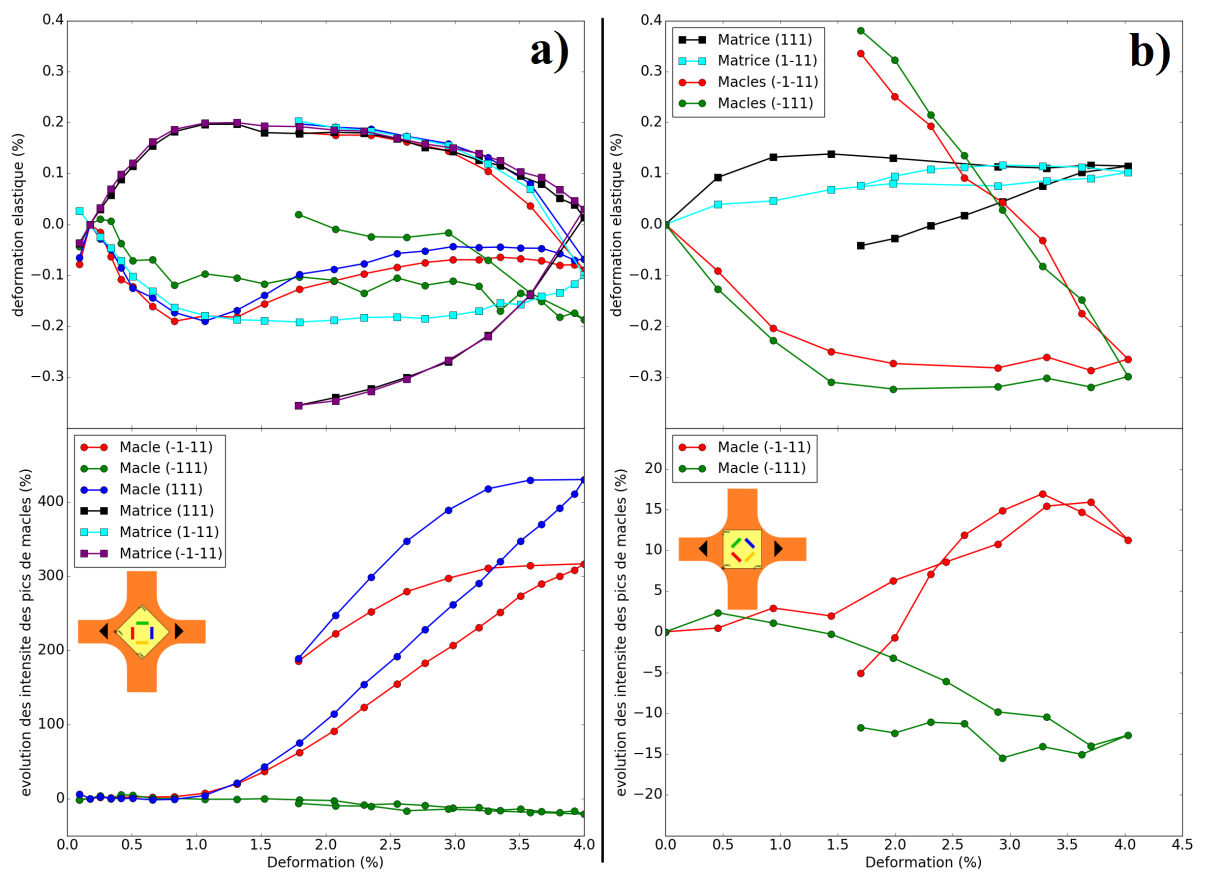


FIGURE 3.21 – Courbe de l'évolution de l'intensité des pics de diffraction des macles et des déformations élastiques des plans $\{111\}$ diffractants de chaque orientation. Essai de traction dans la direction : a) $[110]$, b) $[100]$; de la matrice du film

dans l'annexe C (Figure C.1) que la déformation élastique en fonction de la déformation appliquée est linéaire avec une pente de 1, ce qui correspond à un régime élastique. Ce régime se termine vers 0,5% de déformation appliquée et l'évolution de la déformation élastique perd sa linéarité, ce qui indique une augmentation progressive de l'activité plastique jusqu'à 1,1% de déformation appliquée. Lors de ces 2 régimes, le volume des macles n'évolue pas, c'est ce que l'on observe aisément au début de la courbe figure 3.22 représentant l'évolution de l'intensité des pics des macles en fonction de la déformation plastique du film. Cela indiquerait que la plasticité est causée par des mouvements de dislocations (parfaites ou partielles) sur la première partie de notre essai de traction. Lorsque la déformation se poursuit, on observe un régime purement plastique lorsque la courbe déformation élastique/déformation appliquée est constante, constante jusqu'à 1,8% de déformation appliquée. Lors de ce régime, on observe que le volume diffractant lié aux macles (111) et (-1-11) commence à augmenter, soit à partir de 0,3% - 0,5% de déformation plastique. Après 1,8% de déformation appliquée, la déformation élastique diminue jusqu'à revenir à une valeur proche de celle du début de l'essai en atteignant 4% de déformation. Les macles (111) et (-1-11) voient alors leurs proportions augmenter linéairement avec la déformation lors de ce régime (0,6% de déformation plastique).

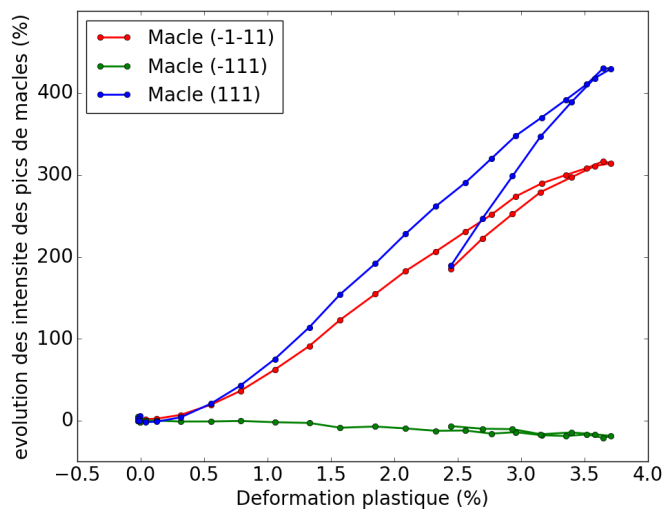


FIGURE 3.22 – Intensité des macles en fonction de la déformation plastique lors d'une traction [110]

Lors de la traction dans la direction [100], on constate que les plans {111} que l'on a observés dans la matrice, se déforment élastiquement de manière très différente (Figure 3.21.b). D'après les calculs par rapport à une traction dans une direction [100] parfaitement orientée (Annexe C), ces plans ont une orientation telle que leurs déformations élastiques sont très faibles par rapport à la déformation dans l'axe de traction. Il est donc possible qu'une légère désorientation du film crée cette asymétrie. La différence d'allure

entre ces deux plans permet tout de même de dire qu'ils ne plastifient pas de la même façon. L'évolution de la déformation élastique des plans (111) (à 40° en ϕ) a une allure similaire à la déformation des plans $\{111\}$ de la traction [110], c'est à dire qu'il y a une rapide augmentation de la déformation élastique qui atteint un plateau maximum avant de décroître sensiblement alors que la déformation se poursuit. En revanche, la déformation élastique des plans (1-11) (à 130° en ϕ) augmente lentement tout au long de l'essai de traction. L'asymétrie de l'augmentation et de la diminution de 15% du volume maclé (Figure 3.17.d) va dans le même sens que cette asymétrie de déformation élastique, et dans le même sens que l'erreur d'orientation de 5° par rapport à la direction de traction. Contrairement aux plans de la matrice du film, au sein des macles, les plans $\{111\}$ à $15,8^\circ$ de la surface du film perçoivent des déformations élastiques similaires peu importe la famille de macle. On observe deux régimes lors de la traction, un régime élasto-plastique jusqu'à 1% de déformation appliquée environ, puis un régime purement plastique où la déformation élastique est constante à partir de 1,4% de déformation appliquée.

Nous avons également observé les largeurs des pics de diffraction (équart type, figure 3.10, 3.11, ainsi qu'en Annexe B). L'écart type convolue plusieurs informations sur le réseau cristallin diffractant. Théoriquement dans l'approximation cinématique, un cristal parfait et infini diffracte en un pic de Dirac infiniment fin. Les défauts viennent élargir l'écart type des pics de diffraction en ajoutant des perturbations locales (par exemple le champ de contraintes d'une dislocation). Au cours de nos essais nous observons l'écart type des pics de diffraction de la matrice augmenter, c'est un signe de l'augmentation du nombre de défauts au sein du matériau. En revanche au sein des macles, on observe parfois une légère diminution de l'écart type, notamment dans le cas des macles qui gagnent en volume lors de la traction [110]. Ce phénomène est peut être causé par l'augmentation du volume diffractant, les macles gagneraient donc en épaisseur, c'est un phénomène qui se produit lorsque le volume initial est nanométrique (comme dans le cas de la taille des grains des films nanocristallins). L'asymétrie que l'on observe sur l'évolution des écarts types va dans le sens de l'augmentation du volume des macles (111) et (-1-11). Dans le cas de la traction dans la direction [100], on observe l'augmentation des écarts types des pics de diffraction (macles et matrices). Cela suggère une activité plastique au sein de ces deux régions.

Conclusion : mise évidence des différents domaines mécaniques

Malgré l'incertitude sur la position des pôles, nous avons montré que l'orientation cristalline des macles (dont le volume maclé augmente) tournent autour de l'axe [1-10] d'environ 3° au cours de l'essai [110] à partir du moment où le volume de macle commence à augmenter. De plus sur la fin de l'essai on observe de l'intensité répartie depuis les pôles de ces macles jusqu'au pôle de la matrice (de $\psi = 15,8^\circ$ à $\psi = 54,7^\circ$). Cette étirement de l'intensité commence à partir des pôles de ces macles, et correspond donc à différentes orientations cristallines. Cela peut être traduit par une rotation plus importante de certaines

régions du volume maclé. De plus nous avons identifié les différents domaines mécaniques, notamment pour les associer aux étapes de maclage observées précédemment. Dans le cas de la traction dans la direction [110], on observe un régime élastique jusqu'à 0,5% de déformation appliquée. Après 0,5% de déformation appliquée, la déformation élastique perd sa linéarité, ce qui révèle un régime élasto-plastique jusqu'à 1,1% de déformation appliquée. À partir de 1,1% de déformation appliquée la déformation est purement plastique, et à partir de 1,8% on observe un adoucissement de plus en plus important jusqu'à 4% de déformation appliquée (la déformation élastique diminue alors que la déformation appliquée augmente). Du côté des macles, les plans observés au sein des macles qui augmentent (macles (111) et (-1-11)) montrent les mêmes régimes mécaniques. En revanche les macles parallèles à la traction (-111) ne montre pas d'adoucissement élastique à partir de 1,1% de déformation appliquée. Dans le cas de la traction [100], le nombre de mesure étant plus faible, cela ne permet pas de déterminer correctement les différents domaines mécaniques. De plus les courbes de déformation élastique de la matrice présentent des allures différentes ce qui nous empêche de conclure sur leurs variations. Les macles dans cet essai montrent quant à elles deux évolution similaire (macle (-1-11) et (-111)) du point de vue élastique. Les largeurs des pics de diffraction en 2θ viennent appuyer les observations précédentes, ce qui traduit l'état du réseau cristallin soit par l'évolution des hétérogénéités de déformation soit par l'évolution des domaines cohérents de diffraction. Ainsi les largeurs des pics de la matrice augmentent au cours des essais révélant une augmentation de la quantité de défauts dans les films. Le fait que les largeurs des pics des macles diminuent, dans le cas des macles qui augmentent dans l'essai de traction [110] (macles (-1-11) et (111)), peut traduire une augmentation de l'épaisseur des macles. Les largeurs des pics des autres macles de l'essai [110] et des macles de l'essai [100] augmentent, ce qui montre une augmentation du nombre de défaut dans les macles également.

3.3.3 Décharge et démaclage

À la fin de l'essai de traction, nous avons continué les mesures lors de la décharge de nos échantillons. Dans le cas de l'essai dans la direction [110], lors de la décharge, nous observons que les phénomènes précédemment analysés sont en partie réversibles. C'est-à-dire que les intensités des pics liés aux macles qui ont augmenté, diminuent au cours de la décharge. Le premier pas de déformation de décharge fait passer la déformation de 4% à 3,6%, et lors de ce pas le taux de macles reste constant, en revanche lorsque la décharge se poursuit le taux de macles diminue. Le substrat qui porte la déformation s'est allongé irréversiblement et d'après la corrélation d'images numériques on observe à la fin de la décharge une déformation résiduelle de l'échantillon de 1,8%. Pour cet état de déformation le taux de macles est 2,9 fois plus élevé que le taux de macles initial. Par rapport aux taux de macles maximum à 4% de déformation, qui étaient de 4,1 et 5,3 fois les taux de macles

initiaux, les macles ont été réduites de 29% et 45%. De plus pour la même déformation, à 1,8% lors de la traction initiale, le taux de macles était seulement 1,6 et 1,7 fois supérieur aux taux initiaux. Du point de vue de la déformation élastique de l'échantillon, lors de la décharge on observe que l'échantillon passe en compression dès le premier pas, dans la matrice comme dans les macles qui ont évolué. En revanche, les macles parallèles à l'axe de sollicitation ne passent pas en compression. Le faible nombre de mesures au cours de l'essai ne permet pas d'identifier le régime élastique de la décharge et de la compression qui s'en suit. En revanche le fait que la déformation élastique augmente de moins en moins vite indique clairement une activité plastique lorsque la décharge se poursuit, ce qui coïncide avec les observations sur le taux de macles.

Ce genre de maclage en tension poursuit par du démaclage en compression fait penser aux mêmes phénomènes observés dans des nano-fils d'or par S. Lee et al. [30] en 2014 à l'aide de microscopie électronique et de simulations atomistiques. Ils ont effectué des essais de traction sur des nano-fils d'or orientés selon la direction [110] et observent du maclage complètement réversible lors de cycles tension-compression.

Dans la direction de traction [100], le taux de macles évolue relativement peu par rapport à la direction [110]. On constate tout de même que les courbes de l'intensité des macles (ayant des variations de l'ordre de 15%) ont des allures réversibles. Les courbes traduisant la déformation élastique au sein des macles indiquent que les macles passent en compression lors de la décharge. En revanche l'observation des plans {111} de la matrice montre qu'ils passent très peu en compression (plans à $\phi = 40^\circ$) voire pas du tout (plans à $\phi = 130^\circ$) (Figure 3.21).

3.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons pu observer, à l'aide de figures de pôles en diffraction de rayon X, l'évolution de macles au cours d'essais de traction au sein de films minces d'or monocristallin [001] de 50nm d'épaisseur. Nous avons ainsi observé leur évolution et l'influence de leur orientation par rapport à la direction de traction. L'expérience effectuée permet dans un premier temps d'avoir une bonne mesure de l'évolution relative du volume maclé dans un échantillon. Dans un second temps, l'expérience permet de mesurer les différents types de déformation : la déformation appliquée (grâce à la corrélation d'image numérique) et la déformation élastique (grâce à la diffraction des rayons X). Cela permet de calculer la déformation plastique. Ces deux aspects de l'expérience permettent d'associer l'évolution des macles avec les différents domaines mécaniques des essais.

Dans l'essai [110] où le maclage est important, un régime élastique est observé jusqu'à 0,5% de déformation, suivi d'un régime élasto-plastique allant jusqu'à 1,1% de déformation appliquée (0,7% de déformation élastique). Après 1,1% de déformation appliquée, le régime

est purement plastique, et c'est à partir de ce régime que le volume maclé commence à augmenter. À partir de 1,8% de déformation, on observe un adoucissement de la déformation élastique. À 1,8% de déformation appliquée, on observe que le volume maclé a augmenté de 70%, et après 1,8% le volume maclé croît linéairement avec la déformation appliquée. À la fin de l'essai, à 4% de déformation appliqué, on observe que la déformation élastique est de 0,3% (soit une déformation plastique de 3,7%) et que les volumes maclés des macles dites à 90° ont augmentés de 400% et 500%.

Nous avons vu que géométriquement, le maclage à lui seul ne justifie pas l'ensemble de la déformation plastique, et une activité de dislocations est donc activée en parallèle (3,7% de déformation plastique dont 1,3% de maclage et donc 2,4% d'une autre activité plastique). Lors du maclage au cours de la traction [110], un phénomène cause une rotation de 3° des macles à 90° autour de leur direction [1-10] comprise dans le joint de macle et le plan du film (la direction [1-10] de la matrice du film est perpendiculaire à l'axe de traction). Ce phénomène peut être généré par l'activation de systèmes de glissement au sein des macles, permettant d'accommoder l'écart géométrique causé par le maclage et l'adhésion du film mince au substrat lors de la traction. De plus les macles étant incluses au sein de la matrice monocristalline, des contraintes supplémentaires hors plan peuvent venir cisailer les macles.

Pour finir lors de la décharge de nos échantillons, nous avons observé une forte diminution des macles dites à 90° lors de l'essai dans la direction [110]. Nos échantillons portés par le substrat passent en compression lors de la décharge, ce qui induit du démaclage et donne un aspect réversible à nos échantillons (dans une certaine mesure à cause de la déformation plastique finale de l'éprouvette de Kapton®).

Ce chapitre nous a donné des informations statistiques sur l'évolution de nos films lors des essais mécaniques. De plus les analyses post mortem nous donnent des pistes sur la façon dont ont pu macler nos films (allongement des macles dans la direction perpendiculaire à la sollicitation). Dans le chapitre suivant, nous allons donc nous intéresser aux phénomènes plastiques en eux mêmes à une échelle plus locale, à l'aide de microscopie électronique en transmission *in situ*.

Chapitre 4

Tractions uniaxiales in situ en microscopie électronique en transmission

À l'aide de la technique de diffraction des rayons X, nous avons observé une grande différence d'évolution de volume maclé selon la direction de traction. En effet d'après cette étude, au sein de film d'or monocristallin, les macles des plans (111) et (-1-11) augmentent leur volume d'un facteur 4 à 5 lorsque le film est tiré dans la direction [110], alors que le volume des macles parallèles à la direction de traction diminue de 20%. En revanche lors d'une traction dans la direction [100] où toutes les macles ont la même inclinaison par rapport à l'axe de traction, le volume maclé de l'échantillon ne varie quasiment pas. Nous avons voulu reproduire ces déformations pour observer les échantillons à l'échelle locale dans le but de comparer des phénomènes plastiques locaux avec les informations statistiques obtenues par diffraction de rayons X dans le chapitre précédent.

Ce chapitre présente une expérience sur des films minces d'or monocristallin (50 nm) initialement maclés (macles de croissances) déformés au sein d'un microscope électronique en transmission. Cette expérience in situ a été réalisée au CEMES (Centre d'élaboration de matériaux et d'études structurales) de Toulouse, dans le cadre d'un projet METSA (Réseau national de plateformes en Microscopie Électronique et Sonde Atomique).

Dans ce chapitre nous allons présenter dans un premier temps les instruments et méthodes utilisés lors de ces expériences, puis nous décrirons les phénomènes notables au cours des essais, puis dans un dernier temps nous proposerons des explications sur ces phénomènes observés.

4.1 Dispositif expérimental

Nous avons utilisé un microscope JEOL 2010 (200kV – LaB₆) couplé avec un porte objet de traction uniaxiale simple tilt. Ce porte objet permet une traction parallèle à l'axe de rotation. Nous avons effectué de la microscopie électronique en transmission (MET)

conventionnelle, et l'enregistrement des données est effectué sur une caméra SIS Mega-view III (688x516 25 images/sec). Une expérience supplémentaire a été effectuée sur un microscope CM20FEG afin de réaliser des cartographies d'orientation cristalline à l'aide du système ASTAR [66].

La préparation des films minces utilisés est la même que celle décrite dans la partie 2.1. Une fois décollés du substrat, les films de 50 nm sont posés sur des grilles de microscopie (grille circulaire de 3 mm, mailles de 110 μm de côté) dans 2 directions différentes : [110] et [100]. Les grilles de cuivre sont ensuite collées au support de déformation également en cuivre, et il présente une fente de 200 ou 500 μm (Figure 4.1). De précédents essais sans grille de cuivre, avec le film déposé à même le support de déformation, ont été effectués. Dans ce cas le film est autoporté sur une longue distance et il se déchire selon des fragilités préexistantes (fissures ou marches liées au substrat de NaCl). Les régions plastiquement activées sont alors liées aux fissures et cela perturbe les champs de contrainte et déformation par rapport à l'axe de sollicitation. Les grilles de cuivre que nous avons préférées utiliser permettent ainsi de réduire la taille des régions autoportées à 80x80 μm^2 .

Nous avons ensuite effectué des tractions pas à pas, composées d'incrément de déplacement alternant avec des périodes de relaxation de contraintes. Durant ces périodes où la contrainte est relaxée, le film se déforme avec une vitesse de l'ordre de 10^{-6}s^{-1} . Nous avons enregistré en continu des micrographies en champ clair de l'échantillon au cours de l'essai mécanique.

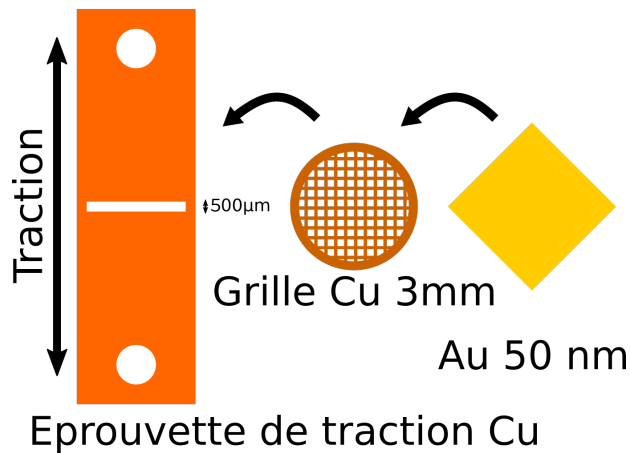


FIGURE 4.1 – Schéma de la création d'une éprouvette de traction pour du TEM in situ : support de traction en cuivre, grille de microscopie en cuivre, film mince d'or.

D'un point de vue cristallographique l'augmentation du volume de macles peut se faire par différents moyens. La présente expérience vise à montrer les principaux mécanismes de maclage présents dans ce genre d'expériences afin de déterminer si la déformation augmente le volume total maclé en créant de nouvelles macles ou bien en amplifiant les macles

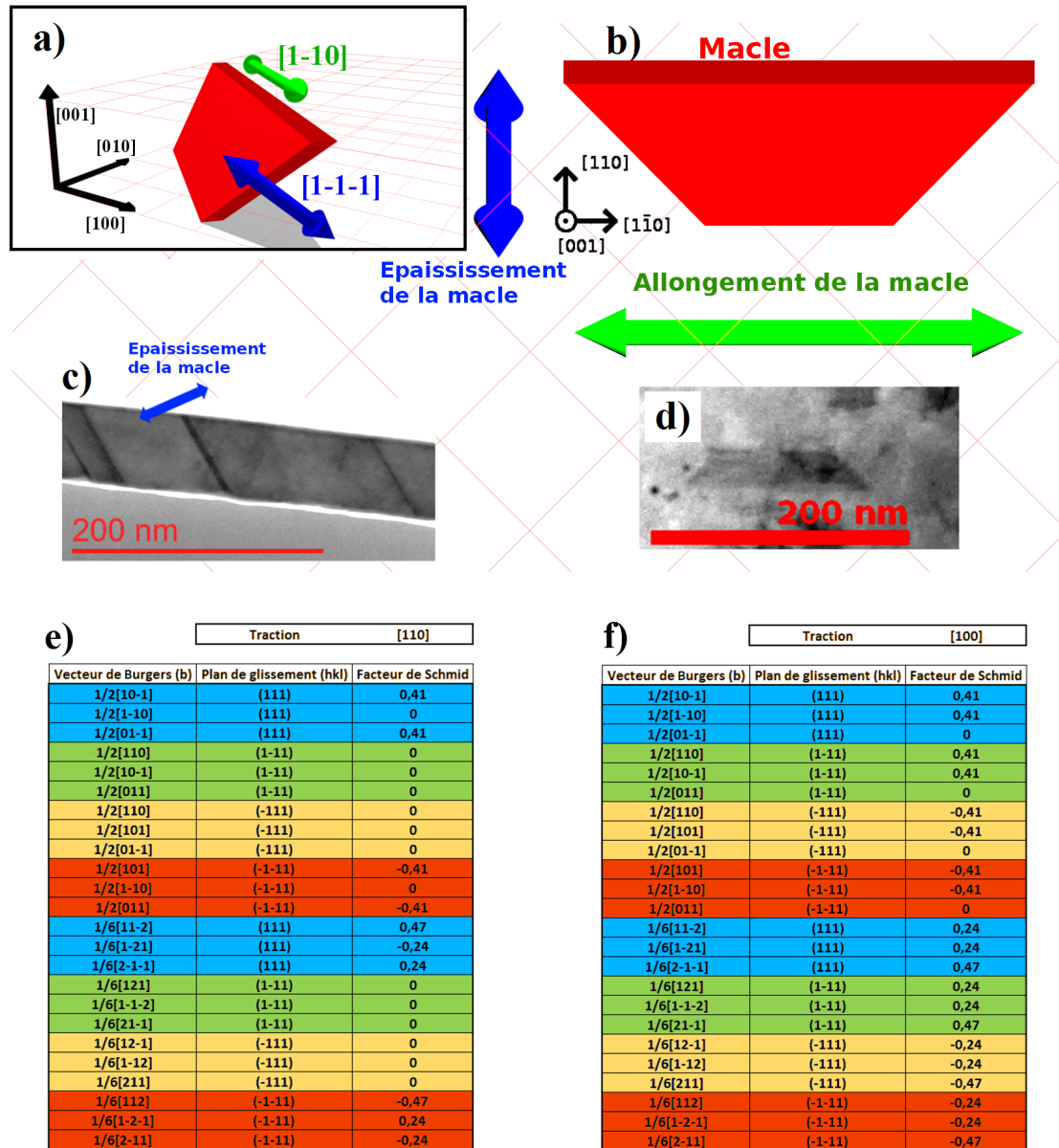


FIGURE 4.2 – a) Schéma de l'orientation d'une macle vue en 3 dimensions ; b) Schéma d'une macle en vue plane ; c) micrographie STEM-ADF de macles dans nos échantillons en vue transverse (contraste oblique foncé) ; d) micrographie TEM-BF d'une macle dans nos échantillons en vue plane (trapèze plus foncé) ; Tableau des facteurs de Schmid pour une traction : e) [110] et f) [100]

existantes : soit sur la figure 4.2 avec déplacement du joint de macles cohérent (épaississement de la macle en bleu), ou alors par déplacement des joints de macles incohérents (allongement de la macle en vert). D'un point de vue géométrique avec l'orientation en vue plane des échantillons, nous allons être très sensibles à l'allongement des macles. Si une macle double son volume par déplacement de son joint de macle incohérent l'aire de son contraste doublera au moins sur la micrographie puisque le développement de la macle se fait perpendiculairement au faisceau d'électrons. En revanche si une macle double son épaisseur par déplacement de son joint de macle cohérent, le contraste subira une variation d'aire d'environ 15% pour une macle initiale de 6 nm d'épaisseur (épaisseur moyenne des macles de croissance des échantillons utilisés). Cette faible variation est liée à l'inclinaison des macles dans le matériau par rapport à la direction d'observation et au fait que l'on observe une projection de l'échantillon.

En microscopie électronique en transmission conventionnelle (champ clair ou champ sombre), les contrastes observés sont des contrastes de diffraction. Au cours de notre expérience en champ clair, lorsqu'une région est en condition de diffraction, elle apparaît sombre (une partie des électrons est déviée à cause de la diffraction) alors qu'une région qui n'est pas en condition de diffraction apparaît claire. La matrice et la macle étant dans des orientations différentes, il apparaît un contraste lié au phénomène de diffraction. À cela vient s'ajouter des phénomènes interférentielles [67] : des franges liées à la forme en biseau du cristal au bord de la macle, et des franges liées aux déphasages entre deux cristaux de la matrice (de part et d'autre d'une macle fine, la matrice peut être déphasée comme dans le cas d'un défaut d'empilement).

4.2 Observations

4.2.1 Traction dans la direction [110]

Dans ce premier essai le film est tiré dans la direction [110]. On peut observer sur la Figure 4.3 l'orientation des défauts par rapport à la direction de sollicitation. Nous avons porté notre étude sur 2 types de régions principalement : des zones en tête de fissure dans un premier temps puis une zone proche du support de déformation dans un second temps. En effet les échantillons présentent des amorces de fissures, ce qui cantonne la déformation à ces régions. Nous avons observé de nombreux phénomènes liés à la déformation plastique de ces films : des mouvements de dislocations parfaites et partielles, l'allongement de macles de croissance, la propagation et l'élargissement de macles en face de fissures. Par soucis d'objectivité, nous allons brièvement reporter tous les phénomènes observés, puis nous discuterons des phénomènes qui sont propres aux caractéristiques de l'essai mécanique et de ceux que nous pensons intrinsèques au matériau.

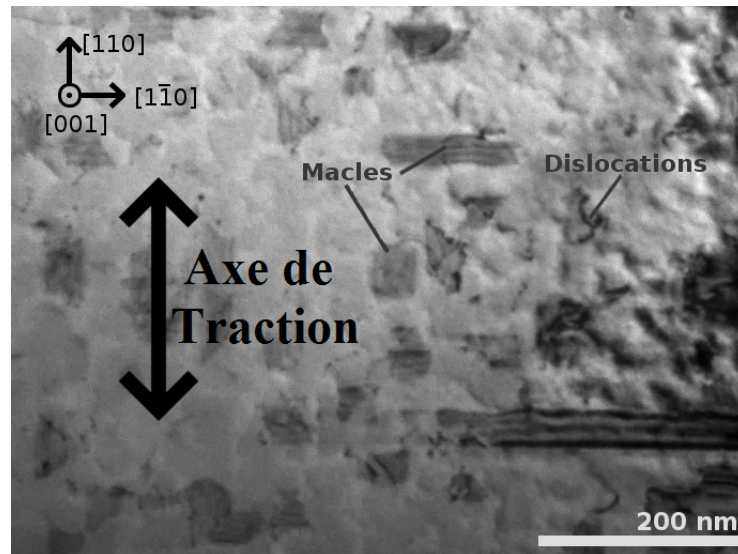


FIGURE 4.3 – Micrographie TEM-BF lors d'une traction dans la direction $[110]$. Les contrastes liés aux macles correspondent aux rectangles et trapèzes foncés. Les dislocations apparaissent comme des filaments noirs

Pour une traction $[110]$, les facteurs de Schmid des différents systèmes de glissement sont présentés en Figure 4.2.e. La direction de traction $[110]$ favorise certaines dislocations partielles des plans (111) et $(11\bar{1})$ (Facteur de Schmid de 0,47), mais l'on peut noter que les valeurs des facteurs de Schmid de certaines dislocations parfaites dans ces mêmes plans sont proches (0,41).

Les dislocations parfaites

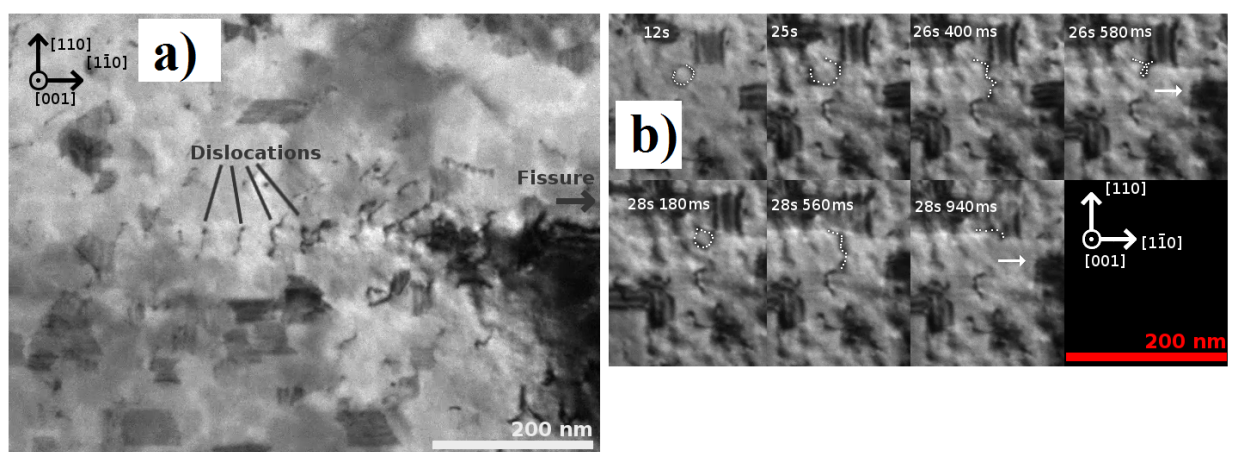


FIGURE 4.4 – a) Micrographie TEM-BF révélant des dislocations parfaites alignées dans le prolongement d'une fissure (hors de la micrographie); b) Micrographies TEM-BF révélant une source de dislocation (en pointillés). (Traction dans la direction $[110]$)

Lors de la déformation nous observons le déplacement de dislocations parfaites dans le film. Tout d'abord nous observons des dislocations se déplaçant en face des fissures dans des plans (111) et (-1-1 1) dans la direction [1-10] (perpendiculaire à l'axe de traction) (Figure 4.4.a). Ces dislocations précèdent l'allongement d'une macle qui se développe dans la même direction en face d'une fissure. Lorsque la déformation se poursuit de manière importante ces dislocations disparaissent. Ces dislocations sont, dans notre expérience, présentes dès le début de l'observation.

Au cours de l'essai, nous observons des dislocations parfaites se déplacer dans des directions $\langle 110 \rangle$ dans des plans $\{111\}$. Certaines dislocations alternent plusieurs directions lors de leur mouvement révélant du glissement dévié. Le film mince contient quelques sources de dislocations. Nous observons en Figure 4.4.b des dislocations parfaites se nucléer dans un plan $\{111\}$ et dans la direction [1-10] à partir d'une source en spirale, et glisser ensuite.

Macles

Une macle "principale" est générée dans un plan (111) ou (-1-11) en face d'une fissure perpendiculaire à la direction de traction (Figure 4.5.a). Lors de la déformation et de la propagation de cette fissure, cette macle va se propager en s'allongeant dans le film dans la direction perpendiculaire à la direction de traction (direction [1-10]). Lorsque la déformation se poursuit, la macle commence à s'épaissir ; on observe en effet que la projection de la macle passe d'une dizaine de nanomètres à une centaine de nanomètres de large. Nous observons des dislocations longer la macle. Nous verrons dans un autre paragraphe qu'une fois que la macle s'est suffisamment épaissie, elle a subit une rotation progressive autour de l'axe [1-10] (perpendiculaire à l'axe de traction). Cette région s'agrandit ce qui la fait s'amincir et ce qui la désoriente. De plus ce phénomène est peu à peu observé de plus en plus loin de la fissure au cours de la déformation (Figure 4.8.a), et à la fin de l'essai cette zone amincie fait plusieurs centaines de nanomètres de large.

Nous allons maintenant nous concentrer sur d'autres régions, et observer l'évolution des macles de croissance autour de la macle "principale" de la fissure et sur une région au bord du support de déformation (Figure 4.5.b). Lors de la déformation, les macles de croissance (111) et (-1-11) générées lors de l'élaboration du matériau s'allongent dans la direction [1-10] (perpendiculaire à l'axe de traction). Une fois ces macles allongées, les régions observées ressemblent à ce que nous avons vu sur un échantillon post-mortem (Figure 3.16).

Lorsque l'on estime l'évolution de proportion de macle, si l'on fait l'hypothèse que la totalité du joint de macle incohérent se déplace pour chaque macle, la Figure 4.5.b nous indique une augmentation d'un facteur deux du volume des macles des plans (111) et (-1-11) (En comparant le nombre de pixels liés à une macle dans les deux images on trouve 13455 pixels puis 25480 pixels pour une même région). En revanche les macles des plans (11-1) et (1-11) n'évoluent pas au cours de l'essai.

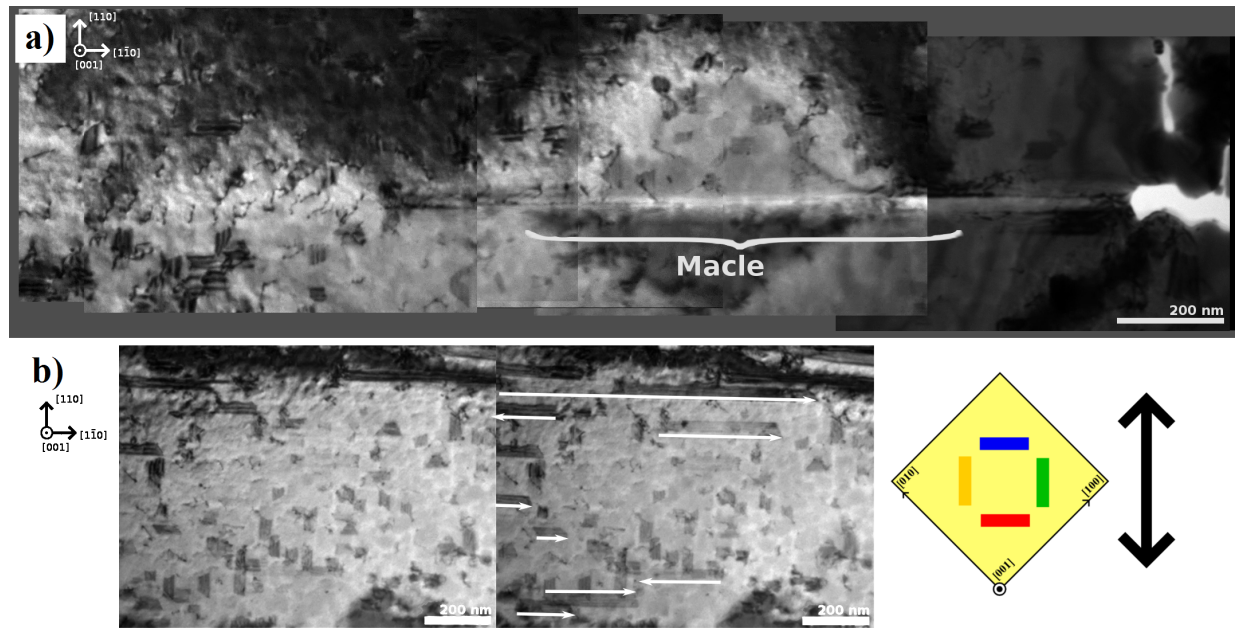


FIGURE 4.5 – a) Micrographies TEM-BF révélant une macle en face d’une fissure ; b) Micrographies TEM-BF révélant l’allongement de macles le long d’une des fibres de la grille supportant le film mince d’or. (Traction dans la direction $[110]$)

Dissociation et recombinaison de dislocations parfaites

Lors de la déformation, nous avons observé quelques dislocations parfaites se dissocier. Ces dislocations se dissocient dans des plans (111) et $(-1-1\ 1)$ et les partielles obtenues s’éloignent l’une de l’autre suivant l’axe $[1-10]$ (perpendiculaire à l’axe de traction), ce qui crée un défaut d’empilement entre les deux partielles (Figure 4.6.a). D’autre part, nous avons également observé la recombinaison de dislocations partielles en parfaite, et donc l’annulation d’un défaut d’empilement.

Lors de l’allongement dans la direction $[1-10]$ de la macle principale (dont les joints de macles cohérents sont (111) ou $(-1-11)$) en tête de fissure, nous avons vu que le contraste lié à la macle n’était parfois pas continu, selon le cas, ceci est lié à 2 phénomènes différents. Dans un premier temps une suite de défauts d’empilement dans un même plan (111) ou $(1-1-1)$, chacun borné par une dislocation partielle de tête et une dislocation partielle de queue. Ces dislocations partielles peuvent avancer devant la macle et créer ce genre de contraste. Nous observons par exemple, Figure 4.6.b, un défaut d’empilement (bordé par 2 dislocations partielles) se recombinaison en une dislocation parfaite. Dans un second temps si plusieurs dislocations partielles passent successivement le long d’une macle dans des plans adjacents, le défaut de phase de part et d’autre de la macle va changer à chaque dislocation partielle, ce qui peut créer des discontinuités dans le contraste de la macle.

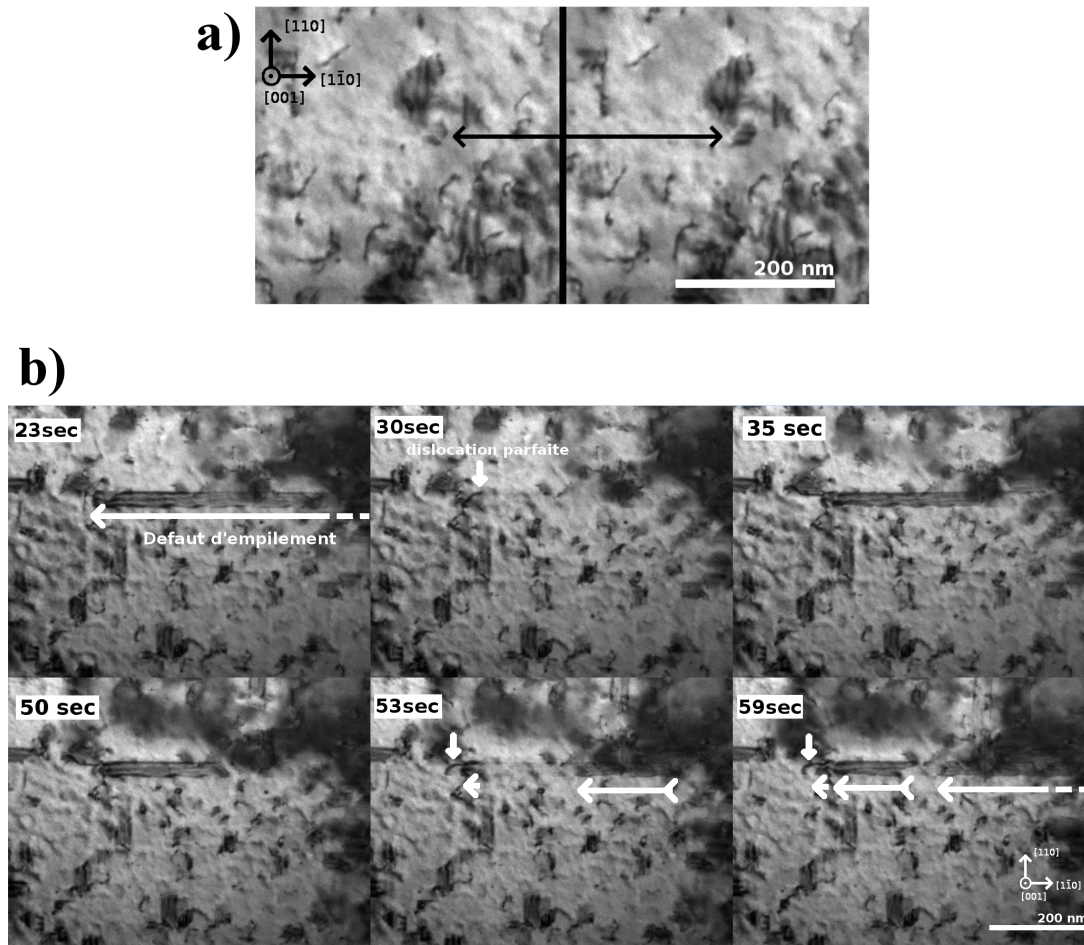


FIGURE 4.6 – a) Micrographies TEM-BF révélant une dislocation qui se dissocie; b) Micrographies TEM-BF révélant les mouvements de dislocations partielles en amont de la macle liée à la fissure. (Traction dans la direction $[110]$)

Interaction dislocation macle

Certaines dislocations lors de leur déplacement interagissent avec une macle. Sur la Figure 4.7 nous observons qu'une dislocation parfaite se déplaçant dans un plan (-111) ou $(1-11)$ rencontre une macle (111) ou $(-1-11)$ et intègre la macle ou le joint de macle.

Région du cristal inclinée

Lorsque l'échantillon se déforme en tête de fissure, nous observons une région de l'échantillon s'amincir en raison d'une déformation plastique importante (Figure 4.8.a). Cette région était initialement une macle qui partait de la fissure, mais elle est maintenant orientée différemment de l'orientation initiale de la macle, le cristal maclé a tourné autour de l'axe $[1-10]$ (perpendiculaire à l'axe de traction). De plus, la rotation de cette région est graduelle, sur la Figure 4.8.b faite en ASTAR sur un microscope électronique en transmission CM20FEG, la région observée possède la même orientation qu'une macle dans sa partie

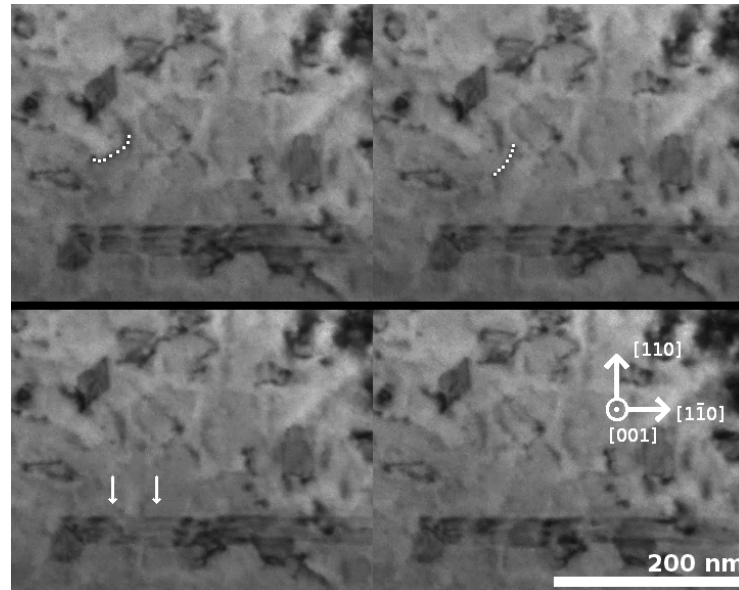


FIGURE 4.7 – Micrographies TEM-BF révélant une dislocation parfaite absorbée par une macle. (Traction dans la direction $[110]$)

la plus éloignée de la fissure. Puis l'inclinaison change en se rapprochant de la fissure, atteignant une rotation cumulée de 15° au niveau de la fissure (Figure 4.8.c), contrairement à l'orientation de la matrice (en rouge sur la cartographie) qui n'est pas désorientée aux abords de la fissure.

4.2.2 Traction dans la direction $[100]$

La traction d'un échantillon dans la direction $[100]$ a généré des fissures orientées sur les axes $\langle 110 \rangle$ à 45° (Figure 4.9.b/c). L'apparition de fissures restreint la déformation dans ces zones en tête de fissure, mais localement, la contrainte autour de ces têtes de fissure ne correspond pas à l'orientation de contrainte souhaitée lors d'une traction $[100]$. Comme dans l'essai de traction dans la direction $[110]$ les fissures génèrent des macles qui finissent par amincir le film mince. Autour de la tête de fissure, on observe toujours des mouvements de dislocations parfaites ainsi que des mouvements de dislocations partielles qui peuvent-être liés à du maclage. En face des fissures, les régions amincies entretiennent la propagation des fissures (Figure 4.9.a).

4.3 Analyses et Discussions

Traction $[100]$: Fissuration

Une grande partie des phénomènes plastiques dans ces essais de traction in situ en microscopie électronique en transmission sont observés à proximité des fissures. Cette tendance à fissurer est causée par la situation autoportée de l'échantillon qui favorise la localisation

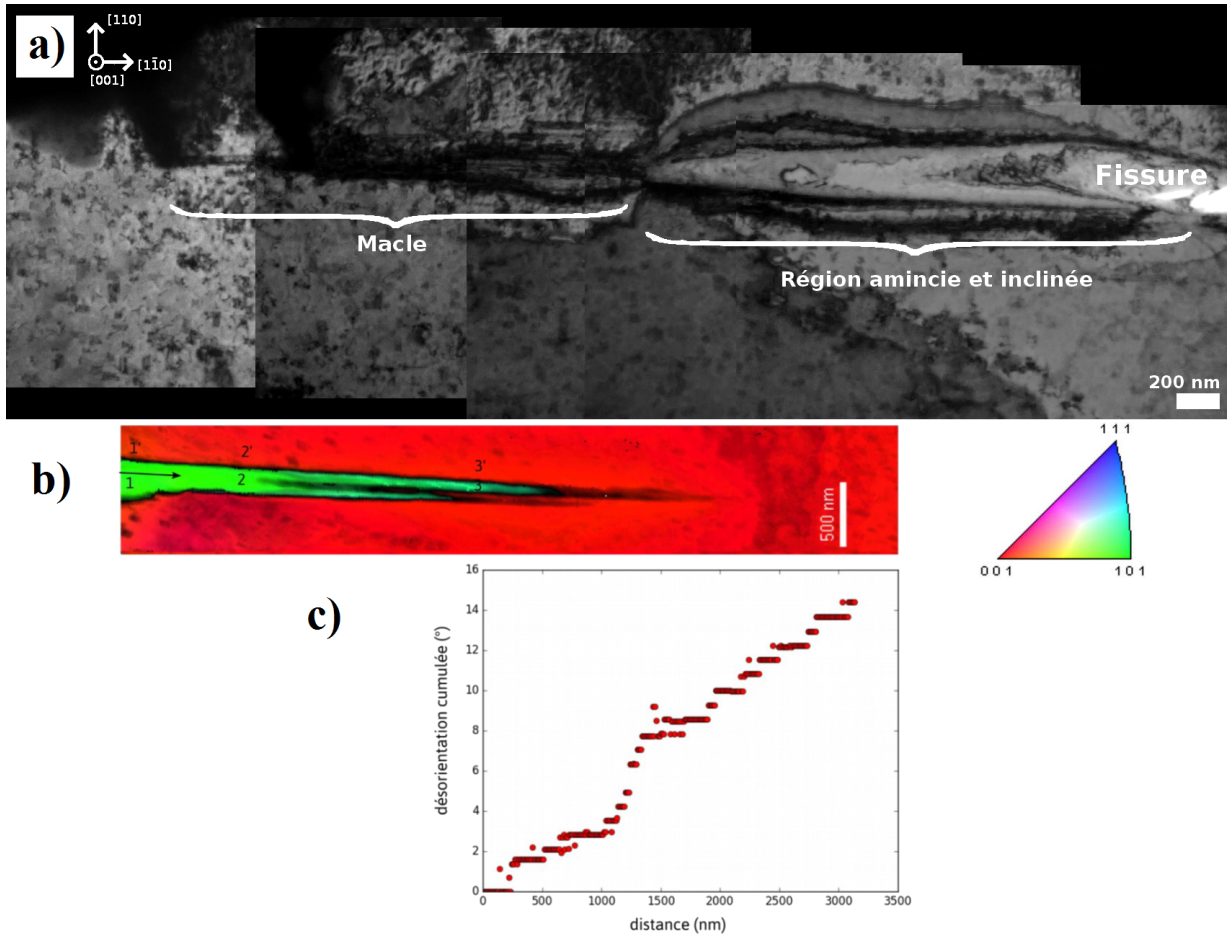


FIGURE 4.8 – a) Micrographies TEM-BF révélant une macle et une région amincie devant une fissure ; b) Cartographie ASTAR révélant le gradient de rotation le long de la macle qui a amincie le film (fissure juste à gauche de l’acquisition ASTAR), c) Rotation cumulée le long de la région amincie. (Traction dans la direction [110])

de contraintes. Lors de traction dans la direction [100], les fissures sont orientées dans des directions $\langle 110 \rangle$ du film ce qui change énormément l’orientation de la contrainte au sein des zones qui subissent les déformations (les zones proches des fissures, Figure 4.10 [68]) et cela nous empêche de les comparer à nos expériences de rayons X où la déformation est correctement transmise par le Kapton dans l’ensemble du film dans la direction [100]. En face des fissures nous observons des macles s’allonger, s’amincir et pivoter autour de l’axe de la fissure $\langle 110 \rangle$. Ces régions amincies possèdent une orientation $\{110\}$ parallèle à la surface (Figure 4.9.d.e) ce qui indique que les macles ont tournées d’environ 20° au cours de l’essai, autour de la direction $\langle 110 \rangle$ associée à leurs allongements. Lors de l’expérience de rayons X, les intensités liées aux macles ne présentent pas d’allongement pouvant indiquer une rotation autour des axes $\langle 110 \rangle$, ceci peut indiquer que l’expérience de déformation sur polyimide sous faisceau synchrotron ne présente pas de fissuration lors de la traction [100].

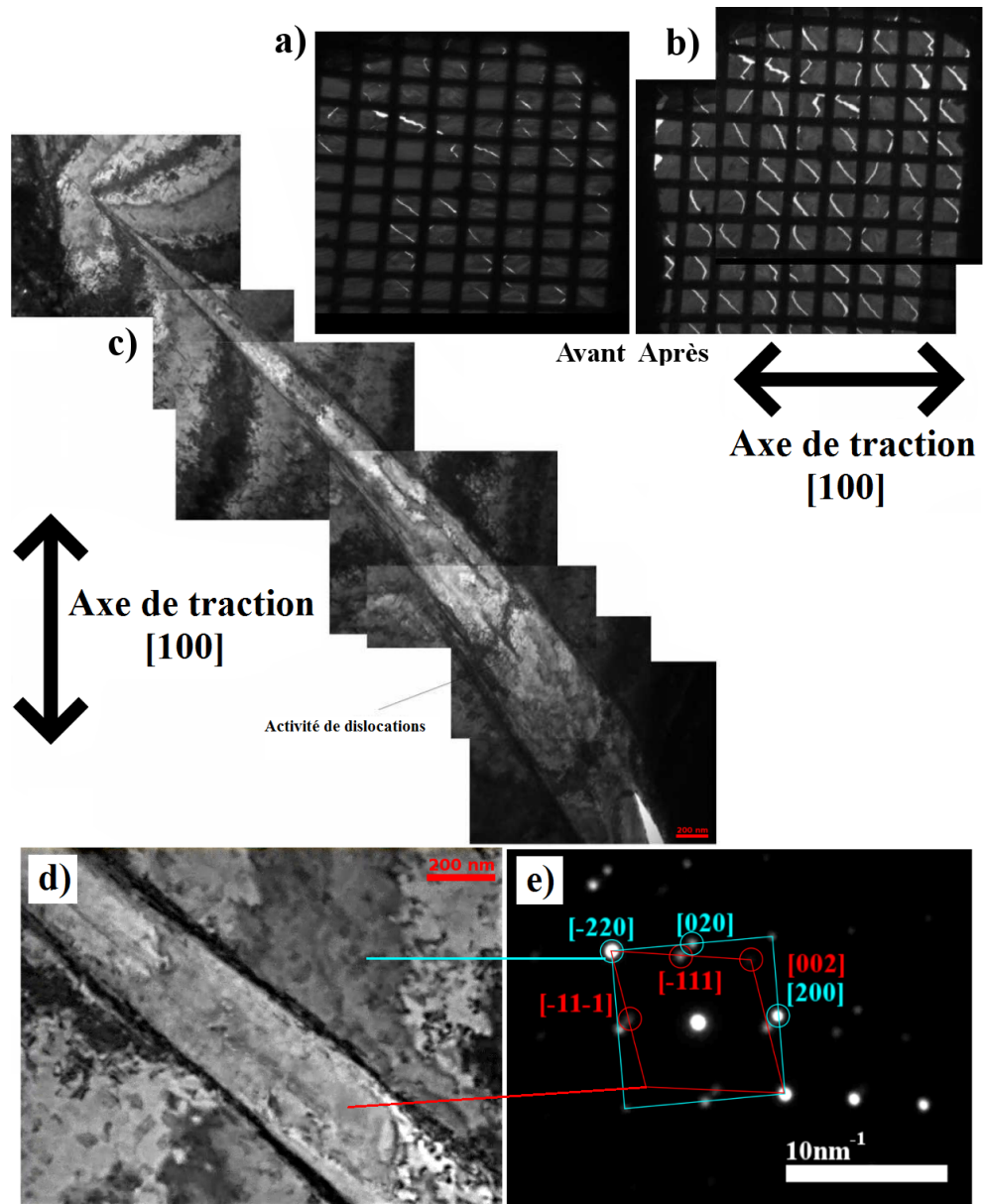


FIGURE 4.9 – Micrographie TEM-BF à faible grandissement, a) avant l'essai de traction, b) après l'essai de traction ; c)d) Micrographies TEM-BF révélant une macle en tête de fissure ; e) Cliché de diffraction associé à la micrographie (d). (Traction dans la direction [100])

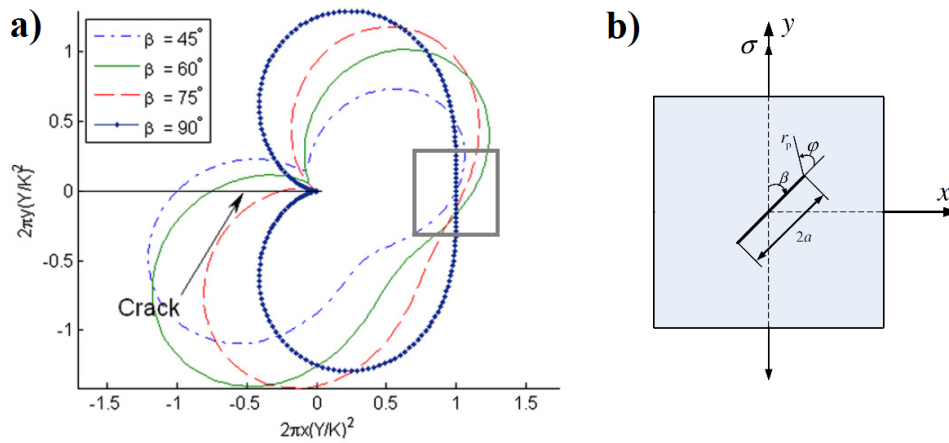


FIGURE 4.10 – a) Région plastique autour d’une fissure dans un matériau isotrope, pour différentes orientations de contraintes uniaxiales en tension par rapport à la fissure (angle β) [68]. (Les axes correspondent aux positions autour de la fissure normalisées par le carré du ratio de la limite d’élasticité sur la contrainte appliqué.) b) Schéma de la géométrie utilisé en a) (x et y sont différent en a) et b))

Traction [110] : Maclage

Lors des tractions dans la direction [110], nous observons aussi la propagation de fissures dans la direction [1-10], mais contrairement au cas précédent, la contrainte au sein des régions en face des fissures a bien une orientation qui correspond à l’axe de traction appliquée (contrainte parallèle à [110]). Cette orientation permet donc de comparer des régions en face de fissures de l’essai de traction in situ en microscopie électronique en transmission avec l’essai de traction in situ sous rayonnement synchrotron. De plus une région près de la grille qui supporte l’échantillon a été observée, et cette région doit également se déformer avec un champ de contraintes locales orientées selon la direction de traction. Nous retrouvons dans ces 2 régions le phénomène d’allongement de macles (Figure 4.5), ce qui nous amène à penser que ce phénomène est représentatif des essais de traction [110] dans l’or.

Nous avons considéré dans notre expérience que les contrastes initiaux frangés (rectangles, parallélogrammes et trapèzes) correspondent aux macles de croissance. De tels contrastes peuvent correspondre à de simples défauts d’empilements, mais les observations faites dans le chapitre 2 en diffraction de rayons X (volume diffractant de macle) et en microscopie électronique (diffraction et coupe transverse) prouvent la nature de ces contrastes sur les échantillons non déformés. D’un point de vue géométrique, un plan {111} observé en vue plane [001], au sein d’un film mince [001] de 50 nm, a une projection de 35.35 nm de large. Un défaut d’empilement observé dans la direction [001] du film devrait donc avoir un projeté d’environ 35 nm alors qu’une macle de 6 nm d’épaisseur (épaisseur moyenne des macles de croissance) aurait un projeté de 40 nm. Sur nos micrographies (Figure 4.3) cela correspond à une variation de 4 pixels. Cette faible résolution couplée à l’incertitude

de l'épaisseur et à l'incertitude de l'inclinaison lors d'une micrographie rend difficile la différenciation entre défaut d'empilement et macle au cours des essais mécaniques (d'un côté 10% d'erreur sur l'épaisseur de l'échantillon implique une variation de 10% sur la taille du contraste d'un défaut d'empilement et d'un autre côté une erreur d'inclinaison de 5° du film peut faire passer le contraste d'un défaut d'empilement de 35 à 40 nm).

Au cours de la déformation, les macles de croissance des plans (111) et (-1-11) peuvent s'allonger, c'est-à-dire que le joint de macle incohérent, composé de dislocations partielles de macles [35], se déplace sur l'axe [1-10] (Figure 4.5 a et b). Les macles qui se mettent à s'allonger peuvent ainsi visuellement augmenter leur longueur d'un facteur 2 à 10 sur les micrographies. Cependant nous ne pouvons pas directement relier la taille des contrastes observés sur les micrographies au volume maclé des échantillons. En effet lors de l'allongement des macles, les dislocation partielles de macle composant le joint de macle incohérent ne se déplacent pas forcément de manière collective. Il est régulièrement observé que les macles liées à du maclage mécanique ont un aspect de pointes, par exemple dans l'aluminium sur la Figure 4.11 une macle s'épaissit par vagues successives de dislocations partielles de macles. Ce phénomène contribue tout de même à augmenter le volume maclé du film dans une certaine mesure, ce qui va dans le sens de l'augmentation du taux de macles observée par diffraction des rayons X dans le Chapitre 3. Sur une échelle de temps comme la nôtre (plusieurs minutes), on peut tout de même considérer que l'ensemble d'un joint de macle incohérent se déplace au cours de l'essai de déformation, ce qui permet de lier directement la variation d'aire sur les micrographies à la variation de volume maclé.

Traction [110] : Dislocations

D'autres événements plastiques que le maclage se côtoient lors de l'essai. Il est notable que nous observons des mouvements de dislocations parfaites tout au long de l'essai. La plupart des dislocations parfaites se déplacent dans des plans (111) ou (-1-11) (seuls plans {111} dans lesquelles les facteurs de Schmid des dislocations $\langle 110 \rangle$ sont non nuls pour une traction [110]) et dans la direction [1-10] comme ont pu le voir S.H. Oh et al. [45]. Mais nous avons tout de même vu certaines dislocations se déplacer dans d'autres plans et directions (dans des plans où le facteur de Schmid est nul). Le film étant autoporté, il se déforme et se tord de manière inhomogène, ce qui pourrait expliquer ces mouvements de dislocations, de plus le film possède une grande quantité de défauts (macles, dislocations, inhomogénéité d'épaisseur) ce qui peut localement perturber le champ de contrainte à leurs voisinages.

Il arrive que les dislocations interagissent avec des macles. D'après la littérature, ce phénomène peut avoir différents effets sur les macles [34] : il peut perturber les joints de macle cohérents et bloquer la propagation de dislocations partielles de macle le long de ce joint de macle cohérent [35], au contraire épaissir la macle en ajoutant des dislocations partielles de macles [16] ou bien traverser le joint de macle sans le modifier. Dans le cas que

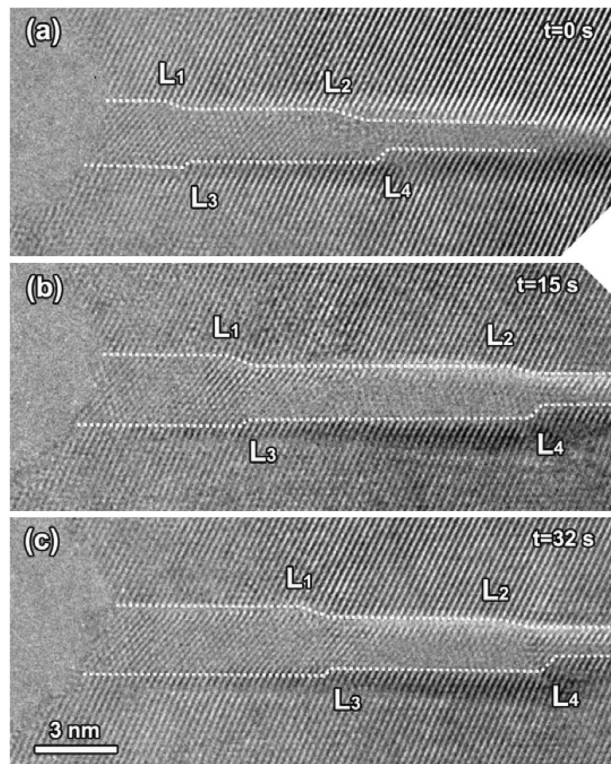


FIGURE 4.11 – Micrographies HRTEM d’une macle en tête de fissure dans de l’aluminium. (0 s / 15 s / 32 s, fissure à gauche) [31]

nous avons rapporté Figure 4.7, une dislocation parfaite change de plan $\{111\}$ afin de passer d’un déplacement sur l’axe $[1-10]$ vers un déplacement sur l’axe $[110]$. Ce changement de plan de glissement indique du glissement dévié. Dans le cas observé, la dislocation change de plan lorsque sa ligne est sur l’axe $[101]$ ou $[-101]$, ce qui indique que la dislocation a un vecteur de Burgers selon un de ces axes. Par exemple, si l’on est dans le cas d’une dislocation $1/2[101]$, la dislocation passe successivement dans les plans $(-1-11)$ et (-111) . Théoriquement le facteur de Schmid de la dislocation était nul lors de son déplacement dans la direction $[110]$ dans le plan (-111) (ou $(1-11)$). Lorsque la dislocation arrive sur le joint de macle cohérent, le contraste lié à la dislocation parfaite disparaît, et le contraste de la macle change légèrement à l’endroit où la dislocation est arrivée. De plus lorsque la déformation se poursuit, des dislocations partielles de macle continuent de longer le joint de macle cohérent. Il est donc probable que la dislocation n’ait pas généré de dislocations sessiles dans le joint de macle. Ce phénomène a peut être contribué à l’épaississement d’une macle (111) ou $(-1-11)$ ce qui irait dans le sens des observations du chapitre 3, mais la résolution de la micrographie ne permet pas de le confirmer.

L’accumulation de dislocations dans un joint de macle cohérent peut également contribuer à la formation de joints de grains, soit en désorientant légèrement une macle [36], soit dans le cas de macles d’épaisseur nanométrique (comme nos macles de croissance), en détruisant la nanomacle [37]. Ce phénomène pourrait expliquer la diminution du taux de

macles (-111) et (1-11) que l'on observe lors de l'expérience de diffraction de rayons X. Cependant le nombre d'interaction que nous avons observé entre des dislocations parfaites et une macle, lors de cette expérience de TEM in situ, ne permet pas de confirmer cette hypothèse. Ceci est peut être dû à la prédominance du phénomène de fissuration qui occupe une grande partie de la déformation plastique lors de ces essais auto-portés.

Traction [110] : Fissuration

Un autre phénomène important de l'expérience est la fissuration et ce qu'il se passe lors de la propagation de fissures. Nos échantillons possèdent quelques zones fragilisées à cause des marches du substrat de NaCl et ces régions sont propices à la création de fissures. En effet la surface libre créée par une fissure peut émettre des dislocations, des dislocations parfaites successives dans un premier temps (Figure 4.4.a) dans des plans (111) et (-1-11) dans la direction [1-10]. Ce genre de succession de dislocations a déjà pu être observé dans ces plans-là par S.H Oh et al [45] pour une traction [100]. Ceci peut vouloir dire que ces dislocations ont été nucléées lors de la préparation de l'échantillon et lors de déformations causées lors de manipulations étant donné que nous les observons dès le début de l'expérience. Par la suite, ces dislocations peuvent se dissocier en deux partielles et créer des défauts d'empilement dans les plans (111) et (-1-11) dans la direction [1-10] (Figure 4.6) [45]. La surface peut aussi successivement émettre des dislocations partielles dans des plans (111) adjacents, ou (-1-11), dans la direction [1-10] ce qui crée une macle (Figure 4.5.a). Puis l'émission additionnelle de partielles de macle le long du joint de macle cohérent va contribuer à son épaissement (Figure 4.11 [31]).

Nous avons ensuite observé Figure 4.8.a que la macle s'épaissit (en terme de nombre de plans maclés) puisque son contraste s'élargit, en revanche la macle laisse entre elle et la fissure une région amincie (en terme d'épaisseur du film mince) puisque le contraste lié au film devient très clair (les électrons passent plus facilement au travers). De plus lors de l'amincissement, la macle pivote autour de l'axe [1-10] sur une vingtaine de degrés (Figure 4.8.b/c). Ce cumul d'une rotation et d'un amincissement doit se faire à l'aide d'au moins deux systèmes de glissement dans des plans {111} au sein de la macle perpendiculaire au plan (1-10). La figure 4.12.b montre le principe du maclage mécanique dans une traction purement [110] lorsque les extrémités sont libres, puis par opposition la figure 4.12.c montre le cas où les extrémités de l'échantillon sont maintenues sur un même plan, ce qui induit la rotation en cisillant la macle dans ses plans {111} perpendiculaires au plan (1-10). La macle désorientée finit avec une orientation (110) par rapport à la surface, ce qui correspond en effet aux observations faites à l'aide des clichés de diffraction. Nous ne connaissons pas la contrainte au sein des macles, contrainte qui couple certainement de la tension et du cisaillement. Cela nous empêche de connaître les facteurs de Schmid des dislocations les plus probables. Cette rotation de macles rappelle également la rotation des macles observée à l'aide des rayons X dans le Chapitre 3. Ces rotations ont en effet lieu autour du même

axe (direction $[1-10]$), cependant en rayons X, la rotation observée était centrée autour de 3° . Le film était déformé par son substrat ce qui a dû diminuer la possibilité de fissuration, par rapport à l'expérience de TEM in situ. Il est donc possible que dans l'expérience sous rayons X les macles de croissance subissent cette rotation de 3° dans tout le film. J.W. Matthews [46] observe également des macles qui amincissent le film lors d'une traction $[110]$, mais ces macles ne sont pas reliées à des fissures. En revanche lorsqu'il continue la déformation, il observe que ces macles conduisent finalement à la fissuration, mais tout comme nous dans cette expérience de microscopie, nous ne connaissons pas la valeur de la déformation appliquée pour chacune des micrographies.

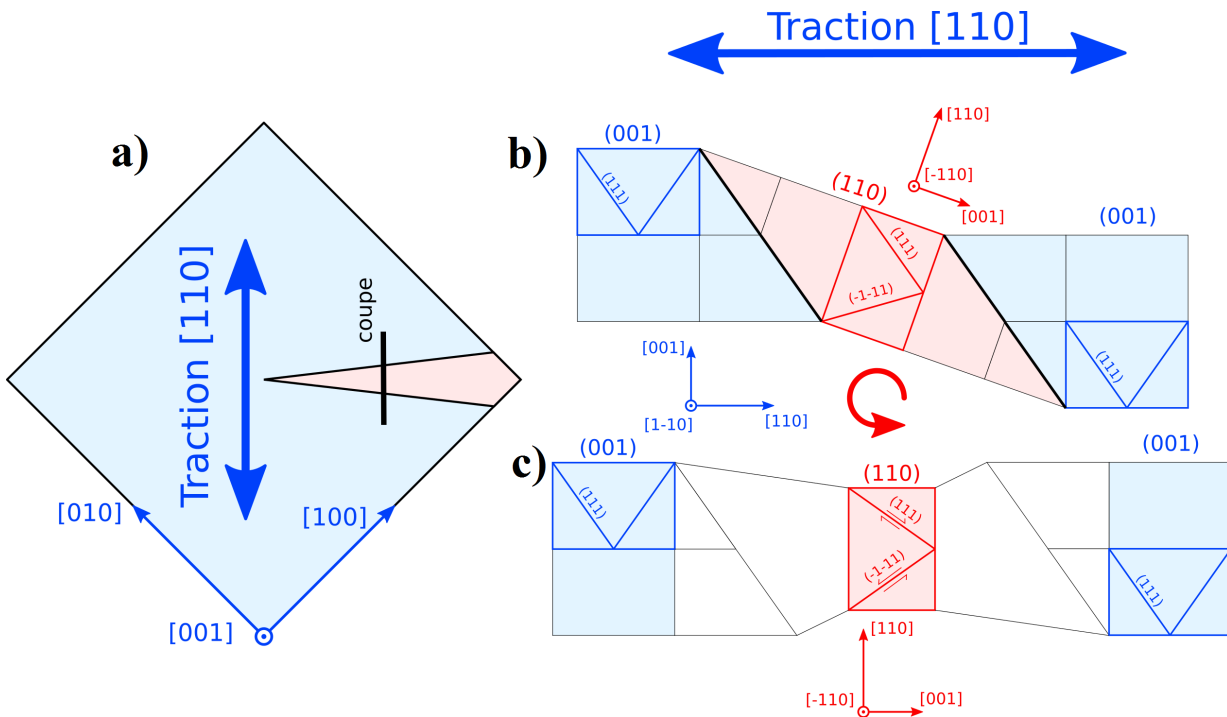


FIGURE 4.12 – a) Schéma d'une macle (en rouge) en vue plane dans un échantillon (matrice en bleu) pour une traction dans la direction $[110]$; b) Schéma d'une coupe transverse au niveau d'une macle lors d'une traction dans la direction $[110]$ sans restriction sur la position des extrémités; c) Schéma d'une coupe transverse au niveau d'une macle lors d'une traction dans la direction $[110]$ en restreignant la position des extrémités dans le même plan, ce qui induit une rotation du cristal maclé par rapport à la situation en b). Dans les schémas b) et c), sont représentées en plus épais les mailles cristallographiques de chaque région ainsi que leurs plans $\{111\}$ perpendiculaires au schéma.

Comparaison des tractions $[110]$ et $[100]$

Le principal phénomène à comparer entre les deux directions de traction se trouve être lié à la région amincie progressant en face des fissures. Dans les deux cas la région amincie a une forme de pointe ayant une ouverture d'une dizaine de degrés. Les macles de croissance

présentes au bout de ces régions amincies peuvent évoluer au cours de l'essai. Dans le cas de la traction dans la direction $[110]$, on observe des défauts d'empilements ou des macles s'étendre grâce au déplacement de dislocations partielles de Shockley le long de la direction $[1-10]$ uniquement. En revanche dans le cas de la traction dans la direction $[100]$, malgré l'orientation imposée par la fissure et la région amincie, on a observé vers le début de l'essai, des dislocations partielles et/ou macles évoluer dans les deux directions : $[110]$ et $[1-10]$; dans le cas de mouvement de dislocations partielles cela correspondrait aux observations de S.H. Oh et al. [45], mais cette observation est observé seulement deux fois au début de l'essai par rapport au reste de l'essai montrant de la fissuration et du maclage en pointe de fissure.

4.4 Conclusion

Dans le cas de la traction $[110]$ cette expérience a permis de montrer que nous avons observé deux phénomènes distincts lors de la déformation de ces films minces d'or. D'un côté il y a la fissuration démarrante depuis des points de fragilité du film mince. Les fissures génèrent de larges macles dans la direction perpendiculaire à l'axe de traction (direction $[1-10]$). Ces macles causent l'amincissement du film au cours de la traction, ce qui propage ainsi les fissures dans le film. Ces macles en amincissant le film, pivotent autour de l'axe perpendiculaire à l'axe de traction. D'un autre côté dans des régions éloignées des fissures, nous observons l'allongement des macles de croissance présentes initialement dans le film par déplacement de leur joints de macle incohérents. Ces observations confirment l'augmentation du volume maclé dans les échantillons tirés dans la direction $[110]$, et semblent indiquer qu'une partie au moins se fait par allongement des macles de croissance, grâce au déplacement des joints de macle incohérents.

Dans le cas de la traction $[100]$, des fissures orientées selon les directions $\langle 110 \rangle$ du film se développent et perturbent le champ de déformation/contrainte, ce qui nous empêche d'observer un essai de traction selon la direction $[100]$ de manière locale. L'observation de maclage autour des fissures semble au moins indiquer que nos films minces ne fissurent pas lors de l'essai de traction dans la direction $[100]$ de l'or sur polyimide.

Conclusion générale et perspectives

Ces travaux de thèse avaient pour but d'étudier l'évolution de films minces monocristallins nanomaclés au cours de sollicitations mécaniques, l'objectif général étant de quantifier certains phénomènes comme le maclage, en y associant les déformations caractéristiques auxquelles ils opèrent et en observant les mécanismes élémentaires les composants. À ces échelles, les propriétés des matériaux changent par rapport aux matériaux massifs, et en particulier les mécanismes de plasticité. Cette étude vise donc à contribuer à l'avancement de la compréhension des mécanismes de plasticité opérant dans les films minces, grâce à l'étude d'un système modèle.

Nous nous sommes concentrés sur deux expériences *in situ* pour étudier des films minces monocristallins de 50 nm d'or contenant des nanomacles de croissance. L'utilisation en parallèle de diffraction des rayons X et de microscopie électronique en transmission permet d'obtenir des informations statistiques sur l'échantillon et d'avoir une vue locale à l'échelle des défauts cristallins. En diffraction des rayons X, la mesure de figures de pôles permet de suivre la texture des échantillons et donc d'avoir une information générale sur le contenu d'un échantillon. La microscopie électronique en transmission permet d'imager des défauts comme les macles, dans le but d'observer leurs évolutions de manière individuelle, ainsi que d'observer les interactions entre les défauts.

Dans cette thèse, nous avons dans un premier temps étudié l'évolution de figures de pôles obtenues *in situ* sur une ligne de lumière synchrotron au cours d'essais de traction uniaxiale en déformation (biaxiale en contrainte). Deux orientations de sollicitation ont été étudiées afin de voir si les facteurs de Schmid sont respectés dans des objets de quelques dizaines de nanomètres. Les figures de pôles permettent de suivre l'évolution de l'intensité diffractée par les macles, et donc de suivre les variations relatives du volume maclé des échantillons. Des considérations sur l'évolution de la position et de la forme des intensités sur les figures de pôles permettent d'obtenir des informations supplémentaires sur le réseau cristallin des échantillons. En effet, des mouvements sur les figures de pôles traduisent en générale des rotations cristallines. De plus l'utilisation d'un détecteur bidimensionnel permet d'obtenir une information sur la déformation élastique au sein du film. Couplant ces mesures de déformation élastique avec le suivi par corrélation d'images numériques fournissant la déformation appliquée, nous avons été en mesure d'identifier les différents domaines mécaniques, et d'y associer les variations des volumes maclés.

Dans un second temps nous avons étudié ces échantillons au cours de traction uniaxiale en contrainte lors d'essais *in situ* en microscopie électronique en transmission. Nous avons

tout d'abord décrit l'ensemble des phénomènes plastiques que nous avons observés. Puis nous avons discuté des différences avec l'expérience précédente, et de ce que l'on pouvait considérer comme représentatif des essais.

Dans cette thèse nous avons montré que si l'on définit les macles à l'aide de l'angle entre leur ligne d'intersection avec la surface et la direction de traction, on peut décrire le panel d'évolutions suivant : un fort maclage pour les macles à 90° , une évolution nulle pour les macles à 45° et une faible diminution pour les macles parallèles à la traction. On peut ensuite décrire plus précisément les aspects suivant au cours des essais de traction.

Dans le cas d'une traction dans la direction [110], les films minces d'or de 50 nm d'épaisseur, montrent une limite d'élasticité relativement importante. Le domaine élastique s'étend jusqu'à 0,5% de déformation (domaine ① sur la figure 4.13). À partir de 0,5% de déformation appliquée, un régime élasto-plastique apparaît révélant le début de la plasticité dans le film (domaine ②). En microscopie électronique en transmission, les premiers événements plastiques que nous avons observés devraient correspondre à ceux opérant lors de ce régime de déformation. Nous y observons des mouvements de dislocations parfaites (encadré a) ainsi que la propagation de dislocations partielles générant des défauts d'empilement. Ces observations sont en adéquation avec le fait que l'on ne voit pas le volume des macles augmenter sur les figures de pôles lors de ce régime mécanique.

Après 1,1% de déformation appliquée, la déformation devient purement plastique avec un plateau à 0,7% de déformation élastique (domaine ③). Le début de ce régime mécanique est synchronisé avec le début de l'augmentation du volume de macle observé sur les figures de pôles. En effet, de 1,1% jusqu'à 1,8% de déformation appliquée, le volume diffractant augmente de 70% pour les macles de joint de macle cohérent (-1-11) et (111) (macles non-parallèles à la direction de traction). En microscopie électronique, on distingue deux types de régions dans lesquelles du maclage mécanique a lieu : en face de fissures perpendiculaires à l'axe de traction, et dans le reste du film. Ces deux régions ne correspondent pas aux mêmes déformations, la fissure traduit une déformation très importante mais très locale, alors que le reste du film subit une déformation plus faible. Les caractéristiques des macles (longueur, désorientation, épaisseur) dans ces deux régions représentent donc les macles pour deux déformations différentes. Nous associons donc dans la première partie de l'essai mécanique l'évolution du volume maclé observé en diffraction des rayons X avec l'évolution des macles loin des fissures en microscopie électronique en transmission. Ainsi on observe ces macles s'allonger perpendiculairement à la direction de traction comme représenté dans l'encadré b), les macles qui s'allongent voient leur longueur augmenter d'un facteur 2 à 10.

Lorsque la déformation se poursuit, on observe un adoucissement de la déformation élastique à partir de 1,8% de déformation appliquée (domaine ④). On observe également, à partir de 1,8% de déformation appliquée, que le volume maclé augmente linéairement en fonction de la déformation appliquée. Au cours de la déformation, on observe sur les figures

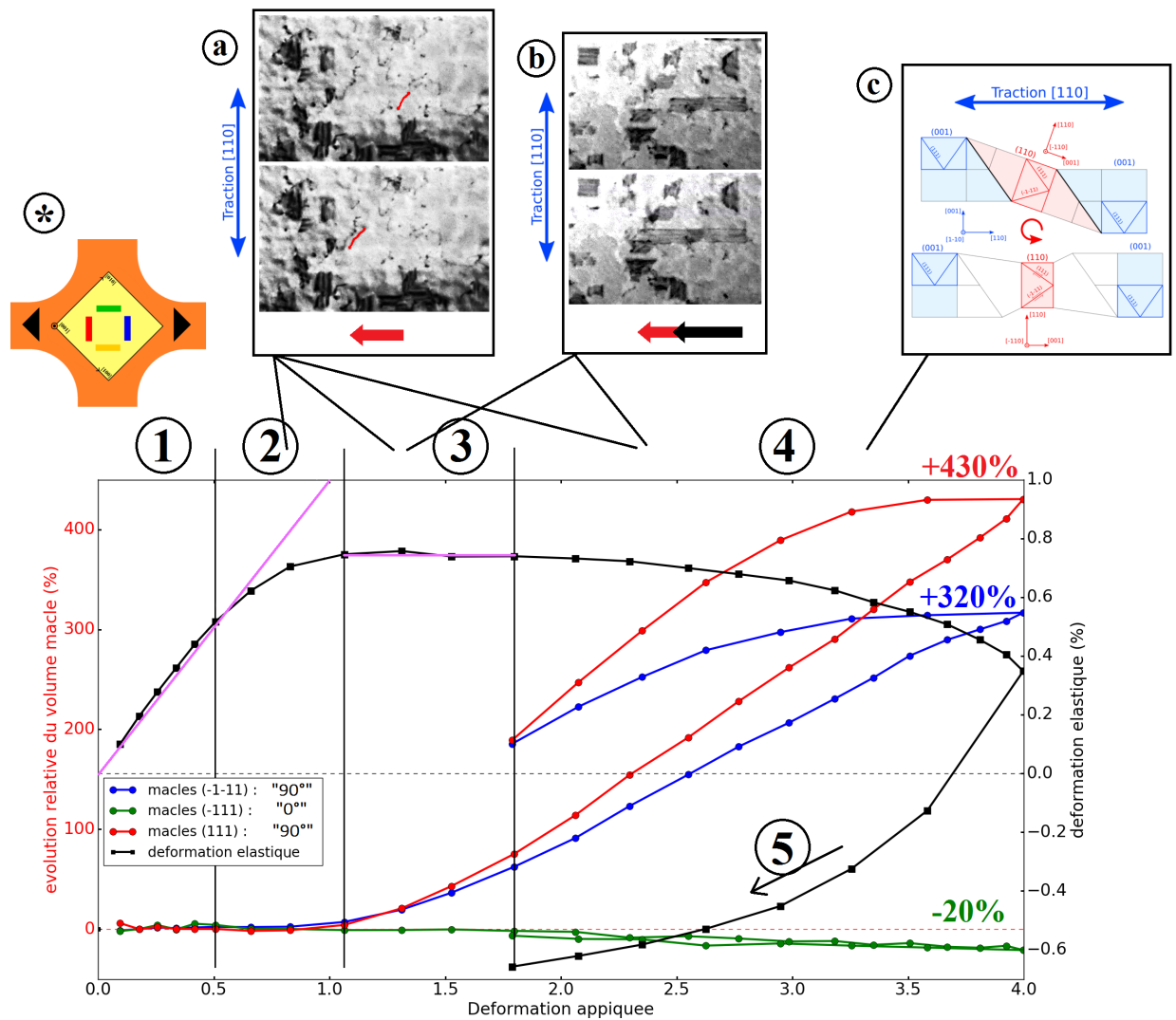


FIGURE 4.13 – Représentation des différents domaines mécanique (domaine élastique en ①, domaine elasto-plastique en ②, domaine plastique en ③ et adoucissement en ④). Le ⑤ représente la décharge de l'éprouvette) d'un essai de traction dans la direction [110] d'un film mince d'or monocristallin de 50 nm, possédant des macles de croissance. Les courbes de couleur représentent l'évolution relative du volume maclé au cours de l'essai (axe rouge à gauche). La courbe noire représente la déformation élastique dans la direction de traction. (déformation appliquée dans la direction de traction en abscisse). Les encadrés supérieurs représentent respectivement, le mouvement d'une dislocation parfaite (a), l'allongement d'une macle (b), la rotation d'une macle (c). (*) : Schéma d'orientation

de pôles que les macles tournent autour de la direction [1-10] de la matrice monocristalline d'environ 3° ([1-10] est perpendiculaire à la direction de traction). À cela vient s'ajouter vers la fin de l'essai l'apparition d'une trainée d'intensité correspondant à des rotations autour de cette même direction [1-10]. En microscopie électronique en transmission, les macles en face des fissures ont subi des déformations très importantes. On observe à l'aide de clichés de diffraction électronique ainsi que d'une cartographie d'orientation ASTAR,

que plus une macle est déformée (plus on est proche de la fissure) plus la macle est désorientée. Et la désorientation correspond à une rotation autour de l'axe [1-10] de la matrice monocristalline. Cette rotation peut être expliquée par le schéma (c) par le fait que le film tend à rester dans le même plan (les extrémités de l'échantillon lors de la traction restent dans le même plan ou collé au Kapton[®] alors que géométriquement le maclage crée un décalage de hauteur de part et d'autre d'une macle). Des systèmes de glissement seraient donc activés au sein des macles pour expliquer ces rotations. À la fin de la traction, à 4% de déformation appliquée, on observe que le volume des macles correspond à 400% et 500% du volume initialement maclé au début de l'essai (respectivement pour les macles (-1-11) et (111)). On observe également que la déformation plastique totale est de 3,7% et que l'augmentation du volume maclé ne justifie pas de la totalité de la déformation plastique. En effet tout au long de l'essai, nous avons pu voir des dislocations parfaites se déplacer grâce à la microscopie électronique en transmission ce qui montre que le maclage n'est pas le seul mécanisme plastique dans cet essai. De plus la rotation des macles est un bon candidat pour expliquer une partie de la déformation plastique.

Tout au long de l'essai, nous avons également suivi l'évolution du volume maclé des macles parallèles à la direction de traction (notamment les macles (-111)). On observe que le volume maclé des macles (-111) diminue de 20% tout au long de l'essai. De même, la microscopie électronique en transmission ne met pas en évidence de changement important de ces macles

À la fin de l'essai en tension, nous avons relâché la force sur l'éprouvette de Kapton[®] (domaine (5)). On observe ainsi le film passer en compression de manière élastique en revenant à 3,6% de déformation. Après 3,6% de déformation le film se déforme plastiquement en compression, et l'on observe le volume maclé diminuer. Une fois que l'éprouvette de Kapton[®] est déchargée, il reste 1,8% de déformation appliquée (dont 2,5% de déformation plastique par rapport au début de l'essai et -0.7% de déformation élastique), et il reste un volume maclé d'environ 180% du volume maclé initial.

Nous avons également effectué ces expériences en tournant de 45° les échantillons par rapport à la direction de sollicitation, dans le but de faire des essais de traction dans la direction [100]. Dans cet essai toutes les macles ont des orientations équivalentes par rapport à la direction de traction [100]. On observe ainsi qu'une famille de macle a augmenté de 17% lorsque la déformation appliquée atteint 4%, alors qu'une autre famille de macle voit son volume diminuer de 17%. Nous concluons alors que les macles n'évoluent pas lors d'une sollicitation dans la direction [100]. En revanche, l'expérience de microscopie présente à nouveau des fissures orientées selon les directions [110] et [-110]. Ces directions ne sont pas perpendiculaires à la direction de traction, les contraintes autour des fissures ne reflètent donc pas l'orientation de traction [100]. On observe à nouveau en face des fissures de longues macles qui se désorientent également par rotation autour de [-110] ou [110]. L'absence d'une forte évolution de la position de l'intensité liée aux macles sur les

figure de pôles, tend au moins à montrer que les films déformés sur Kapton[®] ne fissurent pas (ou alors leur fissuration est négligeable, et les macles générées indiscernables).

Ces travaux de thèse peuvent être poursuivis de plusieurs manières. Tout d'abord la machine de traction biaxiale de la ligne de lumière synchrotron DiffAbs pourrait permettre d'étudier des chemins de chargement différents, en utilisant des successions d'orientation de sollicitation pour observer si deux chemins de chargement différents vers une même déformation conduisent à la même texture finale ou non. Il serait également intéressant de cycler des essais mécaniques en tension-compression pour étudier le caractère réversible du maclage dans ces systèmes. Des expériences de déformation de film mince sur Kapton[®] analysées par diffraction de rayons X cohérents avaient commencé à être utilisées (Ligne de lumière synchrotron ID13 à l'ESRF), dans le but d'observer les premiers mécanismes de plasticité dans les films minces. Des expériences de diffraction Laue (Ligne de lumière synchrotron BM32 à l'ESRF) ont aussi été effectués pour tenter d'effectuer une expérience similaire à celle des figures de pôles à DiffAbs, avec une vue différente sur l'espace réciproque. Du point de vue de la microscopie électronique en transmission, de nouvelles expériences peuvent être essayées aussi. Des essais de traction *in situ* de films minces d'or sur Kapton[®] pourraient être une bonne idée dans le but de réaliser un essai mécanique avec un champ de déformation similaire : un essai mécanique supporté et non auto-porté. Enfin il serait intéressant de faire ces expériences en changeant de matériaux, des films d'aluminium par exemple ne devraient pas se comporter de la même façon sur les mêmes domaines étant donné que l'aluminium est moins ductile et a une plus haute énergie de défaut d'empilement. De plus les épaisseurs des films dans lesquels on observerait des phénomènes similaires doivent dépendre du matériau, des études sur l'épaisseur pourraient donc être aussi envisagées. Des films polycristallins pourraient être étudiés, dans le cas de films fortement texturés, pour être capable d'analyser des figures de pôles. Ainsi de nouveaux paramètres entreraient en jeu comme la taille des grains et leur orientation par rapport aux directions de sollicitation.

Annexe A

Indexation des figures de pôles

Chaque figure de pôle en Figure A.1 nécessite pour être indexé de superposer 9 projections stéréographiques provenant chacune d'une orientation d'un monocristal d'or. On observe une orientation (001) représentée en bleu. On observe 4 orientations (111) représentées en vert, tournées successivement de 90° les unes des autres, ce qui forme une symétrie 4, chacune des orientations ayant une direction $\langle 110 \rangle$ commune à une direction $\langle 110 \rangle$ de l'orientation (001) (bleu). Pour finir, on observe 4 orientations $\{221\}$ en jaune, formant également une symétrie 4. Chacune de ces orientations ayant une direction $\{111\}$ commune avec l'orientation (001) (bleu). Ces orientations $\{221\}$ en jaunes correspondent en fait à des macles de l'orientation (001) bleu.

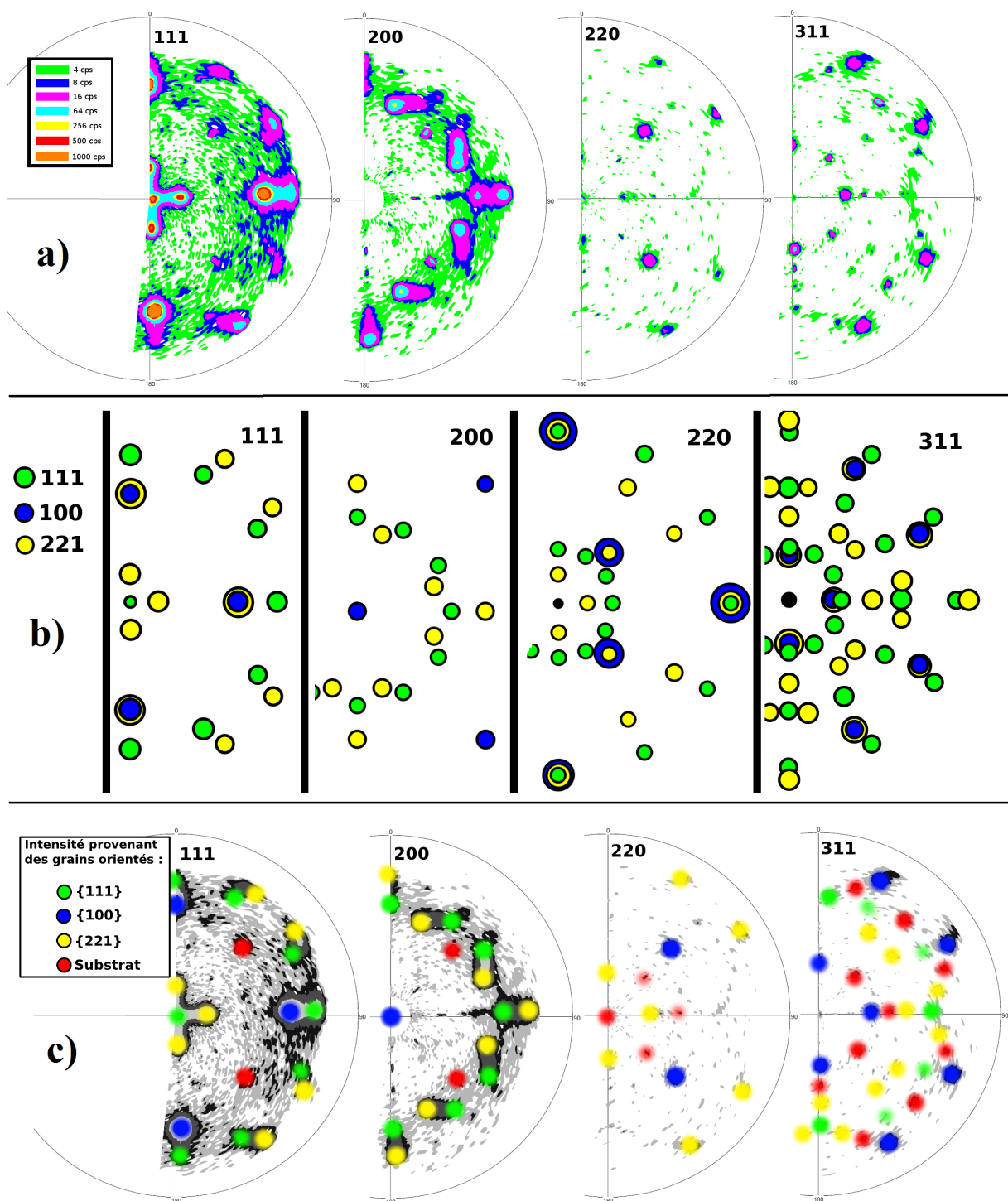


FIGURE A.1 – a) Figure de pôles des plans $\{111\}$, $\{200\}$, $\{220\}$ et $\{311\}$ dans un échantillon d'or de 200 nm déposé sur un monocristal de NaCl à 225 °C par pulvérisation ionique. b) Représentation des figures de pôles $\{111\}$, $\{200\}$, $\{220\}$ et $\{311\}$ par superposition de projection stéréographique de monocristaux d'or. c) Figures de pôles a) indexé à l'aide de b)

Annexe B

DiffAbs, donnés supplémentaires

Nous montrons ici les courbes des pics de Bragg des différents pôles des figure de pôles. Les positions des barycentres de ces courbes au cours des essais mécaniques ont permis de remonter à la déformation élastique des échantillons. Ces courbes permettent de montrer quelle familles de plans se comportent de la même manière et par extension quel groupes de macles ont des évolutions similaires.

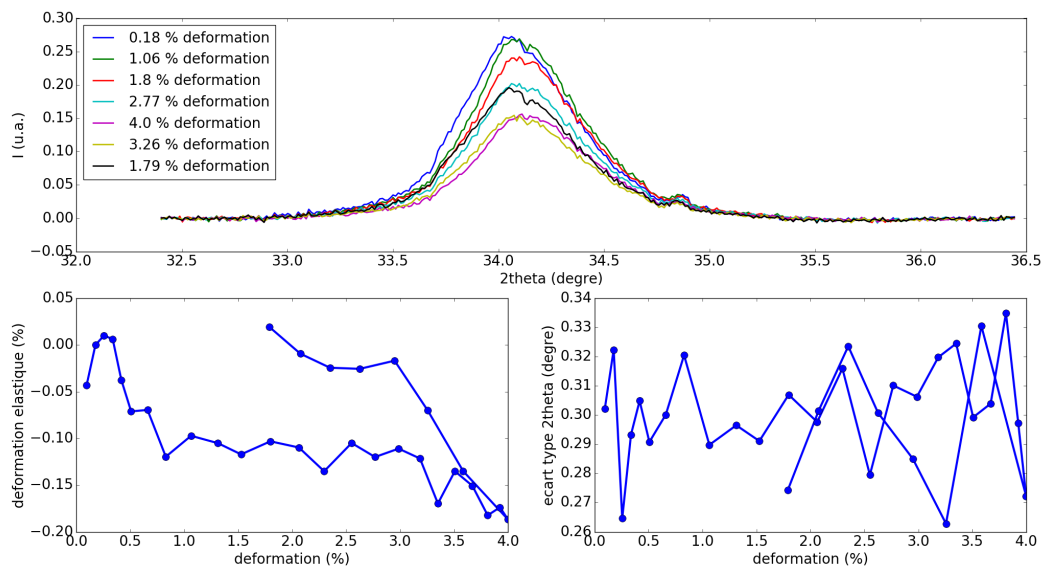


FIGURE B.1 – a) Courbe du pic des macles (-111) dans la direction 2θ pour plusieurs état de déformation ; b) Position du barycentre pic lié au macles (-111) en 2θ au cours de l'essai ; c) écart type du pic lié au macles (-111) en 2θ ; essai de traction dans la direction [110]

Ces différentes courbes nous ont permis de tracer la figure 3.21, pour comparer les différentes famille de macles. On observe ainsi que l'on a bien 3 comportements de macles différents, en fonction de l'orientation des macles par rapport à la direction de traction : à 0° avec une faible évolution , à 90° avec une forte évolution puis un adoucissement et à 45° avec une forte évolution sans adoucissement. Du coté des courbes lié à la matrice,

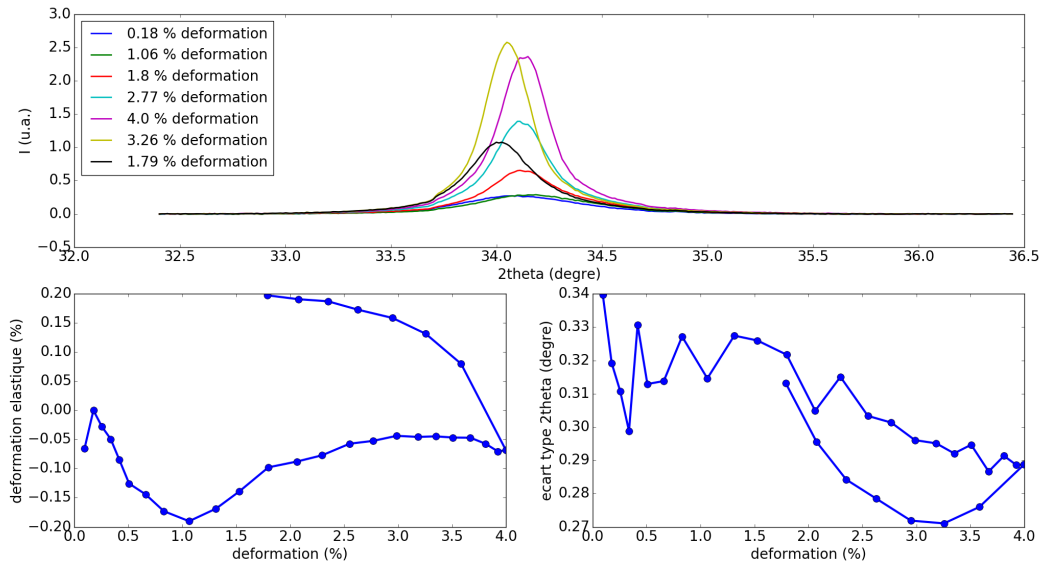


FIGURE B.2 – a) Courbe du pic des macles (111) dans la direction 2θ pour plusieurs état de déformation ; b) Position du barycentre pic lié au macles (111) en 2θ au cours de l'essai ; c) écart type du pic lié au macles (111) en 2θ ; essai de traction dans la direction [110]

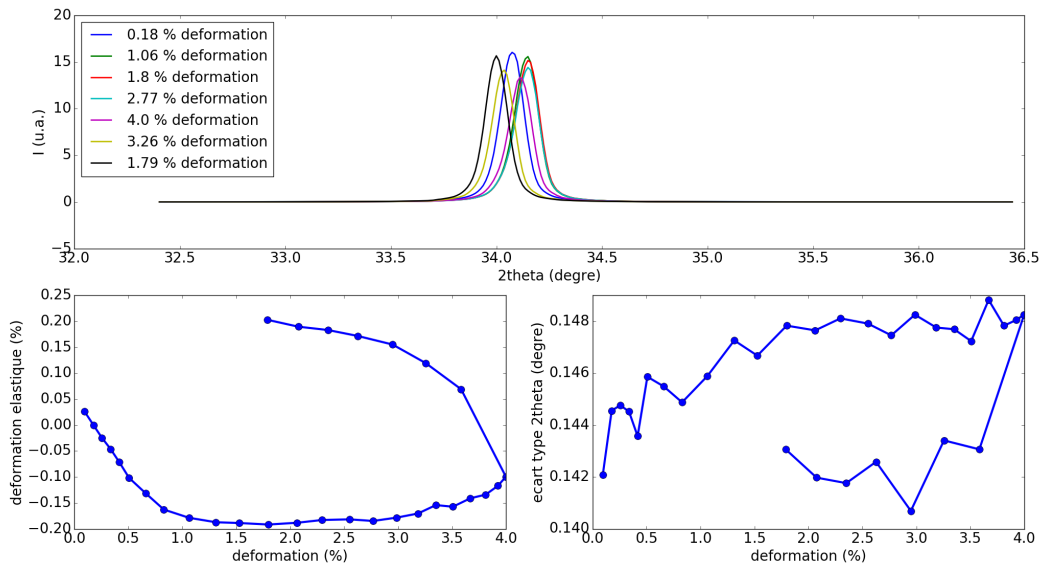


FIGURE B.3 – a) Courbe du pic (1-11) lié à la matrice du film dans la direction 2θ pour plusieurs état de déformation ; b) Position du barycentre pic (1-11) lié à la matrice du film en 2θ au cours de l'essai ; c) écart type du pic (1-11) lié à la matrice du film en 2θ ; essai de traction dans la direction [110]

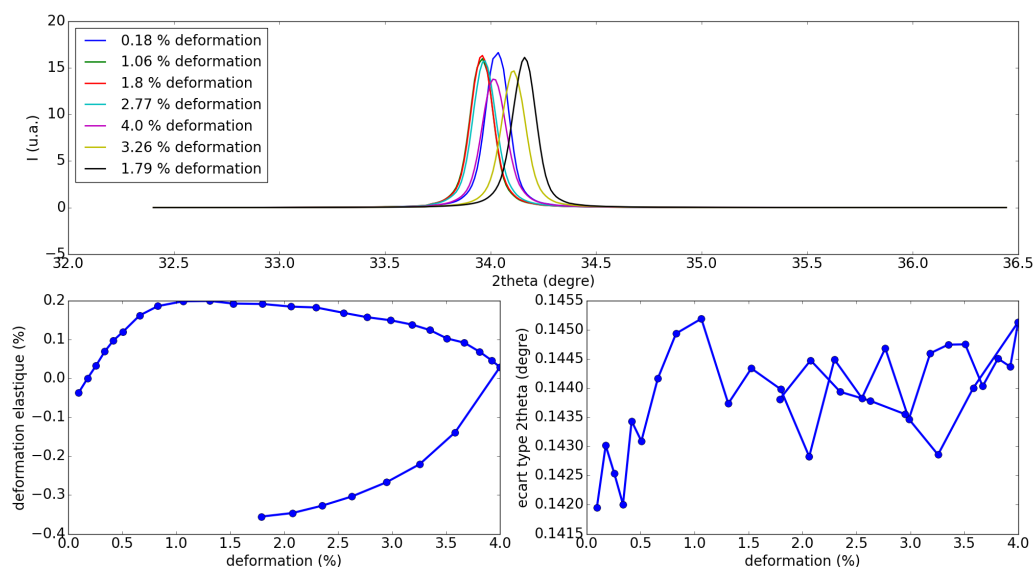


FIGURE B.4 – a) Courbe du pic (-1-11) lié à la matrice du film dans la direction 2θ pour plusieurs état de déformation ; b) Position du barycentre pic (-1-11) lié à la matrice du film en 2θ au cours de l'essai ; c) écart type du pic (-1-11) lié à la matrice du film en 2θ ; essai de traction dans la direction [110]

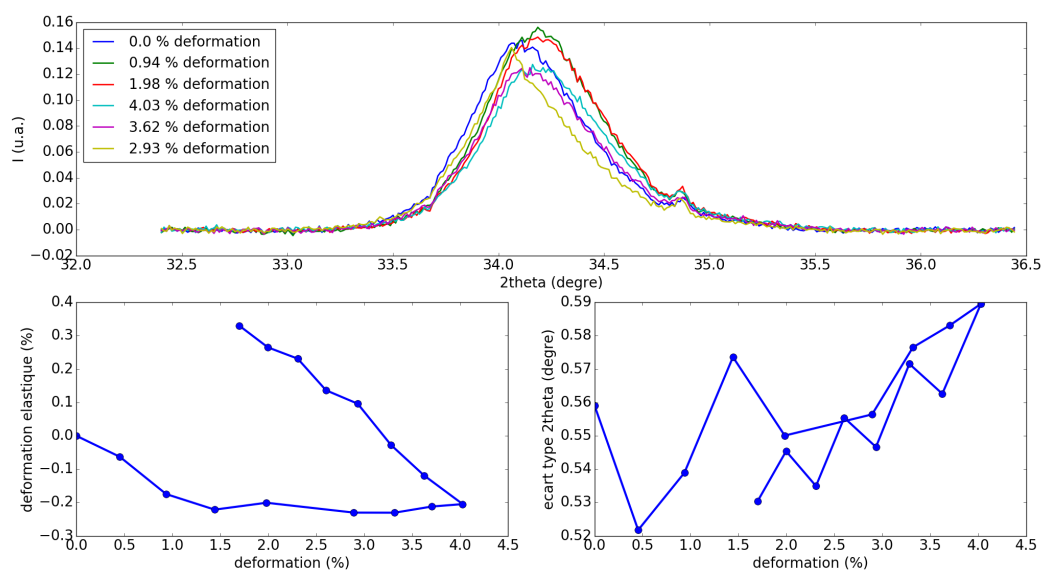


FIGURE B.5 – a) Courbe du pic des macles (-1-11) dans la direction 2θ pour plusieurs état de déformation ; b) Position du barycentre pic lié au macles (-1-11) en 2θ au cours de l'essai ; c) écart type du pic lié au macles (-1-11) en 2θ ; essai de traction dans la direction [100]

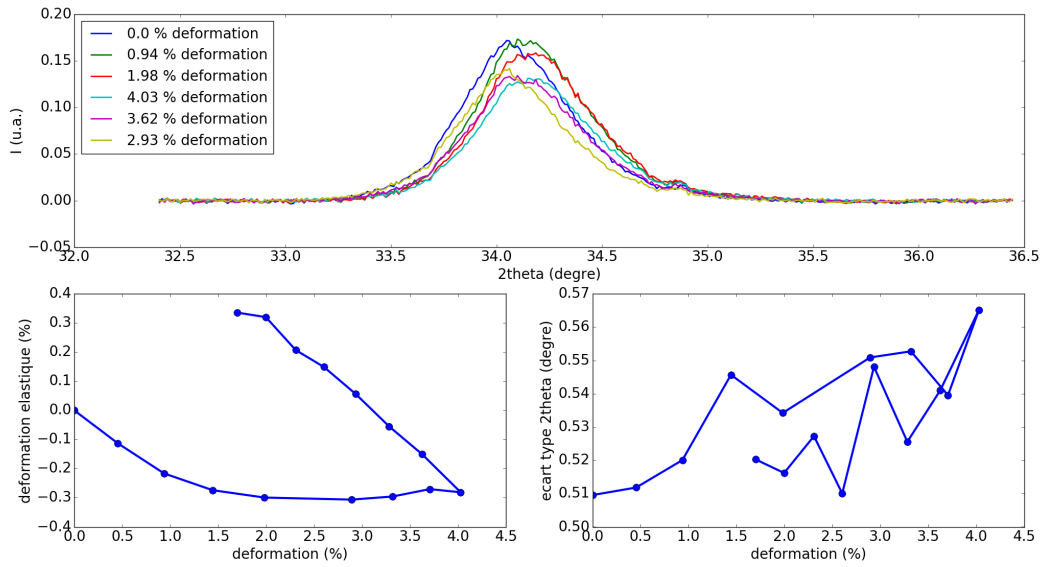


FIGURE B.6 – a) Courbe du pic des macles (-111) dans la direction 2θ pour plusieurs état de déformation ; b) Position du barycentre pic lié au macles (-111) en 2θ au cours de l’essai ; c) écart type du pic lié au macles (-111) en 2θ ; essai de traction dans la direction [100]

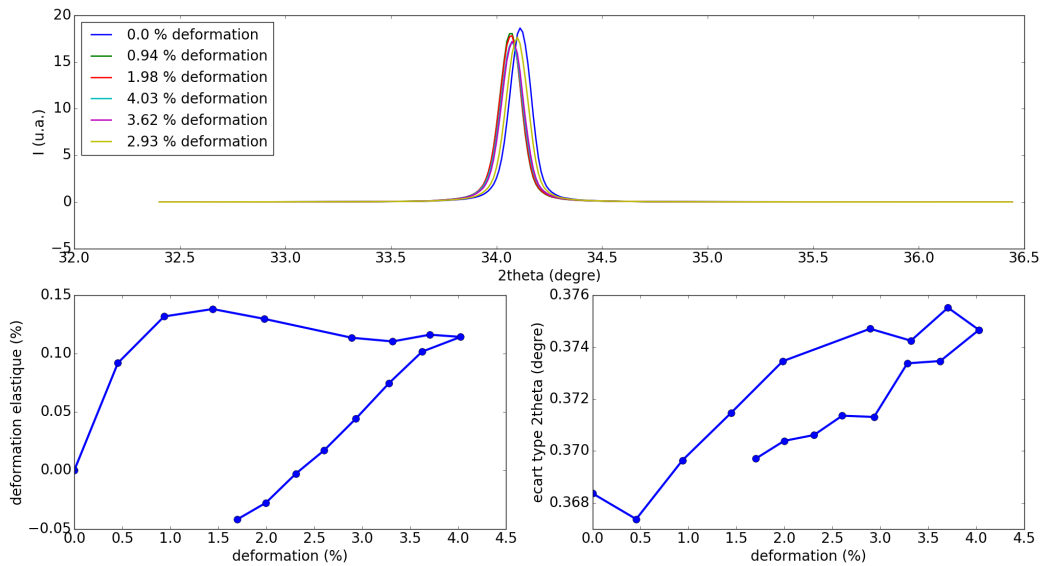


FIGURE B.7 – a) Courbe du pic (111) de la matrice du film dans la direction 2θ pour plusieurs état de déformation ; b) Position du barycentre pic (111) de la matrice du film en 2θ au cours de l’essai ; c) écart type du pic (111) de la matrice du film en 2θ ; essai de traction dans la direction [100]

elles vont nous permettre de calculer la déformation élastique des films, comme décrit dans l’annexe C.

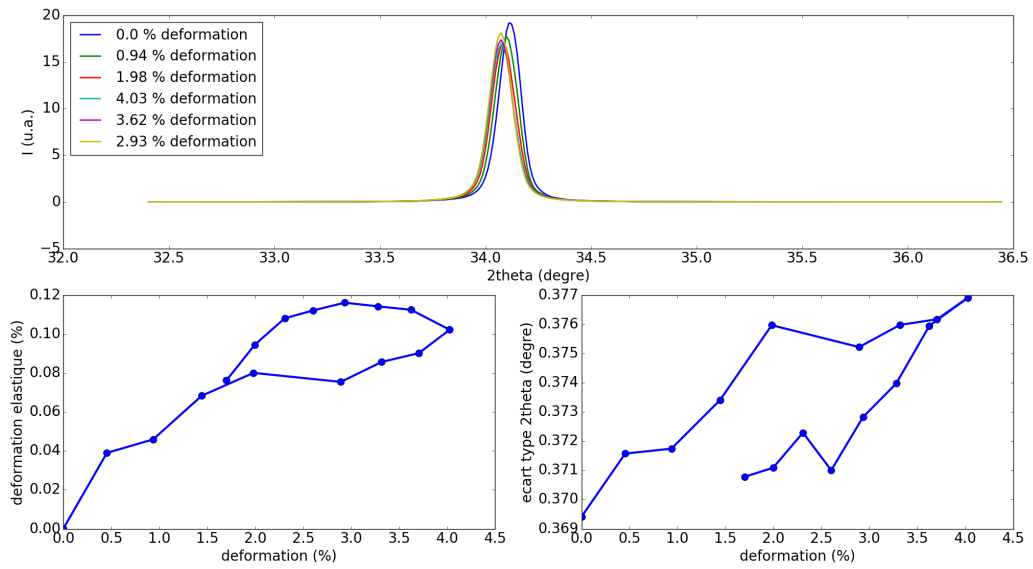


FIGURE B.8 – a) Courbe du pic (1-11) de la matrice du film dans la direction 2θ pour plusieurs état de déformation ; b) Position du barycentre pic (1-11) de la matrice du film en 2θ au cours de l'essai ; c) écart type du pic (1-11) de la matrice du film en 2θ ; essai de traction dans la direction [100]

Annexe C

Calculs de déformation élastique

C.1 Repères et déformation dans l'or

On décrit la matrice dans les bases \mathcal{B}_{100} et \mathcal{B}_{110} , en fonction des essais de traction, respectivement dans la direction $[100]$ et $[110]$.

$$\mathcal{B}_{100} = \left\{ \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} \right\} \quad (\text{C.1})$$

$$\mathcal{B}_{110} = \left\{ \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} -1 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} \right\} \quad (\text{C.2})$$

Avec la matrice de passage P pour passer de \mathcal{B}_{100} à \mathcal{B}_{110} .

$$P = rot_{[001], \pi/4} \frac{1}{\sqrt{2}} = \begin{pmatrix} 1 & -1 & 0 \\ 1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & \sqrt{2} \end{pmatrix} \quad (\text{C.3})$$

En élasticité linéaire, on peut décrire le tenseur des contraintes σ_{ij} et le tenseur des déformations ε_{ij} avec le tenseur des constantes élastiques c_{kl} avec la loi de Hooke et les notations de Voigt :

$$E = \begin{pmatrix} \varepsilon_{11} & \varepsilon_{12} & \varepsilon_{13} \\ \varepsilon_{12} & \varepsilon_{22} & \varepsilon_{23} \\ \varepsilon_{13} & \varepsilon_{23} & \varepsilon_{33} \end{pmatrix} \quad (\text{C.4})$$

$$T = \begin{pmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{12} & \sigma_{13} \\ \sigma_{12} & \sigma_{22} & \sigma_{23} \\ \sigma_{13} & \sigma_{23} & \sigma_{33} \end{pmatrix} \quad (\text{C.5})$$

$$\begin{pmatrix} \sigma_1 = \sigma_{11} \\ \sigma_2 = \sigma_{22} \\ \sigma_3 = \sigma_{33} \\ \sigma_4 = \sigma_{23} \\ \sigma_5 = \sigma_{13} \\ \sigma_6 = \sigma_{12} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_{11} & c_{12} & c_{12} & 0 & 0 & 0 \\ c_{12} & c_{11} & c_{12} & 0 & 0 & 0 \\ c_{12} & c_{12} & c_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & c_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & c_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & c_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_1 = \varepsilon_{11} \\ \varepsilon_2 = \varepsilon_{22} \\ \varepsilon_3 = \varepsilon_{33} \\ \varepsilon_4 = 2 \cdot \varepsilon_{23} \\ \varepsilon_5 = 2 \cdot \varepsilon_{13} \\ \varepsilon_6 = 2 \cdot \varepsilon_{12} \end{pmatrix} \quad (\text{C.6})$$

Avec dans l'or (d'après Freund and Suresh) $c_{11} = 192,9 \text{ GPa}$, $c_{44} = 41,5 \text{ GPa}$, $c_{12} = 163,8 \text{ GPa}$.

En diffraction des rayons X, nous mesurons la déformation élastique dans une direction spécifique du réseau cristallin, la direction normale aux plans diffractants. Dans la base \mathcal{B}_{100} , on définit l'angle ψ comme l'angle entre la normale aux plans considérés (direction dans laquelle on mesure la déformation) et la direction $[001]$ ainsi que l'angle φ égale à l'angle entre la projection de la normale aux plans considérés sur le plan (001) et la direction $[100]$. On obtient ainsi la déformation dans la direction mesurée :

$$\varepsilon_{\psi,\varphi} = \begin{pmatrix} \sin \psi \cos \varphi & \sin \psi \sin \varphi & \cos \psi \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \varepsilon_{11} & \varepsilon_{12} & \varepsilon_{13} \\ \varepsilon_{12} & \varepsilon_{22} & \varepsilon_{23} \\ \varepsilon_{13} & \varepsilon_{23} & \varepsilon_{33} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \sin \psi \cos \varphi \\ \sin \psi \sin \varphi \\ \cos \psi \end{pmatrix} \quad (\text{C.7})$$

soit :

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\varphi,\psi} = \varepsilon_{11} \cos^2 \varphi \sin^2 \psi + \varepsilon_{22} \sin^2 \varphi \sin^2 \psi + \varepsilon_{33} \cos^2 \psi + \varepsilon_{12} \sin(2\varphi) \sin^2 \psi \\ + \varepsilon_{13} \cos \varphi \sin(2\psi) + \varepsilon_{23} \sin \varphi \sin(2\psi) \end{aligned} \quad (\text{C.8})$$

Dans la matrice monocristalline de nos films, dans la base \mathcal{B}_{100} , les plans observés sont les plans $\{111\}$ et sont à $(\psi, \varphi) = (\arccos(1/\sqrt{3}), \pi/4 + k\pi/2)$. Ainsi, on obtient $\cos^2 \psi = 1/3$, $\sin^2 \psi = 2/3$ et $\sin(2\psi) = 2\sqrt{2}/3$, et donc,

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\varphi,\psi} = \varepsilon_{11} \cos^2 \varphi \frac{2}{3} + \varepsilon_{22} \sin^2 \varphi \frac{2}{3} + \varepsilon_{33} \frac{1}{3} + \varepsilon_{12} \sin(2\varphi) \frac{2}{3} \\ + \varepsilon_{13} \cos \varphi \frac{2\sqrt{2}}{3} + \varepsilon_{23} \sin \varphi \frac{2\sqrt{2}}{3} \end{aligned} \quad (\text{C.9})$$

C.2 Hypothèse

Les hypothèses utilisées pour la suite sont les suivantes :

1. Dans la partie élastique, les macles n'ont aucune influence. On assimilera l'échantillon à un film mince homogène monocristallin.
2. La contrainte hors-plan σ_3 est nulle.
3. Dans le premier essai la force est dirigée suivant la direction cristallographique [100], et dans le second suivant la direction [110].
4. Dans le plan, la déformation est uniaxiale, c'est-à-dire que dans une base appropriée, on a $\varepsilon_2 = \varepsilon_6 = 0$. D'après la figure 3.5, l'imprécision est inférieure à 10%.
5. Il n'y a pas de cisaillement, c'est-à-dire $\varepsilon_4 = \varepsilon_5 = 0$.

C.3 Essai de traction dans la direction [100]

Lors de l'essai de traction dans la direction [100], décrit dans la base \mathcal{B}_{100} , d'après les hypothèses, on obtient le tenseur de déformation suivant :

$$\varepsilon_{100}^{[100]} = \begin{pmatrix} \varepsilon_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_3 \end{pmatrix} \leftrightarrow \begin{pmatrix} \varepsilon_1 \\ 0 \\ \varepsilon_3 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (\text{C.10})$$

Puis d'après l'hypothèse 2 et l'équation C.6, on a :

$$0 = \sigma_3 = c_{12}\varepsilon_1 + c_{11}\varepsilon_3, \quad (\text{C.11})$$

$$\varepsilon_3 = -\frac{c_{12}}{c_{11}}\varepsilon_1 \approx -0,85\varepsilon_1. \quad (\text{C.12})$$

Les plans $\{111\}$ mesurés sont à $(\psi, \varphi) = (\arccos(1/\sqrt{3}), \pi/4 + k\pi/2)$, avec $k \in \mathbb{Z}$ et l'on a donc grâce à l'équation C.9 :

$$\varepsilon_{\arccos(1/\sqrt{3}), \pi/4 + k\pi/2}^{[100]} = \varepsilon_1 \cos^2 \varphi \frac{2}{3} + \varepsilon_3 \frac{1}{3} \quad (\text{C.13})$$

$$= \left(2 \cos^2 \varphi - \frac{c_{12}}{c_{11}} \right) \frac{\varepsilon_1}{3} \quad (\text{C.14})$$

$$= \frac{c_{11} - c_{12}}{3c_{11}} \varepsilon_1 \quad (\text{C.15})$$

Ce qui permet d'obtenir la relation entre la déformation mesurée dans les plans $\{111\}$ et la déformation dans la direction [100] :

$$\varepsilon_1 = \frac{3c_{11}}{c_{11} - c_{12}} \varepsilon_{\arccos(1/\sqrt{3}), \pi/4 + k\pi/2}^{[100]} \approx 20 \varepsilon_{54,7,45}^{[100]} \pmod{90} \quad (\text{C.16})$$

Dans un second temps on peut constater que l'essai uniaxiale en déformation est proche d'un ratio de contrainte 1/2 (en GPa) :

$$\sigma_{100}^{[100]} = \begin{pmatrix} \frac{c_{11}^2 - c_{12}^2}{c_{11}} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{c_{11} - c_{12}}{c_{11}} c_{12} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \varepsilon_1 \approx \begin{pmatrix} 53.8 & 0 & 0 \\ 0 & 24.7 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \varepsilon_1 \quad (\text{C.17})$$

C.4 Essai de traction dans la direction [110]

Lors de l'essai de traction dans la direction [110], décrit dans la base \mathcal{B}_{110} , et d'après les hypothèses, on obtient le tenseur de déformation suivant :

$$\varepsilon_{110}^{[110]} = \begin{pmatrix} \varepsilon_1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_3 \end{pmatrix} \leftrightarrow \begin{pmatrix} \varepsilon_1 \\ 0 \\ \varepsilon_3 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (\text{C.18})$$

Grâce à la matrice de passage P décrite à l'équation C.3, on peut décrire le tenseur de déformation dans la base cristallographique \mathcal{B}_{100} dans laquelle on a l'équation C.6.

$$\varepsilon_{100}^{[110]} = P \varepsilon_{110}^{[110]} P^T = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} \varepsilon_1 & \varepsilon_1 & 0 \\ \varepsilon_1 & \varepsilon_1 & 0 \\ 0 & 0 & 2\varepsilon_3 \end{pmatrix} \leftrightarrow \begin{pmatrix} \frac{1}{2}\varepsilon_1 \\ \frac{1}{2}\varepsilon_1 \\ \varepsilon_3 \\ 0 \\ 0 \\ \varepsilon_1 \end{pmatrix}. \quad (\text{C.19})$$

Toujours d'après l'hypothèse 2 et l'équation C.6, on a :

$$0 = \sigma_3 = c_{12}\varepsilon_1 + c_{11}\varepsilon_3, \quad (\text{C.20})$$

$$\varepsilon_3 = -\frac{c_{12}}{c_{11}}\varepsilon_1 \approx -0,85\varepsilon_1. \quad (\text{C.21})$$

Par rapport à la base \mathcal{B}_{100} , les plans $\{111\}$ mesuré sont à $(\psi, \varphi) = (\arccos(1/\sqrt{3}), \pi/4 + k\pi/2)$, avec $k \in \mathbb{Z}$. En utilisant l'équation C.9, on a donc :

$$\varepsilon_{\arccos(1/\sqrt{3}),\pi/4+k\pi}^{[110]} = \varepsilon_1 1 \cos^2 \varphi \frac{2}{3} + \varepsilon_2 2 \sin^2 \varphi \frac{2}{3} + \varepsilon_3 \frac{1}{3} + \varepsilon_1 2 \sin(2\varphi) \frac{2}{3} \quad (\text{C.22})$$

$$= \frac{2c_{11} - c_{12}}{3c_{11}} \varepsilon_1 \quad (\text{C.23})$$

et

$$\varepsilon_{\arccos(1/\sqrt{3}),-\pi/4+k\pi}^{[110]} = \varepsilon_1 1 \cos^2 \varphi \frac{2}{3} + \varepsilon_2 2 \sin^2 \varphi \frac{2}{3} + \varepsilon_3 \frac{1}{3} + \varepsilon_1 2 \sin(2\varphi) \frac{2}{3} \quad (\text{C.24})$$

$$= -\frac{2c_{12}}{3c_{11}} \varepsilon_1 \quad (\text{C.25})$$

Ce qui permet d'obtenir la relation entre la déformation mesuré dans les différents plans {111} et la déformation dans la direction [110] :

$$\varepsilon_1 = \frac{3c_{11}}{2c_{11} - c_{12}} \varepsilon_{\arccos(1/\sqrt{3}),\pi/4+k\pi}^{[110]} \approx 2,6 \varepsilon_{54,7,45}^{[110]} \pmod{180} \quad (\text{C.26})$$

$$\varepsilon_1 = \frac{3c_{11}}{2c_{11}} \varepsilon_{\arccos(1/\sqrt{3}),-\pi/4+k\pi}^{[110]} \approx -3,5 \varepsilon_{54,7,-45}^{[110]} \pmod{180} \quad (\text{C.27})$$

On obtient alors le tenseur des contraintes dans la base cristallographique \mathcal{B}_{100} :

$$\sigma_{100}^{[110]} = \begin{pmatrix} \frac{c_{11}^2 + c_{11}c_{12} - c_{12}^2}{2c_{11}} & c_{44} & 0 \\ c_{44} & \frac{c_{11}^2 + c_{11}c_{12} - c_{12}^2}{2c_{11}} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \varepsilon_1 \quad (\text{C.28})$$

Ce que l'on traduit dans la base de l'échantillon \mathcal{B}_{110} à l'aide de la matrice de passage P de l'équation C.3. On remarque alors que l'essai uniaxiale en déformation est très proche d'un essai uniaxial en contrainte (en GPa) :

$$\sigma_{110}^{[110]} = P^T \sigma_{100}^{[100]} P = \begin{pmatrix} \frac{c_{11}^2 + c_{11}c_{12} - 2c_{12}^2}{2c_{11}} + c_{44} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{c_{11}^2 + c_{11}c_{12} - 2c_{12}^2}{2c_{11}} - c_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \varepsilon_1 \quad (\text{C.29})$$

$$\approx \begin{pmatrix} 80.8 & 0 & 0 \\ 0 & -2.24 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \varepsilon_1 \quad (\text{C.30})$$

C.5 Opérations appliquées aux courbes

Dans le cas de la sollicitation dans la direction $[110]$, les coefficients obtenue aux équations C.26 et C.26 permettent de passer de la déformation des plans diffractant, qui correspondent à ce que l'on mesure physiquement en observant le déplacement du pic de Bragg, vers la déformation élastique dans la direction de sollicitation mécanique (Figure C.1). De plus à l'aide du domaine élastique : domaine linéaire avec une pente de 1 ; on extrapole la courbe et l'on la décale de manière à obtenir la droite linéaire du domaine élastique passant par l'origine.

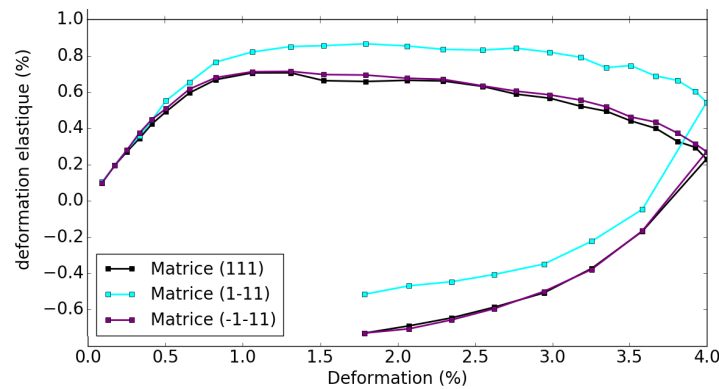


FIGURE C.1 – Déformation élastique en fonction de la déformation appliquée

Il est ensuite possible de passer à la déformation plastique, en soustrayant la déformation élastique à la déformation appliquée (Figure C.2)

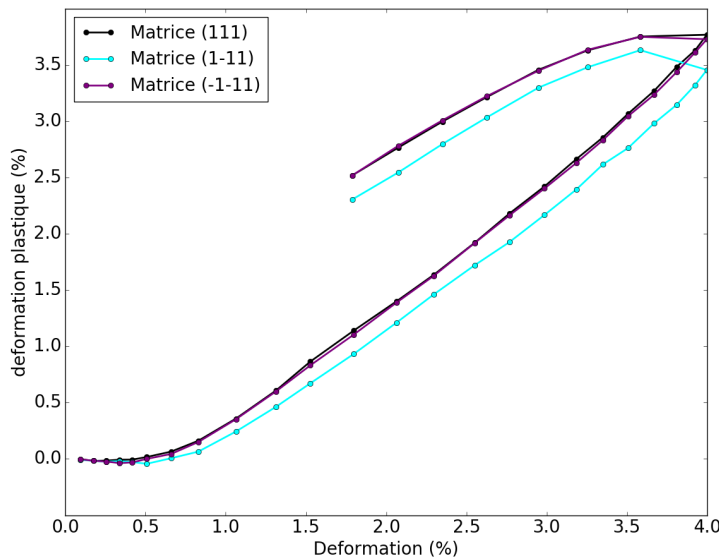


FIGURE C.2 – Déformation plastique en fonction de la déformation appliquée

Nous n'avons pas effectué ces opérations sur les courbes de la traction dans la direction [100] pour deux raisons : il y a moins de point, ce qui masque le régime linéaire, et les deux courbes relatives aux déformations élastiques des plans diffractants des deux pôles de la matrice ont des allures différentes, mal-grès des orientations similaires par rapport à la contrainte appliqué.

Nous n'avons pas effectué non plus ces opérations sur les courbes provenant des pics de diffraction des pôles liés aux macles, car nous ne pouvons pas connaître la contrainte au sein des macles. En effet on peut considérer qu'une région autour d'une macle se comporte comme un matériaux avec une double texture, ce qui rend la contrainte hors plan indéterminé, comme l'a montré A.M. Vodnick et al. [65] pour des films de cuivre avec une double texture (111)/(001).

Bibliographie

- [1] B. HAMMER et J.K. NORSKOV. « Why gold is the nobles of all the metals ». Dans : *Nature* 376 (1995), p. 238–239. URL : <https://doi.org/10.1038/376238a0> (cf. p. 1).
- [2] H. YU, Y. Peng and Y. YANG et Z.Y. LI. « Plasmon-enhanced light–matter interactions and applications ». Dans : *npj Computational Materials* 5 (2019), p. 45. URL : <https://doi.org/10.1038/s41524-019-0184-1> (cf. p. 1).
- [3] J. BUTET, P.F. BREVET et O.J.F. MARTIN. « Optical Second Harmonic Generation in Plasmonic Nanostructures : From Fundamental Principles to Advanced Applications ». Dans : *ACS Nano* 9 (2015), p. 10545–10562. URL : [doi:10.1021/acsnano.5b04373](https://doi.org/10.1021/acsnano.5b04373) (cf. p. 1).
- [4] M. VALDEN, X. LAI et D.W. GOODMAN. « Onset of Catalytic Activity of Gold Clusters on Titania with the Appearance of Nonmetallic Properties ». Dans : *Science* 281 (1998), p. 1647. URL : [doi:10.1126/science.281.5383.1647](https://doi.org/10.1126/science.281.5383.1647) (cf. p. 1).
- [5] Y. ZHANG et al. « Nano-Gold Catalysis in Fine Chemical Synthesis ». Dans : *Chemical Reviews* 112 (2012), p. 2467–2505. URL : [dx.doi.org/10.1021/cr200260m](https://doi.org/10.1021/cr200260m) (cf. p. 1).
- [6] C.F. GUO et al. « Highly stretchable and transparent nanomesh electrodes made by grain boundary lithography ». Dans : *Nature Communications* 5 (2014), p. 3121. URL : [doi:10.1038/ncomms4121](https://doi.org/10.1038/ncomms4121) (cf. p. 1).
- [7] A. CHAUVIN et al. « Vapor dealloying of ultra-thin films : a promising concept for the fabrication of highly flexible transparent conductive metal nanomesh electrodes ». Dans : *npj Flexible Electronics* 3 (2019), p. 5. URL : <https://doi.org/10.1038/s41528-019-0049-1> (cf. p. 1).
- [8] S. GONG et al. « A wearable and highly sensitive pressure sensor with ultrathin gold nanowires ». Dans : *Nature Communications* 5 (2014), p. 3132. URL : [doi:10.1038/ncomms4132](https://doi.org/10.1038/ncomms4132) (cf. p. 1).
- [9] KENRY, J.C. YEO et C.T. LIM. « Emerging flexible and wearable physical sensing platforms for healthcare and biomedical applications ». Dans : *Microsystems and Nanoengineering* 2 (2016), p. 16043. URL : [doi:10.1038/micronano.2016.43](https://doi.org/10.1038/micronano.2016.43) (cf. p. 1).

- [10] J.P. HIRTH et J. LOTHE. *Theory of dislocations - Second Edition*. Krieger publishing Compagny, 1982, p. 288 (cf. p. 1).
- [11] J.P. HIRTH et J. LOTHE. *Theory of dislocations - Second Edition*. Krieger publishing Compagny, 1982. Chap. 23 (cf. p. 1).
- [12] L. SUN, X. HE et J. LU. « Nanotwinned and hierarchical nanotwinned metals : a review of experimental, computational and theoretical efforts ». Dans : *npj Computational Materials* 4 (2018), p. 6. URL : [doi:10.1038/s41524-018-0062-2](https://doi.org/10.1038/s41524-018-0062-2) (cf. p. 1).
- [13] L. LU et al. « Ultrahigh Strength and High Electrical Conductivity in Copper ». Dans : *Science* 304 (2004), p. 422. URL : [doi:10.1126/science.1092905](https://doi.org/10.1126/science.1092905) (cf. p. 2).
- [14] D. JANG et al. « Deformation mechanisms in nanotwinned metal nanopillars ». Dans : *Nature Technology* 7 (2012), 594–601. URL : [doi:10.1038/nnano.2012.116](https://doi.org/10.1038/nnano.2012.116) (cf. p. 2).
- [15] J.P. HIRTH et J. LOTHE. *Theory of dislocations - Second Edition*. Krieger publishing Compagny, 1982 (cf. p. 6).
- [16] Z.H. JIN et al. « The interaction mechanism of screw dislocations with coherent twin boundaries in different face-centred cubic metals ». Dans : *Scripta Materialia* 54 (2006), p. 1163–1168. URL : [doi:10.1016/j.scriptamat.2005.11.072](https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2005.11.072) (cf. p. 10, 16, 85).
- [17] A. HUNTER et al. « Dependence of equilibrium stacking fault width in fcc metals on the gamma-surface ». Dans : *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering* 21 (2013), p. 025015. URL : [doi:10.1088/0965-0393/21/2/025015](https://doi.org/10.1088/0965-0393/21/2/025015) (cf. p. 10).
- [18] X. ZHANG et al. « High-strength sputter-deposited Cu foils with preferred orientation of nanoscale growth twins ». Dans : *Applied Physics Letters* 88 (2006), p. 173116. URL : <https://doi.org/10.1063/1.2198482> (cf. p. 9).
- [19] L. LU et al. « Ultrahigh Strength and High Electrical Conductivity in Copper ». Dans : *Science* 304 (2004), p. 422–426. URL : [doi:10.1126/science.1092905](https://doi.org/10.1126/science.1092905) (cf. p. 9).
- [20] K. LU, L. LU et S. SURESH. « Strengthening Materials by Engineering Coherent Internal Boundaries at the Nanoscale ». Dans : *Science* 324 (2009), p. 349–352. URL : [doi:10.1126/science.1159610](https://doi.org/10.1126/science.1159610) (cf. p. 9).
- [21] O. ANDEROGLU et al. « Epitaxial nanotwinned Cu films with high strength and high conductivity ». Dans : *Applied Physics Letters* 93 (2008), p. 083108. URL : <https://doi.org/10.1063/1.2969409> (cf. p. 11).

- [22] N. BERNSTEIN et E. B. TADMOR. « Tight-binding calculations of stacking energies and twinnability in fcc metals ». Dans : *Physical Review B* 69 (2004), p. 094116. URL : <https://doi-org.insis.bib.cnrs.fr/10.1103/PhysRevB.69.094116> (cf. p. 11).
- [23] A.G. FROSETH, P.M. DERLET et H.V. SWYGENHOVEN. « Twinning in Nanocrystalline fcc Metals ». Dans : *Advanced Engineering Materials* 7 (2005), p. 16–20. URL : [doi:10.1002/adem.200400163](https://doi.org/10.1002/adem.200400163) (cf. p. 11).
- [24] J.R. RICE. « Dislocation nucleation from a crack tip : An analysis based on the Peierls concept ». Dans : *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 40 (1992), p. 239–271. URL : [https://doi-org.insis.bib.cnrs.fr/10.1016/S0022-5096\(05\)80012-2](https://doi-org.insis.bib.cnrs.fr/10.1016/S0022-5096(05)80012-2) (cf. p. 11).
- [25] R.J. ASARO et S. SURESH. « Mechanistic models for the activation volume and rate sensitivity in metals with nanocrystalline grains and nano-scale twins ». Dans : *Acta Materialia* 53 (2005), 3369–3382. URL : <https://doi-org.insis.bib.cnrs.fr/10.1016/j.actamat.2005.03.047> (cf. p. 11).
- [26] Z.H. JIN et al. « A universal scaling of planar fault energy barriers in face-centered cubic metals ». Dans : *Scripta Materialia* 64 (2011), p. 605–608. URL : <https://doi-org.insis.bib.cnrs.fr/10.1016/j.scriptamat.2010.11.033> (cf. p. 11).
- [27] E.B TADMOR et S. HAI. « A Peierls criterion for the onset of deformation twinning at crack tip ». Dans : *Journal of Mechanics and Physics of Solids* 51 (2003), p. 765–793. URL : [doi:10.1016/S0022-5096\(03\)00005-X](https://doi.org/10.1016/S0022-5096(03)00005-X) (cf. p. 12).
- [28] J.A. VENABLES. « Deformation twinning in face-centred cubic metals ». Dans : *Philosophical Magazine* 6 (1961), p. 379–396. URL : <https://doi-org.insis.bib.cnrs.fr/10.1080/14786436108235892> (cf. p. 13).
- [29] V. YAMAKOV et al. « Dislocation processes in the deformation of nanocrystalline aluminium by molecular dynamics simulation ». Dans : *Nature Materials* 1 (2002), p. 1–4. URL : <https://doi.org/10.1038/nmat700> (cf. p. 13).
- [30] S. LEE et al. « Reversible cyclic deformation mechanism of Au nanowires by twinning–detwinning transition evidenced from in situ TEM ». Dans : *Nature Communications* 5 (2014), p. 3033. URL : [doi:10.1038/ncomms4033](https://doi.org/10.1038/ncomms4033) (cf. p. 13, 14, 64, 71).
- [31] B. Q. LI et al. « Reversible Twinning in Pure Aluminum ». Dans : *Physical Review Letters* 102 (2009), p. 205504. URL : [doi:10.1103/PhysRevLett.102.205504](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.102.205504) (cf. p. 13, 86, 87).
- [32] C. DENGA et F. SANZOZ. « A new form of pseudo-elasticity in small-scale nanotwinned gold ». Dans : *Extreme Mechanics Letters* 8 (2016), p. 201–207. URL : <https://doi.org/10.1016/j.eml.2015.12.004> (cf. p. 14, 15).

- [33] M. CHASSAGNE, M. LEGROS et D. RODNEY. « Atomic-scale simulation of screw dislocation/coherent twinboundary interaction in Al, Au, Cu and Ni ». Dans : *Acta Materialia* 59 (2011), 1456–1463. URL : [doi:10.1016/j.actamat.2010.11.007](https://doi.org/10.1016/j.actamat.2010.11.007) (cf. p. 15).
- [34] Y.T. ZHU et al. « Dislocation–twin interactions in nanocrystalline fcc metals ». Dans : *Acta Materialia* 59 (2011), p. 812–821. URL : [doi:10.1016/j.actamat.2010.10.028](https://doi.org/10.1016/j.actamat.2010.10.028) (cf. p. 15, 85).
- [35] H. IDRISSI et al. « Review on TEM analysis of growth twins in nanocrystalline palladium thin films : Toward better understanding of twin-related mechanisms in high stacking fault energy metals ». Dans : *Physica Status Solidi B* 251 (2014), p. 1111–1124. URL : [doi:10.1002/pssb.201350161](https://doi.org/10.1002/pssb.201350161) (cf. p. 15, 85).
- [36] Y.B. WANG et al. « The role of stacking faults and twin boundaries in grain refinement of a Cu–Zn alloy processed by high-pressure torsion ». Dans : *Materials Science and Engineering A* 527 (2010), 4959–4966. URL : <https://doi.org/10.1016/j.msea.2010.04.036> (cf. p. 16, 65, 86).
- [37] Y. CAO et al. « Grain boundary formation by remnant dislocations from the detwinning of thin nano-twins ». Dans : *Scripta Materialia* 100 (2015), p. 98–101. URL : <http://dx.doi.org/10.1016/j.scriptamat.2015.01.001> (cf. p. 16, 61, 86).
- [38] M.D. UCHIC et al. « Sample Dimensions Influence Strength and Crystal Plasticity ». Dans : *Science* 305 (2004), p. 986–989. URL : [doi:10.1126/science.1098993](https://doi.org/10.1126/science.1098993) (cf. p. 16).
- [39] M. CHEN et al. « Deformation Twinning in Nanocrystalline Aluminum ». Dans : *Science* 300 (2003), p. 1275. URL : [doi:10.1126/science.1083727](https://doi.org/10.1126/science.1083727) (cf. p. 17).
- [40] Z. J. WANG et al. « Pristine-to-pristine regime of plastic deformation in submicron-sized single crystal gold particles ». Dans : *Acta Materialia* 60 (2012), 1368–1377. URL : [10.1016/j.actamat.2011.10.035](https://doi.org/10.1016/j.actamat.2011.10.035) (cf. p. 17).
- [41] X.L. WU et Y.T. ZHU. « Inverse Grain-Size Effect on Twinning in Nanocrystalline Ni ». Dans : *Physical Review Letters* 101 (2008), p. 025503. URL : [doi:10.1103/PhysRevLett.101.025503](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.101.025503) (cf. p. 17).
- [42] H.S. PARK, K. GALLB et J.A. ZIMMERMAN. « Deformation of FCC nanowires by twinning and slip ». Dans : *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 54 (2006), p. 1862–1881. URL : [doi:10.1016/j.jmps.2006.03.006](https://doi.org/10.1016/j.jmps.2006.03.006) (cf. p. 17, 18).
- [43] Y.H. WEN et al. « Orientation-dependent mechanical properties of Au nanowires under uniaxial loading ». Dans : *Computational Materials Science* 48 (2010), p. 513–519. URL : [doi:10.1016/j.commatsci.2010.02.015](https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2010.02.015) (cf. p. 18, 22).

- [44] G. DEHM et al. « Strain compensation by twinning in Au thin films : Experiment and model ». Dans : *Acta Materialia* 55 (2007), p. 6659–6665. URL : [10.1016/j.actamat.2007.08.027](https://doi.org/10.1016/j.actamat.2007.08.027) (cf. p. 19, 20, 35).
- [45] S.H. OH et al. « In situ TEM straining of single crystal Au films on polyimide : Change of deformation mechanisms at the nanoscale ». Dans : *Acta Materialia* 55 (2007), 5558–5571. URL : [10.1016/j.actamat.2007.06.015](https://doi.org/10.1016/j.actamat.2007.06.015) (cf. p. 19, 21, 39, 41, 60, 63, 85, 87, 89).
- [46] J. W. MATTHEWS. « Role of twins in the fracture of single-crystal films ». Dans : *Acta Metallurgica* 18 (1970), p. 175. URL : <https://doi.org/> (cf. p. 20, 22, 23, 60, 63, 64, 88).
- [47] P. A. GRUBER et al. « Strong single-crystalline Au films tested by a new synchrotron technique ». Dans : *Acta Materialia* 56 (2008), p. 1876–1889. URL : [doi:10.1016/j.actamat.2007.12.043](https://doi.org/10.1016/j.actamat.2007.12.043) (cf. p. 20, 21, 39, 41).
- [48] F. COSANDEY, Y. KOMEM et C.L. BAUER. « The effect of the electron bombardment of NaCl substrates on the epitaxial growth of gold and silver films ». Dans : *Thin Solid Films* 59 (1979), p. 165–174. URL : [https://doi.org/10.1016/0040-6090\(79\)90290-6](https://doi.org/10.1016/0040-6090(79)90290-6) (cf. p. 25).
- [49] S.K. SHARMA. « Growth of gold films deposited onto NaCl cleaned by ionic bombardment ». Dans : *Thin Solid Films* 6 (1970), p. 17–23. URL : [https://doi.org/10.1016/0040-6090\(70\)90012-X](https://doi.org/10.1016/0040-6090(70)90012-X) (cf. p. 25).
- [50] K. MIHAMA et Y. YASUDA. « Initial stage of epitaxial growth of evaporated gold thin films on sodium chloride ». Dans : *Journal of the Physical Society of Japan* 21 (1966), p. 1166–1177. URL : <https://doi.org/10.1143/JPSJ.21.1166> (cf. p. 25).
- [51] M. I. BÎRJEGA, N. POPESCU-POGRION et V. TOPA. « Epitaxial growth of thin gold films onto pure and doped NaCl and KCl substrates ». Dans : *Thin Solid Film* 94 (1982), p. 67–73. URL : [https://doi.org/10.1016/0040-6090\(82\)90031-1](https://doi.org/10.1016/0040-6090(82)90031-1) (cf. p. 25).
- [52] J. W. MATTHEWS et E. GRÜNBAUMA. « The structure of gold films grown in ultra-high vacuum on sodium chloride substrates ». Dans : *Philosophical Magazine* 11 :114 (1965), p. 1233–1244. URL : <http://dx.doi.org/10.1080/14786436508224932> (cf. p. 25).
- [53] J. W. MATTHEWS. « The Role of Contaminants in the Epitaxial Growth of Gold on Sodium Chloride ». Dans : *Philosophical Magazine* 12 :120 (1965), p. 1143–1157. URL : <http://dx.doi.org/10.1080/14786436508228667> (cf. p. 25).
- [54] A.S.M. RAO et al. « Thermophysical Properties of NaCl NaBr and NaF by gamma-Ray Attenuation Technique ». Dans : *Journal of Modern Physics* 4 (2013), p. 208–214. URL : <http://dx.doi.org/10.4236/jmp.2013.42029> (cf. p. 34).

- [55] R.M. LANGFORD et C. CLINTON. « In situ lift-out using a FIB-SEM system ». Dans : *Micron* 35 (2004), p. 607–611. URL : [doi:10.1016/j.micron.2004.03.002](https://doi.org/10.1016/j.micron.2004.03.002) (cf. p. 36).
- [56] D. B. WILLIAMS et C. B. CARTER. *Transmission Electron Microscopy : A Textbook for Materials Science*. Springer, 1996-2009 (cf. p. 36).
- [57] J. Drieu La ROCHELLE et al. « Study of uniaxial deformation behavior of 50 nm-thick thin film of gold single crystal using in situ X-ray pole figure measurements ». Dans : *Surface and Coatings Technology* 377 (2019), p. 124878. URL : <https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2019.06.103> (cf. p. 43).
- [58] I. K. ROBINSON et al. « First testing of the fast kappa diffractometers at National Synchrotron Light Source and European Synchrotron Radiation Facility ». Dans : *Review of Scientific Instruments* 66 (1995), p. 1765. URL : <http://dx.doi.org/10.1063/1.1146510> (cf. p. 44).
- [59] G. GEANDIER et al. « Development of a synchrotron biaxial tensile device for in situ characterization of thin films mechanical response ». Dans : *Review of Scientific Instruments* 81 (2010), p. 103903. URL : [doi:10.1063/1.3488628](https://doi.org/10.1063/1.3488628) (cf. p. 44, 46).
- [60] S. DJAZIRI et al. « Combined synchrotron X-ray and imagecorrelation analyses of biaxially deformed W/Cu nanocomposite thin films on Kapton ». Dans : *Journal of Applied Crystallography* 44 (2011), 1071–1079. URL : [doi:10.1107/S0021889811030226](https://doi.org/10.1107/S0021889811030226) (cf. p. 45).
- [61] P.O. RENAULT et al. « Continuous cyclic deformations of a Ni/W film studied by synchrotron X-ray diffraction ». Dans : *Surface and Coatings Technology* 332 (2017), 351–357. URL : <https://doi.org/10.1016/j.surfcoat.2017.06.082> (cf. p. 45).
- [62] F. HILD et S. ROUX. « Digital Image Correlation : from Displacement Measurement to Identification of Elastic Properties - a Review ». Dans : *Strain* 42 (2006), p. 69–80. URL : <https://doi.org/10.1111/j.1475-1305.2006.00258.x> (cf. p. 45).
- [63] G. BESNARD, F. HILD et S. ROUX. « Finite-Element Displacement Fields Analysis from Digital Images Application to Portevin–Le Châtelier Bands ». Dans : *Experimental mechanics* 46 (2006), p. 789–803. URL : [doi:10.1007/s11340-006-9824-8](https://doi.org/10.1007/s11340-006-9824-8) (cf. p. 45).
- [64] C. MOCUTA et al. « Fast pole figure acquisition using area detectors at the DiffAbs beamline – Synchrotron SOLEIL ». Dans : *Journal of Applied Crystallography* 46 (2013), 1842–1853. URL : [doi:10.1107/S0021889813027453](https://doi.org/10.1107/S0021889813027453) (cf. p. 47).
- [65] A.M. VODNICK et al. « Out-of-plane stresses arising from grain interactions in textured thin films ». Dans : *Acta Materialia* 58 (2010), p. 2452–2463. URL : [doi:10.1016/j.actamat.2009.12.031](https://doi.org/10.1016/j.actamat.2009.12.031) (cf. p. 66, 111).

-
- [66] D. VILADOT et al. « Orientation and phase mapping in the transmission electron-microscope using precession-assisted diffraction spot recognition :state-of-the-art results ». Dans : *Journal of Microscopy* 252 (2013), p. 23–34. URL : [doi:10.1111/jmi.12065](https://doi.org/10.1111/jmi.12065) (cf. p. 74).
- [67] D. B. WILLIAMS et C. B. CARTER. *Transmission Electron Microscopy : A Textbook for Materials Science*. Springer, 1996-2009. Chap. 24-25 (cf. p. 76).
- [68] G. XIN et al. « Analytic solutions to crack tip plastic zone under various loading conditions ». Dans : *European Journal of Mechanics A/Solids* 29 (2010), p. 738–745. URL : [doi:10.1016/j.euromechsol.2010.03.003](https://doi.org/10.1016/j.euromechsol.2010.03.003) (cf. p. 82, 84).

Résumé

Les films minces métalliques sont couramment utilisés en électronique, et les phénomènes plastiques générés lors de déformations peuvent en altérer les propriétés. C'est pourquoi ils sont encore très étudiés. Les films minces possèdent des caractéristiques et des évolutions sous contrainte qui diffèrent des matériaux massifs à cause de leurs épaisseurs nanométriques. Cette faible dimension donne aux surfaces des objets étudiés, un rôle significatif sur la plasticité. Ces travaux se concentrent sur l'évolution de la plasticité au sein de films minces d'or monocristallin lors de sollicitations mécaniques, en portant un intérêt tout particulier aux phénomènes liés aux macles. Dans un premier temps nous avons développé une procédure pour évaluer *in situ* l'évolution du volume maclé dans un échantillon à partir de figures de pôles au cours d'essais de traction biaxiale. Cette expérience prend place sur la ligne de lumière DiffAbs du synchrotron SOLEIL. Cette ligne de lumière possède un dispositif mécanique de traction biaxiale permettant de déformer *in situ* un substrat de polyimide qui transmet la déformation appliquée aux films minces étudiés. Nous avons ainsi comparé différentes orientations de sollicitations pour observer les différentes évolutions possibles en fonction des facteurs de Schmid mis en jeu. Nous observons ainsi une forte anisotropie du comportement des macles en fonction de la direction de traction. De plus dans le cas où l'on observe un fort maclage lors de la traction, on observe du démaclage à la décharge du substrat. Dans un second temps nous avons étudié nos échantillons au cours d'essais de traction uniaxiale *in situ* au sein d'un microscope électronique en transmission au CEMES à Toulouse. Cette seconde expérience nous offre la possibilité d'étudier nos échantillons à l'échelle des défauts cristallins, et de visualiser l'évolution des dislocations et des macles dans nos échantillons en fonction de la direction de sollicitation. Lors de ces essais les films minces sont autoportés ce qui crée de fortes perturbations générées par exemple par des fissures. Nous avons ensuite comparé les résultats des deux expériences pour proposer une interprétation aux observations et pour différencier les phénomènes intrinsèques au matériau des phénomènes liés aux dispositifs expérimentaux.

Mots clés : Films minces, Macles, Diffraction de rayons X, Traction *in situ*, microscopie électronique en transmission

Abstract

Thin Films are frequently used in microelectronics, and plastic phenomena created during deformation can alter their properties. This is why there are still very much studied. Thin films have mechanical behavior different than bulk materials because of their nanometric thickness. This small dimension gives to the surface of the studied objects, a significant impact on the plasticity. This work focuses on plasticity evolution inside of a single crystal gold thin films during mechanical test, with a stronger focus on the phenomena related to twins. At first we developed a process to *in situ* evaluate the evolution of the twinned volume in a sample from pole figures during a biaxial tensile test. This experiment takes place on the DiffAbs beamline of the SOLEIL synchrotron facility. This beamline has a biaxial tensile device that allows to *in situ* deform a polyimide substrate that transmits the applied deformation to the studied thin films. We compared different tensile orientations to see the different possible evolutions related to the different Schmid factors. We observed a strong anisotropic twinning behavior related to the tensile direction. Moreover we observed an untwinning effect during the unloading of the tensile test. In a second time, we studied our samples during *in situ* uniaxial tensile tests in a transmission electron microscope at CEMES at Toulouse. This second experiment gave us the opportunity to study our sample at a crystallographic defect scale. We observed the evolution of dislocations and twins related to the tensile direction. Thin films are self-supporting during these tests that create strong perturbation as crack for example. Then we compared the results of the two experiment to submit an explanation to observations and to separate material dependent phenomena from phenomena dependent of the experimental set up.

Keywords : Thin films, Twins, X Ray Diffraction, In situ tensile test, Transmission electron microscopy