



# Etude des Inhomogénéités de Déformation dans les Films Minces Polycristallins par Diffraction X Cohérente

Nicolas Vaxelaire

► **To cite this version:**

Nicolas Vaxelaire. Etude des Inhomogénéités de Déformation dans les Films Minces Polycristallins par Diffraction X Cohérente. Matière Condensée [cond-mat]. Université Paul Cézanne - Aix-Marseille III, 2011. Français. <tel-00622848>

**HAL Id: tel-00622848**

**<https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00622848>**

Submitted on 12 Sep 2011

**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.

UNIVERSITE PAUL CEZANNE AIX-MARSEILLE 3  
ÉCOLE DOCTORALE DE PHYSIQUE ET DE SCIENCES DE  
LA MATIERE

# Etude des Inhomogénéités de Déformation dans les Films Minces Polycristallins par Diffraction X Cohérente

T H È S E

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université Paul Cézanne

Mention : PHYSIQUE ET SCIENCES DE LA MATIÈRE

Présentée et soutenue par

Nicolas VAXELAIRE

le 2 Mai 2011

Thèse dirigée par le professeur Olivier THOMAS

**Jury :**

<i>Rapporteur :</i>	Philippe GOUDEAU	Directeur de Recherche CNRS
<i>Rapporteur :</i>	David LE BOLLOC'H	Chargé de Recherche CNRS
<i>Directeur de thèse :</i>	Olivier THOMAS	Professeur
<i>Co-Encadrant :</i>	Stéphane LABAT	Maître de conférence
<i>Examineur :</i>	Sylvain RAVY	Directeur de Recherche CNRS
<i>Examineur :</i>	Samuel FOREST	Directeur de Recherche CNRS
<i>Examineur :</i>	Vincent FAVRE-NICOLIN	Maître de conférence
<i>Invité :</i>	Henry PROUDHON	Chargé de Recherche CNRS



## Remerciements

Je remercie chaleureusement les membres de mon jury d'avoir accepté de lire et de critiquer ce travail de thèse. Merci à Sylvain Ravy, Samuel Forest, Henri Proudhon, Vincent Favre-Nicolin et aux deux rapporteurs Philippe Goudeau et David Le Bolloc'h.

Je remercie très sincèrement Olivier Thomas et Stéphane Labat de leur contribution essentielle à mon travail. Grâce à eux, j'ai eu la grande chance de travailler sur un sujet particulièrement riche, varié et intéressant. Ils m'ont permis d'effectuer des expériences de pointe au synchrotron Soleil et à l'ESRF. Leur encadrement a été très pertinent, j'ai beaucoup appris auprès d'eux. Nos échanges réguliers ont été pour moi une grande source d'inspiration et de motivation. Stéphane a répondu patiemment aux nombreuses questions que je n'ai cessé de lui poser tout au long de mon travail de thèse. Travailler avec eux fut particulièrement agréable. Je les remercie également de m'avoir fait confiance et laissé une grande liberté dans ma manière de travailler. J'ai eu la chance de pouvoir exposer nos avancés lors de conférences nationales et internationales à plusieurs reprises. Je les remercie aussi pour leur grand travail de relecture du manuscrit. J'espère continuer à collaborer avec eux dans le futur.

Je remercie vivement Marc Gailhanou qui m'a fait partager ses nombreuses connaissances expérimentales, théoriques et pratiques de la diffraction X. J'ai beaucoup appris à son contact. Son aide sur les aspects informatiques (linux) et de programmation (python) m'ont permis de nombreux fois de me sortir de point de blocage.

Je remercie Virginie Chamard pionnière dans la diffraction cohérente. Elle m'a aidé sur les aspects inversion et reconstruction de phase qui tiennent une place très importante dans mon travail de thèse.

Je remercie Olivier Perroud et Marie-Ingrid Richard avec qui j'ai eu de nombreuses conversations instructives et également tous les membres de l'équipe contraintes dans les objets de petites dimensions pour tous les moments chaleureux que nous avons passé ensemble.

Je remercie Sylvain Ravy, Vincent Jacques, Frédéric Picca qui nous ont encadré lors des deux campagnes de mesure effectuées au synchrotron Soleil. Nous avons eu la chance d'être parmi les premiers utilisateurs extérieurs pour des expériences de cohérence sur la ligne Cristal. Nous avons ainsi bénéficié de tout leur travail effectué sur la ligne.

Je remercie Ana Diaz, Cristian Mocuta, Thomas Cornélius, Till Metzger, Tobias Schulli de la ligne ID01 de l'ESRF. Nous avons effectué trois campagnes de mesures sur la ligne lors de ce projet. Leur soutien a été indispensable pour le succès de ces expériences difficiles. Nous avons bénéficié de leur travail d'optimisation de la ligne, ce qui nous a permis d'obtenir de très bonnes données à analyser. Merci encore.

Je remercie Samuel Forest et Henry Proudhon du centre des matériaux de l'école des mines de Paris. Nous avons par le GDR mécano initié une collaboration très fructueuse concernant la simulation éléments finis du champ de déplacement de structures

polycristallines puis du calcul du signal de diffraction cohérente d'un grain unique. J'ai effectué un séjour d'un mois au centre des matériaux pour prendre en main le code Zebulon et commencer les calculs. Merci à Henry pour son dynamisme et son enthousiasme.

Je remercie Jozeph Keckes, Christophe Kirchlechner de l'institut Eric Schmidt-Université de Leoben. Ils nous ont fourni les échantillons d'or. Christophe a réalisé le décapage FIB des échantillons S1,S2 , P3 et les mesures EBSD sur l'échantillon P3. J'ai également effectué une expérience de micro-diffraction Laue avec Jozeph sur BM32 au début de ma thèse. Je remercie Christian Domici pour son assistance lors des mesures de microscopie électronique à balayage effectuées au CP2M.

Mes parents, mes tantes, mon oncle, mes soeurs Juliette et Cécile, Virginie, Stéphane, Eloi, Emilie, Elise, Alban et François m'ont beaucoup soutenu tout au long de ma thèse.

## Liste des abbréviations

– EBSD	Electron BackScattering Diffraction
– SEM	Scanning Electron Microscopy
– TEM	Transmission Electron Microscopy
– CBED	Convergent Beam Electron Diffraction
– GPA	Geometric Phase Analysis
– FIB	Focused Ion Beam
– FEG	Field Emission Gun
– CVD	Chemical Vapor Deposition
– MBE	Molecular Beam Epitaxy
– XPCS	X-ray Photon Correlation Spectroscopy
– CBI	Coherent Bragg Imaging
– FEM	Finite Element Method
– DDD	Discrete Dislocation Dynamics
– FFT	Fast Fourier Transform
– ER	Error Reduction Algorithm
– HIO	Hybrid Input Output Algorithm
– mHIO	Hybrid Input Output Algorithm version Milane
– DM	Difference Map Algorithm
– RR	Réseau Réciproque
– RD	Réseau Direct

## Liste des Notations

– $\sigma_{Nu}^{over}$	Rapport d'échantillonnage dans la direction Nu
– $\sigma^{source}$	Taille rms de la source optique (en $\mu m$ )
– $\sigma$	Contrainte (en GPa)
– $\varepsilon^{beam}$	Divergence du faisceau (mrad)
– $\varepsilon$	Déformation (en % )
– $L^{Opt}$	Chemin optique (en m)
– $\xi_{\perp}$	Longueur de cohérence transversale (ou perpendiculaire )
– $\xi_{//}$	Longueur de cohérence longitudinale (ou temporelle ou parallèle)
– $\vec{q}$	Vecteur de diffusion
– $\vec{k}_i$	Vecteur d'onde incident
– $\vec{k}_f$	Vecteur d'onde diffracté
– $\vec{G}_{111}$	Vecteur de Bragg 111
– $\beta^*$	Largeur intégrale d'un pic de diffraction
– $FWHM$	Full Width at Half Maximum (Largeur à mi-hauteur)
– $F_s(\vec{q})$	Facteur de Structure



# Table des matières

Remerciements . . . . .	i
Liste des abbréviations . . . . .	iii
Liste des Notations . . . . .	iii
<b>Introduction</b>	<b>i</b>
<b>1 Films minces polycristallins</b>	<b>1</b>
1.1 Microstructure . . . . .	1
1.1.1 Tailles de grains . . . . .	2
1.1.2 Texture des polycristaux . . . . .	3
1.2 Elasticité cristalline . . . . .	8
1.2.1 Grandeurs tensorielles . . . . .	8
1.2.2 Elasticité - Cas du monocristal cubique . . . . .	9
1.2.3 Cas des polycristaux . . . . .	13
1.2.4 Aspects énergétiques . . . . .	14
1.3 Plasticité cristalline . . . . .	16
1.4 Comportements mécaniques en température . . . . .	19
1.4.1 Propriétés thermiques des matériaux . . . . .	19
1.4.2 Réponse mécanique d'un film supporté à un cycle thermique . . . . .	20
1.5 Simulations Elements Finis . . . . .	22
<b>2 Diffraction des rayons X</b>	<b>25</b>
2.1 Propriétés de cohérence d'un faisceau X . . . . .	26
2.2 Diffusion par un cristal-Diffraction cinématique . . . . .	27
2.2.1 Diffusion par un électron . . . . .	28
2.2.2 Diffusion par un atome . . . . .	28
2.2.3 Diffusion par un cristal . . . . .	30
2.3 Mesures de déformations et de contraintes par diffraction X classique . . . . .	32
2.3.1 Cas d'un monocristal . . . . .	33
2.3.2 Cas des polycristaux . . . . .	35
2.4 Mesures de texture avec les rayons X . . . . .	38
2.4.1 Figure de Pôle . . . . .	38
2.4.2 Microdiffraction Laue . . . . .	39
2.5 Diffraction par un grain unique - Diffraction cohérente . . . . .	40
2.5.1 Somme cinématique et transformée de Fourier . . . . .	40
2.5.2 Calcul de différentes réflexions à partir d'un cristal orienté dans le repère du laboratoire . . . . .	42
2.5.3 Signatures spécifiques du signal de diffraction . . . . .	43
2.5.4 Effet de l'indice de réfraction . . . . .	46
2.5.5 Calcul en tenant compte les imperfections du faisceau incident . . . . .	46



<b>3</b>	<b>Réalisations expérimentales</b>	<b>49</b>
3.1	Mesures dans l'espace réciproque avec des goniomètres . . . . .	49
3.2	Caractéristiques des dispositifs expérimentaux utilisés . . . . .	52
3.2.1	Les deux montages de laboratoire . . . . .	53
3.2.2	Montages Synchrotron . . . . .	56
3.2.3	Cohérence des faisceaux utilisés . . . . .	61
3.3	Les détecteurs . . . . .	63
3.3.1	Les détecteurs 1D . . . . .	64
3.3.2	Détecteur de fluorescence multi-canal . . . . .	64
3.3.3	Les détecteurs 2D . . . . .	65
3.3.4	Indexation en $\mathbf{q}$ d'un pic de diffraction . . . . .	68
3.4	Environnement échantillon . . . . .	71
<b>4</b>	<b>Analyse multi-échelle des déformations dans des films minces polycristallins d'or</b>	<b>75</b>
4.1	Caractérisations générales des échantillons . . . . .	76
4.1.1	Aspects morphologiques par microscopie électronique . . . . .	77
4.1.2	Caractérisation de la texture . . . . .	79
4.2	Caractérisations des déformations et des contraintes moyennes . . . . .	82
4.2.1	Etat de contrainte résiduelle . . . . .	82
4.2.2	Comportement thermique moyen . . . . .	87
4.3	Etude des déformations moyennes de grains uniques . . . . .	91
4.3.1	Analyse des anneaux de Debye . . . . .	91
4.3.2	Inhomogénéités inter-grain à température ambiante . . . . .	93
4.3.3	Evolutions avec la température . . . . .	95
4.3.4	Discussion . . . . .	97
4.4	Stratégie en vue de l'identification du grain diffractant . . . . .	98
4.5	Etude intra grain : Diffraction cohérente . . . . .	104
4.5.1	Aspects tomographiques . . . . .	105
4.5.2	Mesures de plusieurs réflexions d'un même grain . . . . .	115
4.5.3	Mesures expérimentales des hautes fréquences . . . . .	118
4.5.4	Diffraction cohérente en température . . . . .	118
4.5.5	Résultats complémentaires sur l'échantillon P3 . . . . .	123
4.6	Simulations Eléments Finis et diffraction cohérente . . . . .	126
4.7	Grains très déformés . . . . .	128
<b>5</b>	<b>Imagerie Cohérente en condition de Bragg : cas d'échantillons fortement déformés</b>	<b>133</b>
5.1	Principes généraux de la reconstruction de phase . . . . .	134
5.1.1	Echantillonnage . . . . .	134
5.1.2	Algorithmique . . . . .	136
5.1.3	Détermination du support . . . . .	139
5.1.4	Affinement dynamique du support : ShrinkWrap . . . . .	140
5.2	Etude numérique : Cas d'échantillons fortement déformés . . . . .	142

5.2.1	Influence du niveau de déformation de l'objet - Cas 2D . . . .	142
5.2.2	Analyse quantitative des résultats . . . . .	146
5.2.3	Discussion . . . . .	152
5.3	Aspects numériques et temps de calcul . . . . .	154
5.4	Revue de la littérature - Reconstruction de phase en géométrie de Bragg . . . . .	158
5.4.1	Travaux 2D . . . . .	158
5.4.2	Travaux 3D . . . . .	161
5.4.3	Conclusion . . . . .	164
5.5	Application aux données collectées sur les films polycristallins d'or .	165
5.5.1	Reconstruction SW sur grain de S1 . . . . .	166
5.5.2	Reconstruction 3D en température sur le grain #g1 de P3 . .	168
5.5.3	Discussion méthodologique . . . . .	175
5.6	Techniques connexes et problématiques émergentes . . . . .	177
5.6.1	Holographie . . . . .	177
5.6.2	Ptychographie . . . . .	178
<b>Conclusion</b>		<b>181</b>
	Perspectives . . . . .	182
<b>A Compléments d'élasticité</b>		<b>185</b>
A.1	Chargement thermique - Cas isotrope . . . . .	185
A.2	Tenseurs rigidité et souplesse dans un repère quelconque . . . . .	185
A.3	Calcul analytique complet . . . . .	186
A.3.1	Rigidité C . . . . .	187
<b>B Résultats complémentaires de diffraction cohérente</b>		<b>189</b>
B.1	Echantillons polycristallins . . . . .	189
B.1.1	Grain (100) de l'échantillon S0 . . . . .	189
B.1.2	Grain (111) de l'échantillon S1 . . . . .	189
B.1.3	Grain (100) d'un film mince de cuivre . . . . .	193
B.2	Autres chargements mécaniques . . . . .	193
B.2.1	Micropilier . . . . .	193
B.2.2	Essai de traction sur film de cuivre polycristallin déposé sur kapton . . . . .	194
	Communications . . . . .	196
<b>Bibliographie</b>		<b>197</b>
	Liste des figures . . . . .	211
	Liste des tableaux . . . . .	214



# Introduction

Sonder les champs de déformations aux échelles nanométriques dans les matériaux est un enjeu important dans de nombreux domaines. Un grand nombre de propriétés physiques (magnétiques, optiques, électroniques ...) sont en effet dépendantes de l'état de déformation local. Par ailleurs, le développement des nanosciences rend nécessaire le développement d'un outil d'imagerie des déformations à 3 dimensions fiable et versatile à l'échelle nanométrique. Il s'agit d'un véritable défi expérimental. Parmi les matériaux présentant de fortes inhomogénéités locales de déformations, les films minces métalliques sont omniprésents dans de nombreuses applications. Ils sont largement utilisés en microélectronique et sont constitutifs de nombreux traitements de surface. La plupart du temps ces films minces métalliques présentent des structures polycristallines complexes dont le comportement mécanique est subtil. En particulier, le comportement mécanique des grains individuels est mal connu. Par exemple l'apparition de micro-fissures dans les lignes polycristallines d'interconnexion de cuivre dans les circuits intégrés est encore mal comprise. La réponse des grains uniques aux sollicitations mécaniques extérieures doit donc être comprise pour fiabiliser les dispositifs soumis à des sollicitations mécaniques (élaboration, thermo-fatigue... ).

**Techniques de détermination de champ de déformation** Les techniques de microscopie ont été largement utilisées pour caractériser localement les petits objets. Les microscopes électroniques à transmission atteignent désormais des résolutions très impressionnantes dans l'espace direct et l'espace réciproque grâce aux progrès des corrections d'aberrations. Les tailles de sonde (faisceaux) sont très faibles ( $< 0.1\text{\AA}$ ). En mode haute résolution, la fraction d'angstrom est atteinte dans l'espace direct. Ces cartes haute résolution peuvent être traitées numériquement par la technique dite de *Geometrical Phase Analysis (GPA)* [Hytch 2003]. Dans ce cas, les composantes du champ de déplacement  $\vec{u}$  en sont déduites avec des précisions de l'ordre de quelques picomètres. Dans le domaine des polycristaux, les travaux décrits dans l'article [Rösner 2010] montrent une reconstruction des déformations dans le plan d'un grain de  $24\text{ nm}$  de palladium avec une résolution de  $2\text{ nm}$ . Ce grain comporte des macles qui introduisent localement des déformations allant jusqu'à  $0.8\%$ . Cependant les techniques de microscopie à transmission présentent des limitations majeures : la faible pénétration des électrons dans la matière et les effets dynamiques rendent les analyses quantitatives particulièrement ardues. Il est donc difficile d'étudier des objets de plus de  $100\text{ nm}$  d'épaisseur. Les objets doivent être amincis. Ils sont donc modifiés. Les analyses à 3 dimensions sont également complexes à mettre en oeuvre.

Dans ce contexte, les techniques basées sur la diffraction des rayons X peuvent être particulièrement complémentaires. Elles permettent d'étudier des objets sans préparation ou amincissement car les rayons X interagissent peu avec la matière. Des échantillons épais peuvent être étudiés à 3 dimensions. Les analyses quanti-

tatives sont également plus faciles : dans la plupart des cas les effets dynamiques sont négligeables. En géométrie de Bragg, la diffraction X est très sensible à l'ordre atomique. La résolution dans l'espace réciproque est très bonne (jusqu'à  $10^{-5} \text{Å}^{-1}$ ). Des mesures de déformation très précises peuvent en être déduites. La résolution dans l'espace direct est alors déterminée par la taille du faisceau (méthode type balayage). Au rayonnement synchrotron, les plus petits faisceaux couramment utilisés sont autour de la centaine de  $nm$ . D'autres part, les techniques d'imagerie X classiques à l'ordre zéro (micro-tomographie par contraste d'absorption, par contraste de phase ...) restent peu résolues dans l'espace direct avec des résolutions autour du micron. Cette résolution d'imagerie est notamment limitée par les détecteurs.

**Diffraction Cohérente** Cette limite de résolution dans l'espace direct peut être cependant contournée de manière astucieuse. En toute généralité lors d'une expérience de diffraction, seule l'intensité de l'onde diffractée est mesurée. La partie complexe de son amplitude (ou phase) est perdue. Cependant en tirant avantage d'une extension du théorème d'échantillonnage de Shannon, il est possible de reconstruire cette phase numériquement. Un faisceau cohérent est nécessaire et il faut mesurer une cartographie spécifique de l'espace réciproque. Il est alors possible de reconstruire en 3 dimensions des objets micrométriques avec des résolutions d'une dizaine de nanomètres dans l'espace direct. Cette technique appelée imagerie X cohérente (CXRI) est très récente [Miao 1999]. En géométrie de Bragg, le signal est sensible non seulement au contraste de densité électronique mais également au champ de déplacement interne à l'objet [Pfeifer 2006]. Cette technique a pu être transposée au domaine des rayons X grâce à l'émergence des sources synchrotron de troisième génération telles que l'European Synchrotron Radiation Facility à Grenoble, ou encore le synchrotron Soleil à Orsay. Ce type de synchrotron peut en effet fournir sur les lignes de lumière dédiées un faisceau monochromatique présentant un haut degré de cohérence et un flux suffisant pour étudier des objets de petites dimensions (ligne ID01 à l'ESRF ou la ligne Cristal à Soleil).

**Objectifs** Dans ce contexte, il semblait particulièrement attractif de tester cette nouvelle technique sur des échantillons polycristallins. Une telle approche semble adaptée aux questions ouvertes concernant le comportement local de grains uniques.

Ainsi l'objectif général de ce travail de thèse est de caractériser expérimentalement et quantitativement le champ de déplacement  $\vec{u}(x, y, z)$  d'un grain unique sub-micronique d'un polycristal par imagerie cohérente en condition de Bragg lors d'une sollicitation thermo-mécanique.

Le point de départ de cette étude est inédit dans la littérature. Jusqu'à présent, seuls des échantillons isolés dans l'espace direct ont été mesurés avec cette technique d'imagerie cohérente. Dans le cas de films polycristallins, est-il possible d'imager un grain unique entouré de nombreux grains similaires? Est-il possible de savoir exactement quel grain diffracte? Les mesures à 3 dimensions sont complexes et

---

relativement longues. Le suivi in-situ lors d'un cycle thermique en 3D est-il possible ? Par ailleurs, les questions ouvertes sont encore nombreuses. Quelles résolutions dans l'espace direct sont accessibles ? Les procédures de reconstructions convergent-elles dans le cas d'objets présentant de fortes inhomogénéités de déformation ? Quels sont les meilleurs algorithmes ? Comment quantifier, vérifier les reconstructions ? Quelle est la précision du champ de déplacement reconstruit ? Quel est l'influence du bruit ? ...

**Approche et Structure** Les aspects méthodologiques ont donc une place centrale dans ce travail. Une méthodologie expérimentale a été mise en oeuvre pour suivre le signal de cohérence 3D d'un grain unique d'un film mince d'or lors d'un test in-situ. Les aspects géométriques ont été étudiés précisément. Une stratégie a été mise en place pour déterminer quel grain diffracte parmi les millions que comporte un film polycristallin. Une méthodologie d'analyse spécifique par reconstruction de phase a été développée dans le cas des échantillons fortement déformés. Des simulations numériques ont donc été nécessaires tout au long de ce travail. La mise en perspective des résultats de diffraction cohérente a été également un point important. Les techniques plus classiques de diffraction ont été utilisées pour caractériser les échantillons de manière complémentaire à une autre échelle.

Les deux premiers chapitres introduisent les aspects généraux sur les films minces, la mécanique et la diffraction X nécessaires à la compréhension du comportement des polycristaux, des techniques et des analyses réalisées. Le troisième chapitre est focalisé sur les aspects expérimentaux de la diffraction cohérente, de la micro-diffraction monochromatique, et l'analyse des déformations avec une source de laboratoire. Les deux chapitres suivants exposent les différents résultats obtenus. Ils s'appuient largement sur l'ensemble des notions introduites lors des trois premiers chapitres. Dans le chapitre 4, les caractérisations initiales des échantillons (morphologie, texture, contraintes résiduelles ...) sont exposées. Des résultats de micro-diffraction sur une vingtaine de grains obtenus en synchrotron sont ensuite décrits. Les déformations mesurées pourront alors être comparées à différentes échelles. Une étude par éléments finis permet de simuler le signal de diffraction cohérente à partir de champs de déplacements réalistes. Le chapitre 5 est un chapitre entièrement consacré aux techniques de reconstruction de phase. Il est axé sur l'imagerie en condition de Bragg. Après un rappel des généralités, une étude quantitative numérique est exposée. Elle permet d'évaluer la robustesse des procédures dans le cas d'échantillons fortement déformés. Les aspects numériques et une revue de la littérature permet ensuite d'approfondir différents aspects de cette technique. Finalement, les reconstructions à 3 dimensions des données expérimentales sont décrites et analysées. En particulier, les évolutions en température du champ de déplacement  $u_z(x, y, z)$  sont décrites lors d'un cycle thermique pour un grain unique sub-micronique. Une conclusion résume les principaux résultats de ce travail et discute les perspectives qu'il ouvre.



# Films minces polycristallins

---

## Sommaire

---

<b>1.1</b>	<b>Microstructure</b> . . . . .	<b>1</b>
1.1.1	Tailles de grains . . . . .	2
1.1.2	Texture des polycristaux . . . . .	3
<b>1.2</b>	<b>Elasticité cristalline</b> . . . . .	<b>8</b>
1.2.1	Grandeurs tensorielles . . . . .	8
1.2.2	Elasticité - Cas du monocristal cubique . . . . .	9
1.2.3	Cas des polycristaux . . . . .	13
1.2.4	Aspects énergétiques . . . . .	14
<b>1.3</b>	<b>Plasticité cristalline</b> . . . . .	<b>16</b>
<b>1.4</b>	<b>Comportements mécaniques en température</b> . . . . .	<b>19</b>
1.4.1	Propriétés thermiques des matériaux . . . . .	19
1.4.2	Réponse mécanique d'un film supporté à un cycle thermique . . . . .	20
<b>1.5</b>	<b>Simulations Elements Finis</b> . . . . .	<b>22</b>

---

Un polycristal ou matériau polycristallin est un matériau solide constitué d'une multitude de petits cristaux appelés cristallites ou grains de tailles et d'orientations variées. Un matériau monocristallin est par opposition constitué d'un seul et unique cristal. Les grandeurs nécessaires à la caractérisation de ces matériaux seront définies dans ce premier chapitre introductif. Certaines techniques classiques permettant de quantifier ces grandeurs seront évoquées. Les comportements élastiques et plastiques seront ensuite rappelés pour les cristaux. Le cas des sollicitations thermo-mécaniques fera l'objet d'un paragraphe plus détaillé.

Cette description sera limitée aux cas des films minces polycristallins cubiques supportés. Cette restriction permet de limiter les cas dans les études mécaniques et de texture (symétries, aspects cristallographiques). Un grand nombre de métaux usuels (aluminium, cuivre, argent, or ...) adoptent une structure cubique.

## 1.1 Microstructure

Les films polycristallins peuvent présenter des microstructures (morphologie et texture) très diverses. Ces deux aspects sont directement liés à la technique d'élaboration, au substrat et à l'historique des traitements thermiques que le film a subi.



**Substrat** Les substrats en silicium sont les plus courants compte tenu de leur omniprésence en micro-électronique. Il s'agit de mono-cristal de Si très purs et présentant très peu de défauts. Ils peuvent être orientés [111], [110] ou [100]. D'autres semi-conducteurs sont également courants : Germanium, GaAs... Ces substrats ont une bonne tenue en température et se dilatent peu en comparaison des métaux. Des oxydes tel que le saphire ( $Al_2O_3$ ), le  $MgO$  ... peuvent être également utilisés. Ils sont moins parfaits et se dilatent plus en température. La différence de comportement thermique entre le film et son substrat a un rôle prépondérant sur le comportement thermomécanique de l'échantillon (cf §. 1.4).

Des substrats dits "mous" (typiquement en polyimide (Kapton)) peuvent également être utilisés. On parle de substrats mous à cause de leur faible module de Young comparé à celui du silicium (dit substrat dur) mais ils peuvent rester théoriquement<sup>1</sup> élastiques jusqu'à 3% de déformation. Cette particularité est très intéressante pour réaliser des tests de traction et étudier les phénomènes de plasticité des films.

**Elaboration** La manière d'élaborer le film a également une grande importance. Les films sont généralement obtenus par différentes étapes de dépôt sous vide. Les techniques les plus utilisées sont les suivantes : le dépôt CVD (Chemical Vapor Deposition), le dépôt MBE (Molecular Beam Epitaxy), le dépôt par pulvérisation cathodique (Sputtering) ... Les variantes sont très nombreuses selon le type de matériaux et les objectifs souhaités. La température de dépôt et la nature du substrat influencent fortement la mobilité atomique en surface des atomes déposés. Cette mobilité atomique joue un rôle essentiel sur la cristallisation, la germination, la croissance de grains ... Souvent les films subissent après dépôt des étapes de recuit.

Au final, la microstructure est le fruit complexe de tous ces paramètres. C'est pourquoi, il est nécessaire de les caractériser en détail éventuellement en vue d'optimiser les processus d'élaboration.

### 1.1.1 Tailles de grains

La microscopie électronique à balayage (MEB) est une technique de choix pour étudier les microstructures. Un faisceau électronique frappe la surface de l'échantillon en incidence normale. Deux modes sont utiles dans le cas d'une étude de structure polycristalline. La détection des électrons secondaires est sensible au contraste topographique de la surface. Les joints de grains peuvent être repérés de cette manière. La détection des électrons rétrodiffusés permet par contraste de canalisation d'être sensible aux orientations des grains. Les deux types d'images peuvent être comparées avantageusement.

Par traitement d'images (cf §. 4.1.1) un squelette peut être construit à partir de ces images. On en déduit alors la forme des grains : leurs surfaces  $S_g$  et leurs diamètres équivalents  $D_g = 2\sqrt{\frac{S_g}{\pi}}$  peuvent être déterminés. Une étude statistique

<sup>1</sup>Dans la pratique, il peut être observé des effets de relaxation (hystérésis sur courbes charge/décharge) quelque soit le domaine de déformation avec des films de Kapton

peut être effectuée en répétant l'opération sur plusieurs zones de l'échantillon. La distribution de taille des grains suit souvent une loi de type log-normale :

$$f(x, \mu, \sigma) = \frac{e^{-(\ln x - \mu)^2 / (2\sigma^2)}}{x\sigma\sqrt{2\pi}}$$

où  $\mu$  et  $\sigma$  représente la moyenne et l'écart type du logarithme de la variable  $x$  représentative du diamètre équivalent des cristallites. Les paramètres  $\mu$  et  $\sigma$  sont alors reliés à la moyenne de  $D_{eq}$  suivant la relation  $e^{\mu + \sigma^2/2}$  et la variance suivant  $(e^{\sigma^2} - 1)e^{2\mu + \sigma^2}$ .<sup>2</sup>

Cependant parfois certains phénomènes comme la croissance anormale de grains peuvent faire apparaître une distribution statistique multi-modale. Les grains appartenant à une orientation minoritaire peuvent être beaucoup plus grands que les grains appartenant à l'orientation majoritaire. Enfin, suivant les conditions de croissance (température en particulier), une structure colonnaire pour laquelle les grains ont l'épaisseur du film peut être observée.

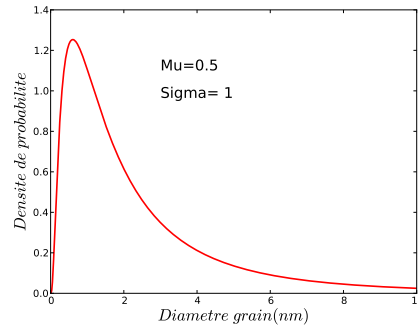


FIG. 1.1 – Densité de probabilité pour une loi Log-Normale

### 1.1.2 Texture des polycristaux

Caractériser la texture d'un échantillon revient à caractériser l'orientation cristalline des grains. Il est impossible d'obtenir l'information pour chacun des millions de grains à l'échelle de l'échantillon. Il est possible en revanche d'obtenir soit des informations moyennes soit des informations locales.

**Notations utilisées** Les notations classiques de cristallographie seront utilisées. Soit un cristal décrit par sa maille  $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$  :

- $[uvw]$  représente un vecteur direction cristalline construite sur  $u\vec{a} + v\vec{b} + w\vec{c}$
- $\langle uvw \rangle$  représente la famille de direction équivalente à la direction  $[uvw]$
- $(hkl)$  fait référence au plan coupant les axes  $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$  en  $(1/h, 1/k, 1/l)$
- $\{hkl\}$  fait référence à la famille de plan équivalente au plan  $(hkl)$

Les notations connexes choisies seront les suivantes<sup>3</sup> :

- une réflexion de Bragg sera simplement écrite  $hkl$

<sup>2</sup>Réciproquement on a les relations :

$$\mu = \ln(E(X)) - \frac{1}{2} \ln \left( 1 + \frac{\text{Var}(X)}{(E(X))^2} \right) \quad \sigma^2 = \ln \left( \frac{\text{Var}(X)}{(E(X))^2} + 1 \right)$$

<sup>3</sup>notation assez variable dans la littérature

- l'orientation d'une famille de grains sera donné par les plans  $(hkl)$  parallèles à la surface

**Projection stéréographique et angles d'Euler** La projection stéréographique est très efficace pour repérer l'orientation d'un cristal par rapport à un système d'axes. Elle permet de représenter la direction d'un vecteur de l'espace dans un graphe plan. Comme illustré dans la figure 1.2, il s'agit de projeter le point d'intersection entre le vecteur direction et la sphère des pôles sur le plan équatorial en utilisant le pôle appartenant à l'hémisphère opposée. Ainsi, une direction est repérée par une inclinaison et un azimuth  $(\psi, \phi)$ .

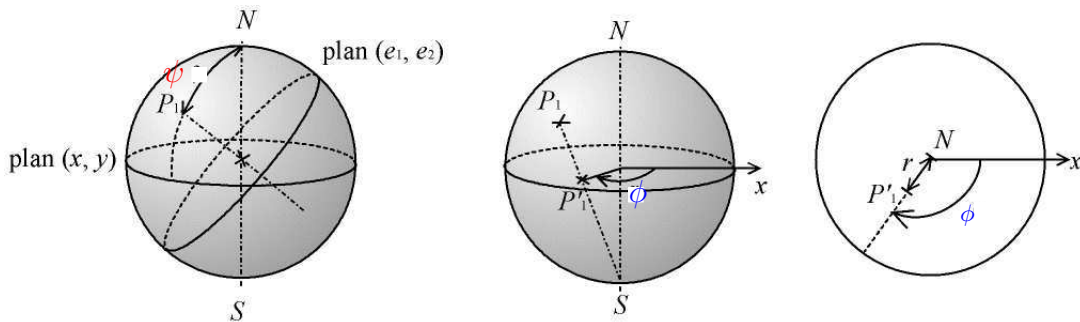


FIG. 1.2 – Principe de la projection stéréographique

A titre d'exemple, un film présentant une texture de fibre  $\langle 111 \rangle$  est schématisé sur la figure 1.3. Les grains  $\langle 111 \rangle$  sont majoritaires dans le film. Néanmoins comme le montre la coupe transversale, les directions  $\langle 111 \rangle$  ne sont pas parfaitement perpendiculaires à la surface et elles montrent une certaine dispersion. Cette dispersion angulaire est communément appelée mosaïcité. En revanche dans le plan du film, les directions cristallines sont aléatoirement réparties. Les directions  $\langle 1\bar{1}0 \rangle$  perpendiculaire aux directions  $\langle 111 \rangle$  pointent dans toutes les directions du plan (Fig 1.3b). Un grain  $\langle 100 \rangle$  et une macle  $\langle 511 \rangle$  ont été rajoutés.

Il est possible de représenter cet échantillon à l'aide d'une projection stéréographique d'axe  $\langle 111 \rangle$ . On parle également de figure de pôle  $\{111\}$  si on représente uniquement les plans de type  $\{111\}$  dans cette projection. Dans le cas du système cubique les normales aux plans  $\{111\}$  sont colinéaires aux directions  $\langle 111 \rangle$  et chaque grain possède 8 directions de type  $\langle 111 \rangle$ . Les directions  $[1\bar{1}1], [11\bar{1}]$  et  $[\bar{1}11]$  ont une inclinaison de  $70.53^\circ$  par rapport à la direction  $[111]$  et sont séparées en azimuth de  $120^\circ$ . Donc pour un grain de type  $111$ , on aura une contribution dans le centre ( $\psi \simeq 0$ ) de la figure et trois contributions dans un cône à  $70.54^\circ$  d'inclinaison. Pour une texture de fibre, le cône est continu puisque les grains sont orientés de manière aléatoire dans le plan du film. Pour le grain  $\langle 100 \rangle$  unique (en rouge sur le schéma), on aura 4 contributions dans un cône à  $54.74^\circ$  séparées de  $90^\circ$  en azimuth. Pour la macle  $\langle 511 \rangle$ , trois inclinaisons sont possibles  $38.9^\circ, 70.5^\circ$  avec une multiplicité

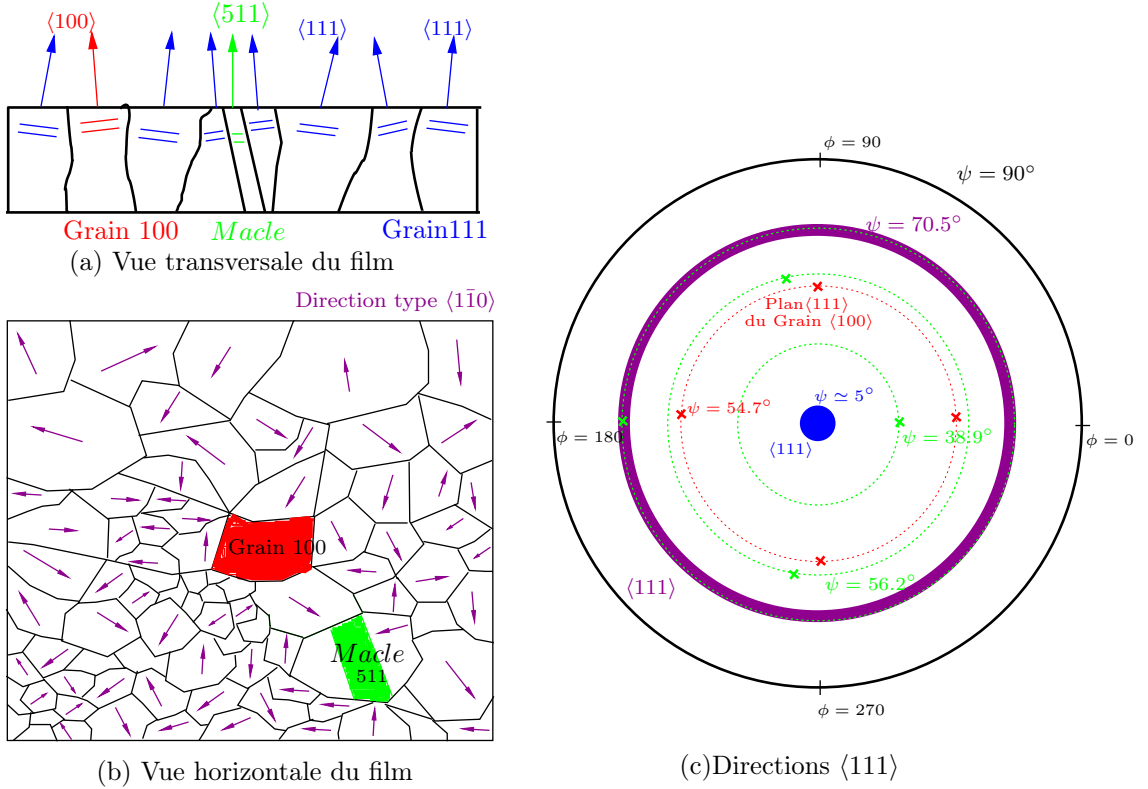


FIG. 1.3 – Film présentant une texture de fibre  $\langle 111 \rangle$  ainsi qu'un grain  $(100)$  et une macle dans un des grains  $(111)$

simple et  $56.2^\circ$  avec une multiplicité double.

**Les angles d'Euler** Pour exprimer l'orientation d'une cristallite quelconque dans le repère de l'échantillon, les angles d'Euler sont particulièrement utiles. Il s'agit d'une notation très utilisée en EBSD et  $\mu$ Laue. Il existe plusieurs conventions pour définir ces angles. La convention de Bunge sera ici utilisée  $(\phi_1, \Phi, \phi_2)$ . Il s'agit d'effectuer le changement de repère du repère du laboratoire au repère du cristal à l'aide de trois rotations successives suivant les axes  $z$ ,  $x'$  puis  $z''$  (Fig 1.4).

$$(x, y, z) \xrightarrow{\phi_1} (x', y', z' = z) \xrightarrow{\Phi} (x'' = x', y'', z'') \xrightarrow{\phi_2} (x''', y''', z''' = z'')$$

La matrice de changement de la base du cristal vers le repère lié à l'échantillon est alors de la forme suivante.

$$a = \begin{pmatrix} \cos(\phi_1) \cos(\phi_2) - \cos(\phi) \sin(\phi_1) \sin(\phi_2) & -\cos(\phi_1) \sin(\phi_2) - \cos(\phi) \cos(\phi_2) \sin(\phi_1) & \sin(\phi) \sin(\phi_1) \\ \cos(\phi_2) \sin(\phi_1) + \cos(\phi) \cos(\phi_1) \sin(\phi_2) & -\sin(\phi_1) \sin(\phi_2) + \cos(\phi) \cos(\phi_1) \cos(\phi_2) & -\cos(\phi_1) \sin(\phi) \\ \sin(\phi) \sin(\phi_2) & \cos(\phi_2) \sin(\phi) & \cos(\phi) \end{pmatrix}$$

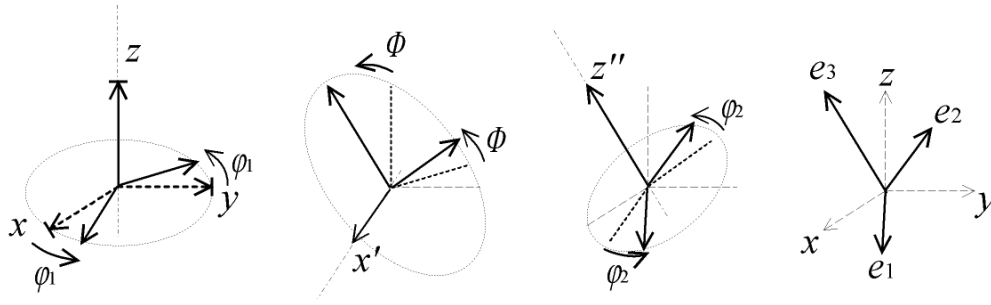


FIG. 1.4 – Les 3 rotations successives de la transformation d'Euler

**Macles** Pour un cristal cubique faces centrées les plans de macle correspondent aux directions d'empilement de type  $\langle 111 \rangle$ . L'empilement passe d'une structure régulière ABCABC à une structure BACBAC. Le joint de macle forme alors un miroir dans la structure cristalline (Fig 1.5a).

Le phénomène initial de formation des macles est une faute d'empilement. Ainsi, le nombre de macles sera d'autant plus important que son énergie de création sera faible <sup>4</sup>. Expérimentalement, on observe bien une proportion significative de macles dans les polycristaux d'or et de cuivre [Blandin 1966]. En terme géométrique, les matrices de changement de base du repère cristallographique du grain vers leurs macles correspondantes sont de la forme suivante (rotation de  $180^\circ$  autour de  $[111], [1\bar{1}1], [11\bar{1}]$  ou  $[\bar{1}11]$ ).

$$\Sigma_3^{111} = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} -1 & 2 & 2 \\ 2 & -1 & 2 \\ 2 & 2 & -1 \end{pmatrix} \quad \Sigma_3^{1\bar{1}1} = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} -1 & -2 & 2 \\ -2 & -1 & -2 \\ 2 & -2 & -1 \end{pmatrix}$$

<sup>4</sup>Energie de création de faute d'empilement  $E_{Au} = 32.10^{-3} J.m^{-2}$  et  $E_{Cu} = 45.10^{-3} J.m^{-2}$  (cf [Hirth 1992])

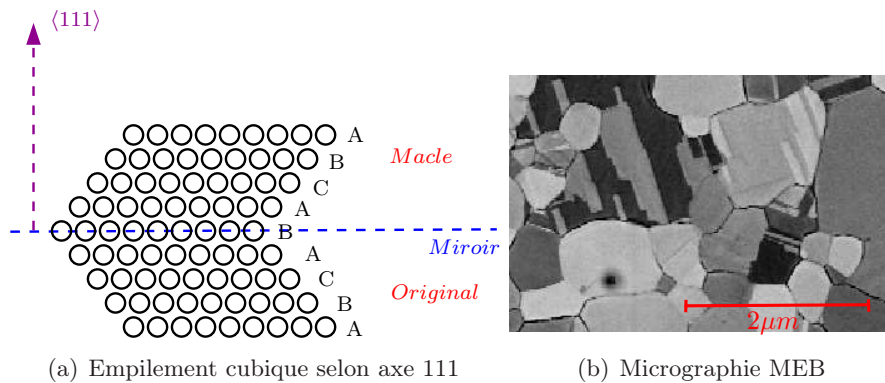


FIG. 1.5 – (a) Schéma illustrant l'apparition d'un plan de maclage dû à une faute d'empilement. (b) Exemple de macles dans un film polycristallin d'or.

$$\Sigma_3^{11\bar{1}} = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} -1 & 2 & -2 \\ 2 & -1 & -2 \\ -2 & -2 & -1 \end{pmatrix} \quad \Sigma_3^{\bar{1}11} = \frac{1}{3} \begin{pmatrix} -1 & -2 & -2 \\ -2 & -1 & 2 \\ -2 & 2 & -1 \end{pmatrix}$$

Ainsi, les directions  $[\bar{1}11]$  et  $[100]$  sont respectivement transformées en  $[5\bar{1}\bar{1}]$  et  $[\bar{1}22]$  dans une macle à joint  $\Sigma_3^{11\bar{1}}$ . En appliquant les autres matrices de transformation, les mêmes directions aux permutations circulaires près sont retrouvées. On parle de macle (511) pour les grains (111) et de macle (221) pour les grains (100).

Il est possible d'observer la macle d'une macle. On applique alors deux fois ces changements de base. Ces macles correspondent aux directions cristallines  $[11\ 11\ 1]$  ou  $[13\ 7\ 5]$  pour les grains (111) (on peut également retomber sur l'orientation initiale). On parle aussi de macle à joint  $\Sigma_9$ .

Les joints de macle sont souvent réguliers ce qui les différencie des joints de grains classiques qui sont plus irréguliers. Sur l'image MEB 1.5b acquise en détection des électrons rétrodiffusés, les macles apparaissent avec un fort contraste et présentent des joints nets. Cet aspect géométrique singulier a certainement une influence sur leurs comportements mécaniques (cf §.4.2.1).

**Moyens expérimentaux de caractérisations de la texture** Les techniques basées sur l'utilisation des rayons X sont particulièrement efficaces pour les mesures d'orientations cristallines (plus d'informations dans les prochains chapitres). En effet, le vecteur de diffusion  $q_{hkl}$  est colinéaire à la normale du plan  $(hkl)$ . On peut mesurer cette réflexion  $hkl$  pour différentes orientations  $(\psi, \phi)$ . De cette manière, on reconstruit une figure équivalente à celle présentée précédemment (Fig 1.3c). Il est possible de réaliser cette mesure sur plusieurs réflexions pour compléter les informations. Comme la précision angulaire est très bonne (cf §. 3.1), les informations sur la texture sont très précises.

La technique de microscopie EBSD (mesure des électrons rétrodiffusés en condition de diffraction) est également utilisable pour mesurer localement la texture d'un film métallique. Cette technique diffère de la microscopie électronique à balayage classique. Il s'agit de mesurer des électrons rétrodiffusés par l'échantillon en condition de diffraction avec une caméra CCD haute résolution. Les électrons qui satisfont la condition de Bragg diffractent dans un cône de demi-angle  $2\theta_{Bragg}$  qui intercepte le plan de la CCD suivant des lignes appelées lignes de Kikuchi. Ces lignes sont alors indexées par un logiciel intégré qui calcule l'orientation du cristal. Le résultat est donné sous forme d'angle d'Euler. Il est également possible de caractériser les déformations dans certains cas (les lignes de Kikuchi sont sensibles à la déformation). Néanmoins pour des échantillons métalliques en EBSD conventionnel, seule la carte des angles d'Euler est utilisable avec une résolution de l'ordre de quelques dixièmes de degré. La résolution spatiale de la carte obtenue dépend de la taille du faisceau électronique incident. Les microscopes équipés d'une source à effet de champ (FEG) sont les plus performants. Des cartographies  $(x, y)$  avec des pas de  $20nm$  sont possibles. Dans la pratique des effets de charge peuvent être très gênants lorsque les électrons ne sont pas bien évacués de la zone sondée. La technique est

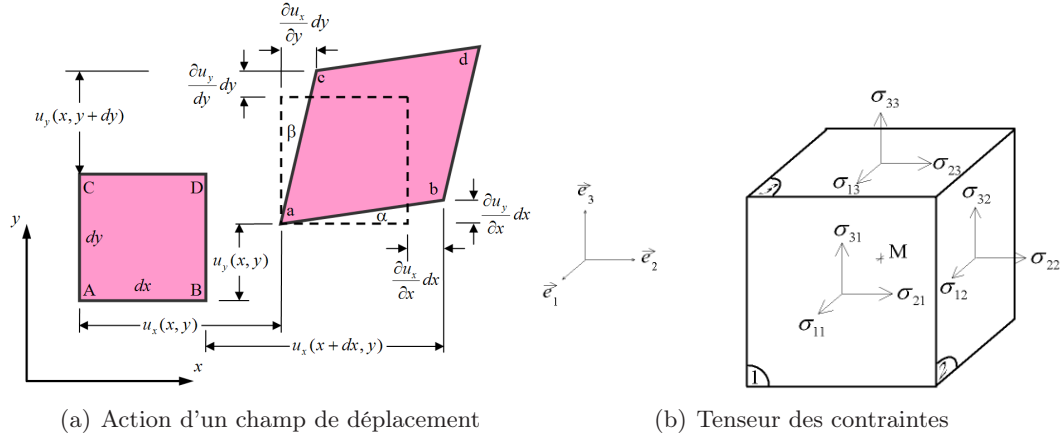


FIG. 1.6 – Schéma explicatif des tenseurs de déformation et de contrainte

alors inutilisable. D'autre part la longueur de pénétration du faisceau électronique dans l'échantillon reste faible quel que soit le matériau étudié : entre 10 – 30nm. Il s'agit donc d'une mesure de texture de surface. Des développements récents qui combinent EBSD et FIB [Zaefferer 2008] permet d'obtenir une information en 3 dimensions. Il s'agit alors d'une mesure destructive où chaque couche analysée en EBSD est progressivement supprimée avec le FIB.

## 1.2 Élasticité cristalline

En mécanique on parle d'élasticité lorsque les déformations subies par un solide lors d'une sollicitation sont réversibles. Lorsque l'on supprime la sollicitation le matériau revient dans son état initial. Dans le cas des petites déformations, ce phénomène peut être considéré comme linéaire. On parle alors d'élasticité linéaire ; les aspects généraux seront décrits dans le paragraphe suivant dans le cas des monocristaux puis des polycristaux.

### 1.2.1 Grandeurs tensorielles

**Tenseur des déformations** Lorsqu'un solide subit une transformation, il est intéressant d'introduire la notion de champ de déplacement. Soit  $\vec{r} = \vec{OA}$  le vecteur repérant un point A du solide (cf Figure 1.6) . Lors de la transformation ce vecteur se transforme en  $\vec{r}' = \vec{Oa}$ . On introduit alors le champ  $\vec{u}$  défini comme :

$$\vec{r}' = \vec{r} + \vec{u}(\vec{r})$$

Si on considère deux points infiniment voisins, cette relation peut être développée au premier ordre :

$$d\vec{r}' = (1 + \bar{g})d\vec{r}$$

Il est alors possible d'introduire le tenseur gradient de déplacements  $g_{ij} = \frac{\partial u_i}{\partial x_j}$  qui se décompose en une partie symétrique correspondant au tenseur des déformations et une partie anti-symétrique correspondant au tenseur de rotation :

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (1.1)$$

$$\omega_{ij} = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} - \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \quad (1.2)$$

La déformation est donc un tenseur symétrique d'ordre 2 de la forme :

$$\varepsilon_{ij} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{11} & \varepsilon_{12} & \varepsilon_{13} \\ \varepsilon_{12} & \varepsilon_{22} & \varepsilon_{23} \\ \varepsilon_{13} & \varepsilon_{23} & \varepsilon_{33} \end{pmatrix} \quad (1.3)$$

**Tenseur des contraintes** En mécanique des milieux continus, on utilise le tenseur des contraintes pour caractériser les efforts (ou force) qui s'exerce sur une surface quelconque en tout point du solide.

Dans le repère  $(\vec{i}, \vec{j}, \vec{k})$ , il s'exerce sur la face de normale  $\vec{j}$  et de surface  $S_j$  un vecteur-force  $\vec{F}_j$  qui a trois composantes :

$$\vec{F}_j = \begin{pmatrix} F_{1j} \\ F_{2j} \\ F_{3j} \end{pmatrix}$$

On définit alors le terme  $\sigma_{ij}$  comme étant la composante  $\frac{F_{ij}}{S_j}$ . Le tenseur des contraintes est donc un tenseur d'ordre 2 composé de 9 éléments :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{12} & \sigma_{13} \\ \sigma_{21} & \sigma_{22} & \sigma_{23} \\ \sigma_{31} & \sigma_{32} & \sigma_{33} \end{pmatrix}$$

Sur un petit élément de volume  $dx dy dz$  à l'équilibre, la somme des moments des efforts est nulle. On en déduit que  $\sigma_{12} = \sigma_{21}$ ,  $\sigma_{13} = \sigma_{31}$  et  $\sigma_{23} = \sigma_{32}$ . Le tenseur des contraintes est donc symétrique.

### 1.2.2 Elasticité - Cas du monocristal cubique

**Elasticité continue** L'élasticité continue correspond à une loi de comportement où la déformation et la contrainte sont reliées de manière linéaire. Plus précisément les deux tenseurs d'ordre 2, déformations et contraintes, sont reliés en élasticité linéaire par les tenseurs d'ordre 4, rigidité et souplesse, selon les deux relations suivantes :

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl} \varepsilon_{kl} \quad (1.4)$$

$$\varepsilon_{ij} = S_{ijkl} \sigma_{kl} \quad (1.5)$$



**Notation réduite, notation de Voigt** En toute généralité, un tenseurs d'ordre 4 possède  $3^4 = 81$  termes . Cependant les tenseurs rigidité et souplesse relient deux tenseurs symétriques. Ainsi, ils ne possèdent plus que 36 éléments indépendants <sup>5</sup>. Une notation réduite introduite par Voigt est donc largement utilisée. Il s'agit dans un premier temps de représenter les contraintes et les déformations par un vecteur colonne.

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_{11} & \varepsilon_{12} & \varepsilon_{13} \\ \varepsilon_{12} & \varepsilon_{22} & \varepsilon_{23} \\ \varepsilon_{13} & \varepsilon_{23} & \varepsilon_{33} \end{pmatrix} \Rightarrow \begin{pmatrix} \varepsilon_1 & \frac{1}{2}\varepsilon_6 & \frac{1}{2}\varepsilon_5 \\ \frac{1}{2}\varepsilon_6 & \varepsilon_2 & \frac{1}{2}\varepsilon_4 \\ \frac{1}{2}\varepsilon_5 & \frac{1}{2}\varepsilon_4 & \varepsilon_3 \end{pmatrix} \quad \begin{pmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{12} & \sigma_{13} \\ \sigma_{12} & \sigma_{22} & \sigma_{23} \\ \sigma_{13} & \sigma_{23} & \sigma_{33} \end{pmatrix} \Rightarrow \begin{pmatrix} \sigma_1 & \sigma_6 & \sigma_5 \\ \sigma_6 & \sigma_2 & \sigma_4 \\ \sigma_5 & \sigma_4 & \sigma_3 \end{pmatrix} \quad (1.6)$$

Ils sont alors reliés par des matrices rigidité et souplesse réduites à deux indices. Les règles de passage sont données par des conventions sur les transformations indices suivantes :

indices i,j	11	22	33	23,32	31,13	12,21
indice Voigt	1	2	3	4	5	6

Pour la souplesse, un coefficient est rajouté selon :  $S_{ijkl} = S_{mn}$  pour  $m$  et  $n = 1, 2, 3$ ,  $2S_{ijkl} = S_{mn}$  pour  $m$  ou  $n = 4, 5, 6$  et enfin  $4S_{ijkl} = S_{mn}$  pour  $m$  et  $n = 4, 5, 6$ .

Les deux equations 1.4 et 1.5 s'écrivent avec cette notations de Voigt alors simplement <sup>6</sup> :

$$\sigma_i = C_{ij}\varepsilon_j \quad (1.7)$$

$$\varepsilon_i = S_{ij}\sigma_j \quad (1.8)$$

**Cas des films minces homogènes** Si l'on s'intéresse à des films minces déposés sur des substrats épais, il est possible d'estimer l'état de contrainte de celui-ci. Soit un film mince parfaitement homogène dans le plan tel que sa surface supérieure soit libre :  $\sigma_{31}(z = h) = \sigma_{32}(z = h) = \sigma_{33}(z = h) = 0$  La loi d'équilibre des forces s'écrit :

$$\frac{\partial \sigma_i}{\partial x_j} + f_i - \rho \gamma_i = 0 \quad \text{pour } i = 1, 3 \quad (1.9)$$

où  $\gamma_i$  correspond à l'accélération suivant l'axe  $i$ , et  $f_i$  la composante selon  $i$  de la force volumique en action sur l'échantillon. Si le film est au repos et que la gravité est négligée :

$$\underbrace{\frac{\partial \sigma_{i1}}{\partial x} + \frac{\partial \sigma_{i2}}{\partial y}}_{=0 \text{ (homogénéité)}} + \frac{\partial \sigma_{i3}}{\partial z} = 0 \quad \text{pour } i = 1, 3 \quad (1.10)$$

Ainsi  $\frac{\partial \sigma_{13}}{\partial z} = \frac{\partial \sigma_{23}}{\partial z} = \frac{\partial \sigma_{33}}{\partial z} = 0$ . Comme ces trois composantes de contrainte sont nulles en surface, elles sont nulles en volume.

$$\sigma_{13} = \sigma_{23} = \sigma_{33} = 0$$

En conclusion, un film mince homogène au repos est dans un état de contrainte plane.

<sup>5</sup>En écrivant l'énergie élastique, le nombre d'éléments indépendants est réduit à 21.

<sup>6</sup>La convention de sommation d'Einstein est utilisée

**Cas cristallin - Élasticité anisotrope** On appliquera ces lois de l'élasticité continue au cas des cristaux. La forme du tenseur de rigidité dépend de la nature cristallographique de ceux-ci. En effet les symétries des cristaux réduisent le nombre de termes indépendants. Pour les cristaux tricliniques, il reste 21 éléments mais pour les cristaux cubiques (plus haut degré de symétrie) seuls 3 éléments sont indépendants. Dans le repère cristallographique ( $[100], [010], [001]$ ), la rigidité s'écrit en notation courte :

$$C = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{pmatrix} \quad (1.11)$$

Dans ce cas, on parle d'élasticité anisotrope : trois coefficients indépendants (contre 2 dans un cas isotrope) entrent en jeu dans les calculs.

Pour calculer les coefficients de souplesse, il suffit d'utiliser le fait que les matrices réduites  $C$  et  $S$  sont inverses l'une de l'autre d'où :

$$S = \begin{pmatrix} \frac{c_{11}+c_{12}}{c_{11}c_{12}+c_{11}^2-2c_{12}^2} & \frac{c_{12}}{-c_{11}c_{12}-c_{11}^2+2c_{12}^2} & \frac{c_{12}}{-c_{11}c_{12}-c_{11}^2+2c_{12}^2} & 0 & 0 & 0 \\ \frac{c_{12}}{-c_{11}c_{12}-c_{11}^2+2c_{12}^2} & \frac{c_{11}+c_{12}}{c_{11}c_{12}+c_{11}^2-2c_{12}^2} & \frac{c_{12}}{-c_{11}c_{12}-c_{11}^2+2c_{12}^2} & 0 & 0 & 0 \\ \frac{c_{12}}{-c_{11}c_{12}-c_{11}^2+2c_{12}^2} & \frac{c_{12}}{-c_{11}c_{12}-c_{11}^2+2c_{12}^2} & \frac{c_{11}+c_{12}}{c_{11}c_{12}+c_{11}^2-2c_{12}^2} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{c_{44}} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{c_{44}} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{c_{44}} \end{pmatrix} \quad (1.12)$$

Lorsque l'on cherche la forme du tenseur dans un repère différent, il faut alors exprimer le tenseur dans la base choisie. Par exemple, il est utile de calculer les constantes d'élasticité dans le repère d'un grain 111. Dans ce cas, il faut repasser à la notation à 4 indices, ainsi avec la matrice de changement de base de la forme ( $a_{ij}$ ) la rigidité dans le nouveau repère sera égale à :

$$C_{ijkl}^{New} = a_{im}a_{jn}a_{ko}a_{lp}C_{mnop}^{Old}$$

**Notions de module biaxial** Si l'état de contrainte est un état plan de la forme  $\bar{\sigma} = (\sigma, \sigma, 0, 0, 0, 0)$ , on parle d'état de contrainte biaxial isotrope. Dans cet état particulier, le module biaxial est défini comme étant le rapport entre la déformation dans le plan  $\varepsilon_{//}$  et la contrainte  $\sigma$  appliquée dans le plan  $M = \frac{\sigma}{\varepsilon_{//}}$ . Cette définition sous entend qu'il existe une déformation isotrope dans le plan.

Dans le repère cristallographique ( $[100], [010], [001]$ ), lorsqu'on applique cette contrainte biaxiale, la loi de Hooke donne les relations suivantes :

$$\begin{aligned} \varepsilon_{11} &= (S_{11} + S_{12})\sigma & \varepsilon_{33} &= 2S_{12}\sigma \\ \varepsilon_{22} &= (S_{12} + S_{11})\sigma & 2\varepsilon_{23,13,12} &= 0 \end{aligned}$$

On a bien  $\varepsilon_{11} = \varepsilon_{22}$ , on peut donc définir  $M_{001}$  :

$$M_{001} = \frac{1}{S_{11} + S_{12}} = \frac{(C_{11} - C_{12})(C_{11} + 2C_{12})}{C_{11}} \quad (1.13)$$

Si dans le même repère, nous nous intéressons au comportement d'un grain (111) caractérisé par son angle d'Euler  $\phi_1$ . La matrice de souplesse de ce grain a la forme suivante (cf Annexe A pour les détails de calcul)

$$S'_{111} = \begin{pmatrix} S'_{11} & S'_{12} & S'_{13} & S'_{14}(\phi_1) & S'_{15}(\phi_1) & 0 \\ S'_{12} & S'_{11} & S'_{13} & -S'_{14}(\phi_1) & -S'_{15}(\phi_1) & 0 \\ S'_{13} & S'_{13} & S'_{33} & 0 & 0 & 0 \\ S'_{14}(\phi_1) & -S'_{14}(\phi_1) & 0 & S'_{44} & 0 & 2S'_{15}(\phi_1) \\ S'_{15}(\phi_1) & -S'_{15}(\phi_1) & 0 & 0 & S'_{44} & 2S'_{14}(\phi_1) \\ 0 & 0 & 0 & 2S'_{15}(\phi_1) & 2S'_{14}(\phi_1) & 2(S'_{11} + S'_{12}) \end{pmatrix} \quad (1.14)$$

Un état de contrainte biaxiale dans le plan donnera alors :

$$\begin{aligned} \varepsilon_{11} &= (S'_{11} + S'_{12})\sigma & 2\varepsilon_{23} &= (S'_{14} - S'_{14})\sigma = 0 \\ \varepsilon_{22} &= (S'_{12} + S'_{11})\sigma & 2\varepsilon_{13} &= (S'_{15} - S'_{15})\sigma = 0 \\ \varepsilon_{33} &= 2S'_{12}\sigma & 2\varepsilon_{12} &= 0 \end{aligned}$$

$\varepsilon_{11} = \varepsilon_{22}$ , on trouve bien un état de déformation isotrope dans le plan. Le module biaxial  $M_{111}$  peut donc être défini :

$$M_{111} = \frac{1}{S'_{11} + S'_{12}} = \frac{6C_{44}(C_{11} + 2C_{12})}{C_{11} + 2C_{12} + 4C_{44}}$$

Si dans le même repère, nous nous intéressons au comportement d'un grain (100) non plus aligné sur les axes du repères mais caractérisé par sa désorientation dans le plan  $\phi_1$ . On retrouvera bien le module biaxial Eq 1.13 (§. Annexe A). En revanche, il sera impossible de définir un module biaxial pour un grain (511) unique. La forme complexe de sa matrice de souplesse (§. Annexe A) implique l'apparition de termes de cisaillement  $\varepsilon_{12,13,23}$  non nulles et la non égalité  $\varepsilon_{11} \neq \varepsilon_{22}$ . Le terme  $\eta$  est défini comme le rapport entre la déformation perpendiculaire et la déformation parallèle

$$\eta = -\frac{\varepsilon_{\perp}}{\varepsilon_{//}}$$

### 1.2.3 Cas des polycristaux

Cette section se propose d'appliquer ces propriétés élastiques non plus à un seul cristal mais à une assemblée de cristallites formant un polycristal. Dans un polycristal les joints de grain jouent un rôle important en créant de nombreuses interfaces.

#### Conditions limites aux joints de grains

Un joint de grain parfait dans le cadre de l'élasticité continue se caractérise par deux propriétés :

- La composante de la contrainte normale au joint est égale des deux côtés de celui-ci.
- Le champ de déplacement est continu à la traversée du joint

D'autre part si le film adhère parfaitement sur son substrat, le champ de déplacement au niveau de l'interface Substrat-film sera également continu.

Imaginons un film en état de déformation isotrope  $\bar{\varepsilon} = (\varepsilon_{//}, \varepsilon_{//}, \varepsilon_{\perp}, 0, 0, 0)$  et en particulier deux grains (111) et (100) voisins. On aura alors loin de l'interface la même déformation dans les deux grains et la contrainte sera plus grande

dans le grain (111) si  $M_{111} > M_{100}$ <sup>7</sup>. Mais pour satisfaire la condition de continuité du déplacement au niveau de l'interface, un gradient de contrainte avec un terme  $\sigma_{32} \neq 0$  apparaît. Ce gradient entraîne en première approximation une discontinuité de  $\varepsilon_{//}$  (Fig. 1.7). La zone de l'interface est le siège d'un état de contrainte triaxiale. Une interface aura tendance à homogénéiser localement la contrainte. Le cas limite est un comportement iso-contrainte pour un film à petits grains.

Ces aspects de triaxialité ont été traités en détail dans les articles suivants [Baker 2001, Vodnick 2010]. Sinon l'analyse complète des phénomènes d'interaction en fonction des particularités d'une microstructure peut se traiter sans ambiguïté en utilisant les techniques de calcul par éléments finis (§. 1.5).

#### Modèle de Voigt-Reuss-Hill

Des modèles simples ont été proposés pour calculer les constantes d'élasticité équivalentes à une assemblée de grains orientés différemment. L'objectif est d'appliquer les lois de l'élasticité classiques à un polycristal vu comme un milieu homogène équivalent. Dans le modèle de Voigt, les grains sont considérés comme possédant tous la même déformation  $\varepsilon_0$  (iso-strain). Ainsi, la moyenne d'ensemble  $\langle \sigma \rangle = \langle C \varepsilon \rangle$  se simplifie en  $\langle \sigma \rangle = \langle C \rangle \varepsilon_0$ . Dans le modèle de

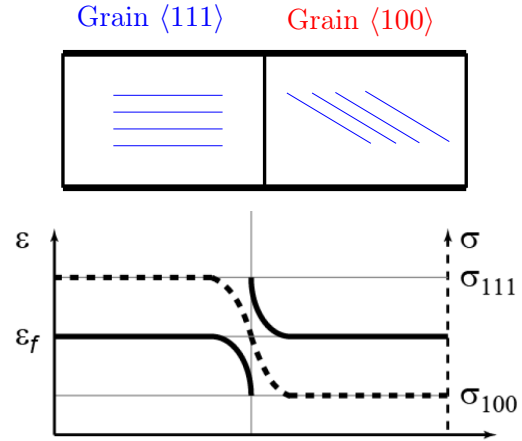


FIG. 1.7 – Équilibre entre un grain (111) et un grain (100)

<sup>7</sup> $M_{111} > M_{100}$  pour la plupart des métaux simples comme l'or, le cuivre l'aluminium. Mais dans le cas de cristaux cubiques centrés  $M_{111} < M_{100}$  est possible.

Reuss, les grains sont considérés comme étant tous le siège de la même contrainte  $\sigma_0$  (iso-stress). Ainsi, la souplasse :  $\langle \varepsilon \rangle = \langle S\sigma \rangle$  se simplifie en  $\langle \varepsilon \rangle = \langle S \rangle \sigma_0$ .

Ces deux modèles étant des cas limites, le modèle proposé par Hill décrit le comportement du polycristal comme un état intermédiaire. Ainsi,

$$\langle \sigma \rangle = \frac{1}{2}(\langle C \rangle + \langle S^{-1} \rangle)\varepsilon_0$$

Calculons le tenseur moyen de rigidité  $\langle C \rangle$  pour un grand nombre de grains (511) orientés de manière quelconque dans le plan (i.e. texture de fibre). Cette matrice est complexe (cf §. Annexe A) avec peu de zéros et des termes sinusoidaux en  $\phi_1$ ,  $2\phi_1$ ,  $3\phi_1$  et  $4\phi_1$  pour un cristal unique. En revanche, en faisant la moyenne terme à terme pour calculer la matrice rigidité (modèle de Reuss) de l'ensemble des grains, les termes  $\int_0^{2\pi} \cos(2\phi_1)d\phi_1 \dots$  sont tous nuls. On obtient dans le cas d'un polycristal d'or, la matrice suivante :

$$\langle C_{511} \rangle = \begin{pmatrix} 208.9 & 150.4 & 159.3 & 0. & 0. & 0. \\ 150.4 & 208.9 & 159.3 & 0. & 0. & 0. \\ 159.3 & 159.3 & 200.0 & 0. & 0. & 0. \\ 0. & 0. & 0. & 38.1 & 0. & 0. \\ 0. & 0. & 0. & 0. & 38.1 & 0. \\ 0. & 0. & 0. & 0. & 0. & 29.2 \end{pmatrix} \quad (1.15)$$

On remarque qu'il est maintenant possible de définir un module biaxial  $M_{511}$ . Les valeurs numériques des modules biaxiaux des différentes familles de grains sont compilés dans le tableau 1.1 pour l'or et le cuivre. Le calcul de  $\langle C_{511} \rangle$  se simplifie (termes nuls) uniquement parce que les grains ne présentent pas d'orientations privilégiées dans le plan du film. Dans le cas contraire, il serait impossible de définir le module  $M_{511}$ . Les grains (100) ou (111) sont eux isotropes mécaniquement pour un chargement biaxial. Quelle que soit la texture il sera donc possible de définir un module biaxial.

**Modèle auto-cohérent** Dans l'exemple précédent, le calcul du comportement d'un ensemble de grains est basé sur l'hypothèse de type iso-strain ou iso-stress. Ce type d'hypothèse ne satisfait pas les conditions de continuité. Des modèles plus élaborés ont été développés notamment le modèle de Kröner-Eshelby. Ils sont basés sur une démarche autocohérente (calcul bouclé) avec l'introduction d'un tenseur de localisation qui rend mieux compte des inhomogénéités locales et des conditions limites. Il s'agit d'un domaine de recherche vaste et actif, on parle génériquement d'homogénéisation <sup>8</sup>.

#### 1.2.4 Aspects énergétiques

**Energie élastique** Lorsqu'on sollicite un solide, celui-ci stocke une énergie élastique volumique élémentaire de la forme  $\delta W = \sigma_i d\varepsilon_i$ . En introduisant le tenseur de

<sup>8</sup>notamment traitée et utilisée dans l'ouvrage [Kocks 2000] ou la publication [Faurie 2009])

Matériau	Au			Cu		
$C_{11}$ (GPa)	192.34			169.8		
$C_{12}$ (GPa)	163.14			122.6		
$C_{44}$ (GPa)	41.95			75.3		
A	2.873			3.191		
<i>Famille <math>\langle 111 \rangle</math></i>						
$M_{111}$ (GPa)	190.17			261.79		
$\eta_{111}$	1.267			0.738		
$\sin^2(\psi_0)$	0.559			0.425		
<i>Famille <math>\langle 100 \rangle</math></i>						
$M_{100}$ (GPa)	78.73			115.36		
$\eta_{100}$	1.696			1.444		
$\sin^2(\psi_0)$	0.629			0.591		
<i>Macle <math>\langle 511 \rangle</math></i>						
	<i>Hill</i>	<i>Voigt</i>	<i>Reuss</i>	<i>Hill</i>	<i>Voigt</i>	<i>Reuss</i>
$M_{511}$ (GPa)	97.72	105.49	89.78	143.25	155.18	130.70
$\eta_{100}$	1.623	1.593	1.653	1.310	1.252	1.370
$\sin^2(\psi_0)$	0.619	0.614	0.623	0.567	0.556	0.572
<i>Macle <math>\langle 442 \rangle</math></i>						
	<i>Hill</i>	<i>Voigt</i>	<i>Reuss</i>	<i>Hill</i>	<i>Voigt</i>	<i>Reuss</i>
$M_{442}$ (GPa)	172.05	179.57	164.33	239.91	249.84	229.43
$\eta_{442}$	1.337	1.308	1.366	0.844	0.796	0.894
$\sin^2(\psi_0)$	0.572	0.567	0.577	0.458	0.443	0.472

TAB. 1.1 – Constantes d'élasticité pour quelques matériaux [Neighbours 1958] [Hiki 1966] et grandeurs élastiques associées .

Matériau	$\gamma_{100} \text{ J.m}^{-2}$	$\gamma_{111} \text{ J.m}^{-2}$	$\frac{\gamma_{111}}{\gamma_{100}}$
Au	1.50	1.29	0.86
Cu	1.82	1.60	0.88

TAB. 1.2 – Energies de surface pour le cuivre et l'or

rigidité, l'énergie par unité de volume s'exprime alors comme :

$$E_{el} = \frac{1}{2} C_{ij} \varepsilon_i \varepsilon_j \quad (1.16)$$

L'énergie élastique totale d'un cristal est donc en première approximation proportionnelle à son volume, et pour les films minces proportionnelle notamment à l'épaisseur.

Dans le cas d'un film mince dans un état de contrainte biaxiale isotrope, on trouve :

$$E_{el} = M \varepsilon_{//}^2$$

Ainsi, si  $M_{111} > M_{100}$ , l'orientation  $\langle 100 \rangle$  est privilégiée par rapport à la direction  $\langle 111 \rangle$  du point de vue de l'énergie élastique emmagasinée.

**Energie de surface** Dans les objets de faible dimension, les surfaces jouent un rôle non négligeable voire prépondérant. C'est notamment le cas pour les films minces. On peut caractériser les surfaces par une énergie surfacique  $\gamma$ . Cette énergie dépend de l'orientation cristallographique du cristal. Les plans denses auront une énergie de surface inférieure aux plans moins denses (minimisation du nombre de liaisons pendantes). On aura notamment  $\gamma_{111} < \gamma_{100}$ .

Les valeurs numériques de ces énergies de surface peuvent se calculer notamment par des techniques de calcul ab-initio et ont été mesurées expérimentalement en mesurant des tensions de surface [Tyson 1977]. Les valeurs pour l'or et le cuivre sont reportées dans le tableau 1.2.

On remarque que les deux contributions élastiques et de surface sont antagonistes pour les grains (111) et (100). On s'attend par conséquent à privilégier une texture (111) (contribution surfacique) dans les films les plus minces et une texture (100) dans les films les plus épais (contribution volumique). Ces aspects sont traités en détail dans l'article [Thompson 2000].

### 1.3 Plasticité cristalline

Au delà d'une contrainte critique, le cristal subit une déformation irréversible. La contrainte à partir de laquelle le régime plastique prend le pas sur la régime élastique est simplement appelée limite élastique. Des valeurs de limite élastique correspondant à des déformations de quelques dixièmes de pourcent sont typiquement rencontrées dans les films minces métalliques. Dans les cristaux, les propriétés

Nom	Plan $\vec{n}$ de glissement	Direction $\vec{g}$ de glissement	$S_c$
B4	(111)	$[\bar{1}01]$	0.422
B2	(111)	$[0\bar{1}1]$	0.070
B5	(111)	$[\bar{1}10]$	0.352
D4	( $\bar{1}\bar{1}1$ )	$[\bar{1}01]$	-0.084
D1	( $\bar{1}\bar{1}1$ )	$[011]$	-0.099
D6	( $\bar{1}\bar{1}1$ )	$[110]$	-0.014
A2	( $\bar{1}\bar{1}1$ )	$[0\bar{1}1]$	0.127
A6	( $\bar{1}\bar{1}1$ )	$[110]$	0.127
A3	( $\bar{1}\bar{1}1$ )	$[101]$	0.254
C5	( $11\bar{1}$ )	$[\bar{1}10]$	-0.211
C3	( $11\bar{1}$ )	$[101]$	-0.084
C1	( $11\bar{1}$ )	$[011]$	-0.296

TAB. 1.3 – Les Systèmes de glissement dans un cristal cubique et calcul des facteurs de Schmid pour une traction uniaxiale d'axe  $\bar{2}34$

plastiques sont anisotropes car elles ont un lien direct avec la structure cristallographique.

**Traction uniaxiale - Facteur de Schmid** Historiquement une grande variété d'essai de traction ont été réalisés sur des monocristaux macroscopiques. Dans la partie plastique, le glissement de plans particuliers dans des directions bien particulières a été observé lors de ces essais. Ainsi, 12 systèmes de glissement dans les cristaux cubique faces centrées ont été répertoriés (cf Tab. 1.3). Ces plans de glissements de normale  $\vec{n}$  correspondent à des plans denses de la structure cristallographique : les plans  $\{111\}$  pour les CFC. Les directions des glissements repérées par le vecteur  $\vec{g}$  sont également bien déterminées, elles sont colinéaires aux directions de type  $\langle 110 \rangle$ . Deux angles  $\Phi$  et  $\lambda$  sont définis par rapport à l'axe de traction (cf Fig. 1.8 b). Le facteur de Schmid est défini par le produit des cosinus de ces deux angles :

$$S_c = \cos \Phi \cos \lambda \quad (1.17)$$

Il a été observé que les systèmes à plus haut facteur  $S_c$  sont activés en premier. Le cristal glisse effectivement dans ces systèmes. La valeur de ce facteur pour une traction d'axe  $\bar{2}34$  dans un cristal cubique faces centrées est reporté dans le tableau 1.3. On remarque un système qui a un facteur de Schmid plus élevé que tous les autres. Ce système est donc le premier à s'activer lors de cet essai. En revanche si la traction est réalisée suivant la direction  $[111]$ , les trois autres plans de type  $\{111\}$  sont équivalents. Plusieurs systèmes de glissement sont activés simultanément.

En fait, le facteur de Schmid exprime tout simplement la contrainte de cisaillement  $\sigma_{ng} = S_c \sigma$ , appelée contrainte de cisaillement résolue dans le système de glissement.



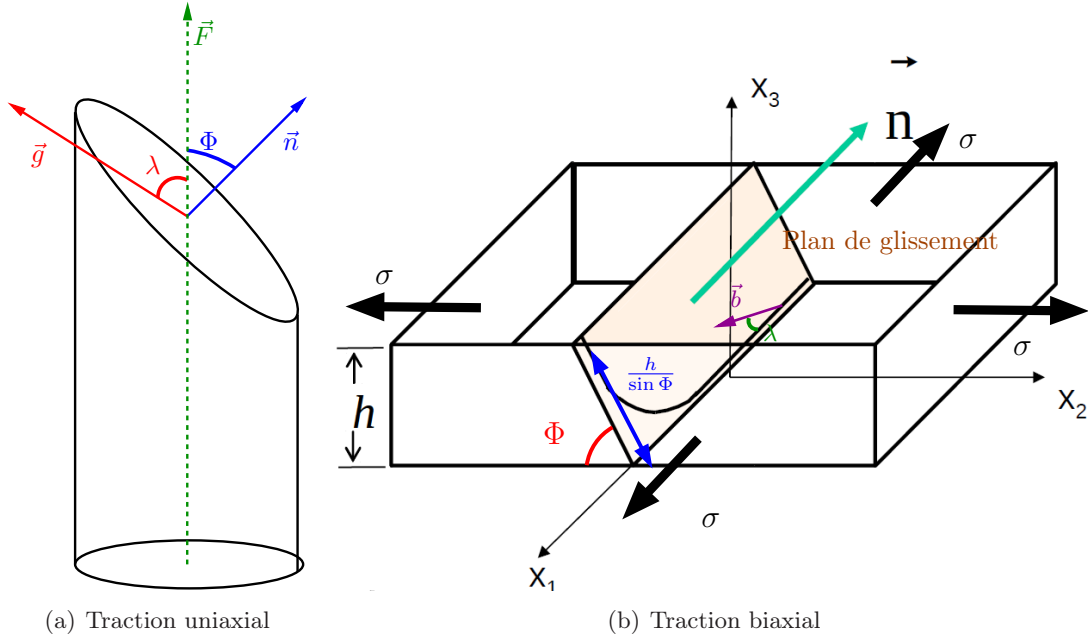


FIG. 1.8 – Géométrie de glissement uniaxial et biaxial

C'est elle qui est responsable du glissement des dislocations à l'origine du glissement des plans. Une dislocation est un défaut linéaire correspondant à une discontinuité dans l'organisation de la structure cristalline. Une dislocation est caractérisée par son vecteur de Burgers  $\vec{b}$  et par l'orientation de sa ligne  $\vec{L}$ . Les matériaux comme le silicium monocristallin ont des densités de dislocation  $\frac{\text{Longueur dislocation}}{\text{Volume}}$  très très faible. En revanche les matériaux métalliques peuvent avoir des densités beaucoup plus élevées de l'ordre de  $10^{10\sim 12}/\text{cm}^2$ .

En présence d'un champ de contrainte  $\bar{\sigma}$ , il s'exerce sur une dislocation une force linéique de Peach-Koehler de la forme :

$$\vec{F} = (\bar{\sigma}\vec{b}) \wedge \vec{L} \quad (1.18)$$

où  $(\vec{b}, \vec{L})$  sont respectivement le vecteur de Burgers et le vecteur ligne de dislocation. Si cette force possède une composante dans le plan de glissement, celle-ci peut entraîner le mouvement de la dislocation. La valeur de cette composante est la contrainte de cisaillement résolue (*Resolved Sheared Stress*).

$$\sigma_{RSS} = \frac{\bar{\sigma}\vec{b}}{b} \cdot \vec{n} \quad (1.19)$$

**Chargement biaxial** Dans le cas d'un chargement biaxial isotrope  $\bar{\sigma} = (\sigma, \sigma, 0, 0, 0)$ , la contrainte de cisaillement résolue est simplement :  $\sigma_{RSS} = \cos\Phi \cos\lambda\sigma$ . Dans le cas d'un film mince supporté la force de Peach-Koehler (cf Fig. 1.8b) :

$$F_{PK} = \sigma b \cos\Phi \cos\lambda \frac{h}{\sin\Phi}$$

est contrebalancée par la tension de ligne de la dislocation interfaciale. Ainsi le modèle développé par Nix et Freund [Nix 1989] adapté du modèle de Matthews [Matthews 1974] prédit une limite élastique, dite contrainte de canalisation de la forme :

$$\sigma_{ch} = \frac{\sin \Phi}{\cos \Phi \cos \lambda} \cdot \frac{b}{2\pi(1-\nu)h} \cdot \frac{\mu_f \mu_s}{\mu_f + \mu_s} \ln\left(\frac{h}{r_0}\right) \quad (1.20)$$

où l'on retrouve le facteur de Schmid, le vecteur de Burgers  $b$ , le module de cisaillement du substrat et du film  $\mu_s$  et  $\mu_f$ , l'épaisseur du film  $h$  et  $r_0$  le rayon de coeur. Ainsi la limite élastique varie sensiblement en  $1/h$ . Plus le film est mince, plus la limite élastique augmente.

**Plasticité dans les objets de faible dimension** L'influence de la taille sur le comportement plastique des métaux continue à faire l'objet d'un grand nombre d'étude à la fois théoriques et expérimentales. De nombreuses études [Arzt 1998, Dehm 2003]... ont porté sur la plasticité de film minces métalliques. Plus récemment, des travaux [Uchic 2004, Kiener 2008]... ont porté sur les propriétés mécaniques de micro-piliers ou de nanofils. La dépendance de la limite élastique en  $1/h^n$  avec la taille reste controversée.

- $n = 1$  renvoie au modèle de canalisation
- $n = 0.5$  renvoie à la loi de Hall-Petch bien connue pour les polycristaux

Dans le cas de fils ne contenant pas de dislocation (couramment appelés *whiskers*), on retrouve une limite élastique indépendante de la taille et égale à la cission critique [Brenner 1956, Richter 2009].

## 1.4 Comportements mécaniques en température

Des études dite thermo-mécanique ou thermo-élasto-plastiques ont été réalisées sur de nombreux systèmes notamment sur des films minces de cuivre et d'aluminium par exemple décrit dans les articles [Vinci 1995, Arzt 1998, Dehm 2003]. Certains phénomènes se déroulant pendant ces cycles seront décrits dans ce paragraphe en commençant par rappeler les propriétés intrinsèques des matériaux en température.

### 1.4.1 Propriétés thermiques des matériaux

**Dilatation thermique** Le tenseur de dilatation est un tenseur d'ordre 2. Par raison de symétrie, il sera un scalaire dans le cas des matériaux cubiques. Cette propriété a de fortes conséquences. En effet, un matériau cubique est isotrope en température mais anisotrope mécaniquement. D'autre part, les coefficients de dilatation dépendent de la température. Ces valeurs ont été compilées dans l'ouvrage [Touloukian 1976]. Quelques valeurs usuelles à la température ambiante sont reportées dans la tableau 1.4. On remarque que les métaux se dilatent beaucoup plus que le silicium ou le verre (silice).

Matériaux	Si	Silice	Au	Cu	MgO	Mo	W
$\alpha(T_{amb}) 10^{-6}$	2.6	0.49	14.2	16.5	10.5	4.8	4.5

TAB. 1.4 – Valeurs des coefficients de dilatation de quelques matériaux usuels à la température ambiante

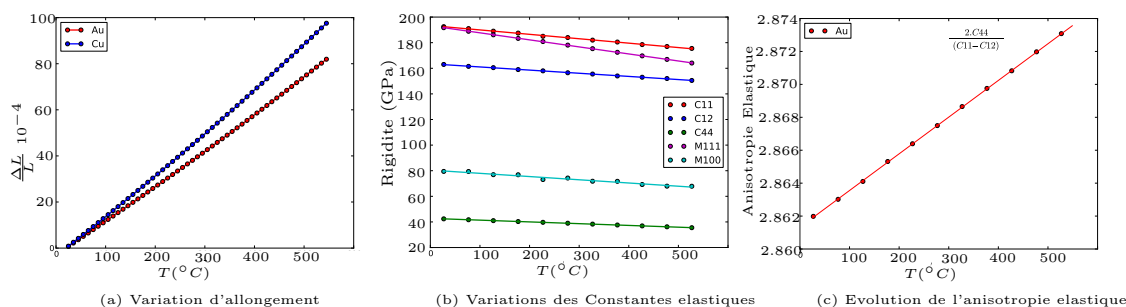


FIG. 1.9 – Evolutions des constantes d'élasticité et de la dilatation de l'or avec la température

**Constantes d'élasticité** Les constantes d'élasticité évoluent également avec la température. Ces évolutions sont reportées dans la figure 1.9. Elles ont été déterminées à partir de mesure de propagation d'ondes acoustiques [Chang 1966]. Ces résultats sont similaires à ceux obtenus de manière indépendante par [Neighbours 1958]. Les constantes d'élasticité décroissent en température. Cette décroissance est significative : le module biaxial  $M_{111}$  décroît de 14.5% entre 27 et 527°. L'anisotropie élastique  $A = \frac{2C_{44}}{C_{11}-C_{12}}$  augmente très légèrement de 0.4% entre ces deux températures (Fig 1.9).

### 1.4.2 Réponse mécanique d'un film supporté à un cycle thermique

Lors d'un cycle thermique un film mince polycristallin supporté réagit de manière complexe.

**Etat initial : Contraintes et Déformations résiduelles** Les étapes d'élaboration des films minces : dépôt, recuits successifs entraînent l'apparition de contraintes dans la majorité des films. On parle alors de contraintes résiduelles<sup>9</sup>. Typiquement, un échantillon métallique sur substrat de silicium (oxydé) ayant subi un recuit sera dans un état initial où une déformation parallèle résiduelle positive est présente. Le film est dans un état de contrainte en tension

<sup>9</sup>Les aspects croissance de grain ne seront pas abordés ici. Nos échantillons d'étude ont subi des étapes de recuit haute température (800 – 900°), température que l'on n'a plus approché lors des cycles thermo-mécaniques réalisés par la suite. Ainsi, la microstructure peut être considérée comme stabilisée.

**Partie Thermo-élastique** Si on chauffe l'échantillon, le film et le substrat se dilatent de manières différentes. La plupart du temps le substrat (Si, Verre ...) se dilate beaucoup moins que le film (cf Tab 1.4). Mais comme le substrat est beaucoup

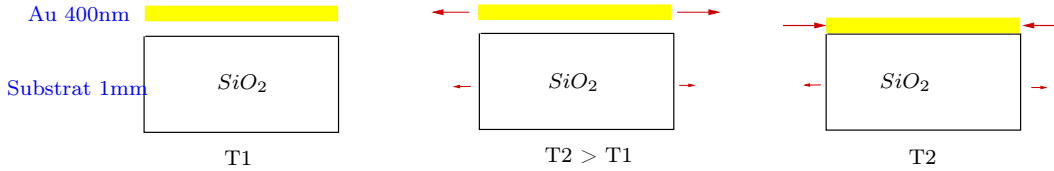


FIG. 1.10 – Illustration du chargement par désaccord des paramètres de dilatation

plus volumineux que le film mince, il impose à celui-ci sa déformation. Le film n'étant pas libre de se dilater, un champ de déformation est alors généré dans la film. On peut alors estimer la déformation appliquée dans le plan du film par la relation suivante :

$$\begin{aligned}\varepsilon_{//} &= [\alpha_{Substrat}\Delta T - \alpha_{Film}\Delta T] = \Delta\alpha\Delta T \\ \varepsilon_{\perp} &= -\eta\varepsilon_{//} = -\eta\Delta\alpha\Delta T\end{aligned}$$

On aura donc une partie linéaire en  $\Delta T$  , on parle de pente thermo-élastique. <sup>10</sup>

**Partie plastique** Au bout d'une certaine valeur de déformation élastique, les phénomènes de plasticité vont apparaître (cf §. 1.3). Ainsi, pour une  $T_{plas}$  limite la courbe  $\varepsilon(T)$  va s'éloigner de la pente thermo-élastique. Dans le cas de la plasticité parfaite, on considère qu'une fois la limite de contrainte  $\sigma_{plast}$  atteinte, la contrainte ne peut plus augmenter quelle que soit la déformation supplémentaire appliquée. On aura alors un plateau dans la courbe  $\sigma(\varepsilon)$  mais aussi sur la courbe  $\varepsilon(T)$ . En pratique, cette relaxation plastique n'est pas complète. Il est courant d'observer un durcissement progressif de l'échantillon. Les dislocations ne peuvent progressivement plus se déplacer librement. Ces deux comportements sont illustrés dans la figure 1.11.

Pour les films polycristallins, il est possible que la plasticité apparaisse localement (i.e. dans certain grains et pas dans d'autres). Le comportement moyen n'est alors qu'une approximation qui suppose un milieu homogène.

D'autre part, il est courant que les cycles thermiques successifs soient reproductibles (cf §. 4.2.2). Ce phénomène correspond à un mécanisme de plasticité réversible. Ce qui peut se comprendre en considérant un mouvement réversible des dislocations. Celles-ci ne sont jamais évacuées du système puisqu'elles sont bloquées soit par les défauts soit par les joints de grains. Ces comportements restent cependant à être mieux observés et expliqués.

<sup>10</sup>La plupart du temps, les substrats se dilatent moins que les films, mais il est possible que se soit l'inverse. Par exemple dans le cas d'un film de Mo ou W sur un substrat de MgO (cf Tab 1.4), le film subira une mise en tension lors d'une montée en température.

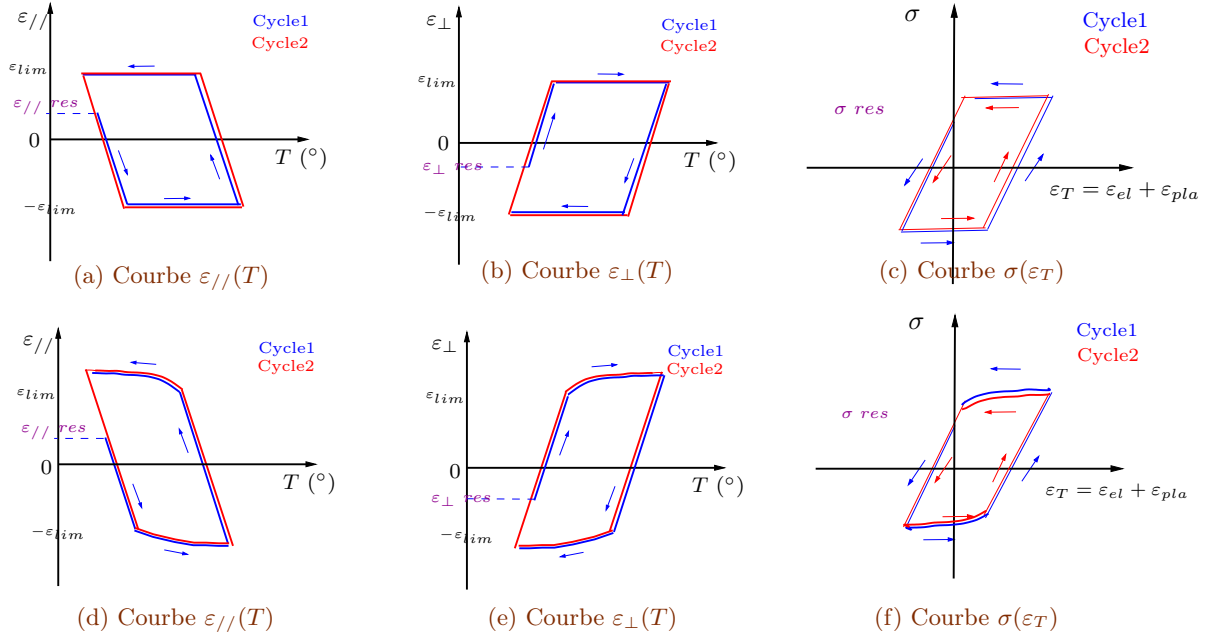


FIG. 1.11 – Allure idéalisée de la réponse thermique d'un film mince lors de deux cycles successifs. (a,b,c) Représentation de la déformation dans le plan, perpendiculaire au plan et courbe contrainte-déformation dans le cas d'une plasticité parfaite. (d,e,f) même courbe si la plasticité s'accompagne d'un durcissement

## 1.5 Simulations Elements Finis

Les techniques éléments finis sont des techniques très utilisées pour la résolution numérique d'équations différentielles en électromagnétisme, en transfert thermique, ... Elles sont particulièrement bien adaptées aux simulations mécaniques. Elles permettent en effet de calculer les déplacements, les déformations et les contraintes dans une structure de géométrie quelconque soumise à une sollicitation mécanique (essai de traction, gradient de température ...).

**Elasticité anisotrope** Dans la pratique, la technique éléments finis appliquée à l'élasticité linéaire revient à résoudre l'équation différentielle relative au champ de déplacement suivante :

$$\nabla \cdot (\overline{\overline{C}} : \nabla u) + f = 0 \quad (1.21)$$

$\overline{\overline{C}}$  correspond à la matrice rigidité du cristal considéré dans le repère du laboratoire (§. 1.2). Cette résolution est effectuée en considérant des conditions aux limites sur le champ  $u$  (continuité) et sur des équilibres de force  $T$  (typiquement composante

normale aux joints de grains)

$$\begin{aligned} u &= U && \text{sur } \Omega_u \\ \sigma \cdot \vec{n} &= (\overline{\overline{C}} : \nabla u) \cdot \vec{n} = T && \text{sur } \Omega_T \end{aligned}$$

Ceci est possible en discrétisant la structure étudiée avec un ensemble d'éléments prismatiques interconnectés par des noeuds. On parle de maillage de la structure. Les calculs réalisés dans ce travail de thèse sont le fruit d'une collaboration avec M. Henry Proudhon et M. Samuel Forest du centre des matériaux de l'Ecole de Mines de Paris. Ils ont été réalisés avec le code Z-set/Zebulon<sup>11</sup> développé dans cet institut.

## Synthèse Chapitre 1

La microstructure des films polycristallins influence les propriétés mécaniques. Elle peut être caractérisée par différentes techniques expérimentales : microscopie électronique (MEB, EBSD), mesures de texture ... Les propriétés élastiques et plastiques des cristaux sont anisotropes. Ainsi à l'échelle des grains, des hétérogénéités de déformations importantes sont attendues. Les comportements élastiques sont les plus simples à appréhender mais ils restent complexes à l'échelle des agrégats polycristallins. Les comportements plastiques sont eux encore le sujet de débats important à travers la communauté. En particulier, comment les effets plastiques (mouvements des dislocations) sont-ils influencés par des effets de taille ? Ainsi un nombre important de questions restent ouvertes et nécessitent des études nouvelles et approfondies. En particulier les comportements à l'échelle d'un grain unique doivent être éclaircis.

La diffraction des rayons X a été et reste toujours un outil de choix pour éclairer ces problématiques. En effet, la diffraction est une technique particulièrement sensible aux déplacements atomiques et est non-destructive. Il est également aisé de réaliser des études in-situ lors d'essais mécaniques par exemple. Les quatre prochains chapitres seront focalisés sur différentes techniques classiques et émergentes basées sur la diffraction X. Elles seront décrites, expliquées et appliquées à des polycristaux d'or.

---

<sup>11</sup>[www.nwnumerics.com](http://www.nwnumerics.com)



# Diffraction des rayons X

## Sommaire

<b>2.1</b>	<b>Propriétés de cohérence d'un faisceau X</b>	<b>26</b>
<b>2.2</b>	<b>Diffusion par un cristal-Diffraction cinématique</b>	<b>27</b>
2.2.1	Diffusion par un électron	28
2.2.2	Diffusion par un atome	28
2.2.3	Diffusion par un cristal	30
<b>2.3</b>	<b>Mesures de déformations et de contraintes par diffraction X classique</b>	<b>32</b>
2.3.1	Cas d'un monocristal	33
2.3.2	Cas des polycristaux	35
<b>2.4</b>	<b>Mesures de texture avec les rayons X</b>	<b>38</b>
2.4.1	Figure de Pôle	38
2.4.2	Microdiffraction Laue	39
<b>2.5</b>	<b>Diffraction par un grain unique - Diffraction cohérente</b>	<b>40</b>
2.5.1	Somme cinématique et transformée de Fourier	40
2.5.2	Calcul de différentes réflexions à partir d'un cristal orienté dans le repère du laboratoire	42
2.5.3	Signatures spécifiques du signal de diffraction	43
2.5.4	Effet de l'indice de réfraction	46
2.5.5	Calcul en tenant compte les imperfections du faisceau incident	46

Dans le premier chapitre, les films polycristallins ont été décrits et certaines de leurs propriétés mécaniques ont été exposées. Nous allons voir comment il est possible de caractériser ces propriétés mécaniques grâce à la diffraction des rayons X. La diffraction X est en effet au coeur des différentes expériences réalisées lors de ce travail de thèse. Elle s'avère une technique particulièrement précise, efficace et versatile. Après un rappel général sur la diffraction dans le cadre de l'approximation cinématique, ce chapitre expliquera et illustrera avec des modèles simples les principales techniques utilisées par la suite. Tout d'abord, il sera illustré comment la déformation moyenne affecte la position des pics de diffraction dans l'espace réciproque pour un monocristal puis un polycristal. Les approches de Williamson-Hall et des  $\sin^2(\psi)$  seront brièvement expliquées. Ensuite, il sera montré de quelle manière les micro-déformations (hétérogénéités de déformation interne) affecte le signal de diffraction d'un objet de petite dimension. Finalement certains artefacts inhérents aux conditions expérimentales seront détaillés.



## 2.1 Propriétés de cohérence d'un faisceau X

En toute généralité un faisceau X est composé d'un ensemble d'ondes électromagnétiques. Les ondes planes peuvent être représentées par leur champ électrique :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 \cdot e^{i \cdot (\omega t - \vec{k}_i \cdot \vec{r} + \varphi)}$$

Un faisceau peut être décrit comme une somme d'ondes planes possédant des vecteurs d'onde  $\vec{k}_i$  (direction de propagation) et des pulsations  $\omega$  différentes<sup>1</sup>. On parle également de train d'ondes. Lorsque ce train d'onde entre en interaction avec la matière, la dispersion en  $\vec{k}_i$  et en  $E$  joue un rôle important. La notion de cohérence du faisceau peut alors être introduite pour caractériser ce faisceau. L'émission des ondes provenant des éléments d'insertions d'un synchrotron est un processus aléatoire. Les photons ne sont pas corrélés. De la même manière, le rayonnement issu de la fluorescence d'une anti-cathode n'est pas corrélé. Cependant selon la géométrie utilisée, il est possible d'observer des interférences avec de telles sources de rayonnement. Ces effets d'interférence sont la signature d'effets de cohérence partielle. Pour caractériser la cohérence d'un faisceau, on définit les longueurs de cohérence longitudinale et transverse qui ont des origines physiques distinctes.

**Cohérence longitudinale** Une caractéristique des paquets d'ondes est leur dispersion chromatique. Un faisceau quasi monochromatique est caractérisé par une dispersion en longueur d'onde  $\Delta\lambda$  (ou énergétique  $\Delta E$ ). Le raisonnement classique pour illustrer la perte de cohérence due à cette dispersion est de considérer deux ondes initialement en phase mais ayant chacune une longueur d'onde espacée de  $\Delta\lambda$ . Elles vont progressivement se déphaser à chaque oscillation  $n$ . Elles seront déphasées de  $2\pi$  lorsque l'écart accumulé sera tel que  $n\lambda = (n+1)(\lambda - \Delta\lambda)$ . On choisit alors de définir  $\xi_{//}$  comme étant la distance (Fig 2.1a) telle que :  $2\xi_{//} = 2\lambda$ . Au bout de la distance  $\xi_{//}$ , les 2 ondes sont en opposition de phase. On a alors la relation :

$$\xi_{//} \simeq \frac{\lambda^2}{2\Delta\lambda} = \frac{\lambda}{2} \frac{E}{\Delta E} \quad (2.1)$$

Dans le cas des rayons X la dispersion énergétique dépend des monochromateurs. Typiquement, avec les monochromateurs classiques Si (111) en géométrie deux réflexions,  $\xi_{//}$  est autour du micron. Il est possible d'obtenir mieux avec des monochromateurs Ge (220), Si (331) (11 11 11) ... mais au prix d'une baisse drastique du flux.

**Cohérence transverse** La cohérence transverse dépend essentiellement de la taille de source vue par l'échantillon. Deux faisceaux issus de deux points différents de la source ne vont pas suivre le même trajet pour arriver jusqu'à un certain point d'observation. Comme avec la longueur temporelle, le double de la longueur

<sup>1</sup>La pulsation de l'onde est reliée à l'énergie équivalente du faisceau par la simple relation  $\omega = \frac{2\pi E}{h}$  où  $h$  est la constante de Plank

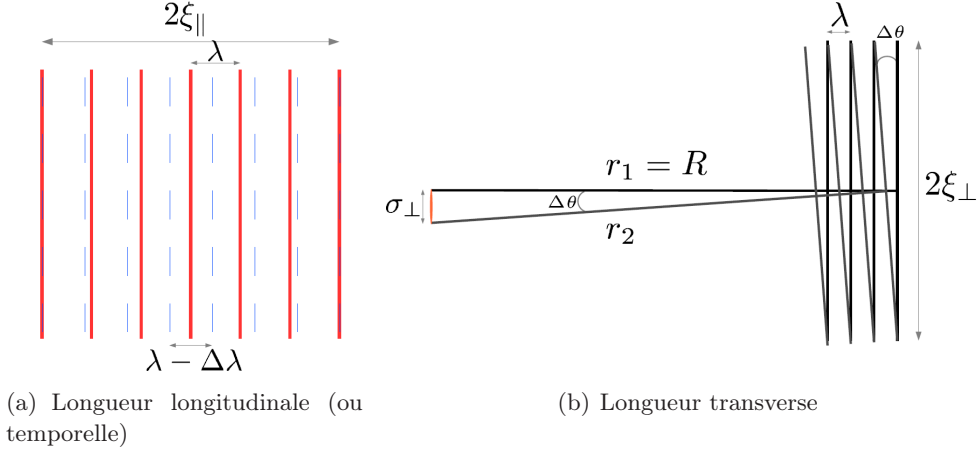


FIG. 2.1 – Illustration classique des longueurs de cohérence

transverse  $2\xi_{\perp}$  est définie (Fig 2.1b) comme la longueur au bout de laquelle les deux faisceaux seront déphasés de  $2\pi$ .

$$\xi_{\perp} \simeq \frac{\lambda}{2\Delta\theta} = \frac{\lambda R}{2\sigma_{\perp}} \quad (2.2)$$

Plus la source est petite, plus cette longueur est grande. Asymptotiquement, une source ponctuelle engendrerait une cohérence transverse infinie. Cette longueur peut être comprise comme étant l'inverse de l'angle solide sous lequel l'échantillon voit la source multiplié par la longueur d'onde. Dans le cas du rayonnement synchrotron la taille de source définie par les onduleurs est de l'ordre de la centaine de micromètres. La source est située loin de l'échantillon à plusieurs dizaines de mètres. Il est alors tout à fait possible d'obtenir des longueurs transverses de l'ordre de  $\xi_{\perp} = 50 - 100\mu m$ . Toutefois le choix de la configuration optique de préparation du faisceau peut faire réduire significativement ces valeurs. Cette configuration optique mérite d'être prise en compte attentivement lors des expériences.

Cette définition classique des deux longueurs de cohérence est basée sur un critère de déphasage entre deux ondes planes. Il s'agit de longueurs indicatives car la notion de cohérence est une notion complexe [Born 1959]. Ces longueurs de cohérence seront évaluées pour chacune des configurations utilisées lors des expériences (cf §. 3.2.3).

## 2.2 Diffusion par un cristal-Diffraction cinématique

La diffraction X sera traitée ici dans une gamme d'énergie ( $< 20keV$ ) où les processus de diffusion inélastique Compton ne seront pas pris en compte. L'interaction rayons X - matière sera considérée élastique (diffusion Thomson). Les effets dynamiques seront négligés. En effet, les prochaines analyses portent sur des échantillons métalliques de surcroît avec des grains au maximum de l'ordre du micron. Cette approximation se justifie par la faible interaction entre les photons X et la matière

et le caractère imparfait des cristaux métalliques. En effet l'onde diffusée par un atome a très peu de chance d'interagir avec un autre atome. Cette section s'inspire des approches développées dans les ouvrages de [Warren 1969, Cowley 1975].

### 2.2.1 Diffusion par un électron

Une onde électromagnétique de vecteur d'onde  $k = \frac{2\pi}{\lambda}$  et de pulsation  $\omega$  polarisée rectilignement peut s'écrire  $\vec{E}_i = E_0 \exp i(kz - \omega t) \vec{e}_y$ . Si cette onde entre en interaction avec un électron, l'électron subit alors une accélération instantanée égale à  $\vec{a} = -\frac{e}{m} \vec{E}_i$ . Au niveau d'un point P d'observation situé loin à l'échelle de la longueur d'onde, on aura alors une onde diffusée de la forme (cf [Als-Nielsen 2001]) :

$$E_{dif}(t, \vec{R}) = -\left(-\frac{e}{R}\right) \frac{1}{4\pi\epsilon_0 c^2} \vec{a}_T\left(t - \frac{R}{c}\right) \quad (2.3)$$

L'électron excité par l'onde incidence réémet une onde sphérique.

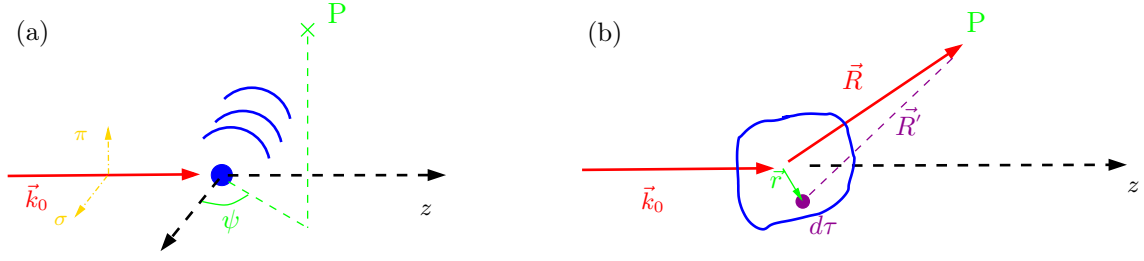


FIG. 2.2 – Diffusion par un électron et un atome

### 2.2.2 Diffusion par un atome

Dans cette approche, l'atome sera décrit comme un nuage électronique de densité  $\rho_a(\vec{r})$ . L'onde diffusée par le petit volume  $d\tau$  renfermant une densité  $\rho_a(\vec{r})d\tau$  d'électron sera donc une onde sphérique de la forme :

$$dE_{dif} = -r_0 E_{inc}^T \frac{\exp(i\vec{k} \cdot \vec{R}')}{R'} \rho_a(\vec{r}) d\tau \quad (2.4)$$

Loin de l'atome  $\vec{r}$  est petit devant  $\vec{R}$ ,  $R' = R(1 + \frac{\vec{r} \cdot \vec{R}}{R^2})$ . On peut alors écrire :

$$dE_{dif} = -r_0 \frac{E_0^T}{R'} \exp(i(\vec{k}_0 \cdot \vec{r} - \omega t)) \exp(i(\vec{k} \cdot \vec{R}')) \rho_a(\vec{r}) d\tau$$

On simplifie :

$$\begin{aligned} \vec{k}_0 \cdot \vec{r} + \vec{k} \cdot \vec{R}' &= \vec{k}_0 \cdot \vec{r} + k \cdot R - k \cdot \frac{\vec{r} \cdot \vec{R}}{R} \\ &= kR + \underbrace{(\vec{k}_0 - \vec{k})}_{\text{Vecteur de diffusion } \vec{q}} \cdot \vec{r} \end{aligned}$$

a	Au	Cu	b	Au	Cu	c	Au	Cu
a1	16.8819	13.3380	b1	0.4611	3.5828	c	12.0658	1.19100
a2	18.5913	7.1676	b2	8.6216	0.2470	-	-	-
a3	25.5582	5.6158	b3	1.4826	11.3966	-	-	-
a4	5.8600	1.6735	b4	36.3956	64.8126	-	-	-

TAB. 2.1 – Coefficients Cromer-Mann issus du calcul en Hartree-Fock relativiste (équation d’ajustement 2.7)

On approxime  $R' \simeq R$  car on se place en champ lointain. Il suffit alors d’intégrer sur tout le volume du nuage électronique.

$$E_{dif} = -r_0 E_{inc}^T \frac{\exp(i(kR - \omega t))}{R} \int_V \rho_a(\vec{r}) \exp(i(\vec{q}\vec{r})) d\tau \quad (2.5)$$

On reconnaît une transformée de Fourier continue. On définit alors le facteur de diffusion atomique comme :

$$f_0(q) = \int_V \rho_a(\vec{r}) e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} d\tau$$

L’intensité diffractée est proportionnelle à  $I \propto E_{dif}^* \cdot E_{dif}$ , ainsi :

$$I(\mathbf{q}) \propto \left| \int_V \rho_a(\vec{r}) e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} d\vec{r} \right|^2 \quad (2.6)$$

**Corrections - Facteur de diffusion atomique** L’approche précédente suppose que les électrons sont totalement libres et indépendants dans le nuage atomique. Evidemment, il s’agit d’une simplification. Les électrons sont en réalité liés à leur noyau selon des niveaux quantiques discrets différents. Les paramètres  $f_0(q)$  ont été calculés pour un large éventail de matériaux en utilisant une approche Hartree-Fock relativiste [Doyle 1968, Fox 1989]. Dans la pratique, on utilise la fonction d’ajustement (Eq 2.7) en injectant les coefficients correspondant (Tab 2.1) <sup>2</sup>

$$f_0\left(\frac{\sin(\theta)}{\lambda}\right) = \sum_{i=1}^4 a_i \exp\left(-b_i \frac{\sin(\theta)^2}{\lambda^2}\right) + c \quad (2.7)$$

Lorsque l’énergie des rayons incidents est proche d’un de ces niveaux énergétiques, des phénomènes de résonance apparaissent. Il faut alors introduire des coefficients correctifs au facteur de diffusion. On travaille généralement avec les termes  $f'$  et  $f''$  supposés indépendants de  $\mathbf{q}$ .

$$f = f_0(q) + f'(E) + i f''(E) \quad (2.8)$$

Sur les graphes 2.3b,c, on remarque qu’autour de  $12keV$ , les coefficients  $f'$  et  $f''$  sont très perturbés pour l’or. Il s’agit d’un seuil d’absorption de l’élément. De manière générale, c’est le cas pour tous les éléments au niveau de tous les seuils d’absorption.

<sup>2</sup>Il existe des données sous forme numérique fourni par l’ESRF (datbax) qui permet de les utiliser directement dans ces propres codes (<http://ftp.esrf.eu/pub/scisoft/xop2.3/DabaxFiles/>)

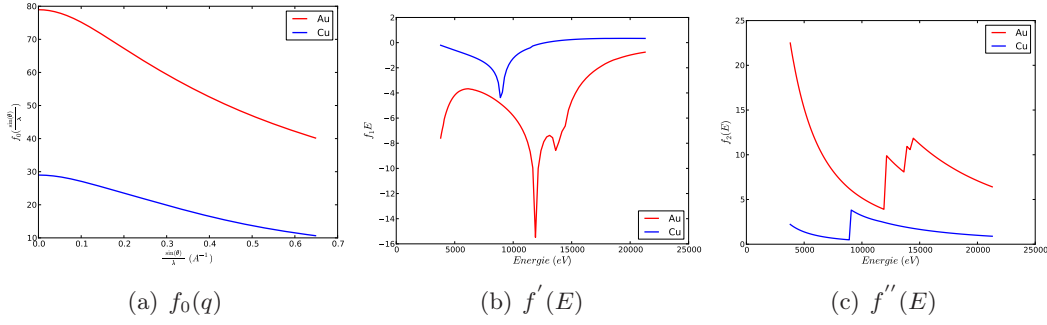


FIG. 2.3 – Facteur de diffusion pour Au et le Cu

### 2.2.3 Diffusion par un cristal

**Cristal Infini** Il est possible de décrire un cristal par sa fonction densité électronique  $\rho_{Cris}(\vec{r})$ . Cette fonction volumique décrit alors toutes les variations complexes de la nappe électronique du cristal. Dans ce cas, il suffit de généraliser l'équation 2.6.

$$I(\mathbf{q}) \propto \left| \int_V \rho_{Cris}(\vec{r}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} d\vec{r} \right|^2 \quad (2.9)$$

Partir d'une approche discrète du cristal permet de faire apparaître des propriétés supplémentaires. Les atomes sont décrits comme des centres diffuseurs caractérisés par leur facteur de diffusion atomique individuel. Le cristal est décrit comme la répétition infinie de son motif sur un réseau construit à partir des trois vecteurs  $(\mathbf{a}, \mathbf{b}, \mathbf{c})$ . Une position  $\vec{r}_n$  représente la position dans la maille élémentaire de l'atome  $n$  :

$$Cristal_\infty = Motif \otimes Reseau \quad (2.10)$$

$$Cristal_\infty = \sum_n \rho_n(\mathbf{r} - \mathbf{r}_n) \otimes \sum_{u,v,w=-\infty}^{+\infty} \delta(\mathbf{r} - (u\mathbf{a} + v\mathbf{b} + w\mathbf{c})) \quad (2.11)$$

Dans le cadre de l'approximation cinématique, les amplitudes diffusées sont sommées sur chaque atome du cristal.

$$A(\vec{q}) \propto \underbrace{\int \sum_{Motif} f_i(q) e^{i\vec{q} \cdot \vec{R}_j^M} d\vec{r}}_{F_s(\vec{q}) \text{ Facteur de Structure}} \int \sum \delta(\mathbf{r} - (u\mathbf{a} + v\mathbf{b} + w\mathbf{c})) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} d\vec{r} \quad (2.12)$$

Où le vecteur  $\vec{R}_j^M$  est le vecteur position de l'atome  $j$  dans le motif. Or la transformée de Fourier d'un peigne de Dirac est exactement un peigne de Dirac :

$$FT \left( \sum_u \delta(r - ua) \right) \sim \sum_h \delta(q - h \frac{2\pi}{a})$$

A trois dimensions, les vecteurs  $\vec{a}^*, \vec{b}^*, \vec{c}^*$  peuvent être introduit pour simplifier la formule.

$$\vec{a}^* = 2\pi \frac{\vec{b} \wedge \vec{c}}{\vec{a} \cdot \vec{b} \wedge \vec{c}} \quad \vec{b}^* = 2\pi \frac{\vec{c} \wedge \vec{a}}{\vec{b} \cdot \vec{c} \wedge \vec{a}} \quad \vec{c}^* = 2\pi \frac{\vec{a} \wedge \vec{b}}{\vec{c} \cdot \vec{a} \wedge \vec{b}} \quad (2.13)$$

Si  $\vec{q}$  vérifie la relation  $\vec{q} = \vec{G}_{hkl} = h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^*$  avec  $h, k, l$  entier, la fonction est maximale : on parle de pic de diffraction noté  $\vec{G}_{hkl}$ . Cet espace construit sur ces trois vecteurs est appelé espace réciproque. L'amplitude diffractée peut s'écrire

$$A(\vec{q}) \propto F(\vec{q}) \sum \delta(\vec{q} - \vec{G}) \quad (2.14)$$

Il s'agit de la somme cinématique.

Le motif a une influence sur ces maxima localisés. Certaines positions de l'espace réciproque ne présentent pas de maxima. Il s'agit des extinctions systématiques. Pour les cubiques faces centrées (Au, Cu ...), les entiers  $(h, k, l)$  doivent être de même parité pour observer un pic de diffraction.

**Cristal de taille fini** Dans la pratique, nous allons nous intéresser à de petits cristaux de taille inférieure au micron. Il est alors intéressant d'introduire une fonction de forme qui comme son nom l'indique décrit l'objet dans l'espace réel. Comme précédemment le cristal est construit sur sa maille  $(\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$ . Mais la somme est maintenant une somme bornée.

$$Crystal = \sum_n^{Motif} \rho_n(\mathbf{r} - \mathbf{r}_n) \otimes \sum_{u,v,w}^{N_x, N_y, N_z} \delta(\mathbf{r} - (u\mathbf{a} + v\mathbf{b} + w\mathbf{c})) \quad (2.15)$$

$$I(\vec{q}) \propto |F_s(\vec{q})|^2 \left| \sum_{n_1, n_2, n_3} e^{i\vec{q} \cdot (n_1\vec{a} + n_2\vec{b} + n_3\vec{c})} \right|^2 \quad (2.16)$$

Si on considère un cristal de forme parallépipédique composé de  $N_x, N_y, N_z$  atomes dans chaque direction  $(x, y, z)$ , la somme cinématique peut s'écrire en développant (somme d'une série géométrique) : <sup>3</sup>

$$I(\vec{q}) \propto \frac{\sin(N_x q_x a/2)^2}{\sin(q_x a/2)^2} \cdot \frac{\sin(N_y q_y b/2)^2}{\sin(q_y b/2)^2} \cdot \frac{\sin(N_z q_z c/2)^2}{\sin(q_z c/2)^2} \quad (2.17)$$

cette fonction est appelée fonction de Laue. Elle est maximale si simultanément  $\vec{q} \cdot \vec{a} = 2\pi h$  et  $\vec{q} \cdot \vec{b} = 2\pi k$  et  $\vec{q} \cdot \vec{c} = 2\pi l$  avec  $h, k, l$  entiers . On retrouve la notion d'espace réciproque.

3

$$\left| \sum_0^{N-1} \exp(iN \cdot x) \right|^2 = \left| \frac{\exp(iNx) - 1}{\exp(ix) - 1} \right|^2 = \frac{\sin(Nx/2)^2}{\sin(x/2)^2}$$

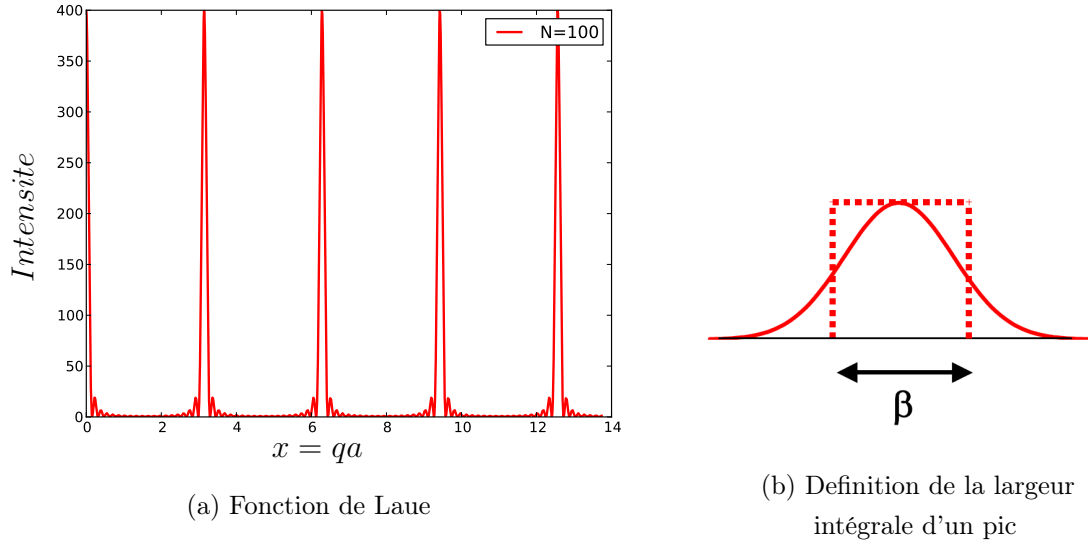


FIG. 2.4 – Fonction de Laue et largeur intégrale

### Remarques

- Le maximum de l'intensité à chaque noeud de l'espace réciproque est proportionnelle au carré du volume diffractant. Si on fait varier les cotés d'un cristal cubique d'un facteur 2, ce maximum décroît d'un facteur 64.

$$I(G_{hkl}) \propto F_s^2 \cdot N_x^2 \cdot N_y^2 \cdot N_z^2$$

- La description précédente a supposé un cristal de forme parallélépipédique. Plus généralement, la fonction forme  $s(\vec{r})$  peut être introduite pour décrire l'objet. Le cristal est alors le produit entre le cristal infini et cette fonction forme. L'intensité diffractée de ce cristal parfait est alors un produit de convolution :

$$\rho(\vec{r}) = s(\vec{r}) \cdot \left[ \rho_m(\vec{r}) \otimes \sum_{\vec{R}} \delta(\vec{r} - \vec{R}) \right]$$

$$A(\vec{q}) \propto S(\vec{q}) \otimes \left[ F_s(\vec{q}) \sum \delta(\vec{q} - \vec{G}) \right] \text{ où } S(\vec{q}) = TF\{s(\vec{r})\}$$

où  $\rho_m(\vec{r})$  est la densité de la maille.

## 2.3 Mesures de déformations et de contraintes par diffraction X classique

L'intensité diffractée est sensible à l'ordre atomique (paramètre de maille). L'état de déformation du cristal peut alors se déduire des paramètres interplanaires  $d_{hkl}$ .

En revanche, pour en déduire la contrainte une loi de comportement est nécessaire, typiquement l'élasticité anisotrope. C'est pourquoi, il est un peu abusif de parler de mesure de contraintes avec des rayons X, il faudrait plutôt parler de mesure de déformation voire de gradient de champ de déplacement.

### 2.3.1 Cas d'un monocristal

La mesure des maxima de la fonction de Laue permet d'évaluer les paramètres inter-réticulaires (distance entre les plans cristallins). En mesurant la position du pic  $G_{200}$ , il est possible de déduire la valeur du paramètre  $a$ . En effet, la fonction de Laue est maximale en  $a \cdot G_{200} = 4\pi$ . La connaissance du paramètre de référence  $a_0$  permet d'en déduire la déformation  $\varepsilon = \frac{a-a_0}{a_0}$  dans cette direction.

#### 2.3.1.1 Détermination du tenseur des déformations

En généralisant cet exemple, la déformation du cristal dans une direction repérée par une inclinaison  $\psi$  par rapport à la surface et par une orientation  $\phi$  dans le plan, est quantifiable si et seulement si on est capable de mesurer une distance inter-réticulaire dans cette direction. Il faut donc trouver les indices  $(h, k, l)$  tel que  $\vec{G}_{hkl}$  pointe dans la direction définie par ces deux angles  $(\psi, \phi)$ . Dans la pratique, les directions entre les plans atomiques sont fixées par le réseau cristallographique de l'objet. On trouvera les principaux angles entre les plans dans le cubique à faces centrées dans le tableau 4.1. La connaissance de  $d_{hkl}$  permet alors de calculer la déformation  $\varepsilon_{\psi\phi}$  dans cette direction en mesurant la position du vecteur de Bragg correspondant  $G_{hkl}$ .

D'autre part la déformation dans une direction quelconque  $(\psi, \phi)$  peut se calculer à partir du tenseur complet des déformations :

$$\varepsilon_{\psi\phi} = \mathbf{n}_{\psi\phi} \cdot \bar{\boldsymbol{\varepsilon}} \cdot \mathbf{n}_{\psi\phi}$$

Ainsi pour un état de déformation quelconque,

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\psi\phi} = & \varepsilon_{11} \cos^2(\phi) \sin^2(\psi) + \varepsilon_{12} \sin(2\phi) \sin^2(\psi) \\ & + \varepsilon_{22} \sin^2(\phi) \sin^2(\psi) + \varepsilon_{33} \cos^2(\psi) \\ & + \varepsilon_{13} \cos(\phi) \sin(2\psi) + \varepsilon_{23} \sin(\phi) \sin(2\psi) \end{aligned}$$

Avec 6 réflexions  $hkl$  indépendantes, il est possible de déterminer le tenseur complet des déformations. Néanmoins, il est préférable de faire l'acquisition d'un maximum de réflexions possible. Un affinement par méthode des moindres carrés permet d'obtenir des résultats plus précis.<sup>4</sup>

<sup>4</sup> Eventuellement dans le cas d'un film monocristallin, un angle de désorientation avec le substrat est possible. Il y a alors deux inconnues supplémentaires. Un moyen de les déterminer est alors de faire plusieurs cartographies autour de réflexions communes entre le film et le substrat pour lever cette ambiguïté angulaire supplémentaire.



### 2.3.1.2 Analyse de raie

La forme d'une raie de diffraction peut également être riche en informations. Dans le vaste domaine de l'analyse des profils de raie, la largeur intégrale est plutôt utilisée. La largeur intégrale (cf fig. 2.4b) d'une raie est définie simplement par le rapport entre son intégrale et son maximum.

$$\beta = \frac{\int y(x)dx}{y_{max}} \quad (2.18)$$

Les largeurs intégrales  $\beta$  sont privilégiées puisqu'elles sont proportionnelles à l'inverse du volume diffractant. Le maximum du pic est lui proportionnel au carré du volume et au carré du facteur de structure.

**Effet de taille - Formule de Scherrer** Les dimensions de l'objet constitue la contribution la plus simple à la largeur d'une raie. La taille finie d'un cristal influence la largeur de ce pic. La fonction de Laue permet de prévoir cette largeur <sup>5</sup>.

$$\Delta q^L = \frac{2\pi}{L} \quad (2.19)$$

Cette relation est connue sous le nom de formule de Scherrer <sup>6</sup>. Il y a une dépendance en  $1/L$  : plus le cristal est petit, plus la largeur du pic sera grande. Dans la pratique si un ajustement de la raie par une fonction Gaussienne ou une Lorentzienne est effectué, les largeurs à mi-hauteur sont proportionnelles à cette largeur intégrale via les deux relations suivantes :

$$Fwhm_g = \beta_g 2\sqrt{\frac{\ln(2)}{\pi}} \quad Fwhm_l = \beta_l \frac{2}{\pi}$$

Une réflexion 111 d'un grain d'or mesurée avec un faisceau monochromatique  $K_{\alpha 1}^{Cu}$  donne une largeur de  $0.05^\circ$  pour une cristallite de  $L = 200 \text{ nm}$  et de  $0.01^\circ$  pour  $L = 1 \mu m$ . Un grain de  $L = 20 \text{ nm}$  entraîne une largeur de pic de  $0.57^\circ$ . L'intensité maximale (proportionnelle au carré du volume) est alors particulièrement difficile à détecter expérimentalement en raison de cet étalement dans l'espace réciproque. Ce grain nanométrique est potentiellement non détectable.

**Inhomogénéité de déformation intra-grain** Un facteur supplémentaire d'élargissement d'un pic d'un mono-cristal est son inhomogénéité de déformation interne. En toute généralité si le champ de déformation à l'intérieur du grain est connu, la

<sup>5</sup> La fonction de Laue peut pour N grand être approximée par une fonction gaussienne de même surface

$$\frac{\sin(Nx/2)^2}{\sin(x/2)^2} \rightarrow N^2 e^{-\frac{(Nx)^2}{\pi}}$$

<sup>6</sup>En géométrie de Bragg, la formule de Scherrer peut s'écrire  $B(2\theta_{hkl}) = \frac{0.94\lambda}{L \cos(\theta_{hkl})}$  où B est la largeur du pic (rad) et  $\theta_{hkl}$  est l'angle de Bragg de la réflexion hkl.

largeur intégrale peut être calculée à partir de la somme cinématique. Mais cet état de déformation interne a une influence subtile dans cette somme. C'est pourquoi des modèles simples ont été proposés pour évaluer une grandeur représentative de l'état de déformation interne (ou micro-déformation  $\varepsilon^*$ ) à partir de la largeur de raie. Quelques uns de ces modèles seront brièvement expliqués ici.

**Modèle de Williamson-Hall** L'analyse de Williamson-Hall [Williamson 1953] est la méthode la plus simple pour séparer les contributions de taille et de micro-déformation d'un profil de raie. La fonction de Laue qui décrit la diffraction d'un cristal non déformé est périodique, la largeur des pics représentant les différents ordres de diffraction ne dépend pas de  $q$ . Ainsi, il est postulé dans cette approche que l'évolution de largeur des pics avec  $q$  dépend uniquement de l'état interne de déformation et que les deux contributions sont additives.

$$\beta^* = \frac{2\pi}{L^*} + \varepsilon^* q \quad (2.20)$$

La courbe  $\Delta q$  en fonction de  $q$  donne une droite. L'ordonnée à l'origine correspond à une taille représentative du cristal. La pente de la droite est liée à l'état interne de déformation  $\varepsilon^*$ . Expérimentalement, il s'agit simplement de mesurer une même réflexion sous plusieurs ordres de diffraction.

**Modèle de Warren-Averbach et analyse de Fourier des raies** Il existe des modèles plus élaborés d'analyse de raie [Warren 1950, Gangulee 1974, Mignot 1975]. Elles sont basées sur une astuce d'écriture de l'intensité diffractée qui peut être vue comme une transformée de Fourier discrète dont les termes dépendent de la micro-déformation  $I(H) = \sum_n c_n e^{i2\pi n \cdot H}$ . Cette technique revient en quelque sorte à étudier les corrélations de déformations le long d'une gamme de longueurs caractéristiques.

Toutes ces approches nécessitent une grande précaution d'usage. Il faut caractériser précisément la fonction expérimentale du dispositif de mesure utilisé. En laboratoire la fonction expérimentale peut être significative (divergence ...), sur une ligne synchrotron elle est réduite de manière significative (Plus de détails §. 3.2).

### 2.3.2 Cas des polycristaux

Lorsque le faisceau X est largement plus grand que la taille des grains ( $\simeq 1mm$  en laboratoire), la mesure est moyennée sur un grand nombre de petits mono-cristaux. Ces approches ont donc été adaptées pour caractériser ces comportements collectifs. Certaines sont rappelées dans le paragraphe qui suit.

#### 2.3.2.1 Techniques des $\sin^2(\Psi)$

La technique des  $\sin^2(\Psi)$  est une technique très utilisée dans le cas des films minces. Elle consiste à mesurer la déformation dans différentes directions pour en déduire un état de contrainte moyen.

**Film mince** Dans le cas d'un film mince homogène en état de contrainte biaxiale isotrope, la déformation n'a plus que 2 composantes indépendantes  $\varepsilon_{11} = \varepsilon_{22} = \varepsilon_{//}$  et  $\varepsilon_{33} = \varepsilon_{\perp}$  (cf Sec 1.2.2), l'expression générale de  $\varepsilon_{\psi\phi}$  se simplifie en :

$$\begin{aligned}\varepsilon_{\psi\phi} &= \varepsilon_{\perp} \cos^2(\psi) + \varepsilon_{//} \cos^2(\phi) \sin^2(\psi) + \varepsilon_{//} \sin^2(\phi) \sin^2(\psi) \\ &= \varepsilon_{\perp} \cos^2(\psi) + \varepsilon_{//} \sin^2(\psi) \\ &= (\varepsilon_{//} - \varepsilon_{\perp}) \sin^2(\psi) + \varepsilon_{\perp}\end{aligned}$$

La déformation  $\varepsilon_{\psi\phi}$  suit donc une droite en  $\sin^2(\psi)$ . Le coefficient directeur et l'ordonnée à l'origine de cette droite donne directement les valeurs de déformation  $\varepsilon_{//}$  et  $\varepsilon_{\perp}$ . Pour un film polycristallin ne présentant aucune texture (orientation aléatoire des grains), pour une réflexion donnée hkl, il existera quelle que soit l'inclinaison  $\psi$  du film dans le repère du laboratoire des grains qui seront en condition de diffraction. Ainsi, il sera possible de mesurer  $\varepsilon_{\psi}$  pour tout angle  $\psi$ . Cette technique d'analyse de poudre est connue sous le nom de technique des  $\sin^2(\Psi)$ .

Dans le cas d'un film texturé, il n'existe plus de grains en condition de diffraction quel que soit l'angle  $\psi$ . Des réflexions asymétriques d'indices hkl différents sont alors mesurées pour faire varier l'inclinaison  $\psi$ . Un nombre limité d'inclinaison sont disponibles expérimentalement compte tenu des propriétés cristallographique du film étudié (cf Tab 4.1). Cette variante de la technique des  $\sin^2(\Psi)$  est connue sous le nom de technique des directions idéales. Pour déterminer  $\varepsilon_{\psi}$ , seule l'information sur la position des pics de diffraction est utilisée. Cette position correspond à une moyenne de la contribution des grains qui satisfont la condition de diffraction. Selon la réflexion (et donc de l'angle  $\psi$ ), ce n'est pas forcément les même grains qui diffractent dans la direction du détecteur. La moyenne est donc réalisée sur des grains différents à chaque réflexion hkl. L'état de déformation déduit est bien représentatif d'un état moyen de l'échantillon via cette sorte de double moyenne.

### 2.3.2.2 Exploitation des profils de raies

L'analyse de profil de raie est plus complexe dans le cas polycristallin. La largeur d'un pic dépend de la micro-déformation de chaque grain, de la distribution de taille, d'orientation, de déformation moyenne.

**Inhomogénéité inter-grain** Un film modèle composé de 1000 grains d'épaisseur  $h$  est utilisé pour illustrer ces dépendances. Le diamètre équivalent  $D$  des grains dans le plan suit une loi Log-Normale. La déformation moyenne suit une distribution gaussienne (Figure 2.5a). Les deux distributions ne sont pas corrélées. Ces 100 grains sont illuminés simultanément. Les réflexions symétriques 111, 222 et 333 sont calculées en approximant la fonction de Laue par une gaussienne. L'intensité intégrée du pic de chaque grain est proportionnelle à son volume  $V = h \times D^2$ . La largeur est calculée en utilisant la formule de Scherrer  $\frac{0.94\lambda}{h \cos(\theta)}$ . Il s'agit de réflexions symétriques sensibles à l'épaisseur du film. Le signal de chaque grain aura la même largeur mais les grains les plus volumineux ont une influence plus importante. Les

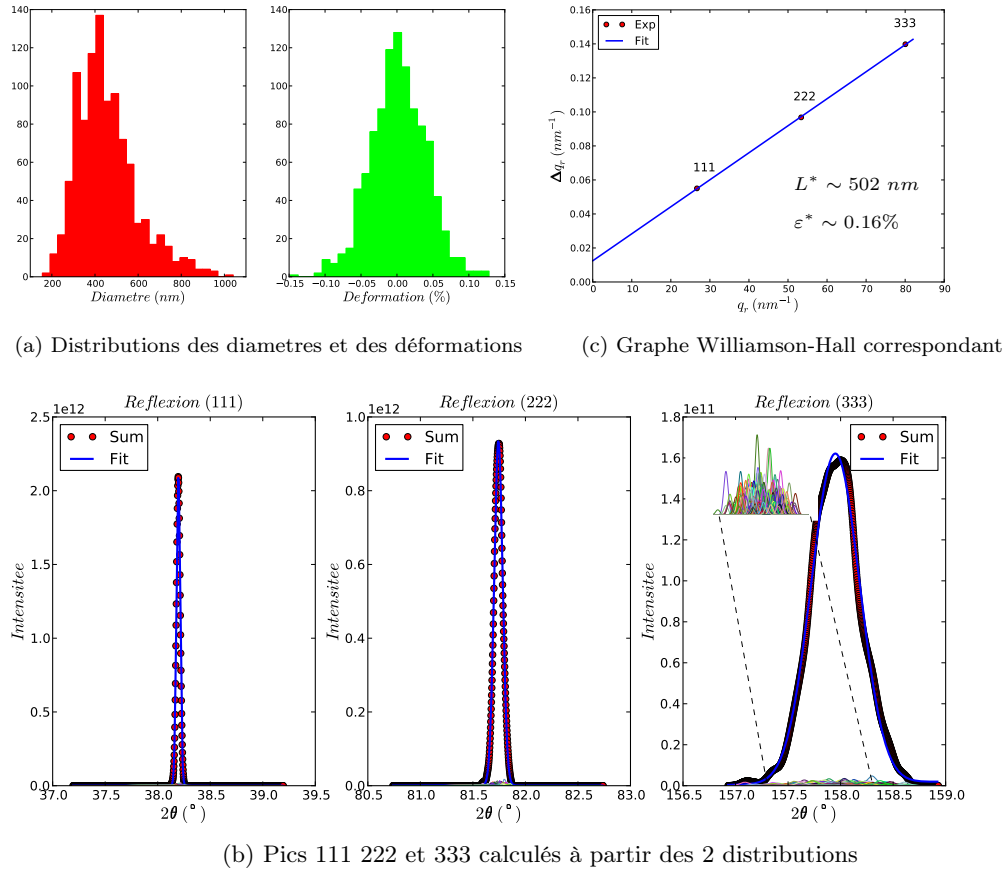


FIG. 2.5 – Calcul des largeurs des pics 111, 222 et 333 en vue de tracer le diagramme de Williamson Hall à partir de 2 distributions de taille et de déformation

grains sont supposés être déformés uniformément (pas d'hétérogénéité de déformation intra-grain). L'allure du pic moyen est calculé en sommant de façon incohérente la contribution des 1000 grains (Fig 2.5b). Le pic (333) présente un allure irrégulière avec une légère asymétrie. L'effet est moins marqué pour les réflexion de plus bas indices qui sont moins sensibles aux déformations.

D'autre part, l'approche Williamson-Hall (Fig 2.5c) donne les paramètres équivalents  $L^* \sim 502 \text{ nm}$  et  $\varepsilon^* \sim 0.16 \%$ . Ces valeurs sont en accord avec les distributions de forme et de déformation introduites initialement. Cependant ici, l'élargissement des raies en  $q$  provient uniquement des inhomogénéités de déformations inter-grains et de la distribution de tailles des cristallites. L'approche Williamson-Hall reste donc qualitative dans une analyse de raie.

Ce modèle simple permet de mettre en évidence le couplage largeur-dispersion de taille et des déformations moyennes. Pour être quantitatif et tenir compte de la distribution de micro-déformation interne, des approches plus évoluées ont été développées.

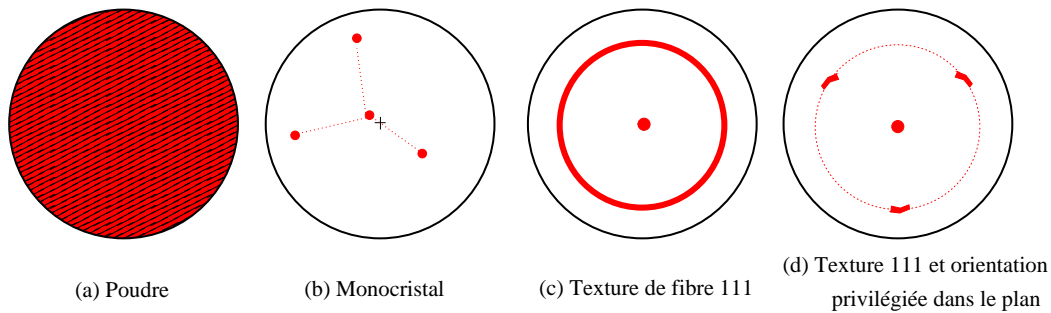


FIG. 2.6 – Quelques figures de pôle d'axe 111 correspondant à des textures classiques

## 2.4 Mesures de texture avec les rayons X

La diffraction est très sensible aux distances inter-planaires. Mais la position des pics de diffraction peut également servir à quantifier l'orientation d'un cristal dans le repère du laboratoire avec une très bonne précision. Ainsi, la diffraction est un outil de choix pour étudier les textures des échantillons polycristallins.

### 2.4.1 Figure de Pôle

La mesure de figure de pôle  $hkl$  est une mesure classique pour déterminer la texture. Elle consiste à mesurer expérimentalement la projection stéréographique relative à la normale au plan  $(hkl)$  (cf §. 1.1.2). La procédure d'acquisition consiste à amener en condition de diffraction les plans  $(hkl)$  de l'ensemble des cristallites. Pour cela le détecteur et l'incidence  $k_i$  sont fixés respectivement à l'angle de Bragg  $2\theta_{hkl}$  et  $\theta_{hkl}$ . L'échantillon est alors déplacé suivant deux rotations : la rotation  $\phi$  d'axe perpendiculaire au faisceau et d'axe  $\psi$  correspondant à l'intersection entre le plan d'incidence et le plan de la surface (géométrie de Schulz). Pour chaque position  $(\phi, \psi)$  aux corrections géométriques près, l'intensité mesurée est proportionnelle au volume des cristallites présentant leur normale  $hkl$  dans cette direction. Dans le cas simple d'un cristal cubique faces centrées, une figure de pôle d'axe 111 peut présenter divers aspects. Quatre cas sont schématisés sur la figure 2.6. Si l'échantillon est une poudre (cas a) (i.e. composé d'une multitude de cristallites orientées de manière aléatoires), la figure de pôle ne présentera aucune structure particulière. En revanche, si le cristal est un monocristal, seuls 4 pôles correspondant aux 4 directions  $\langle 111 \rangle$  apparaîtront sur la figure (cas b). La normale  $(111)$  n'est d'ailleurs pas forcément parfaitement alignée avec la normale de l'échantillon, d'où la petite désorientation du pôle central.

Dans le cas où l'échantillon est composé de nombreuses cristallites présentant une direction  $\langle 111 \rangle$  perpendiculaire à la surface du film et une orientation aléatoire dans le plan du film (i.e. les directions  $[110]$  pointent dans toutes les directions), la figure de pôle présentera un pôle central et un anneau continu incliné à  $70^\circ$ . Il s'agit d'une texture de fibre 111. Il est possible d'observer un cas intermédiaire entre une

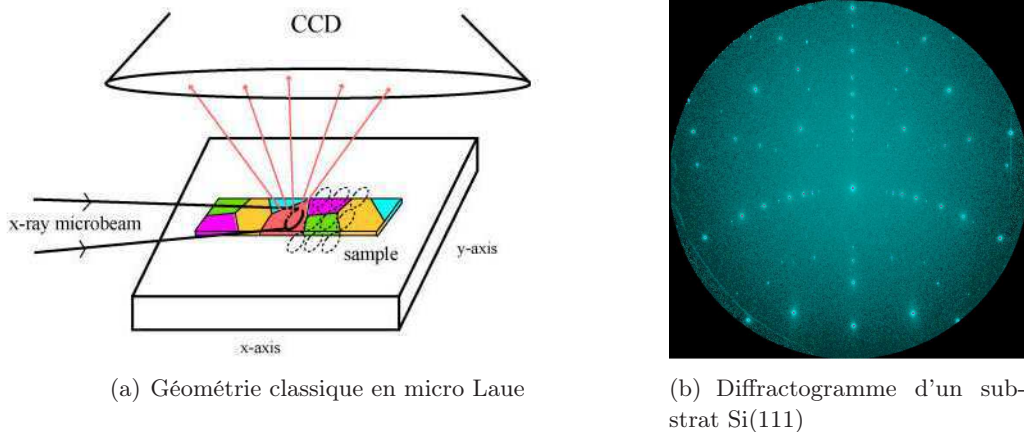


FIG. 2.7 – Principes généraux de la micro-diffraction Laue

texture de fibre et un monocristal (cas d - une direction dans le plan est privilégiée mais présente une certaine dispersion angulaire).

### 2.4.2 Microdiffraction Laue

La diffraction en faisceau blanc (polychromatique) ou diffraction Laue peut également être utilisée pour caractériser l'orientation d'un cristal. La diffraction Laue est une technique ancienne, le premier diagramme a été réalisé par Laue et Knipping en 1912 sur un cristal de ZnS. L'émergence des micro-faisceaux grâce à l'apparition d'optiques focalisantes achromatiques (en l'occurrence l'utilisation de deux miroirs en géométrie KB [Kirkpatrick 1948]) a relancé l'intérêt de cette technique disponible en particulier sur la ligne BM32 à l'ESRF. Elle connaît de nouveau un fort développement. Cette technique est notamment particulièrement efficace pour l'étude des polycristaux [Spolenak 2003]. Comme l'échantillon est illuminé avec un faisceau blanc, un large nombre de plans atomiques satisfont la condition de Bragg. Typiquement, un diffractogramme (Fig. 2.7b) est acquis avec une caméra CCD placée relativement proche de l'échantillon (une dizaine de centimètres) pour intercepter plusieurs réflexions.

La technique est très sensible à l'orientation des grains. En effet soit un grain orienté (111) possédant des angles d'Euler  $(\phi, \Psi)$ , un diagramme Laue peut être simulé en calculant les vecteurs normaux  $\vec{n}$  d'un certain nombre de plans atomiques. Il existe alors une énergie telle qu'il existe un vecteur de diffraction  $\vec{q}_n$  colinéaire à cette direction  $\vec{n}$ . La direction du vecteur  $\vec{k}_f = \vec{q}_n - \vec{k}_i$  peut être déduite facilement car l'incidence est constante. Il faut alors projeter ces directions  $\vec{k}_f$  sur le plan de la caméra en tenant compte de sa position et de l'angle précis de l'échantillon. Cette technique est donc très sensible à l'orientation dans le plan des grains. Ce calcul repose sur une approche simplifiée, et ne tient pas compte ni des déformations ni de la superposition des harmoniques  $E, 2E, 3E$  qui diffractent au même endroit... La mesure précise de la position des taches de Laue permet de remonter au tenseur

déviatorique des déformations. Cette approche ne sera pas approfondie dans la suite de ce travail. Cependant, l'acquisition d'une cartographie Laue d'un échantillon a été essentielle pour obtenir des informations manquantes à propos de l'orientation dans le plan de certains grains étudiés en détail (cf Section 4.4).

## 2.5 Diffraction par un grain unique - Diffraction cohérente

### 2.5.1 Somme cinématique et transformée de Fourier

Comme évoqué dans la première partie de ce chapitre, la somme cinématique peut être dérivée des lois générales de l'électromagnétisme. Il sera décrit ici comment et dans quelle limite cette somme cinématique peut être réexprimée par une transformée de Fourier.

**Cristal déformé** Pour un cristal déformé, il est intéressant d'introduire le champ de déplacement  $\mathbf{u}(x, y, z)$  correspondant au terme de déviation par rapport au réseau cristallin parfait. Ainsi la position d'un atome est repéré par

$$\mathbf{r}_n = \mathbf{R} + \mathbf{u} = x' \mathbf{a} + y' \mathbf{b} + z' \mathbf{c} + \mathbf{u}(x, y, z)$$

où  $x', y', z'$  sont entiers <sup>7</sup>. Dans le cas d'un motif mono-atomique, la somme cinématique se réécrit :

$$A(\vec{q}) = \sum_n f_n(\vec{q}) e^{i\vec{q} \cdot \vec{r}} = \sum_n f_n(\vec{q}) e^{i\vec{q} \cdot (\vec{R} + \vec{u}(R))} \quad (2.21)$$

$$\simeq \sum_n f_n(\vec{G}) e^{i\vec{G} \cdot \vec{u}(\vec{R})} e^{i\vec{q} \cdot \vec{R}} \quad \text{si } (\vec{q} - \vec{G}) \cdot \vec{u} \rightarrow 0 \quad (2.22)$$

$$\simeq TF \left( f_n e^{i\vec{G} \cdot \vec{u}(\vec{R})} \right) \quad (2.23)$$

On reconnaît une transformée de Fourier discrète <sup>8</sup>. Celle-ci peut bien être définie puisque la fonction  $f_n e^{i\vec{G} \cdot \vec{u}(\vec{R})}$  est une fonction à support fini (nombre fini de centres diffuseurs). Le vecteur  $\vec{G} = \vec{G}_{hkl}$  est le vecteur de Bragg de la réflexion (hkl) considérée.

Ce développement en série de Fourier est valable si  $(\vec{q} - \vec{G}) \cdot \vec{u} \rightarrow 0$ . Ainsi, plus l'objet présente un champ de déformation important, plus cette approximation est valide dans un voisinage réduit autour du vecteur de Bragg. Cette approximation est notamment développée dans l'annexe de l'article [Takagi 1969]. Le terme  $f_n(\vec{q}) e^{i\vec{G} \cdot \vec{u}(R)} = c_n$  est considéré comme indépendant de  $\vec{q}$ .

A une dimension  $R = n \cdot a$  et pour une réflexion d'indice h :

$$A(\vec{q}) \propto \sum_n c_n e^{iq_x \cdot n \cdot a} = \sum_n c_n e^{i \frac{2\pi h}{a} \cdot n \cdot a} = \sum_n c_n e^{i2\pi h \cdot n}$$

<sup>7</sup>la notation de cristallographie (u,v,w) est ici abandonnée pour éviter les confusions avec le champ de déplacement u

<sup>8</sup>Le symbole  $\mathcal{F}$  coexistera avec TF dans la suite du manuscrit pour désigner la transformée de Fourier

On retrouve bien la définition d'une transformée de Fourier discrète. Le terme  $f_n e^{i\vec{G}\cdot\vec{u}(r)}$  dépend de la forme du cristal et de son état de déformation interne.

**Calcul avec la TF dans la pratique** La transformée de Fourier rapide (*FFT*) peut être utilisée dans la pratique pour calculer un pic de Bragg. Il faut choisir avec soin la résolution avec laquelle est décrit l'objet dans l'espace réel. Cette résolution  $\delta l$  impose l'extension dans l'espace réciproque  $\Delta q$  du pic calculé. La taille totale de la boîte  $\Delta L$ , qui dépend du nombre de zéros ajoutés dans l'espace direct, permet d'ajuster la résolution dans l'espace réciproque (schéma 2.8a,b).

$$\Delta q_x = \frac{2\pi}{\delta l_x} \quad \delta q_x = \frac{2\pi}{\Delta L_x} \quad (2.24)$$

Un accroissement de la résolution dans l'espace réciproque est illustré figure 2.8c,d).

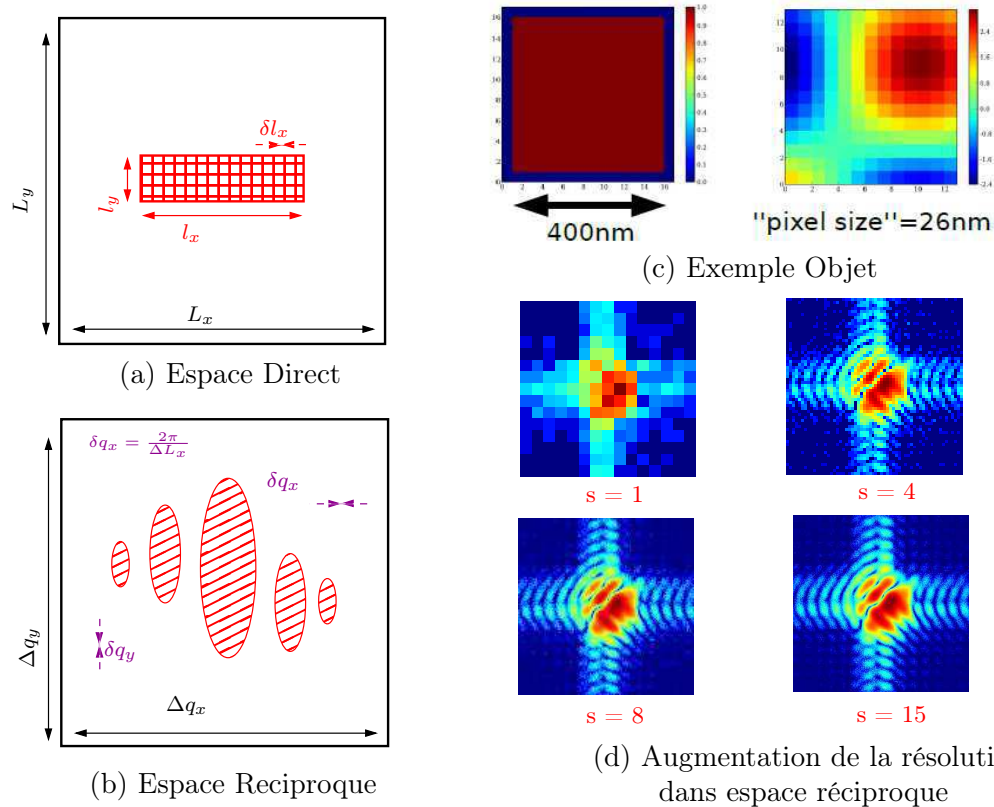


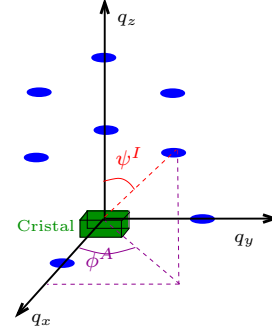
FIG. 2.8 – Lien entre l'espace direct et l'espace réciproque des résolutions et des étendues

Le signal de diffraction d'un petit cristal déformé de 400 nm est calculé. Selon le nombre de zéros rajoutés dans l'espace direct, les franges d'interférences sont de mieux en mieux résolues.



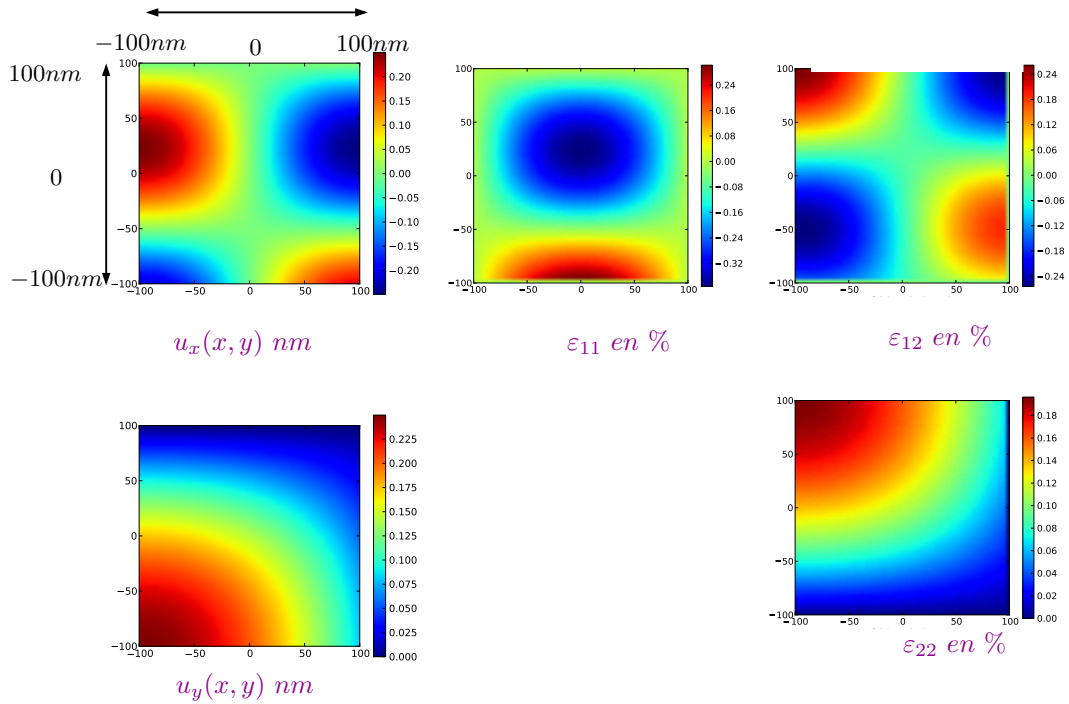
### 2.5.2 Calcul de différentes réflexions à partir d'un cristal orienté dans le repère du laboratoire

Soit un grain orienté (111) dans le repère du laboratoire  $(x, y, z)$ , la normale au plan (111) coïncide avec la direction  $z$  et les directions perpendiculaires  $1\bar{1}0$  et  $11\bar{2}$  avec les directions  $x$  et  $y$ . Chaque réflexion est sensible à la projection de  $\vec{u}$  sur le vecteur  $\vec{G}$ . Les directions de  $\vec{G}_{hkl}$  sont parfaitement connues et peuvent être repérées par une inclinaison et un azimuth  $(\psi^I, \phi^A)$  (Fig. 2.9)



$$\begin{aligned} \vec{G}_{1\bar{1}1} \cdot \vec{u} &= \begin{pmatrix} \cos \phi^A \sin \psi^I \\ \sin \phi^A \sin \psi^I \\ \cos \psi^I \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} u_x(x, y, z) \\ u_y(x, y, z) \\ u_z(x, y, z) \end{pmatrix} \\ &= \cos \phi^A \sin \psi^I u_x(x, y, z) + \sin \phi^A \sin \psi^I u_y(x, y, z) + \cos \psi^I u_z(x, y, z) \end{aligned}$$

FIG. 2.9 – Géométrie de la mesure



(a) Les deux composantes du champ déplacement (b) Tenseur complet des déformations déduit

FIG. 2.10 – Exemple d'un champ de déplacement  $\vec{u}$  quelconque et du tenseur complet des déformations correspondant

Soit un cristal 2D de forme quadratique  $200 \times 200 \text{ nm}$ , de paramètre de maille  $0.4 \text{ nm}$  présentant un champ de déplacement inhomogène connu avec une résolution de  $4 \text{ nm}$  dans les deux directions du repère  $(x, y)$ . Le champ  $u_x$  est choisi plus inhomogène que le champ  $u_y$ . Le tenseur des déformations complet en est déduit (cf Formules 1.2). Dans ce cas à 2 dimensions, ce tenseur est composé de 3 éléments  $\varepsilon_{11}, \varepsilon_{22}$  et le terme de cisaillement  $\varepsilon_{12}$  (cf Figure 2.10a,b). Les déformations sont importantes présentant des variations de près de 0.5%. Les pics de diffraction (00),(10),(01),(11),(20),(02),(21),(12) et (22) sont alors calculés à partir de ce champ  $\mathbf{u}$  (Figure 2.11) après l'avoir préalablement projeté sur le vecteur de diffraction  $\vec{G}_{hk}$

$$\vec{G} \cdot \vec{u} = \cos \psi_{hk}^I u_x(x, y) + \sin \psi_{hk}^I u_y(x, y)$$

La réflexion (00) est uniquement sensible à la forme de l'objet, un sinus cardinal au carré est donc logiquement trouvé<sup>9</sup>. Des distorsions de franges d'interférences plus importantes sont observées pour les pics plus sensibles au champ  $u_x(x, y)$  qui est plus inhomogène que le champ  $u_y(x, y)$ . Par exemple, le pic (21) est largement plus distordu que le pic (01) puisque  $\psi_{21}^I \simeq 26^\circ$  tandis que  $\psi_{01}^I = 90^\circ$ .

**Effets de fortes inhomogénéités de déformations** Le pic (11) précédent a été calculé en augmentant progressivement l'amplitude du champ de déplacement  $u$ . Le pic de diffraction est de plus en plus perturbé (Fig. 2.12). Il s'élargit et sa structure interne se complexifie. Pour des champs très hétérogènes le pic n'a plus de structure apparemment liée à la forme carrée du cristal. Il faut noter que les amplitudes de champ de déformation ( $\Delta\varepsilon = 4.7\%$  pour la figure 2.12d) n'ont pas forcément de sens mécaniquement parlant.

### 2.5.3 Signatures spécifiques du signal de diffraction

D'un point de vue mathématique, l'opérateur diffraction qui transforme un cristal déformé en une tache de diffraction est un opérateur non linéaire. En pratique, il existe très peu de solutions analytiques.

**Propriétés de symétrie** La transformée de Fourier possède les règles de symétrie suivantes :

$$\begin{aligned} f(\mathbf{x}) &\stackrel{\mathcal{F}}{\rightleftharpoons} F(\mathbf{q}) \\ f(-\mathbf{x}) &\rightleftharpoons F(-\mathbf{q}) \\ f^*(\mathbf{x}) &\rightleftharpoons F^*(-\mathbf{q}) \end{aligned}$$

Puisque l'intensité diffractée est le carré d'une transformée de Fourier, les deux propriétés suivantes en sont déduites :

Objet réel  $\implies$  Pic centrosymétrique

Pic non centrosymétrique  $\implies$  Objet déformé

<sup>9</sup> Etudier expérimentalement le pic à l'ordre zéro (sensibilité à la forme et au profil de densité) revient à faire du *SAXS-Small Angle X-ray Scattering*

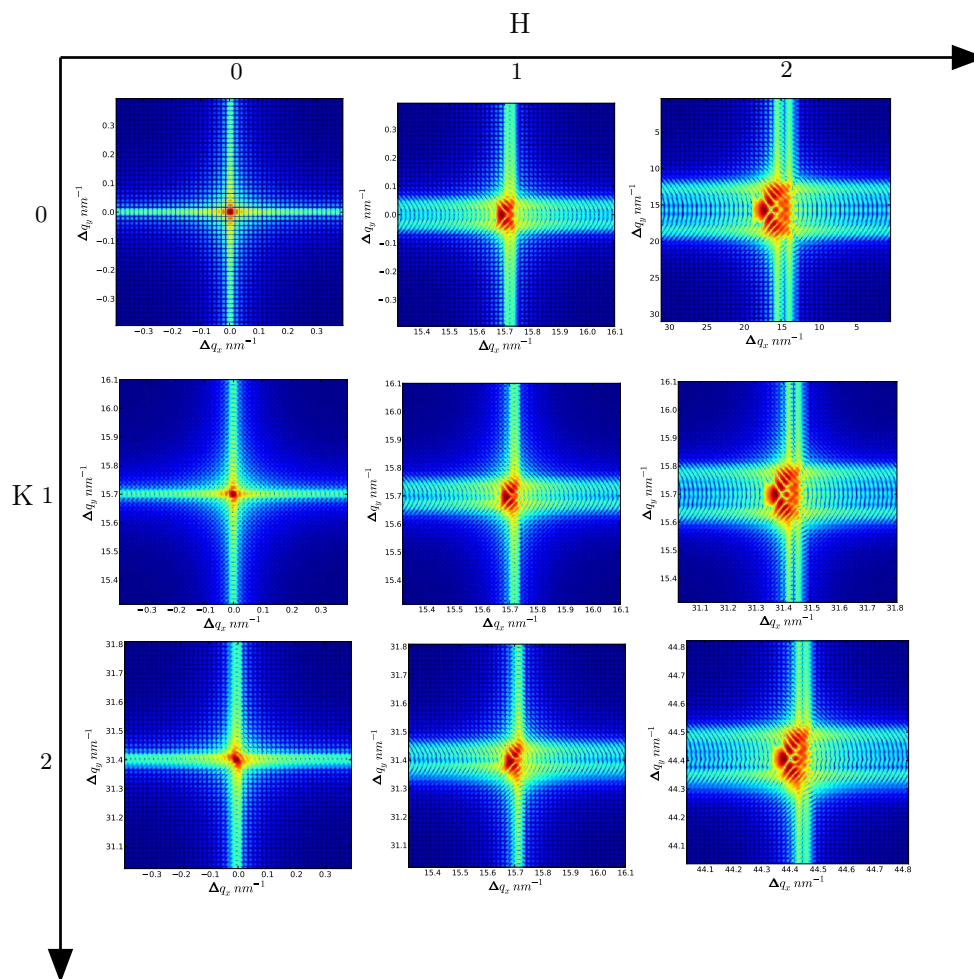


FIG. 2.11 – Différentes réflexions calculées à partir du champ  $\vec{u}$  précédent

Ces deux implications sont contraposées.<sup>10</sup> Un pic non centrosymétrique est la conséquence d'un objet comportant une partie complexe<sup>11</sup>. En revanche, les deux réciproques ne sont pas valides. Un pic de forme centrosymétrique peut être la conséquence d'un objet centro-symétrique déformé présentant un champ de déformation lui-même centro-symétrique.

**Champ u linéaire** A une dimension si le champ  $u$  est linéaire dans une direction,  $u = \alpha x$ , en notant  $a$  le paramètre de maille, le passage dans l'espace de Fourier donne :

$$I(q) = |TF\{\rho e^{iG \cdot \alpha x}\}|^2 = \left| \int \rho(x) e^{i(q+G \cdot \alpha)x} dx \right|^2 = I_{Shape}(q - q_0)$$

<sup>10</sup>L'implication  $A \rightarrow B$  a pour contraposée l'implication  $\text{non}A \leftarrow \text{non}B$

<sup>11</sup>Un objet est centrosymétrique si il présente un centre de symétrie (noté 1 en cristallographie)

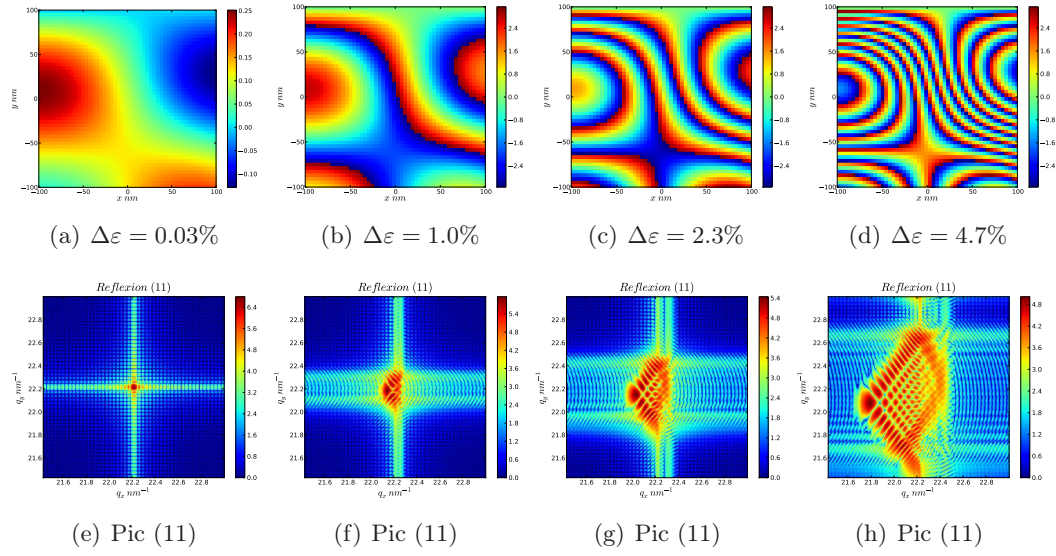


FIG. 2.12 – Phase  $\mathbf{G} \cdot \mathbf{u}$  et pic (11) déduit pour un niveau d'inhomogénéité de déformation croissante

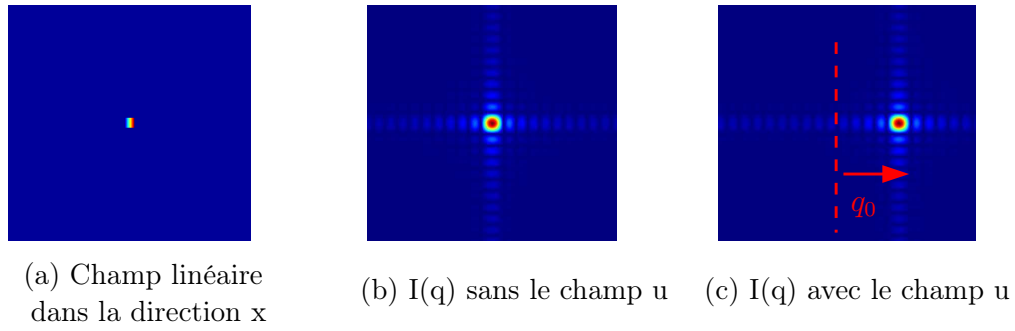


FIG. 2.13 – Déplacement du pic si le cristal est le siège d'un champ  $u$  linéaire

où  $q_0 = \frac{2\pi\alpha}{a}$ . Le pic de diffraction est translaté dans l'espace réciproque (Fig. 2.13). Ce résultat se généralise directement à trois dimensions, si  $\mathbf{u} = \bar{\alpha}\mathbf{r}$ . Il s'agit du déplacement d'un pic représentatif d'un cristal soumis à une déformation constante.

**Effet de gradient de  $\mathbf{u}$  ou de  $\varepsilon$**  Pour prédire quantitativement la forme spécifique d'une tache de diffraction à partir d'un champ de déplacement quelconque, il est possible d'effectuer un développement de l'opérateur diffraction. Dans le cas d'un développement au premier ordre, il est possible d'écrire :

$$\exp(i\mathbf{G} \cdot \mathbf{u}) \simeq 1 + i\mathbf{G} \cdot \mathbf{u}$$

L'intensité s'écrit alors :

$$I(\mathbf{q}) \sim |TF\{\rho(\mathbf{r})\} + TF\{\rho(\mathbf{r})\} \otimes i.TF\{\mathbf{G} \cdot \mathbf{u}\}|^2$$

Au	$E = 11.91keV$	$E = 8.10keV$	Cu	$E = 11.91keV$	$E = 8.10keV$
$\delta$	1.595e-5	4.653e-5	-	1.189e-05	2.407e-5
$\beta$	1.177e-6	4.743e-6	-	1.026e-06	5.367e-7

TAB. 2.2 – Valeur des indices de réfraction pour l'or et le cuivre pour deux énergies

A partir de cette simplification, il est alors possible de caractériser l'intensité calculée en décomposant le champ de déplacement en série de Fourier. Cette approche a été développée dans l'article suivant [Prévot 2007]

Cependant, cette approximation est très restrictive car le terme  $\mathbf{G}\cdot\mathbf{u}$  est rarement négligeable, sauf pour des échantillons très faiblement déformés. Une manière de contourner ce problème serait de réaliser une étude en utilisant un développement de  $\exp(i\mathbf{G}\cdot\mathbf{u})$  aux ordres supérieurs. Mais il n'est vraisemblablement pas possible de trouver une relation simple entre la forme du pic et la forme du champ de déplacement compte-tenu de la complexité intrinsèque de l'opérateur diffraction.

#### 2.5.4 Effet de l'indice de réfraction

Il convient de rajouter des termes correctif  $f'$  et  $f''$  au facteur de diffusion atomique (cf §. 2.2). Il est possible d'introduire le coefficient de réfraction  $n$  qui prend en compte ces termes correctif :

$$n = 1 - \delta + i\beta \quad (2.25)$$

Cet indice optique influence la propagation de l'onde électromagnétique incidente et diffusée :

$$E_i \propto e^{mk\mathbf{r}} = e^{-\beta.k.r} e^{i(1-\delta).k.r}$$

Ainsi, le terme réel  $\delta$  introduit un déphasage  $\Phi_R$  de l'onde incidente au niveau  $\mathbf{r}$  du cristal dépendant du chemin géométrique  $L^{Onde}$  parcouru :

$$\Phi_R(\mathbf{r}) = \frac{2\pi}{\lambda} \delta L^{Onde}(\mathbf{r})$$

Les coefficients  $\delta$  et  $\beta$  dépendent de l'énergie. Ils sont relativement faibles de l'ordre de  $10^{-5}$  (cf Tab. 2.2), mais ils peuvent avoir une influence non négligeable. Pour un échantillon d'or d'épaisseur  $375 \text{ nm}$  avec un faisceau à  $11.91keV$  présentant une incidence de  $16^\circ$ , soit un chemin maximal parcouru est de  $L_{max}^{Onde} \simeq 2 \cdot \frac{375e-9}{\sin 16^\circ}$ . Il correspond à un déphasage maximal de  $\Phi_R \simeq 2.62(rad)$  et une absorption maximum de près de 18%. L'effet est considérable et il sera indispensable de le considérer avec attention par la suite (§. 5).

#### 2.5.5 Calcul en tenant compte les imperfections du faisceau incident

Pour se rapprocher des conditions expérimentales, des imperfections supplémentaires doivent être rajoutées. Certaines sont exposées dans le paragraphe qui suit.

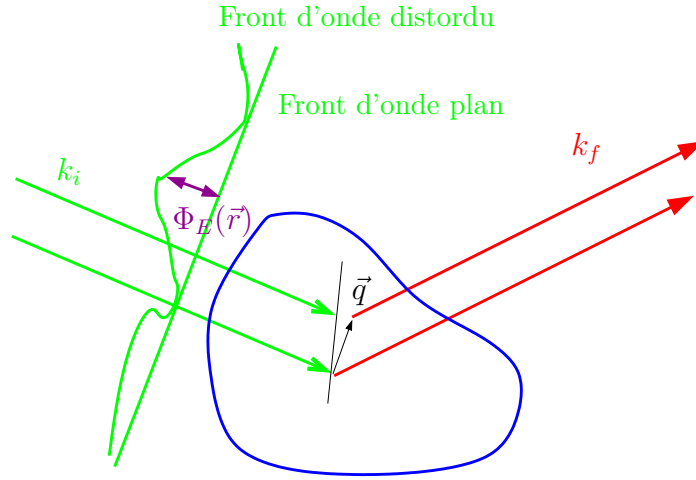


FIG. 2.14 – Déphasage supplémentaire dû aux imperfections du front d'onde

**Front d'onde perturbé** Le calcul de la somme cinématique par la transformée de Fourier présuppose implicitement que le faisceau incident est une onde plane. Or dans la pratique, il est possible que le faisceau ne soit pas parfaitement une onde plane. La fonction illumination  $E(\vec{r})$  et la notion de front d'onde sont alors introduites. Le front d'onde est une surface d'égale phase d'une onde, c'est-à-dire que ces points ont parcouru le même chemin optique depuis la source. Le signal diffracté s'écrit alors comme

$$I(q) = |TF\{E(\vec{r}) \cdot \rho(\vec{r})\}|^2 \quad (2.26)$$

Dans le cas simple où l'illumination s'écrit  $E(\vec{r}) = E_0 e^{i\Phi_E}$  (Fig.2.14), l'intensité diffracté provenant d'un cristal déformé est alors :

$$I(q) \propto \left| TF\{\rho_0 E_0 e^{i(\Phi_E + \Phi_u)}\} \right|^2 \quad \text{où } \Phi_u = G \cdot u \quad (2.27)$$

Si  $\Phi_E \sim \Phi_u$ , les distorsions du front d'onde sont du même ordre de grandeur que les effets du champ de déformation [Chamard 2010a]. Il faut alors être vigilant et caractériser précisément l'illumination pour pouvoir décorrélérer les deux effets. La technique récente de ptychographie semblerait pouvoir être capable de séparer ces deux effets en caractérisant le front d'onde directement lors de la mesure (cf §. 5.6.2).

**Cohérence partielle - Divergence** Les faisceaux X disponibles actuellement en synchrotron de 3ième générations sont uniquement partiellement cohérents (cf §. 2.1). Cette cohérence partielle a tendance à diminuer la visibilité des franges. De la même manière la divergence modifiera également le signal collecté.

Dans la pratique, tous ces effets rentrent en jeu avec plus ou moins d'influence. Il faudra alors toujours privilégier des conditions de mesures où la combinaison de ces effets perturbateurs sont minimales.

## Synthèse Chapitre2

Dans ce chapitre, l'influence de l'état de déformation des cristaux sur la diffraction a été illustrée à différentes échelles. L'approximation cinématique est bien vérifiée pour les échantillons polycristallins métalliques. Elle permet alors de calculer le signal de diffraction d'un grain sub-micronique déformé. Lorsque un grand nombre de grains sont illuminés, il est possible d'utiliser des techniques spécifiques pour obtenir des informations moyennes. La forme et la position d'un pic de diffraction est le fruit d'une dépendance complexe entre des déformations moyennes et des inhomogénéités inter et intra grain. L'influence des inhomogénéités de déplacement interne peut être étudiée à l'échelle d'un grain. La mesure de cartographie haute résolution de l'espace réciproque via des simulations de diffraction cohérente est particulièrement instructive.

# Réalisations expérimentales

## Sommaire

<b>3.1</b>	<b>Mesures dans l'espace réciproque avec des goniomètres . . .</b>	<b>49</b>
<b>3.2</b>	<b>Caractéristiques des dispositifs expérimentaux utilisés . . . .</b>	<b>52</b>
3.2.1	Les deux montages de laboratoire . . . . .	53
3.2.2	Montages Synchrotron . . . . .	56
3.2.3	Cohérence des faisceaux utilisés . . . . .	61
<b>3.3</b>	<b>Les détecteurs . . . . .</b>	<b>63</b>
3.3.1	Les détecteurs 1D . . . . .	64
3.3.2	Détecteur de fluorescence multi-canal . . . . .	64
3.3.3	Les détecteurs 2D . . . . .	65
3.3.4	Indexation en $\mathbf{q}$ d'un pic de diffraction . . . . .	68
<b>3.4</b>	<b>Environnement échantillon . . . . .</b>	<b>71</b>

Les déformations dans les cristaux peuvent être caractérisées en mesurant des zones appropriées de l'espace réciproque. Ce chapitre illustrera différentes manières de mesurer effectivement ces portions intéressantes de l'espace réciproque.

Dans un premier temps, il sera expliqué comment les goniomètres permettent de mesurer l'espace réciproque de manière variée. Les différentes configurations expérimentales basées sur une source de laboratoire et des sources synchrotrons seront décrites. Les possibilités et limitations de chacune d'entre elles seront détaillées pour pouvoir quantifier le plus proprement possible les mesures (taille faisceau, divergence, cohérence, monochromaticité ...). Comme les mesures en 3 dimensions ont une place importante dans ce travail, les caractéristiques des caméras seront explicitées dans la section consacrée aux détecteurs. La procédure de calibration des fours utilisés conclura cette partie axée sur les aspects expérimentaux.

## 3.1 Mesures dans l'espace réciproque avec des goniomètres

L'aspect périodique des cristaux entraîne l'apparition de maxima très localisés dans l'espace réciproque (§.2.2). Mais comment mesure-t-on ces réflexions? Il suffit de placer le vecteur de diffusion  $\vec{q}$  dans l'espace réciproque tel que  $\vec{q} = \vec{G}_{hkl}$ . Le vecteur de diffusion est défini comme la différence entre le vecteur d'onde incident et le vecteur d'onde diffracté  $\vec{q} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$ . Par exemple pour mesurer le pic  $G_{111} =$



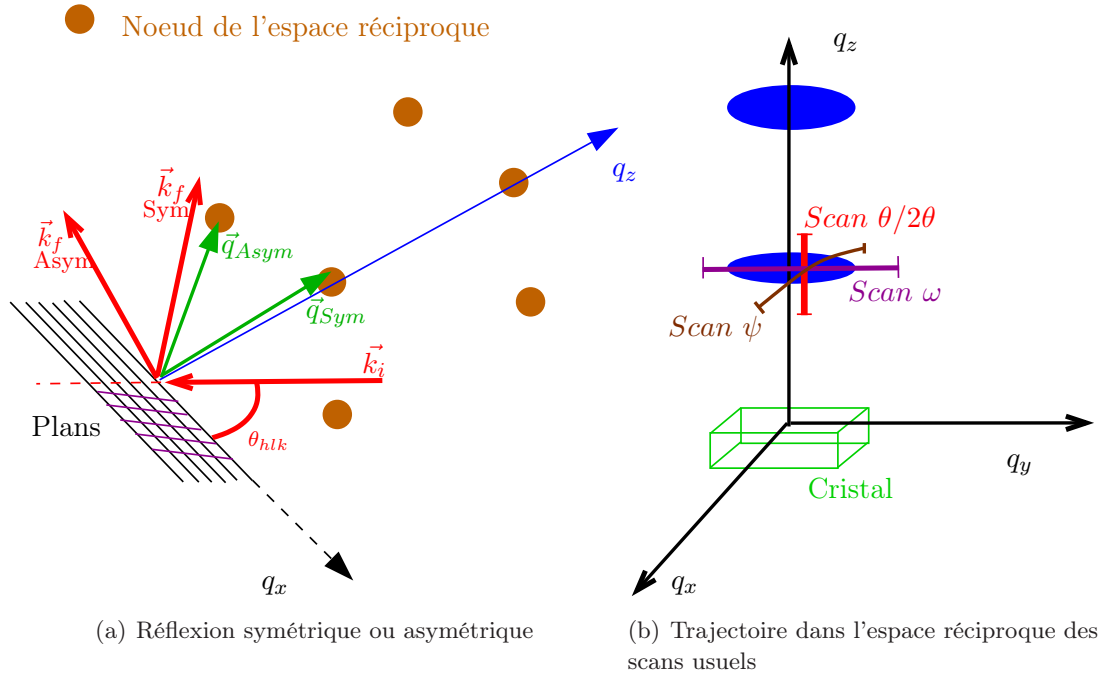


FIG. 3.1 – Scan dans l'espace réciproque

$2\pi/d_{111}\vec{e}_z$ , il faut placer  $\vec{k}_i = \frac{2\pi}{\lambda}(\cos\theta, 0, -\sin\theta)$  et  $\vec{k}_f = \frac{2\pi}{\lambda}(-\cos\theta, 0, \sin\theta)$  (cf fig 3.1a) tel que :

$$\vec{q} = \vec{G}_{111} \quad \Rightarrow \quad q_z = \frac{4\pi}{\lambda} \sin\theta_{111} = G_{111} \quad (3.1)$$

La connaissance de la longueur d'onde  $\lambda$  du rayonnement et de l'angle précis  $\theta$ , permet de remonter à l'espace inter-planaire  $d_{hkl}$ . Si une mesure faisant varier l'incidence du faisceau sans modifier la position du détecteur (vecteur  $\vec{k}_f$ ) est effectuée, la tache de diffraction sera balayée parallèlement aux plans diffractants. Ce balayage est appelé *rocking curve*. Il permet de caractériser précisément la dispersion angulaire de la normale au plan hkl à l'échelle de la zone illuminée.

Si la réflexion est balayée cette fois-ci en faisant varier simultanément l'incidence  $\vec{k}_i$  et l'angle de détection  $\vec{k}_f$ , un scan radial (perpendiculairement à la surface) est obtenu. Il s'agit d'un balayage  $\theta/2\theta$ . Il permet de calculer la valeur précise du paramètres interplanaire  $d_{hkl}$ . Les trajectoires dans l'espace réciproque de ces balayages classiques sont tracées dans le schéma 3.1b.

**Pic symétrique, asymétrique, coplanaire et non coplanaire** Les pics de diffraction sont classifiés en plusieurs catégories. On définit le plan d'incidence construit sur la normale à l'échantillon et le vecteur d'onde incident  $\vec{k}_i$ . L'angle entre ces deux directions est le complémentaire de l'angle d'incidence  $\pi/2 - \omega$ . Le plan de diffraction est le plan construit sur les deux vecteurs d'onde  $\vec{k}_f$  et  $\vec{k}_i$ . L'angle entre ces deux directions correspond à l'angle de détection  $2\theta$ .

On parle de réflexion symétrique lorsque l'angle d'incidence  $\omega$  est exactement égale à la moitié de l'angle de détection  $2\theta$  et lorsque les plans d'incidence et de diffraction sont confondus. Lorsque ces plans d'incidence et de diffraction sont confondus, on parle alors de géométrie coplanaire. Sinon il s'agit d'une géométrie non-coplanaire.

Toutes les autres réflexions sont dites asymétriques. Lorsque l'on mesure une réflexion coplanaire asymétrique, on parle de géométrie  $\omega$ . Dans ce cas, l'angle d'incidence est différent de la moitié de l'angle de diffraction (cf Fig 3.1a). Il est également courant de mesurer des réflexions dans des géométries non coplanaires (géométrie  $\psi$ ) mais où  $\omega = \frac{2\theta}{2}$ . On parle tout de même dans ce cas de réflexion asymétrique. Il est envisageable de mesurer en non coplanaire avec  $\omega \neq \frac{2\theta}{2}$ . Ce type de mesure est rare car non standard (*skew asymmetric diffraction geometry*). Il peut être utile lorsque une incidence particulière est recherchée.

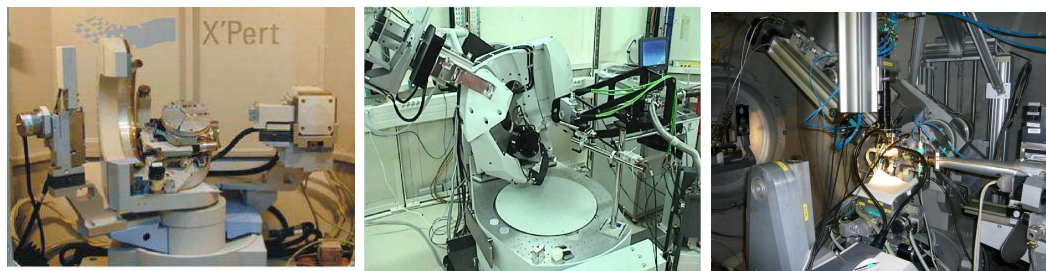
Pour connaître la position de ces pics asymétriques, les propriétés cristallographiques du cristal sont utilisées. Un tableau complet des angles entre tous les plans de faible indice est reporté dans le chapitre suivant dans le cas des cubiques (§. 4.1). Si un résultat quantitatif relatif à l'intensité des pics asymétriques est recherché, il faut faire attention aux conditions d'éclairement de l'échantillon qui peuvent varier énormément entre un pic à  $\psi = 15.79^\circ$  et un autre à  $\psi = 70.53^\circ$ . Des propriétés d'éclairement particulières peuvent être utilisées. Une réflexion asymétrique à incidence très faible sera plus sensible à la surface.

**Les goniomètres** Les mesures de laboratoire ont été réalisées avec un diffractomètre commercial X-pert MRD (Fig 3.2a) de PanAnalytical. Il s'agit d'un quatre cercles eulérien <sup>1</sup> à tube fixe. La distance source - intersection des axes de rotation est de 320 mm. La résolution des moteurs est annoncée à  $0.0001^\circ$  avec une reproductibilité de  $0.0001^\circ$ . Il est particulièrement bien adapté aux mesures de déformation, aux acquisitions des figures de pôle, aux cartographies haute résolution ... Le four Anton Paar (Fig 3.13a) s'adapte facilement sur la platine motorisée composée de trois translations.

Le goniomètre (Fig 3.2b) de la ligne cristal est un 6 cercles de Micro-contrôle en géométrie  $\kappa$ . Le bras de détection est monté sur deux cercles. Dans la pratique, on utilise des pseudo-moteurs eulériens.

Le diffractomètre de la ligne ID01 (Fig 3.2c) est un montage hétérogène (en 2008-2009). La détection est montée sur un deux cercles Microcontrôle. L'environnement échantillon est lui placé sur une tour Huber. Cette tour n'est pas adaptée à la diffraction aux grands angles dans le plan vertical (sauf dans le plan horizontal). L'amplitude des rotations est limitée en  $\psi$  et  $\omega$ . Pour contourner ce problème de course limitée en  $\omega$  et  $\psi$ , on peut travailler en géométrie non coplanaire ou rajouter une rotation. Un nouveau goniomètre est maintenant disponible depuis 2011 sur cette ligne.

<sup>1</sup>Les noms standards des 4 cercles eulérien  $\omega$   $\phi$   $\psi$  et  $\theta$  seront par la suite utilisés quel que soit le goniomètre



(a) Diffractomètre 4 cercles X-  
pert de laboratoire  
(b) Diffractomètre 6 cercles  
Micro-control de la ligne Cris-  
tal  
(c) Diffractomètre hétéro-  
gène Huber(échantillon) +  
Microcontrol(detection) sur  
ID01

FIG. 3.2 – Les trois diffractomètres utilisés pour les expériences

Pour tous les diffractomètres, les axes de rotations ne se coupent pas forcément exactement au même point. Ils se coupent en réalité à l'intérieur d'une sphère appelée sphère de confusion. Les constructeurs de goniomètre font en sorte de la réduire au maximum, mais la structure mécanique des rotations ne peut pas être parfaite. Sur un goniomètre de laboratoire, une sphère de l'ordre de  $\simeq 10\mu\text{m}$  est possible car le système est compact. En revanche, les goniomètres de synchrotron ont des sphères de confusion plutôt de l'ordre de  $\simeq 50/100\mu\text{m}$ <sup>2</sup>. Sur des petits mouvements, ces imperfections sont acceptables mais il faut être vigilant lors de grands mouvements et vérifier les réglages.

### 3.2 Caractéristiques des dispositifs expérimentaux utilisés

Les expériences de laboratoire et de synchrotron sont complémentaires. Compte-tenu de la brillance limitée des sources de laboratoire, il faut faire diffracter des centaines de milliers de grains pour collecter suffisamment de signal. Les sources synchrotron sont beaucoup plus brillantes et permettent d'obtenir un signal satisfaisant provenant d'un unique objet sub-micronique.

Que ce soit au laboratoire ou au synchrotron, le faisceau X issu des sources primaires n'est pas directement utilisable pour faire les expériences. Un certain nombre d'éléments appelés optiques sont utilisés pour préparer le faisceau. Les optiques X sont de conception plus complexe que dans le domaine visible à cause des indices de réfraction très proche de 1 pour tous les éléments du tableau périodique. Cependant, un large éventail de solutions est désormais disponible aux utilisateurs. Seront ici décrites les différentes configurations utilisées au laboratoire et lors de nos différentes campagnes sur ID01 et Cristal.

<sup>2</sup>La sphère de confusion dépend du poids maximal qui peut être placé au centre du goniomètre

### 3.2.1 Les deux montages de laboratoire

Les optiques X de laboratoire ont connu des améliorations significatives ces 15 dernières années. Ces développements sont encouragés par les très nombreux utilisateurs des sources de laboratoire. Les optiques sont nombreuses et les deux configurations composées d'une optique d'entrée et d'une optique de sortie les plus utilisés lors de ce travail seront décrites. Le principe d'émission des rayons X en laboratoire sera brièvement rappelé.

**Tube à Rayons X** Les tubes à rayons X sont basés sur un principe simple : il s'agit de bombarder une anti-cathode avec un faisceau électronique accéléré par une haute tension électrique. Les électrons sont freinés par les atomes de la cible, ce qui provoque un rayonnement continu de freinage (Bremsstrahlung). Les électrons excitent également les atomes de la cible : ceux-ci réémettent alors un rayonnement X caractéristique par phénomène de fluorescence X. Le spectre sortant du tube est donc la superposition de ce rayonnement de freinage et de la fluorescence des différents éléments de la cible. Les deux diffractomètres du laboratoire sont montés avec un tube à cathode de cuivre, qui est la cathode la plus utilisée<sup>3</sup>. La plupart du temps, seule la raie d'émission  $K_{\alpha_1}$  du cuivre est utilisée. Il s'agit de la radiation la plus intense du spectre. Elle est centrée autour de  $1.5406\text{\AA}$  soit une énergie de  $8.048\text{keV}$  avec une largeur à mi-hauteur de  $2.2\text{eV}$ . La raie  $K_{\alpha_2}$  sensiblement deux fois moins intense est assez proche à  $1.5444\text{\AA}$  soit à  $19.8\text{eV}$  de la  $K_{\alpha_1}$ .

Le tube utilisé possède deux modes, le mode ponctuel et le mode linéaire. On passe de l'un à l'autre en le tournant d'un quart de tour. En mode linéaire la source est de  $12\text{mm} \times 400\mu\text{m}$ . En mode ponctuel, la source est réduite à  $1.2\text{mm} \times 400\mu\text{m}$  compte-tenu de l'angle de take-off de  $6^\circ$ <sup>4</sup>.

**Optique hybride - Analyseur** L'optique dite hybride est composé d'un miroir parabolique multicouche à pas variable suivi d'un monochromateur en Germanium 220 en géométrie 4 réflexions (channel cut). Le miroir multicouche permet à la fois de récupérer un maximum d'intensité du faisceau primaire tout en collimatant et préparant la monochromatisation. Les pas des empilements de la multicouche sont variables pour tenir compte de la variation de l'angle d'attaque du faisceau primaire sur le miroir (cf Diagramme de Dumond). Le monochromateur 4 réflexions améliore ensuite la sélection chromatique. Ce système permet finalement de sélectionner une portion de la raie  $K_{\alpha_1}$  du cuivre avec une largeur d'environ  $1\text{eV}$ . La raie  $K_{\alpha_2}$  est donc filtrée. La combinaison de ces deux éléments permet également d'obtenir un faisceau très collimaté avec une divergence limitée seulement à  $0.007^\circ$ . Un système de fentes réglables manuellement complète cette optique d'entrée. Il est possible en

<sup>3</sup>Il existe des tubes équipés avec des cathodes de Fe, W, Mo... L'énergie des raies  $K_{\alpha}$  augmente avec le numéro atomique du matériau mais le Bremsstrahlung devient également de plus en plus important avec Z. D'autre part, le cuivre a l'avantage d'avoir de très bonnes propriétés d'évacuation de la chaleur, permettant ainsi de travailler à une puissance optimale

<sup>4</sup> $\frac{12\text{mm}}{\sin(6^\circ)} \simeq 1.2\text{mm}$

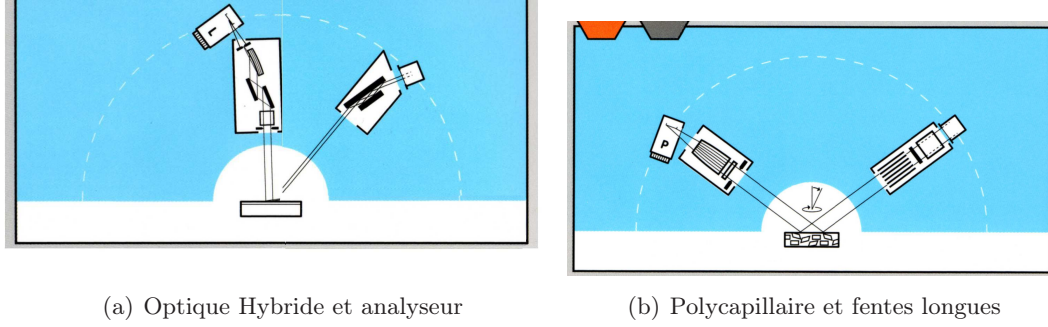


FIG. 3.3 – Schéma représentatif des deux dispositifs les plus largement utilisés au laboratoire : mode haute résolution a) et haut flux b).

fermant au maximum ces fentes d'obtenir un faisceau de  $20\mu\text{m}$  dans une direction. Ainsi, si l'échantillon s'y prête (bon pouvoir diffractant pour pallier au flux incident limité) des expériences de micro-diffraction sont possible en laboratoire !

La nature du faisceau obtenu avec cette optique fixe la manière dont on doit ajuster les pics de diffraction. Le faisceau est monochromatique, une simple pseudo-Voigt a donc été utilisée comme fonction d'ajustement. La pseudo-Voigt est la somme d'une gaussienne et d'une lorentzienne centrées sur la même position et possédant la même largeur <sup>5</sup>. Le bruit de fond est ajusté par l'adjonction d'un polynôme.

$$\text{gaussienne}(2\theta) = \exp\left(-\frac{(2\theta - 2\theta_0)^2}{Fwhm^2/4 * \log(2)}\right)$$

$$\text{lorentzienne}(2\theta) = \frac{1}{\left(\frac{2\theta - 2\theta_0}{Fwhm/2}\right)^2 + 1}$$

$$\text{pseudo - Voigt}(2\theta) = A_0 \cdot \left( (1 - pl) \text{gaussienne}(2\theta_0, Fwhm) + pl \cdot \text{lorentzienne}(2\theta_0, Fwhm) \right)$$

En optique de sortie juste avant le détecteur, un analyseur permet d'améliorer la qualité de la mesure. L'analyseur est composé d'un cristal de germanium en géométrie 3 réflexions. Ainsi, seul un angle précis est mesuré. Ce dispositif permet de s'affranchir des défauts de position en  $z$  de l'échantillon qui ne sont pas toujours faciles à éviter lors des pré-réglages. Ce dispositif est très satisfaisant en terme de résolution énergétique et en divergence. Des mesures très précises peuvent être réalisées de cette manière. Ce dispositif a le seul désavantage d'être gourmand en photons. Sur les films d'or caractérisés, les réflexions asymétriques surtout aux grands angles ne sont pas mesurables correctement avec cette configuration à cause du rapport signal sur bruit trop faible.

<sup>5</sup> La largeur gaussienne  $\sigma_{gauss}$  et la largeur à mi-hauteur sont reliées par la relation simple :  $2\sqrt{(2\ln(2))\sigma_{gauss}} = Fwhm$

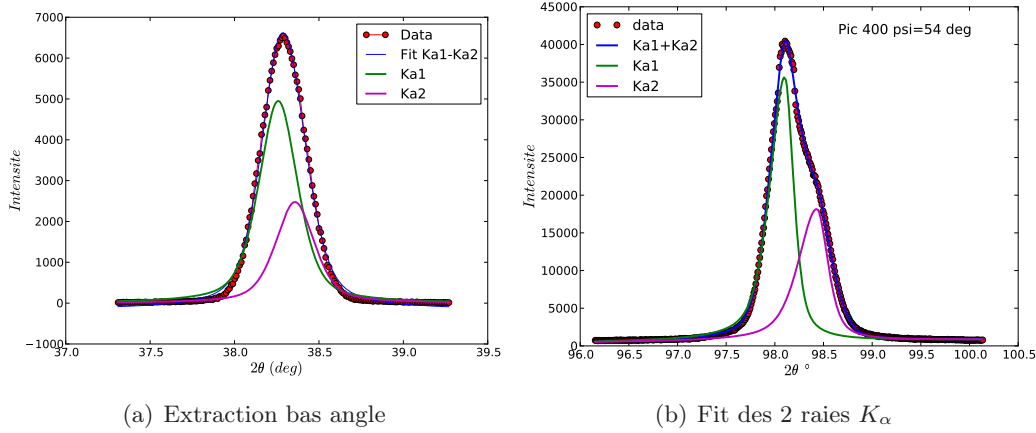


FIG. 3.4 – (a) Comparaison des différents modèles de fit . (b) Extraction du signal ajusté issu de la  $K_{\alpha 1}$  en vert, de la  $K_{\alpha 2}$  en magenta à partir de l’ajustement couplé  $Ka1 + Ka2$  en bleu

**Optique polycapillaire - Fentes longues** Pour pallier à ces problèmes de flux, la configuration composée d’un polycapillaire en entrée est particulièrement complémentaire. Le polycapillaire est composé d’un grand nombre de fibres qui agissent comme guide d’onde permettant une collimation d’une large gamme énergétique. Le flux obtenu est alors tout à fait satisfaisant. Ainsi, elle est particulièrement efficace pour étudier les contraintes moyennes dans les films très minces (faible volume diffractant) par technique des  $\sin^2(\Psi)$  et ceci même pour des pics d’indices élevés. Le flux est appréciable également pour les figures de pôle.

Cependant la divergence est médiocre autour de  $0.3^\circ$  et la dispersion chromatique est importante. Elle laisse passer le doublet  $K_\alpha$  et la  $K_\beta$ . La présence de la  $K_\beta$  ne pose pas de problème particulier car les angles de diffraction sont bien décalés même pour les réflexions de faibles indices <sup>6</sup>. Les fentes longues situées avant le détecteur permettent de sélectionner plus proprement les angles  $\vec{k}_f$  (moins efficacement qu’avec l’analyseur).

En revanche, il convient d’être prudent avec les 2 raies  $K_\alpha$ . Cette caractéristique se voit bien aux grands angles avec un pic dédoublé (Fig 3.4b) mais aux faibles angles l’effet n’est pas visible à l’œil (Fig 3.4a). Mais cet inconvénient peut être tourné en avantage. En effet avoir 2 radiations signifie faire la même mesure avec 2 énergies différentes. On peut alors comparer les résultats issus respectivement de la raie  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$  si on est capable de séparer correctement les deux contributions. Dans la pratique, le problème revient au choix judicieux du modèle utilisé pour ajuster les courbes expérimentales. Plusieurs modèles ont été testés. Le plus stable est de travailler en déformation. La position des deux pics issus des deux  $K_\alpha$  dépend en effet non seulement de l’indice hkl mais aussi de la déformation. En utilisant la

<sup>6</sup>l’écart minimal entre les spectres de la  $K_\alpha$  et de la  $K_\beta$  est de 1 degré pour les pics  $(400)_{K_{\alpha 2}}$  et  $(420)_{K_\beta}$

loi de Bragg, on obtient une relation entre les deux angles de diffraction et les deux énergies :

$$\frac{\sin(\theta_2)}{\sin(\theta_1)} = \frac{\lambda_{ka2}}{\lambda_{ka1}}$$

qu'on injecte dans un modèle à deux pseudo-Voigt à une seule variable angulaire  $\theta_1$  :

$$I(2\theta) = A_0 \cdot \text{pseudo} - \text{Voigt}(2\theta_1, fw1) + \frac{A_0}{2} \cdot \text{pseudo} - \text{Voigt}(2\text{Arcsin}((\lambda_{ka2}/\lambda_{ka1}) * \sin(\theta_1))), fw2) + a_1\theta + a_0$$

Avec cette approche, les deux contributions sont correctement extraites même pour des pics bas angles ou le dédoublement n'est pas évident (Fig 3.4a). Il est possible d'ajuster l'asymétrie des pics : il s'agit de coder par morceaux la pseudo-Voigt qui possède alors une largeur droite et une largeur gauche. Cependant avec ce modèle à deux raies, le modèle devient moins stable avec l'apparition d'artefacts. Ce raffinement est à réserver au modèle à une raie.

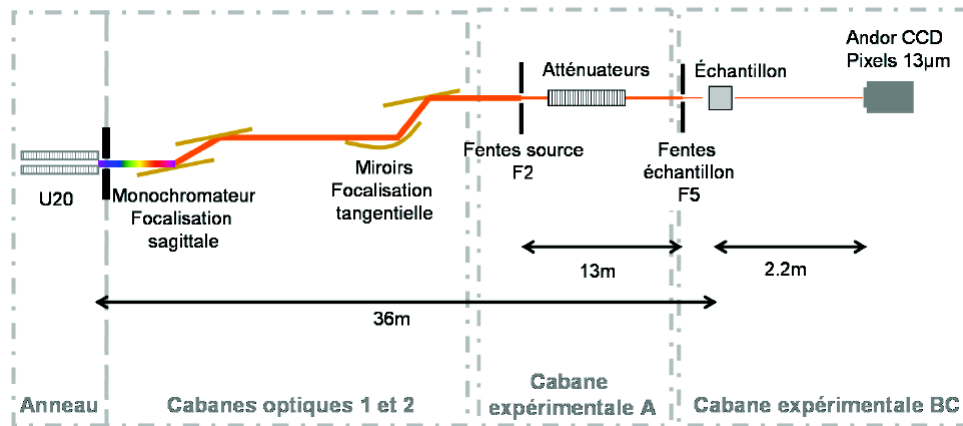
**Remarques** Il faut toujours privilégier en laboratoire une configuration coplanaire pour travailler avec la plus faible divergence. Les pics asymétriques en géométrie  $\omega$  sont donc à privilégier bien que pour des raisons de contrainte géométrique ils soient moins nombreux à pouvoir être mesurés (Fig. 4.6a).

### 3.2.2 Montages Synchrotron

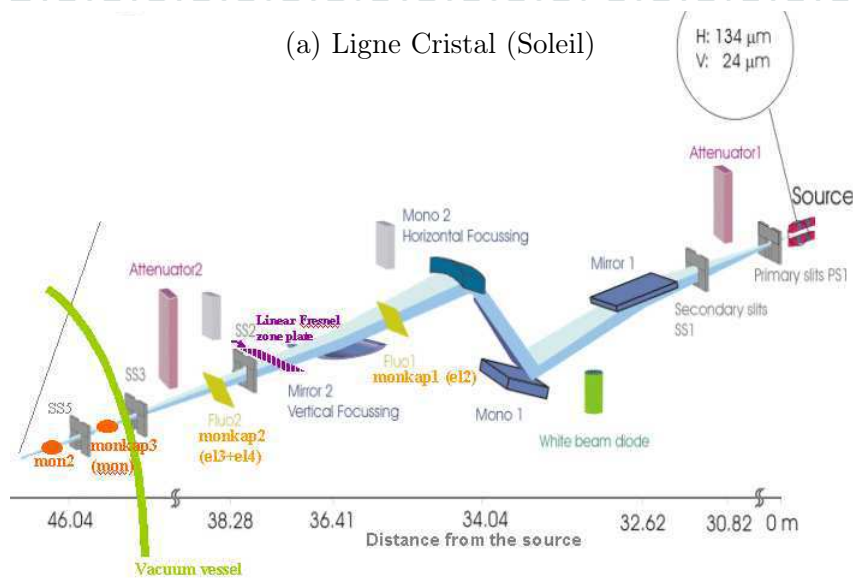
Les expériences de diffraction ont été réalisées sur deux lignes notamment conçues pour faire de la diffraction cohérente : la ligne Cristal au synchrotron Soleil et la ligne ID01 à l'ESRF. Ces deux lignes ont des caractéristiques similaires (cf Fig. 3.5). Elles diffèrent essentiellement par leur ondulateur et leur optique finale. L'extension de la source primaire dépend de l'ondulateur utilisé : sur ID01 elle mesure à mi-hauteur (*full-width*) environ  $134 \times 24 \mu m$  et  $900 \times 20 \mu m$  sur Cristal .

**Energie** Le rayonnement issu de l'ondulateur est un faisceau polychromatique. Un monochromateur Si(111) en géométrie 2 cristaux est utilisé sur les deux lignes. L'un des deux miroirs est courbé pour assurer une focalisation sagittale. L'énergie est souvent modifiée sur les lignes de lumière et de légères dérives peuvent entraîner une erreur sur l'énergie affichée. Il faut donc calibrer l'énergie à chaque campagne de mesure. Une erreur de  $10eV$  à  $8.1keV$  sur une réflexion 111 de l'or donne une erreur de 0.12% sur la déformation : c'est énorme si une mesure absolue de celle-ci est recherchée !

Expérimentalement, l'énergie peut être calibrée avec une poudre de référence dont le paramètre de maille est exactement connu. Mais il est préférable d'avoir un analyseur en sortie. Lors des expériences réalisées, l'énergie a été calibrée en mesurant le seuil d'absorption de l'or. Ce seuil est parfaitement connu à  $E = 11.9187keV$ .



(a) Ligne Cristal (Soleil)



(b) Ligne ID01 (ESRF)

FIG. 3.5 – Caractéristiques principales des lignes Cristal(Soleil) et ID01(ESRF)

Il faut donc mesurer le signal de fluorescence en augmentant progressivement l'énergie. Il faut adapter le temps de comptage pour bien décrire le seuil (en forme de marche). Le maximum de la dérivée donne alors la position du seuil.

Pour l'expérience ID01 de décembre 2009 (Fig 3.6a), le seuil a une pente assez molle. La position évaluée à la main est donc peu précise ( $12eV$  d'écart ?). Lors de l'expérience de juillet 2009 sur Cristal (Fig 3.6b), le seuil est plus marqué mais au niveau du plateau le flux s'effondre. Cette décroissance est due au monochromateur. Lorsque l'énergie est augmentée, le faisceau se déplace progressivement pour ne plus passer dans les fentes F5 qui sont très fermées à  $10\mu m$ .



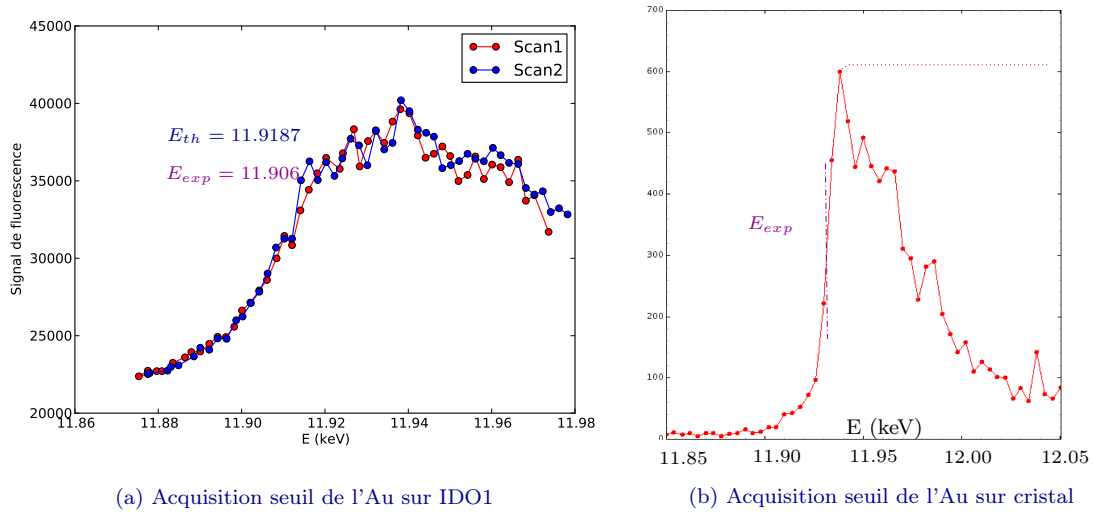


FIG. 3.6 – Mesure du seuil de fluorescence de l'Or lors de deux expériences

### 3.2.2.1 Préparation finale du faisceau

Après le monochromateur le faisceau est conditionné par les fentes secondaires F2 ou ss2. Ces fentes peuvent réduire la taille effective de la source primaire vue par l'échantillon. Le faisceau poursuit son chemin à travers les cabanes expérimentales en traversant un nombre limité de fenêtres. Un faisceau possédant une structure la moins gênante possible est recherché. Dans l'idéal, un faisceau de  $\simeq 3 \times 3 \mu m$  en forme de porte est souhaitable, avec une amplitude parfaitement constante et un front d'onde parfaitement plan. Avec ce type de faisceau, le signal de diffraction collecté est uniquement l'image de la forme et de la déformation de l'objet étudié. Il ne dépend pas du faisceau incident. Bien sûr ce type de faisceau n'existe pas. Une configuration qui s'en rapproche le plus a été mise en place.

Le faisceau final qui atteint l'échantillon dépend de tous les éléments optiques présents entre la source et lui-même. Cependant la dernière optique joue un rôle prépondérant. Deux optiques finales différentes ont été utilisées. Sur Cristal, le faisceau est conditionné par des fentes placées le plus proche possible de l'échantillon. Sur ID01 des lentilles de béryllium ont été installées. Leurs influences sur le faisceau est discuté dans les deux prochains paragraphes.

**Remarque** Le flux n'est pas vital dans le cas des grains étudiés. Ils sont volumineux  $\simeq 1 \times 1 \times 0.4 \mu m$ . L'or est dense. Le signal collecté est donc suffisant même en ne focalisant pas. En mode de comptage de photon unique (cf section 3.3.3), l'intégration du signal est négligeable par rapport au temps de lecture (*read-out*). Sur une des expériences, le flux était même trop important. Pour se placer en faible comptage, le temps d'intégration du signal peut être réduit. Mais celui-ci ne doit pas

être réduit sous 0.1s pour éviter les problèmes de synchronisation entre l'obturateur (*fast shutter*) et le temps de lecture de la caméra. Un problème de synchronisation peut être catastrophique faisant apparaître des trainées sur le signal caméra. Lorsque le temps d'intégration limite est atteint et que l'intensité mesurée est toujours trop haute, la seule solution est de dérégler volontairement l'onduleur. L'utilisation d'atténuateurs est à proscrire lors d'une expérience de diffraction cohérente pour ne pas perturber le front d'onde. En revanche, un petit faisceau était essentiel pour localiser la zone d'intérêt de l'échantillon et le grain diffractant (cf §. 4.4).

### Préparation par des fentes - Lignes

**Cristal** Sur Cristal les fentes F5 ont été utilisées comme dernière optique. Ces fentes F5 sont placées le plus proche possible de l'échantillon à  $\simeq 14\text{cm}$ . Il faut bien sûr tenir compte de la diffraction par la fente elle-même. Un calcul de type intégrale de Fresnel a été effectué pour prévoir la forme du faisceau sur notre échantillon dans notre cas. Dans cette approche, l'extension du faisceau est minimale pour une largeur de fentes d'environ  $8\mu\text{m}$  correspondant approximativement à la transition entre les régimes de Fresnel et de Fraunhofer (cf Fig 3.7). Un faisceau de largeur  $\sim 10\mu\text{m}$  est alors obtenu. En condition de Bragg, l'empreinte du faisceau sur l'échantillon est augmentée d'un facteur dépendant de l'incidence du faisceau  $\frac{1}{\sin \omega}$ .

Si l'on cherche à calculer parfaitement le signal issu de ces fentes, il faut tenir compte de la conception mécanique de celles-ci. Les fentes adaptées aux rayons X sont composées de deux lèvres qui ne sont pas en vis-à-vis, elles sont décalées de plusieurs microns dans la direction du faisceau. En régime de Fraunhofer, cette configuration entraîne une légère asymétrie du sinus cardinal au carré dans une direction [Le Bolloc'h 2002]. Des fentes de mauvaise qualité entraîne de très fortes distorsions du signal diffracté. Une étude détaillée sur la mise en forme d'un faisceau par des fentes est réalisée dans la thèse de V. Jacques [Jacques 2009].

**Lentilles réfractives** Sur ID01 des lentilles de béryllium ont été utilisées comme optique finale. Plus précisément, les fentes ss2 situées après le monochromateur sont choisies ouvertes à  $500\mu\text{m}$ . Les fentes ss4 situées juste  $25\text{cm}$  avant les lentilles sont fermées autour de  $20\mu\text{m}$ . Ces fentes ss4 diffractent et le signal correspondant est focalisé par les lentilles. Finalement après les lentilles les fentes ss5 fermées à

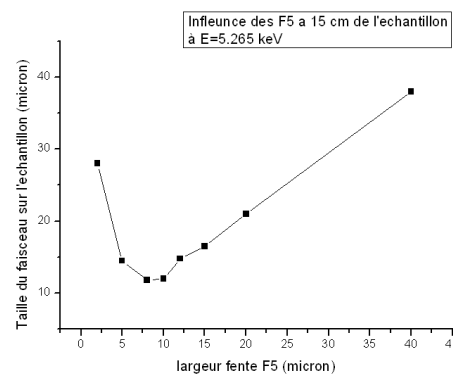


FIG. 3.7 – Taille approximative (empreinte du profil central) du faisceau sur le grain en fonction de l'ouverture des fentes F5

$200\mu m$  sont utilisées pour nettoyer le faisceau. Ces fentes étaient assez ouvertes pour éviter un élargissement dû à la diffraction. On parle de lentilles au pluriel car il est nécessaire de juxtaposer plusieurs lentilles pour réussir à réfracter efficacement les rayons. En première approximation, une formule simple permet d'estimer la focale du système composé de  $N$  lentilles de courbure  $R$  :

$$f = \frac{R}{2N\delta}$$

Lors de l'expérience, les paramètres choisis  $N = 12$ ,  $R = 200\mu m$ , et  $\delta_{E=8.4keV}^{Be} = 1.05e^{-5}$  impliquent une distance focale de  $\simeq 79 cm$ . Expérimentalement après réglages, une distance comparable de  $83 cm$  (Fig. 3.8a) a été évaluée.

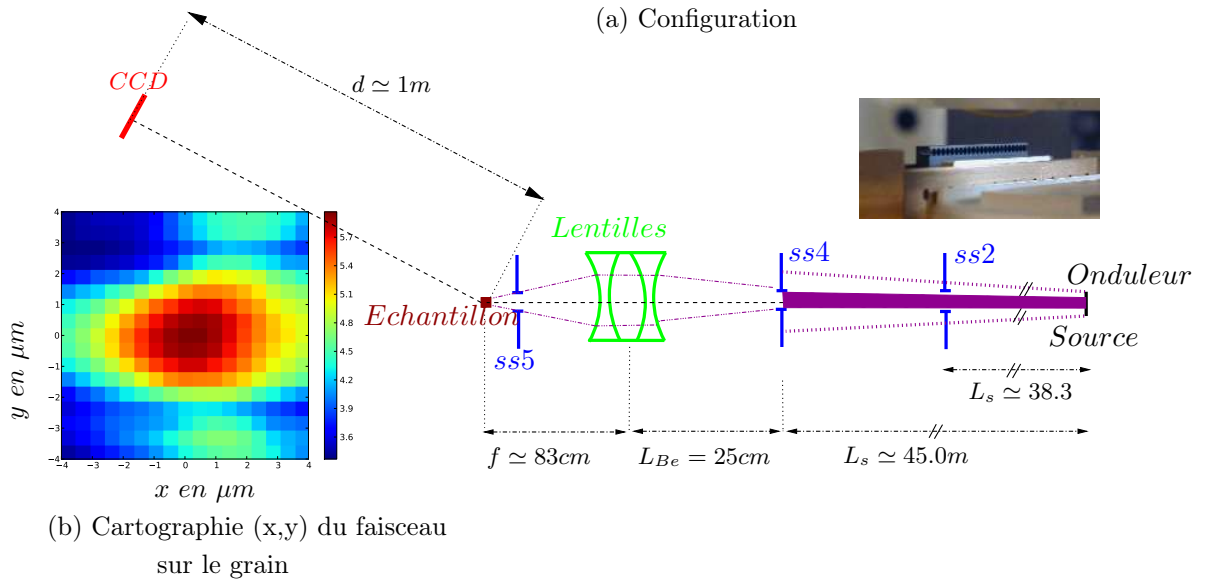


FIG. 3.8 – Faisceau focalisé par des lentilles réfractives

Lors des expériences une fois le faisceau placé sur le grain choisi, la structure du faisceau a été caractérisée. Un grain de dimension sub-micronique a été utilisé pour évaluer la forme du faisceau projeté. Une carte  $(x,y)$  de l'intensité intégrée du pic 111 a été acquise en tradant l'échantillon avec les moteurs de translation. Cette carte est tracée figure 3.8b. Il s'agit de l'image de la convolution entre la forme du grain et la forme du faisceau. Cette convolution présente une tache centrale qui est sensiblement gaussienne de largeur à mi-hauteur  $(hx \times hz) = 3.07 \times 2.14\mu m$ . Le grain est donc illuminé de manière raisonnablement homogène. Sur cette carte, les rebonds de diffraction des fentes  $ss4$  placées  $25cm$  avant le système focalisant sont repérables. Ces rebonds sont assez loin de l'objet étudié  $(> 4\mu m)$ . Il est raisonnable de considérer qu'ils n'ont aucun impact sur la mesure.

Les lentilles ont une mauvaise réputation en terme d'aberrations. La question des distorsions du front d'onde inhérente aux contraintes de leur fabrication (rugo-

Optique	Energie	$\lambda$	$\frac{\Delta E}{E}$	$\xi_{//}$
Polycapillaire (labo)	8.048	1.54	$3.110^{-3}$	$0.025 \mu m$
Hybride (labo)	8.0478	1.5406	$1.25e^{-4}$	$0.620 \mu m$
Cristal-Jul08 (Fentes)	5.265	2.355	$2.10^{-4}$	$0.588 \mu m$
Cristal-Jui09 (Fentes)	11.91	1.041	$2.10^{-4}$	$0.260 \mu m$
ID01-Nov08 (Be lenses)	8.10	1.531	$10^{-4}$	$0.765 \mu m$
ID01-Dec09 (Be lenses)	11.906	1.041	$10^{-4}$	$0.520 \mu m$

TAB. 3.1 – Longueurs de cohérence longitudinale

sité, défauts de forme... ) est posée. Cependant dans l'approximation d'un faisceau gaussien, il a été montré <sup>7</sup> que la tache centrale de focalisation possède un front d'onde raisonnablement plan [Schroer 2008].

**Remarques** Sur ID01 des lentilles diffractives de Fresnel sont également disponibles <sup>8</sup>. Elles permettent d'obtenir des faisceaux de l'ordre de  $250 \text{ nm}$ . Cette taille de faisceau est trop faible pour les grains étudiés. En revanche dans de polycristaux composés de grains plus petits ( $< 200 \text{ nm}$ ), elles seraient avantageusement utilisables. Travailler avec des petits faisceaux et des petits objets reste néanmoins difficile. Les mesures sont particulièrement sensibles aux vibrations et aux dérives du montage expérimental qui est très complexe.

### 3.2.3 Cohérence des faisceaux utilisés

Caractériser la cohérence du faisceau est essentiel lors d'expériences de diffraction cohérente. Les grains doivent être illuminés avec un faisceau entièrement cohérent. Malheureusement le faisceau délivré par les sources synchrotrons n'est que partiellement cohérent. (cf §. 2.1). Les longueurs de cohérence doivent donc être supérieures aux dimensions des objets étudiés. Les longueurs de cohérence des différentes configurations expérimentales utilisées sont évaluées dans cette section.

**Longueur de cohérence temporelle** La longueur de cohérence longitudinale est la plus simple à évaluer. Il suffit de connaître la dispersion énergétique du faisceau. Les dispersions énergétiques  $\Delta E/E$  des deux monochromateurs ID01 et Cristal sont respectivement annoncées à  $10^{-4}$  et  $2.10^{-4}$ . Il s'agit dans les deux cas d'un montage en géométrie deux réflexions sur cristal Si 111. La focalisation sagittale est effectuée sur le premier cristal sur la ligne Cristal et avec le second sur ID01. Entre  $8 \text{ keV}$  et  $12 \text{ keV}$ , la longueur longitudinale diminue de manière significative. Elle reste néanmoins compatible avec l'épaisseur de nos échantillons (plus de détail §. 4.5.1) sur

<sup>7</sup>métrologie du front d'onde au niveau du plan focal par reconstruction de phase (nano-lentilles de Si)

<sup>8</sup>Les lentilles de Fresnel sont très chromatiques

Optique	Source Effective en $\mu m$	$D_{S_{eff}}^E$ en m	$\varepsilon_{ef}^{Beam}$ en $0.001^\circ$	$\xi_{\perp}$ en $\mu m$	
Polycapillaire		-	300	0.030	
Hybride	1000 $\times$ 5000	0.32	7.0	0.630	
Cristal-Jui08	F2 100 $\times$ 100	13	0.9	15	
Cristal-Jui09	F2 100 $\times$ 100	13	0.9	6.8	
ID01-Nov08	U 134 $\times$ 34 ss4 20 $\times$ 20	45	1.0	0.34 $\times$ 0.06 2.3 $\times$ 2.3	26 $\times$ 143 3.8 $\times$ 3.8
ID01-Dec09	U 134 $\times$ 34 ss4 35 $\times$ 35	45	1.0	0.34 $\times$ 0.06 2.3 $\times$ 2.3	17 $\times$ 97 1.5 $\times$ 1.5

TAB. 3.2 – Longueurs de cohérence transversales

ID01 mais elle est un peu juste à Cristal avec  $\xi_{//} \sim 260 \text{ nm}$  pour un objet d'épaisseur  $375 \text{ nm}$ . Ces longueurs sont comparables à celle de  $620 \text{ nm}$  ( $\simeq 2600$  plans (111) pour l'or) obtenue en laboratoire avec la configuration haute résolution.

**Longueurs de cohérence transversales** La notion de cohérence transversale est plus complexe. Il est également possible d'observer une signature des longueurs de cohérence transversales avec une source (étendue) de laboratoire. L'exemple canonique est une expérience de diffraction par un réseau de lignes d'une centaine de  $\text{nm}$  parfaitement similaires cristallographiquement espacées de  $1\mu m$ . Dans le cas d'un faisceau non-cohérent, le signal est simplement une addition des intensités diffractées par chacune des lignes. Il n'y aucune signature de l'espacement entre ces lignes. Expérimentalement avec les meilleures optiques de laboratoire (i.e. optique hybride ou Bartels en entrée et analyseur en sortie), des satellites sont observés sur des cartographies haute résolution. Ces satellites sont directement liés à l'espacement des lignes et supposent une addition en *amplitude* du signal de chacune des lignes. Pour avoir cette addition en amplitude, le faisceau présente bien une cohérence transversale. Dans cette configuration haute résolution, la divergence est très faible (tout à fait comparable à celle obtenue en synchrotron), mais la source est étendue. Bien sûr ce type d'expérience en laboratoire est fortement limité par le flux disponible. Seul un synchrotron pour le moment est capable de délivrer un flux suffisant pour réaliser des expériences sur objet unique sub-micronique.

L'équation 2.2 donnant la valeur attendue de la cohérence transversales peut être ré-écrite en utilisant la divergence du faisceau.

$$\xi_{\perp} \simeq \frac{\lambda R}{2\sigma_{\perp}} = \frac{\lambda}{2\varepsilon^{beam}} \quad (3.2)$$

Il est donc proposé ici de calculer une longueur de cohérence transversales avec cette formule pour les configurations haute résolution de laboratoire. Elle atteint un honorable  $0.63\mu m$  dans la direction où la divergence est la plus faible ( $\sim 0.7 \text{ mdeg}$  avec l'optique hybride). Cette valeur est compatible avec les résultats expérimentaux précédemment cités.

Dans le cas des lignes synchrotrons, le point délicat est de connaître l'extension effective que voit l'échantillon ou de manière équivalente de calculer la divergence effective du faisceau au niveau de l'échantillon. Plusieurs cas correspondant aux expériences réalisées lors de ce travail de thèse sont reportés dans le tableau 3.2. Il s'agit de calculs approchés. Sur ID01, les fentes ss2 ne réduisent pas la taille de source puisque celles-ci sont grandes ouvertes. Elles servent seulement à nettoyer le faisceau. En revanche, les fentes ss4 sont très fermées. Dans le tableau les valeurs de  $\xi_{\perp}$  sont reportées en considérant la source primaire (onduleur) et une source effective défini par les fentes ss4. Dans les deux cas, les longueurs sont compatibles avec les grains sub-microniques étudiés.

Pour obtenir des valeurs plus réalistes, il faut tenir compte des optiques focalisantes qui ont tendance à augmenter la taille de la source et considérer les grains comme des fentes qui sélectionnent seulement une portion de la source. Ce dernier point est a priori favorable en terme de cohérence.

**Caractérisations expérimentales des longueurs de cohérence** Les longueurs de cohérence restent difficile à estimer. Une mesure expérimentales est souhaitable. La mesure de la variation de visibilité de franges (franges issues d'un objet : fentes, cristal ...) permet d'évaluer ces longueurs de cohérence. Une étude détaillée du degré de cohérence en fonction des paramètres d'ouverture des fentes F2 et F5 est reportée dans la thèse V. Jacques [Jacques 2009]. Ce travail expérimental a permis de caractériser précisément les longueurs transversales de la ligne Cristal. Une mesure de la longueur de cohérence longitudinale (la plus critique en diffraction cohérente en géométrie de Bragg) est proposée dans l'article [Leake 2009]. Dans ce travail l'objet test est un pilier monocristallin de ZnO ( $\sim 1\mu m$ ). La visibilité d'un système de franges pointant dans une direction  $\vec{q}$  est calculée pour différentes réflexions. Pour chacune de ces réflexions, la longueur de cohérence temporelle intervient différemment puisque la géométrie de mesure est différente. Les auteurs en déduisent une longueur de cohérence longitudinale de  $\xi_{//} = 0.66 + / - 0.02\mu m$  (ligne ID-34-C à l'APS).

Lors des expériences réalisées sur ID01, les fentes ss4 sont illuminées par un faisceau cohérent. En effet sur la cartographie du faisceau reportée figure 3.8b, les franges issues de ces fentes sont visibles. Ces fentes sont ouvertes à  $20\mu m$ . Le faisceau présente donc une cohérence suffisante pour les faire diffracter. Il faudra toujours veiller à réduire au maximum le nombre de fenêtres ou tout autre élément sur le trajet du faisceau pour ne pas obtenir un front d'onde très perturbé [Robinson 2003]. Un front d'onde trop perturbé est très néfaste brouillant les interférences créées par l'objet étudié.

### 3.3 Les détecteurs

Les détecteurs ont un rôle essentiel. Les détecteurs utilisés lors des expériences seront décrits dans cette section.

### 3.3.1 Les détecteurs 1D

Au laboratoire, deux détecteurs ont été utilisés. Le plus classique est le détecteur proportionnel à gaz. Il est basé sur une mesure de courant. Les photons X ionisent le gaz créant des ions et des électrons. Ces charges sont collectées sur les bords du dispositif plongé dans un fort champ électrique. Il faut veiller à travailler hors saturation pour obtenir une réponse linéaire ( $< 150000 \text{ coups/s}$ ). Un détecteur type pixel est également disponible sur le diffractomètre X-Pert du laboratoire. Il est basé comme les caméras Medipix ou Xpad sur le concept selon lequel chaque pixel remplit les fonctions de compteur individuel de photons. La version du laboratoire est une version linéaire des caméras. Ce détecteur a une très bonne sensibilité et une très bonne dynamique ( $> 10^7 \text{ coups/s}$ ). Il est très utile pour réduire le temps de comptage lors de long cycles de mesures. Il a été possible grâce à ce détecteur de faire des cycles thermiques rapidement (un week-end contre une bonne dizaine de jour avec un détecteur à gaz).

### 3.3.2 Détecteur de fluorescence multi-canal

Les détecteurs de fluorescence sont des détecteurs dispersifs en énergie. Leur résolution énergétique est basée sur une proportionnalité entre l'énergie d'un photon et le nombre de paires électron/trou créées lorsqu'il est capté par une diode silicium ( $9000eV \sim 3000 \text{ paires électron/trou}$ ). La résolution énergétique de tels détecteur est limitée typiquement par le bruit poissonien en  $\sqrt{I}$ . Il faut éviter de travailler à trop haut flux à cause du problème d'empilement quand trop de photons de même énergie arrivent en même temps sur la diode. C'est pourquoi l'ouverture angulaire de ces détecteurs est petite par conception. Il faut parfois encore réduire l'angle solide sous lequel le capteur voit l'échantillon en ajoutant un cône en plomb.

Les détecteurs de fluorescence utilisés (Rontec) sont des détecteurs 2048 canaux. Leur résolution énergétique est de l'ordre de  $150 - 200eV$ . Leur signal est envoyé sur une carte électronique multi-canal (*MCA : Multi Channel Analyser*). Ainsi, il est possible de réaliser des intégrations du signal sur une plage énergétique spécifique. Il faut commencer par calibrer les canaux. Sur les échantillons d'or étudiés, la calibration est simple puisqu'il y a peu d'éléments chimiques. Le substrat de verre contient quelques impuretés, mais il est facile d'identifier le signal spécifique de l'or

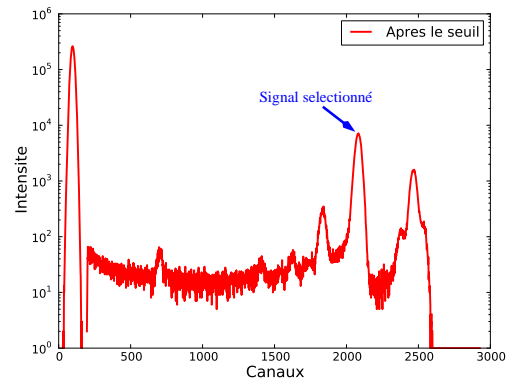


FIG. 3.9 – *Signal de sortie du détecteur multi-canal. Le pic sélectionné correspond à une raie  $L\alpha$  qui apparaît lorsque l'on dépasse le seuil.*

Au	$K\alpha 1$	$K\alpha 2$	$K\beta 1$	$L\alpha 1$	$L\alpha 2$	$L\beta 1$	$L\beta 2$	$L\gamma 1$	$M\alpha 1$
Energie (keV)	68,803	66,989	77,984	9,713.3	9,628	11,442	11,584	13,381	2,122
Intensité (ua)	100			100	11	67	23		

TAB. 3.3 – Raies de fluorescence de l’Au avec leurs intensités respectives (le seuil d’absorption de l’or vaut 11.9187keV)

(Fig. 3.9). Il suffit de se méfier de la diffusion élastique de l’air environant qui est proche des raies  $L\beta$  de l’or (cf Tab. 3.3).

### 3.3.3 Les detecteurs 2D

Les détecteurs 2D ou caméras ont une importance cruciale dans les domaines de l’imagerie et en particulier en imagerie 3D. Leurs limitations fixent en partie les limites lors des expériences. Ce paragraphe se propose de décrire en détail les trois types de caméra que nous avons utilisé lors de nos différentes campagnes de mesure. Elles possèdent chacune leurs avantages et leurs limitations. Lors de ces dernières années, ce domaine a fortement évolué ouvrant la voie à de nouvelles possibilités.

**CCD indirect** Une caméra CCD indirect est composée d’un écran fluorescent, d’un taper et d’un chip CCD. L’écran fluorescent transforme le faisceau X en lumière visible. Celle-ci est dirigée vers le capteur CCD avec des fibres optiques (*taper*). La disposition de ces fibres n’est pas parfaite. Il y a donc des imperfections entraînant des distorsions d’image. L’avantage principal de ces caméras est leur très bonne dynamique et leur large ouverture. Sur ID01, une caméra Princeton  $1340 \times 1300$  pixels de  $55\mu m$  est disponible (dynamique  $\sim 65000$  coups (codage sur 16 bits)). Les distorsions sont de l’ordre de 8 pixels sur les cotés de l’écran. Une procédure de correction de distorsion est disponible sur place (depuis 2008) et permet de s’affranchir de ces défauts.

Cette caméra a une grande ouverture angulaire (cf Tab. 3.4) : par exemple placée à 20cm de l’échantillon, l’ouverture angulaire est de presque  $10^\circ$ . Cette grande extension est utilisée pour trouver rapidement les pics de diffraction.

**CCD direct** Les caméras directes sont des caméras où les photons X sont directement collectés sur le chip CCD. Pour la détection des rayons X durs, les capteurs de silicium du chip sont particulièrement épais pour pallier à la faible absorbance de ce matériau . C’est pourquoi on parle de *deep depletion direct CCD*. Cette disposition évite les distorsions. Il est également possible d’obtenir des pixels de très faible dimension :  $13\mu m$  sur la caméra Andor  $1024 \times 1024$  (cf Tab. 3.4). En revanche, la dynamique est limité à 12000 ADU par pixel environ correspondant grosso modo à 40 photons à 8keV. Le chip est également très sensible. Il est facilement possible d’endommager des pixels si des précautions avec des atténuateurs ne sont pas prises.



	Taille Pixel	Angle°\L(m)	0.2	0.85	1.
Medipix	55 $\mu m$	-	3.6	0.86	0.73
CCD direct	22 $\mu m$	-	2.42	0.57	0.48
CCD Andor	13 $\mu m$	-	3.8	0.90	0.76
CCD Indirect	50 $\mu m$	-	9.31	2.19	1.86

TAB. 3.4 – Comparaison de l’ouverture angulaire des différentes caméra CCD utilisées lors des différentes expériences en fonction de la distance L échantillon-caméra

Typiquement une intégration de 0.1s est nécessaire pour se placer en mode de comptage de photon unique (cf §. 3.3.3). Le read-out (temps de transfert des données numériques) vaut en comparaison 2.3s. Ainsi, une mesure 3D de 41 coupes composées de 201 accumulations était réalisée en 5.5h soit 13.2 minutes de mesure effective pour 5.35h de temps de lecture (*read-out* caméra + transfert avec SPEC). Il est donc impossible de réaliser un nombre important de coupes 2D avec ce type de détecteur. Par ailleurs, il est difficile d’obtenir un faisceau stable sur de très longues durées.

A l’ESRF, le faisceau décroît progressivement (perte d’électrons dans l’anneau de stockage au cours du temps). C’est pourquoi toutes les 12 heures une réinjection est réalisée. Ainsi, juste après l’injection il faut être méfiant à toute les dérives des optiques (effets thermiques). Il faut donc être prudent lors des mesures longues. Avoir une bonne sonde de l’évolution de l’intensité du faisceau incident permet de normaliser le signal collecté sur la caméra. Il existe sur ID01 un compteur type chambre d’ionisation qui permet de suivre ces fluctuations du faisceau incident. Il est également possible de mesurer les fluctuations de signal diffusé (typiquement fluorescence) avec un détecteur ponctuel par exemple. Récemment, un mode dit top-up a été développé au synchrotron Soleil. Il s’agit de réinjecter des électrons dans l’anneau de stockage en permanence. Ainsi, le flux incident varie beaucoup moins, et en moyenne les dérives sont très faibles.

**Détecteur pixel** Comme dans le cas 1D, les détecteurs pixel 2D sont composés de pixels possédant chacun leur capteur et leur système d’amplification individuel. Le temps de lecture est très rapide grâce à cette architecture. Cette caractéristique influence néanmoins la taille de pixel qui est plus étendue. Ces détecteurs sont récents. Il existe actuellement trois modèles différents : le MediPix [Ponchut 2007], le Xpad [Bérar 2002] et les Pilatus<sup>9</sup>. Des mesures à trois dimensions peuvent être réalisées beaucoup plus rapidement.

Le MediPix possède des pixels de taille raisonnable : 55 $\mu m$ . Il est composé de 256 $\times$ 256 pixels, une version 512 $\times$ 512 est maintenant disponible sur ID01. Cependant la dynamique reste réduite à 11810 photons maximum par pixel. Ce détecteur est

<sup>9</sup>Taille de pixel de 172 $\mu m$  pour les Pilatus. Un modèle avec des pixels plus petits  $\simeq$  70 $\mu m$  devrait être disponible bientôt.

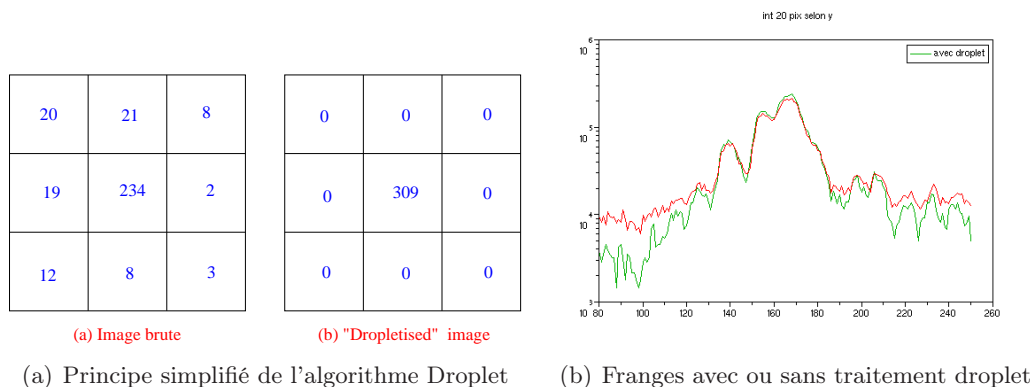


FIG. 3.10 – Le traitement droplet permet d'augmenter la visibilité des franges

disponible sur ID01 depuis début 2009. Il a été utilisé lors de la dernière campagne de mesure. Une mesure 3D de 128 coupes mesurées 10 fois une seconde a été effectuée en un peu plus de 20 minutes. Le gain est énorme en temps de comptage par rapport aux CCD directes. La mesure est donc moins sensible aux dérives de la ligne.

Le XPad lui a une meilleure dynamique (16 bits) et des pixels de  $120\mu m$ . Il est désormais disponible sur la ligne Cristal.

**Défauts et corrections des détecteurs** Aucun détecteur n'est parfait, il convient de corriger un certain nombre de défauts. Bien que les chips CCD soient refroidies à basse température, un bruit de fond subsiste. Certains pixels peuvent être défectueux. La réponse est potentiellement non homogène sur tout le chip. Des solutions existent pour corriger ces défauts.

- Le bruit de fond intrinsèque de la caméra peut être soustrait grâce à la mesure d'un *dark field*. Il s'agit de mesurer la réponse avec la meilleure statistique possible de la caméra soumise à signal nul.
- La mesure d'un *flat field* permet de corriger les défauts homogénéité spatiale de la caméra. Il s'agit ici de mesurer la réponse avec la meilleure statistique possible de la caméra soumis à un signal homogène (par exemple la diffusion du faisceau par de l'eau piégée dans un capillaire).
- Des algorithmes ont été développés pour corriger la dispersion des photons sur plusieurs pixels.

**Algorithme Droplet** L'algorithme Droplet permet d'effectuer des mesures dans un mode de comptage photon. Pour pouvoir utiliser l'algorithme de la goutte [Livet 2000]<sup>10</sup>, il faut utiliser une caméra CCD à illumination directe et se placer

<sup>10</sup>Il faut signaler la contribution de Frédéric Picca à l'amélioration de l'algorithme (notamment implémentation in-line sur la ligne cristal). Une étude précise de l'algorithme est exposé dans la thèse de G. Beutier [Beutier 2005]

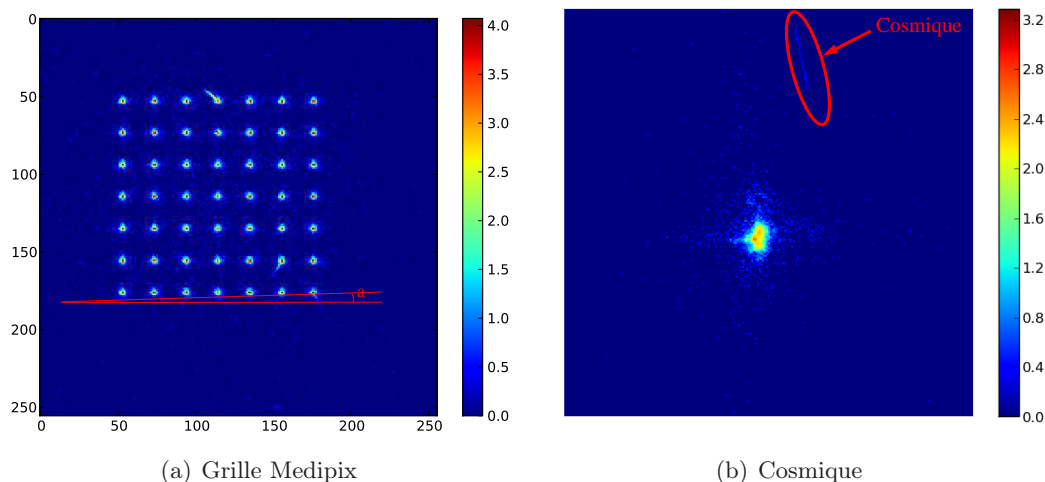


FIG. 3.11 – (a) Influence de la fixation de la caméra, (b) Détection d'un rayon cosmique

en mode de faible comptage pour éviter les problèmes d'empilement (réduction du temps d'intégration).

Cet algorithme a l'avantage de traiter plusieurs corrections simultanément. Comme il faut se placer en mode de comptage faible, il est nécessaire de faire la somme de plusieurs centaines d'images au minimum du même signal pour obtenir une dynamique compatible avec une analyse quantitative. Ainsi l'algorithme effectue la somme de ces images tout en :

1. Soustrayant le bruit de fond (dark)
2. Supprimant les cosmiques (Fig 3.11b)
3. Corrigant l'étalement des photons sur plusieurs pixels

Le schéma 3.10a présente simplement le principe de réaffectation d'un photon à une pixel précis. Ce traitement permet un gain significatif de visibilité. La figure 3.10b compare un système de franges dans une direction entre une image brute (avec soustraction de Dark) et une image corrigée par le droplet. La visibilité est clairement améliorée.

### 3.3.4 Indexation en $q$ d'un pic de diffraction

L'acquisition du signal sur la caméra est une mesure de l'espace réciproque. Mais elle n'est pas directement utilisable. Il faut affecter à chaque pixel une valeur de  $q$  : il s'agit d'indexer le résultat brut. Cette étape nécessite des précautions et sera détaillée dans cette section.

**Calcul complet** Soit  $R_0 = (\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)$  le repère absolu du laboratoire,  $R_C$  le repère du cristal et  $R_S$  le repère de l'échantillon. La caméra est placée au bout du

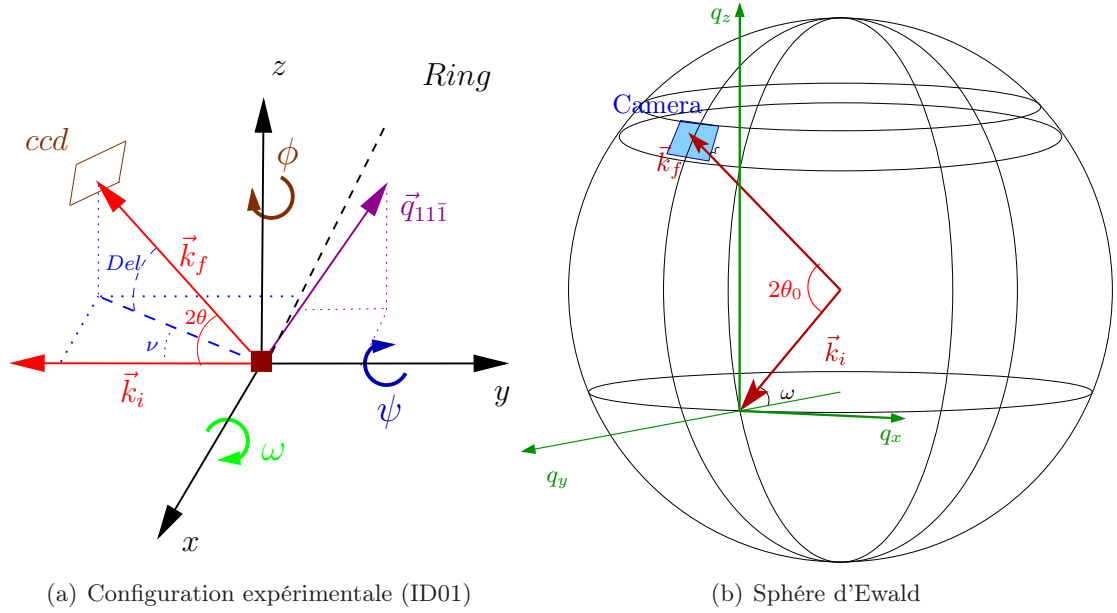


FIG. 3.12 – (a) Illustration du passage repère de l'échantillon au repère du détecteur, (b) Représentation de la caméra sur la sphère d'Ewald

bras de détection composé d'une rotation  $Del$  d'axe  $\vec{e}_x^{R_0}$ , placée sur la rotation  $Nu$  d'axe  $\vec{e}_z^{R_0}$ . L'échantillon est placé à l'intersection des cercles échantillon  $\phi$ ,  $\psi$  et  $\omega$  (cf Fig 3.12a). Soit un grain 111 tel que la direction [111] est colinéaire à la direction  $\vec{e}_z^{R_0}$ . Dans le repère du laboratoire,  $\vec{k}_i$  est colinéaire à la direction  $\vec{e}_x^{R_0}$ . La direction de  $\vec{k}_f$  dépend de la valeur de  $Del$  et  $Nu$ . Le vecteur de diffusion peut s'écrire :

$$\vec{q} = \vec{k}_f - \vec{k}_i = \frac{2\pi}{\lambda} (R_{Del} \cdot R_{Nu} - I_3) \cdot \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}_{R_0} \quad (3.3)$$

où  $I_3$  est la matrice identité,  $R_{Del}$  et  $R_{Nu}$  sont respectivement les matrices rotations d'axe  $\vec{e}_x^{R_0}$  d'angle  $Del$  et d'axe  $\vec{e}_z^{R_0}$  et d'angle  $Nu$ . Pour établir la relation position pixel-angle, il faut connaître la position du centre de la caméra  $(i_0, j_0)$ . Ainsi en première approximation :

$$\vec{k}_f = \vec{k}_f^{Centre} + \vec{R}_{ccd} = \vec{k}_f^{Centre} + \frac{PixelSize}{L} \begin{pmatrix} i - i_0 \\ j - j_0 \\ 0 \end{pmatrix}$$

où  $\vec{R}_{ccd}$  est le vecteur entre le centre de la caméra et le pixel  $(i, j)$ . Pour évaluer la position du centre de la caméra, il suffit de se placer à  $Del$  et  $Nu = 0$  et de faire une image du faisceau direct en ayant préalablement déplacé l'échantillon pour qu'il ne soit plus dans le faisceau. Cependant lors de cette étape, il est plus intéressant d'établir plutôt une grille en faisant varier les angles  $Del$  et  $Nu$ . Cette solution

permet non seulement de calibrer angulairement la caméra mais permet de mettre en évidence certains défauts de fixation. Clairement sur la grille 3.11a. (effectuée lors de l'expérience ID01dec09), un angle  $\alpha$  de désorientation apparaît. Pour corriger cette désorientation, une matrice de désorientation  $R_\alpha$  peut être rajoutée lors du changement de base (Eq. 3.3).

Les rotations  $\omega$ ,  $\psi$  et  $\phi$  sont utilisées pour placer cristal en condition de diffraction. Selon la réflexion désirée, les mouvements sont différents. La direction du vecteur de diffusion peut être calculée par l'intermédiaire de ces 3 rotations. Pour un grain 111 dont la direction  $\vec{n}_{111}$  est colinéaire à la direction  $e_z^{RS}$  :

$$\vec{q}_{111} \parallel \vec{n}_{111} = R_\omega \cdot R_\psi \cdot R_\phi \cdot \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} \quad (3.4)$$

Les matrices  $R_\omega$ ,  $R_\psi$  et  $\cdot R_\phi$  sont respectivement les matrices d'axe  $\vec{e}_x$ ,  $\vec{e}_y$  et  $\vec{e}_z$  dans le repère  $R_0$  (cf Fig 3.12a). La dernière étape de l'indexation correspond à identifier termes à termes les deux relations 3.3 et 3.4.

**Courbure de la sphère d'Ewald** Le plan de la caméra ne correspond pas à une grille régulièrement espacée dans l'espace réciproque. Il s'agit d'une portion de la sphère d'Ewald de rayon  $\frac{2\pi}{\lambda}$  (Fig 3.12b). Ces distorsions sont quantifiables et l'indexation doit être corrigée. L'effet est maximal sur les bords de la caméra (cf §.4.5.1). Il faut alors effectuer une interpolation des données si l'analyse des données nécessite de travailler sur un réseau régulier.

**Developpement simplifié** Si la connaissance de la position absolue  $q_{x,y,z}$  du pic imagé n'est pas indispensable et que seules les variations en  $\Delta q$  sont recherchées, le calcul peut être simplifié. Lorsque le détecteur est situé loin de l'échantillon  $> 1m$ ,  $\tan(\theta) \simeq \theta$ . La résolution dans le plan de la caméra est par construction égale :

$$\delta q_{ccd} = \frac{2\pi \text{ Pixel Size}}{\lambda L_{Sample-Ccd}} \quad (3.5)$$

Dans la direction du balayage  $\omega$ , la résolution dépend de la réflexion imagée, de l'énergie et du pas angulaire :

$$\delta q_\omega = \frac{2\pi}{d_{hkl}} \delta\omega = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta_{hkl} \delta\omega \quad (3.6)$$

Pour mesurer une distance équivalente dans le réseau direct à partir d'une distance dans l'espace réciproque, la relation suivante peut être alors utilisée :

$$L_{eq} = \frac{2\pi}{\Delta q_{measure}} = \frac{2\pi}{N_{pixel} \delta q} \quad (3.7)$$

Une interfrange de 10 pixels mesurée avec une résolution  $\delta q = 4e^{-4} \overset{\circ}{\text{Å}}^{-1}$  correspond à une taille caractéristique de 157 nm. D'autre part, il est utile d'obtenir directement le

$2\theta$  d'un pic pour calculer la déformation. A partir l'équation 3.3, la relation suivante est obtenue :

$$\cos(2\theta) = \cos(Nu) \cos(Del)$$

Ainsi, le moteur Del correspond exactement au  $2\theta$  si  $Nu = 0$ . Dans la pratique, la désorientation sur l'anneau de Debye peut être importante. Expérimentalement, il est courant de mesurer des grains avec des  $Nu$  autour de  $5^\circ$ .

**Discussion** L'indexation en  $(q_x, q_y, q_z)$  doit être la plus soignée possible. C'est d'autant plus important si une comparaison quantitative entre deux réflexions d'indices différents est nécessaire. Le fait de ne pas avoir d'analyseur reste préjudiciable malgré toutes les précautions illustrées plus haut. Sans analyseur, la mesure est plus sensible aux défauts de positionnement de l'échantillon.

Les mesures analyseur sont complètement exclues dans le cas 3D. En effet, il semble impossible de réaliser suffisamment de points de mesure avec un détecteur ponctuel. Néanmoins avec les progrès récents des goniomètres (moteurs continus) et des détecteurs ponctuels, il serait intéressant d'essayer une mesure trois dimensions d'un pic de Bragg de cette manière. Avec un détecteur ponctuel à haute dynamique et lecture rapide, il serait peut-être possible en synchronisant les moteurs sur le détecteur de réaliser des cartes avec une bonne résolution en un temps acceptable. Il faudrait choisir un échantillon qui diffracte le plus possible avec une ligne délivrant le plus de flux possible <sup>11</sup>. Les moteurs à mouvement continu sont essentiels pour éviter les temps mort qui existent avec les moteurs pas à pas.

Cette configuration non naturelle aurait l'avantage de régler plusieurs problèmes qui existent avec les caméras. Il serait possible de travailler directement en  $(q_x, q_y, q_z)$  en codant préalablement astucieusement le mouvement des moteurs en tenant compte de la sphère d'Ewald et d'autres artéfacts. Il serait également possible de mesurer avec des pas angulaires plus fins au centre du pic (qui contient la partie la plus intense du signal) et avec des pas plus larges loin du centre en adaptant le temps de comptage. Malheureusement, le problème de la divergence du faisceau incident n'est pas réglé avec l'analyseur. La mesure parfaite reste difficile.

### 3.4 Environnement échantillon

Un objectif de ce projet était de réaliser des mesures de cohérence in-situ pendant une sollicitation mécanique. Finalement après quelques tests avec une machine de traction (cf §. Annexe B), une sollicitation thermo-mécanique a été choisie. Le dispositif expérimental est plus simple et plus stable, il suffit d'installer un petit four au centre du goniomètre. Dans la pratique selon les disponibilités techniques trois fours différents ont été utilisés (Fig.3.13).

<sup>11</sup> Par exemple, le synchrotron en construction *Petra3* à Hambourg annonce des avancés techniques qui se traduiraient par de meilleurs flux.

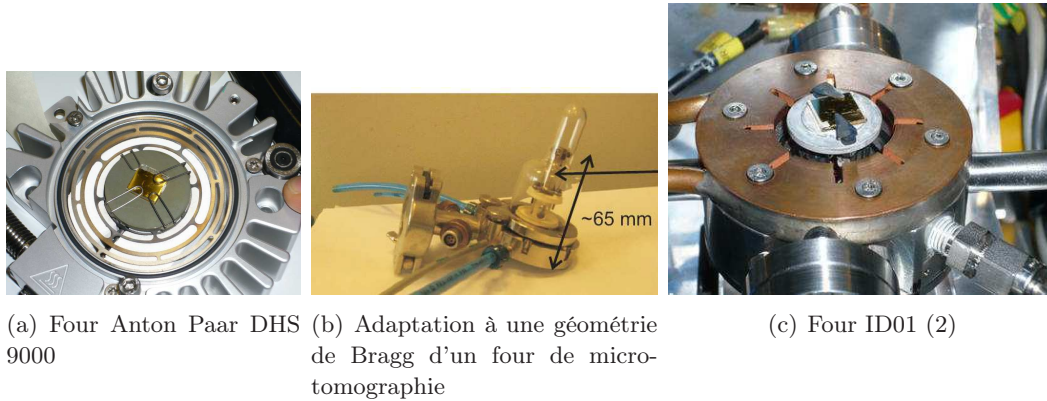


FIG. 3.13 – Les trois fours utilisés lors des différentes expériences

**Installation** Plusieurs manières de fixer l'échantillon ont été testées. Une fixation peut modifier l'état de contrainte de l'échantillon (surtout pour des échantillons possédant un substrat fin). Il s'agit d'un problème classique dans l'étude des films minces. Le collage à l'indium est une possibilité utilisée couramment en croissance. Il s'agit de faire fondre de petites billes de In qui jouent le rôle de colle. L'indium est un métal donc un bon conducteur thermique. Cependant en pratique, il n'a été pas aisé de faire ce collage sur le premier four utilisé sur ID01 (Fig.3.13a). Mouiller uniformément la base de l'échantillon est difficile. L'échantillon a bougé de quelques microns (beaucoup à l'échelle des objets étudiés) lorsque le point de fusion de l'indium situé à  $T \approx 156^\circ C$  a été dépassé. La sélection et les réglages sur le grain choisi (une vingtaine d'heures) fut perdu. Cette température n'a plus été dépassée par la suite pour éviter ce problème.

Sur les deux autres fours (Fig.3.13b,c), l'échantillon était fixé à l'aide de deux ou quatre agrafes placées aux coins de l'échantillon.

**Calibration** La calibration du four est effectuée avant de commencer l'expérience, elle s'effectue en deux temps. Dans un premier temps, il faut mesurer la dilatation naturelle du four en température surtout si un analyseur n'est pas utilisé en optique de sortie. Il suffit alors de compenser cette dilatation en ajustant la hauteur de l'échantillon en fonction de la température. Expérimentalement, on obtient cette première calibration en plaçant l'échantillon parallèle au faisceau ( $\omega = 0$ ) et en réalisant des scans  $z$  sur le faisceau direct qui est intercepté ou non.<sup>12</sup>

Dans un second temps, il faut calibrer la température réelle que voit l'échantillon. La meilleure sonde pour s'affranchir des défauts de fixation sur la zone chauffante, est le substrat. Pour un substrat en silicium monocristallin, il suffit de mesurer par exemple la réflexion 004 à chaque température (les paramètres thermiques du Si sont extrêmement bien connus).

Dans le cas des échantillons étudiés, cette solution n'était pas envisageable

<sup>12</sup>Le four de id01 Fig 3.13c se dilate de  $\approx 80\mu m$  pour  $\Delta T = 400^\circ C$

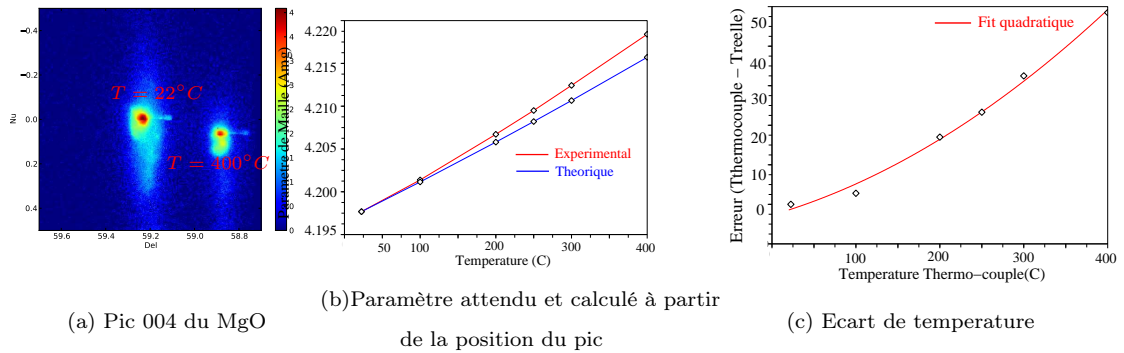


FIG. 3.14 – Calibration du four de ID01 avec un monocristal de MgO

puisque les films minces sont déposés sur un substrat amorphe (verre). Une calibration avec un autre échantillon modèle a donc été réalisée dans des conditions les plus similaires possibles : chauffage sous air avec l'utilisation du même système de fixation. Un cristal de MgO a été utilisé. Ce composé est un monocristal présentant une forte dilatation thermique (dilatation similaire à celle des métaux cf Tab. 1.4). Ainsi pour chaque température mesurée au thermocouple, le paramètre de maille du MgO a été calculé à partir du barycentre 3D de la réflexion symétrique 004 (pic 3D obtenu avec la caméra à partir d'un balayage  $\omega$  (*rocking curve*)). Le thermocouple est placé sur la base du doigt chauffant. Ce paramètre expérimental est ensuite comparé au paramètre théorique attendu (Eq. 3.8) compte tenu des coefficients de dilatation tabulés [Touloukian 1976].

$$a_{MgO}(T_i) = a_0 \left[ 1 + \int_{20}^{T_i} \alpha(T) d(T) \right] \quad (3.8)$$

Au final, l'écart entre le thermocouple et la température réelle est considérable près de  $50^\circ C$  à  $400^\circ C$ . La calibration est donc essentielle. Pour des raisons de commodité, l'écart de température sera ajusté par un polynôme dans la suite des analyses des données (Fig. 3.14d).

## Synthèse Chapitre3

En laboratoire, il est possible de mesurer le signal de diffraction d'une assemblée de plusieurs dizaines de milliers de grains. Les taches de diffraction les plus intenses peuvent être mesurées en mode haute résolution. Une configuration moins résolue est disponible pour mesurer les pics les moins intenses. Le rayonnement synchrotron est nécessaire pour mesurer le signal de diffraction d'un grain unique. Il faut veiller à



bien caractériser le faisceau incident. La nature de la préparation du faisceau (fentes ou lentilles) influence la mesure. Un faisceau de faible dimension est nécessaire pour localiser l'objet diffractant. La configuration utilisée sur ID01 notamment constituée avec les lentilles de béryllium permet d'obtenir un faisceau projeté sur l'échantillon d'environ  $3 \times 2 \mu m$ . Des longueurs de cohérence transversales de l'ordre de  $1.5 \times 1.5 \mu m$  et longitudinale de l'ordre  $0.520 \mu m$  sont estimées dans cette configuration. Elles sont compatibles avec les dimensions des grains étudiés. La détection est un enjeu essentiel dans l'imagerie 3D et il convient de calibrer avec précaution les mesures.

La plupart des outils théoriques et expérimentaux nécessaires à la caractérisation des échantillons sont maintenant explicités. Les deux prochains chapitres se proposent donc d'appliquer tous ces éléments au cas de films polycristallins d'or.

# Analyse multi-échelle des déformations dans des films minces polycristallins d'or

## Sommaire

<b>4.1</b>	<b>Caractérisations générales des échantillons . . . . .</b>	<b>76</b>
4.1.1	Aspects morphologiques par microscopie électronique . . . . .	77
4.1.2	Caractérisation de la texture . . . . .	79
<b>4.2</b>	<b>Caractérisations des déformations et des contraintes moyennes . . . . .</b>	<b>82</b>
4.2.1	Etat de contrainte résiduelle . . . . .	82
4.2.2	Comportement thermique moyen . . . . .	87
<b>4.3</b>	<b>Etude des déformations moyennes de grains uniques . . . . .</b>	<b>91</b>
4.3.1	Analyse des anneaux de Debye . . . . .	91
4.3.2	Inhomogénéités inter-grain à température ambiante . . . . .	93
4.3.3	Evolutions avec la température . . . . .	95
4.3.4	Discussion . . . . .	97
<b>4.4</b>	<b>Stratégie en vue de l'identification du grain diffractant . . . . .</b>	<b>98</b>
<b>4.5</b>	<b>Etude intra grain : Diffraction cohérente . . . . .</b>	<b>104</b>
4.5.1	Aspects tomographiques . . . . .	105
4.5.2	Mesures de plusieurs réflexions d'un même grain . . . . .	115
4.5.3	Mesures expérimentales des hautes fréquences . . . . .	118
4.5.4	Diffraction cohérente en température . . . . .	118
4.5.5	Résultats complémentaires sur l'échantillon P3 . . . . .	123
<b>4.6</b>	<b>Simulations Eléments Finis et diffraction cohérente . . . . .</b>	<b>126</b>
<b>4.7</b>	<b>Grains très déformés . . . . .</b>	<b>128</b>

L'objectif principal de ce travail est de caractériser au mieux le comportement local de polycristaux. Les expériences de micro-diffraction en mode classique et en mode cohérence sont donc au coeur de cette thèse. Néanmoins à la fois pour affiner la méthodologie expérimentale et pour mettre en perspective les résultats, une étude générale des échantillons est nécessaire. Ainsi dans un premier temps, un maximum d'informations seront tirées des techniques classiques de laboratoire. La diffraction X de laboratoire permet de caractériser la texture et les déformations moyennes. Les analyses de microscopie électronique MEB et EBSD sont complémentaires en fournissant des informations locales sur la microstructure. Ces pré-requis permettront alors d'affiner la méthodologie expérimentale. Les mesures de diffraction cohérente à trois dimensions sur des objets non isolés dans l'espace direct sont en effet des mesures complexes à mettre en oeuvre surtout lors d'un essai mécanique.

Ce premier chapitre expérimental sera construit sur une caractérisation des déformations de plus en plus précise dans l'espace direct : passant d'une échelle caractéristique du  $mm$  à la dizaine de  $nm$ . Une étude la plus quantitative possible sera esquissée pour caractériser les grandeurs moyennes des échantillons. Ensuite, l'étude de la structure fine des anneaux de Debye granulaires obtenus permettra de suivre le comportement de quelques dizaines de grains individuels lors d'un cycle thermique. Une comparaison du comportement mécanique à ces deux échelles sera alors effectuée. Ensuite, la méthodologie de mesure d'un grain unique en mode cohérence sera explicitée. Une analyse du signal sera alors effectuée en quantifiant au mieux les mesures réalisées. Une simulation mécanique éléments finis sera exposée en vue de mettre en perspective les figures de diffraction cohérente obtenues en essayant de faire correspondre au mieux les simulations aux échantillons réellement caractérisés. Finalement dans le cas d'un échantillon fortement déformé, il sera montré comment il est possible d'obtenir des informations à partir de la structure complexe du signal de cohérence.

## 4.1 Caractérisations générales des échantillons

Quatre échantillons S0, S1, S2 et P3 ont été étudiés lors des expériences. Ils résultent d'une collaboration avec le groupe de G. Dehm au Eric Schmidt Institute de Leoben en Autriche (collaboration avec Jozeph Keckes). Les préparations FIB et les caractérisations EBSD des échantillons ont été réalisées à Leoben par Christophe Kirchlechner. Des mesures complémentaires de microscopie électronique MEB ont été réalisées au CP2M avec Christian Dominici. Il s'agit de films minces polycristallins minces d'environ  $400\text{ nm}$  d'épaisseur. Ces films sont supportés par un substrat amorphe de  $SiO_2$  (verre). Ces quatre films minces ont été obtenus sous vide par dépôt en phase vapeur. Le dépôt a été réalisé à température ambiante (température du substrat). Dans un second temps, ils ont subi une étape de recuit haute température  $800 - 900^\circ C$  pendant quelques secondes (recuit à la flamme). Ce recuit a permis de finaliser et stabiliser leur microstructure. Les recuits ultérieurs ne dépasseront jamais  $500^\circ C$  soit bien en dessous de  $900^\circ C$ .

L'or est un matériau fortement anisotrope élastiquement :  $A = C_{44}/(C_{11}-C_{22}) = 2.8$  (cf §. 1.2). L'or a une forte densité électronique, donc un fort pouvoir diffractant et aucun problème d'oxydation n'est à craindre lors de cycles thermiques (température modérée) sous air. Ces quatre films polycristallins sont donc particulièrement bien adaptés à des expériences de diffraction X in-situ en température.

#### 4.1.1 Aspects morphologiques par microscopie électronique

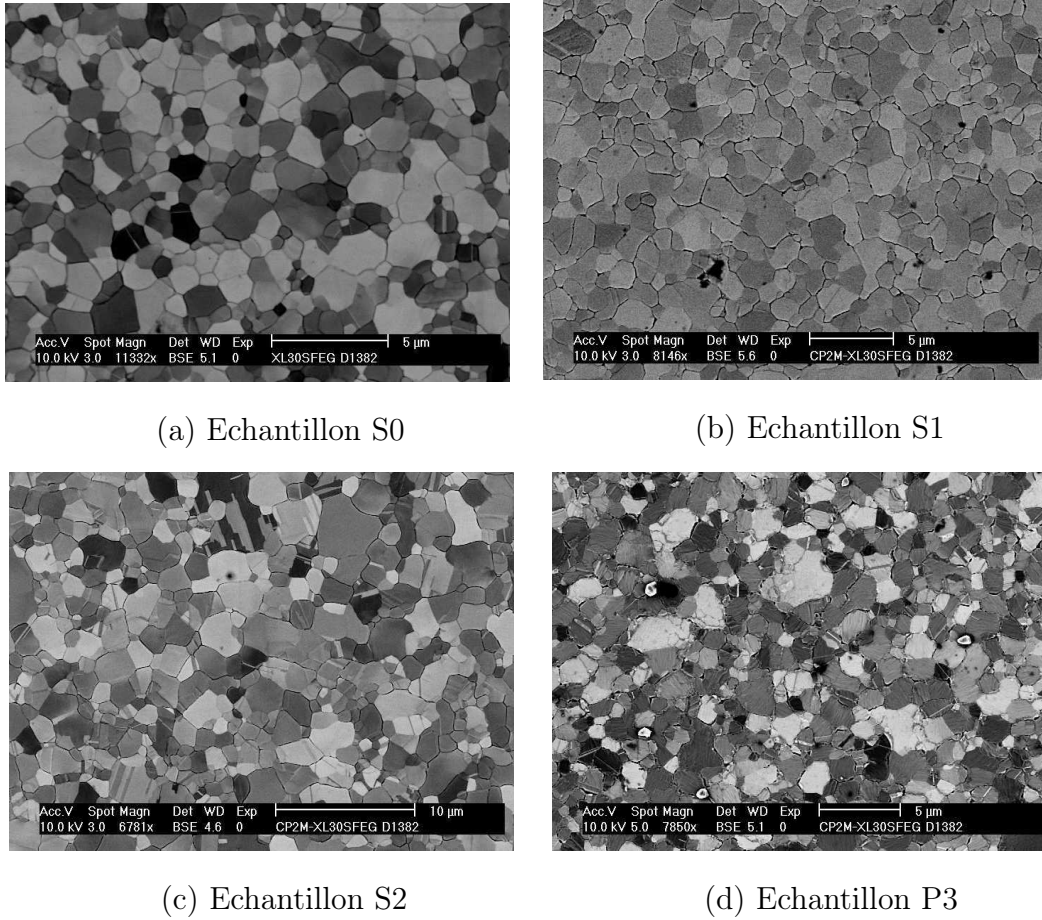


FIG. 4.1 – Images par microscopie électronique à balayage des quatre échantillons étudiés en détail : images (a,c,d) obtenues en détection d'électrons rétrodiffusés et l'image (b) en détection d'électrons secondaires

La microstructure des quatre échantillons a été observée par microscopie électronique à balayage. Différentes mesures ont été réalisées pour obtenir les meilleurs contrastes possibles. La détection des électrons secondaires donnent des contrastes de topologie (Figure 4.1b). Les électrons secondaires proviennent d'une épaisseur d'une vingtaine de nanomètres sous la surface. Ces images permettent notamment

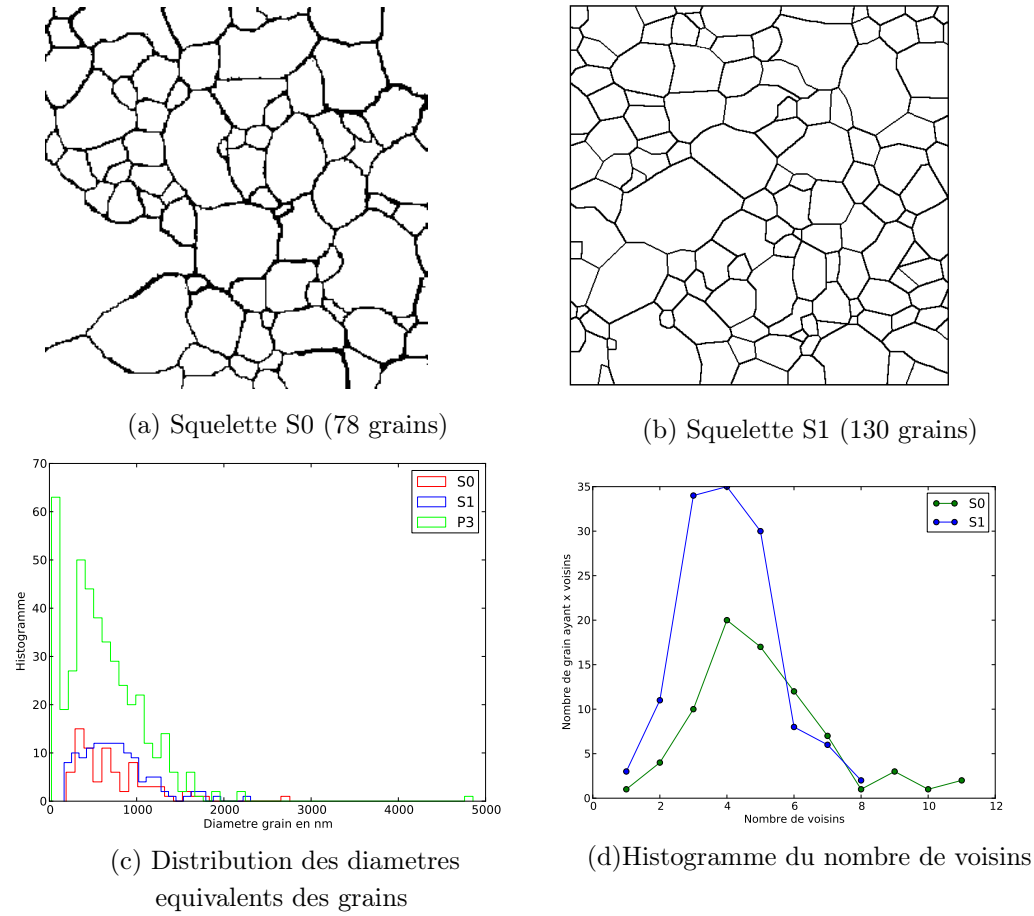


FIG. 4.2 – Informations morphologiques provenant de l'étude de la microstructure des films polycristallins

de vérifier la qualité des joints de grains. Des contrastes plus élevés sont obtenus en détection des électrons rétrodiffusés. Cette détection est plus sensible à la qualité cristalline par effet de canalisation. Ces électrons rétrodiffusés correspondent aux électrons diffusés par les atomes situés jusqu'à un micron de profondeur. L'effet de canalisation est légèrement sensible à l'orientation des grains : en désorientant de quelques degrés l'échantillon, des grains peuvent passer d'un contraste blanc à un contraste noir.

**Surface moyenne des grains** La taille et la morphologie des grains ont été obtenues à partir de squelettes (fig.4.2a,b) formés par les joints de grains de la microstructure. Ces squelette ont été créés à partir des images de microscopie électroniques les plus contrastées. Il est possible d'appliquer les méthodes classiques de traitement d'images pour détecter de manière automatique les joints de grains. Il s'agit de combiner un ensemble de seuillage, d'érosion, dilatation et de filtre lapla-

rien. Une image brute est ainsi créée. Cependant elle n'est pas parfaite, il suffit alors de corriger à la main les défauts avec un logiciel comme gimp.

A partir de ces squelettes, il est possible de calculer la surface en pixels de chaque grain <sup>1</sup>. Pour les échantillons S0, S1 et P3, la distribution de taille est centrée autour d'un diamètre équivalent de 500 – 600 nm (Fig. 4.2c). Les grains en moyenne présentent ainsi un rapport d'aspect proche de 1. Les distributions sont sensiblement des distributions log-normales. La statistique reste cependant assez faible, sauf pour l'échantillon P3, où elle est un peu meilleure (environ 450 grains). L'échantillon P3 présente aussi un nombre important de petits grains. D'autre part, le nombre moyen de voisins pour les grains est de 4 pour l'ensemble des 3 échantillons testés (Fig. 4.2d).

**Épaisseur** L'échantillon S1 présente en première approximation une structure colonnaire comme le montre la micrographie MEB prise sur une tranche (Fig. 4.3). Cette image donne une épaisseur de 375 nm (Figure 4.1.1). Une mesure de réflectivité au laboratoire a été réalisée pour vérifier cette épaisseur avec les rayons X notamment pour l'échantillon P3. Le contraste en densité électronique est très important entre l'or et le substrat de silice. Ainsi, une belle courbe de réflectivité présentant de très belles franges de Kiessig est attendue. Malheureusement aucune de ces franges ne sont observables expérimentalement. Ceci s'explique en toute vraisemblance par la non planéité du film et/ou du substrat. L'épaisseur des quatre films ne peut pas être vérifiée facilement. Les quatre échantillons ont été élaborés de manière similaire. Une structure colonnaire et une épaisseur de  $\sim 400$  nm seront donc supposées dans un premier temps.

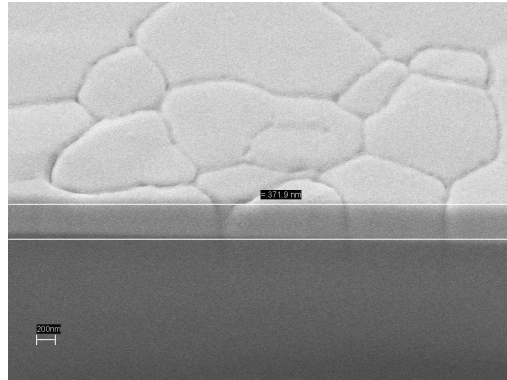


FIG. 4.3 – Image MEB du bord du film S1

#### 4.1.2 Caractérisation de la texture

La texture joue un rôle central dans les comportements mécaniques des films minces polycristallins (cf §. 1.2). Une analyse qualitative de texture a donc été réalisée sur les échantillons S0, S1 et P3.

<sup>1</sup>Ce calcul est réalisé avec un code numérique. Une particule parcourt tous les pixels en rebondissant avec un angle aléatoire sur les parois (valeur 1) de chaque grain, au bout de n parcours tous les pixels du grain ont été indexés (paramètres réglables). La particule est alors autorisée à franchir le joint de grains. Une fois que tous les pixels de l'image ont été indexés, le programme vérifie la réciprocity des voisinages et donnent en sortie une numérotation des grains, leur surface, et leur voisinage.

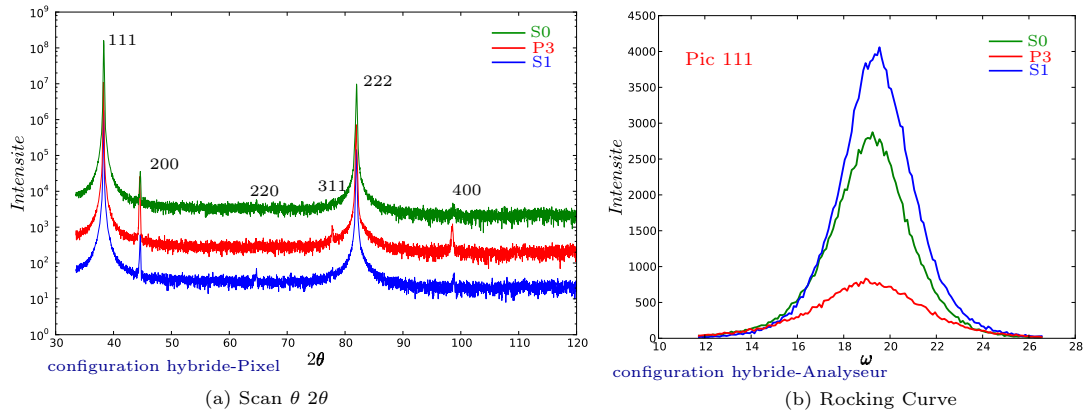


FIG. 4.4 – Scan symétrique  $\theta/2\theta$  et rocking curve réalisés avec la source de laboratoire

**Orientation perpendiculaire au plan** Un scan symétrique  $\theta/2\theta$  (Fig. 4.4a) permet d'évaluer les familles de grains majoritaires présentes dans le film. Les échantillons S0, S1 et P3 sont composés en majorité de grains (111). Une contribution des grains (220) est visible pour les films S0 et S1. Des grains (311) sont présents dans le film P3. Un scan  $\omega$  (*rocking curve*) permet de caractériser la dispersion de la normale des différentes familles de grains. Elle est assez significative pour les trois échantillons autour de  $5^\circ$  pour les (111) et de  $6^\circ$  pour les (100) (Fig. 4.4b)

**Orientation dans le plan** La texture dans le plan du film a été évaluée par l'intermédiaire de figures de pôles. Elles ont été réalisées avec le diffractomètre de laboratoire. Le flux est privilégié ainsi la configuration polycapillaire fentes longues est utilisée. Les figures de pôle d'axe (100) et (111) de P3 sont tracés dans la figure 4.5c,e. Elles présentent des anneaux qui sont homogènes en  $\phi$ . Il n'y a donc aucune orientation préférentielle dans le plan. Une intégration sur  $\phi$  de 0 à  $360^\circ$  permet de distinguer les détails (Fig. 4.5d,f). Des anneaux caractéristiques de macles (511) sont visibles et sont même plus intenses que les anneaux représentatifs des grains (100). Le signal de la famille minoritaire (311) ne sort pas du bruit de fond. Les macles (511) semblent être plus nombreuses que les grains de la famille (100). Des résultats similaires sont obtenus avec l'échantillon S1. Les échantillons S1 et P3 présentent une forte texture de fibre (111). D'autre part, une zone de  $15 \times 15 \mu\text{m}$  de P3 a été cartographiée par C. Kirchlechner en EBSD au laboratoire Eric Schmid à Leoben (collaboration J. Keckes). La carte de l'orientation perpendiculaire au film (Fig. 4.5a) confirme le caractère fortement (111). La dispersion de l'angle d'Euler  $\Phi$  est compatible avec la mosaïcité de cette famille mesurée avec les rayons X. Dans le plan, les directions [110] sont très dispersées et confirme le caractère aléatoire de l'orientation dans le plan (Fig. 4.5b). Sur cette carte, on remarque la présence d'un grain (100) assez volumineux au centre et de deux autres plus petits.

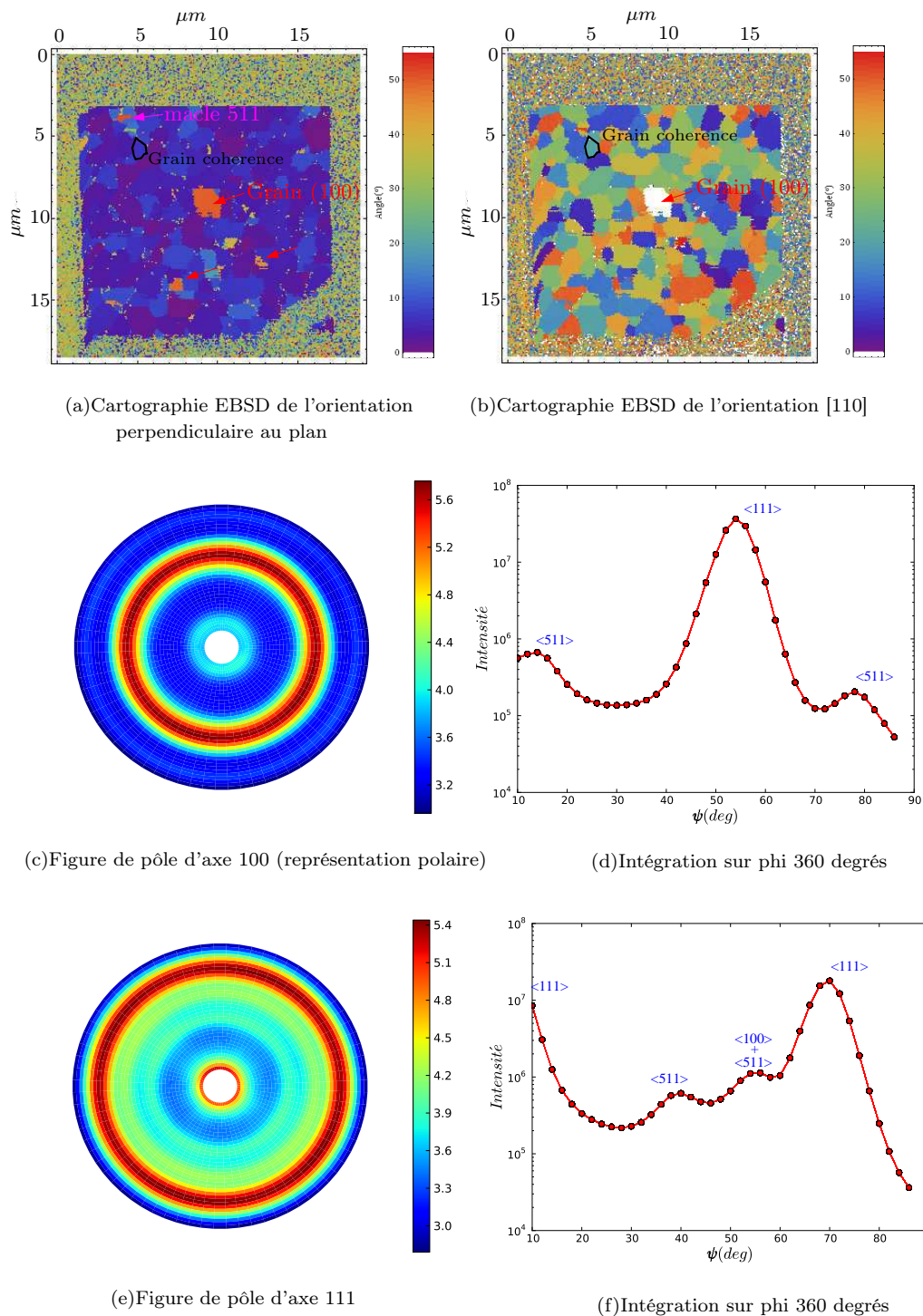


FIG. 4.5 – Cartographie EBSD et figure de pôle réalisées sur l'échantillon P3. Les mesures EBSD ont été effectuées par C. Kirchlechner à l'institut Eric Schmidt-Université de Leoben



## 4.2 Caractérisations des déformations et des contraintes moyennes

Les déformations moyennes ont été caractérisées dans les échantillons S1 et P3. En particulier, les contraintes résiduelles ont été évaluées dans différentes familles de grains. L'évolution des déformations perpendiculaires a été mesurée in-situ lors de cycles thermiques avec une source de laboratoire.

### 4.2.1 Etat de contrainte résiduelle

Les contraintes résiduelles ont été mesurées avec la technique des directions idéales (cf §. 2.3.2). Les déformations et les contraintes seront caractérisées pour les trois familles principales (111), (100) et (511) composant l'échantillon P3. Les grains (311) et les macles (442) des grains (100) sont ultra minoritaires et seront négligés par la suite.

**Sélection des pics** L'ensemble des inclinaisons entre les plans (hkl) pour les trois familles (111), (100) et (511) est reporté dans le tableau 4.1. Chaque angle correspond à une position d'un pic de diffraction à priori mesurable. Cependant comme le montre la représentation angulaire de l'espace réciproque (Fig. 4.6a) un certain nombre de réflexions sont proches. Des inclinaisons communes aux grains (111) et à leur macle sont possibles (valeurs en bleu dans le tableau). Pour évaluer le caractère mesurable de certains pics, une cartographie ( $2\theta, \psi$ ) de l'espace réciproque a été réalisée. Le flux est privilégié donc l'optique polycapillaire a été utilisée. Les zones autour des réflexions (222), (400), (331), (042), (422) et (333) ont été mesurées (Fig 4.6b). Cette carte comme attendue est largement dominée par le signal des grains (111) qui sont ultra-majoritaires. Les pics sont dédoublés en  $2\theta$  puisque les deux radiations  $K_{\alpha}^{Cu}$  sont présentes. Les pics appartenant aux deux familles minoritaires sont complètement noyés dans les pieds de pic des grains (111) si ils sont trop proches (i.e.  $< 5^{\circ}$ ) en inclinaison. Il existe des zones où les pics des grains (511) et (100) sont bien isolés (par exemple sur la réflexion 400 pour  $\psi > 75^{\circ}$  Fig4.6 zoom). Il faut également éviter les pics trop proches entre ces deux familles minoritaires (pic en rouge dans le tableau). Finalement, seul un nombre limité de réflexions sont utilisables (en vert) pour une analyses des familles minoritaires. Pour les pics de la famille (111), ces précautions sont moins nécessaires : les grains minoritaires contribuent très peu aux pics des grains (111).

**Méthode de calcul** Sur les pics sélectionnés, des balayages plus précis en  $\theta/2\theta$  ont été effectués. Ces pics sont ensuite ajustés par la fonction composée de 2 pseudo-Voigt liées décrite précédemment (cf §. 3.2.1). La déformation est déduite de la position ajustée en  $2\theta$  en utilisant la valeur du paramètre de maille de l'or pur  $a_0 = 4.0782\text{\AA}$ . Les incertitudes de mesures sont obtenues en différentiant la loi de

Angles°	111	200	220	311	222	400	331	042	422	333	511
$2\theta_{K_{\alpha 1}^{Cu}}^{Au}$	38.2	44.4	64.6	77.6	81.7	98.2	110.9	115.3	135.5	157.9	157.9
100	54.74	0	45	24.24	54.74	0	46.51	26.56	35.26	54.74	15.79
100		90	90	72.45		90	76.74	63.43	65.90		78.90
100								90			
111	0	54.74	35.26	29.5	0	54.74	22.00	39.23	19.47	0	38.94
111	70.53		90	58.52	70.53		48.53	75.04	61.87	70.53	56.25
111				79.98			82.39		90		70.53
511	38.94	15.79	35.26	9.45	38.94	15.79	32.98	18.79	19.47	38.94	0
511	56.25	78.90	57.02	29.50	56.25	78.90	41.63	39.23	38.22	56.25	22.19
511	70.53		74.21	58.52	70.53		54.97	52.95	51.06	70.53	31.59
511			90	79.98			60.94	75.04	61.87		65.96
511				86.67			77.25	85.06	71.68		70.53
511							84.93		80.96		87.88

TAB. 4.1 – Position dans l'espace réciproque des différentes réflexions relatives aux familles de grains (100), (111) et (511) pour un cubique. En bleu sont représentées les réflexions communes aux grains (111) et à leurs macles (511). En vert, les réflexions suffisamment séparées dans l'espace angulaire pour être prises en compte dans l'analyse. En marron, les réflexions différentes mais trop proches et finalement en noir les réflexions non mesurables expérimentalement pour des raisons géométriques.

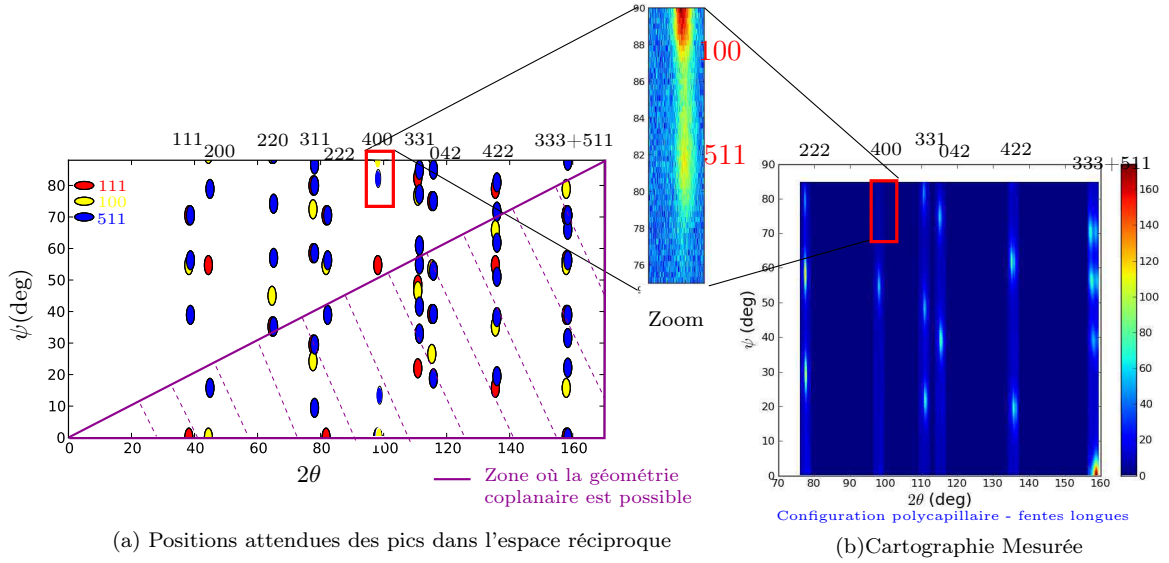


FIG. 4.6 – Cartes angulaires  $(2\theta, \psi)$  théoriques (a) et expérimentales (b) où sont positionnés les pics de diffraction des trois familles majoritaires (111), (100) et (511)

Bragg :

$$\Delta\varepsilon = \frac{\Delta d}{d} = \frac{\Delta\lambda}{\lambda} + \cotan(\theta)\Delta\theta$$

Les incertitudes sont calculées en postulant une erreur de  $0.01^\circ$  sur la position  $2\theta$  du pic. Elle est alors de  $0.02\%$  sur la réflexion 200 et  $0.005\%$  sur une réflexion 511<sup>2</sup>. Ces valeurs sont raisonnables, elles sont au moins dix fois inférieures aux valeurs de déformation trouvées. Les deux géométries coplanaire et non coplanaire ont été comparées pour certains pics de la famille (111). Les valeurs de déformation correspondantes sont similaires et inférieures à la barre d'erreur (Fig. 4.2.1).

Les différentes déformations  $\varepsilon_\psi$  sont ensuite tracées en fonction du sinus de l'angle  $\psi$ . Un ajustement linéaire est réalisé pour calculer l'angle  $\psi_0$  tel que  $\varepsilon_\psi = 0$ . La position en  $\sin^2(\psi_0)$  de déformation nulle est connue théorique-

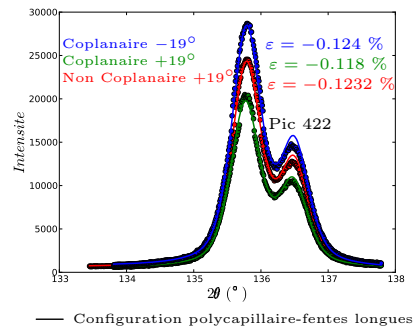


FIG. 4.7 – Déformation calculée à partir de pics mesurés en géométrie coplanaire ou en géométrie non coplanaire

<sup>2</sup>cas d'un échantillon d'or mesuré avec la raie  $K_{\alpha 1}^{Cu} = 1.5406\text{\AA}$

P3	(111)	(511)	(100)
$a_{corrige}$ (Å)	4.0785	4.0783	4.0786
$\sigma_{eq}$ (MPa)	242.9	165.11	92.79
$\varepsilon_{//}$ (%)	0.128	0.169	0.118
$\varepsilon_{\perp}$ (%)	-0.162	-0.275	-0.200

TAB. 4.2 – Récapitulatif des grandeurs déduites de l'analyse  $\sin^2(\psi)$

ment dans le cas d'un état biaxial isotrope (cf §. 2.3.2) :

$$\varepsilon_{\psi_0} = 0 \Rightarrow \sin^2(\psi_0) = \frac{\varepsilon_{\perp}}{\varepsilon_{\perp} + \varepsilon_{//}} = \frac{\eta}{\eta - 1} \quad \text{où} \quad \eta = -\frac{\varepsilon_{\perp}}{\varepsilon_{//}} \quad (4.1)$$

Cette position dépend des constantes d'élasticité :  $\eta_{100} = 2C_{12}/C_{11}$  et  $\eta_{111} = 2(C_{11} + 2C_{12} - 2C_{44})/(C_{11} + 2 + C_{12} + 4C_{44})$ . Les valeurs de ces paramètres sont compilées dans le tableau 1.1. Cette propriété est utilisée pour recalculer la courbe expérimentale en ajustant le paramètre de maille  $a$ . Pour les trois familles étudiés (Tab. 4.2), le paramètre corrigé est très proche du paramètre de l'or pur. Le paramètre  $a_{recal}$  sert de nouveau paramètre de référence pour recalculer les déformations. Finalement une fois tous ces points corrigés, La droite est réajustée avec ces nouvelles valeurs de déformation. Cette droite corrigée passe désormais parfaitement à la bonne position  $\psi_0$  de déformation nulle. Finalement  $\varepsilon_{\perp}$  et  $\varepsilon_{//}$  sont déduites de la pente et de l'ordonnée à l'origine. La contrainte biaxiale isotrope est alors calculée en utilisant les modules biaxiaux  $\sigma = M\varepsilon_{//}$  pour les trois familles.

**Interprétations** Le niveau de contrainte biaxiale est près de deux fois et demi plus élevé dans la famille (111) que dans la famille (100). En revanche, les niveaux de déformation dans le plan sont semblables. Les familles (100) et (111) présentent ainsi un comportement iso-déformation. Ce comportement Voigt semble indiquer une faible interaction entre les grains (100) et (111). Un faible rapport d'aspect<sup>3</sup>  $R_a = h/D$  des grains (100) peut induire un tel comportement. Sur la cartographie EBSD (Fig. 4.5b), un grain (100) est effectivement assez volumineux. Cette constatation ne peut cependant pas être généralisée à tout l'échantillon. D'autre part, les joints de grain sont très creusés laissant apparaître des trous par endroit (Fig 4.9). Ces interfaces imparfaites peut également expliquer une homogénéisation réduite de la contrainte.

Les macles (511) présentent un comportement intermédiaire iso-contrainte (Reuss)/ iso-déformation (Voigt) avec la famille (111). Élastiquement les macles sont très proches des grains (100) comme le montre leur tenseur de rigidité respectif (Eq. 1.11 et Eq.1.15). L'angle entre les directions [511] et [100] est seulement de 15.8°, ce qui explique ce comportement élastique proche. Mais les macles se distinguent des grains (100) par le caractère très rectiligne de leurs joints de grains

<sup>3</sup>où  $h$  = l'épaisseur du grain et  $D$  son diamètre équivalent

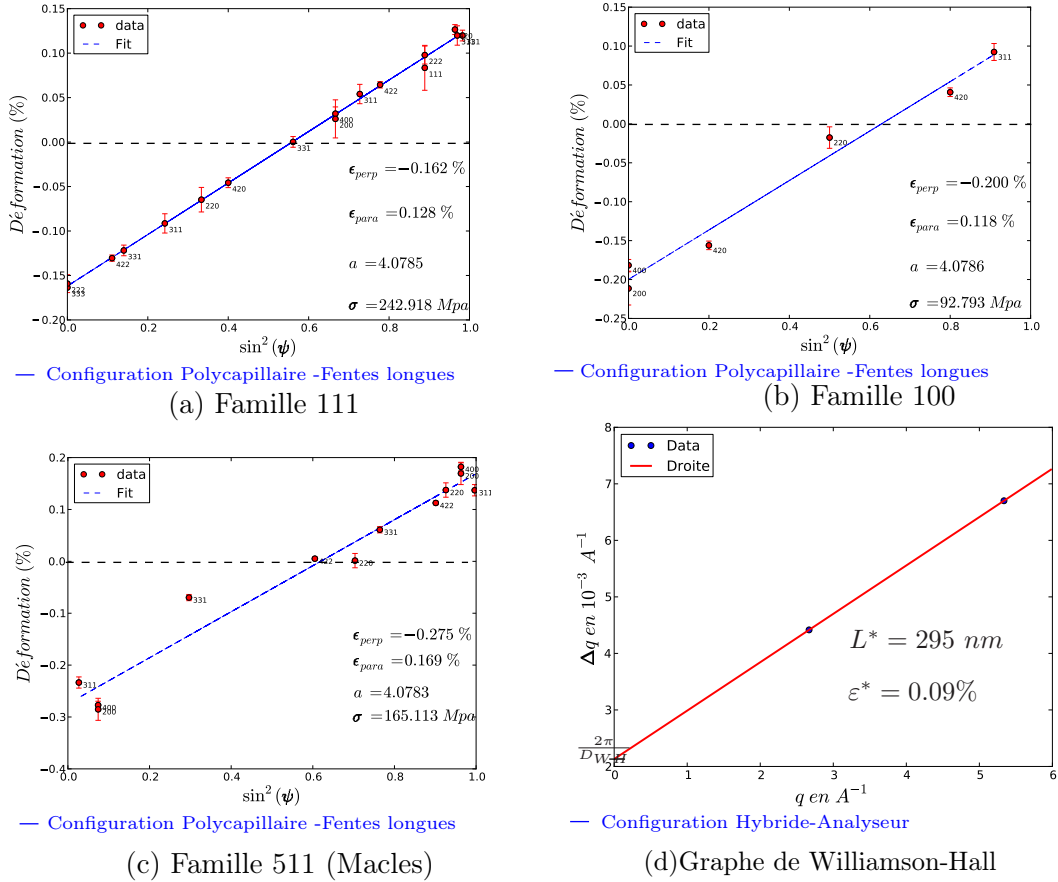


FIG. 4.8 – (a)  $\sin^2 \psi$  pour les 3 familles (111), (100) et (511) de l'échantillon P3. (b) Graphe de Williamson-Hall pour P3.

(joints  $\Sigma_3$ ). Elles sont enchâssées dans les grains (111), elles ont donc un rapport d'aspect plus grand que les grains (100). Ces deux points favorisent une meilleure homogénéisation de la contrainte avec les grains (111).

**Analyse Williamson-Hall sur les données de laboratoire** Un graphe de Williamson Hall a été réalisé sur l'échantillon P3 (Fig 4.8d) à partir de mesures effectuées avec la configuration haute résolution. La divergence du faisceau incident de  $0.007^\circ$  est environ dix fois plus faible que les largeurs mesurées. Les deux largeurs donnent une taille caractéristique  $L^* \sim 295 \text{ nm}$  et une micro-déformation  $\varepsilon^* \sim 0.09\%$ . Comme démontré §. 2.3.2, les grandeurs issues de cette analyse restent uniquement indicatives. La micro-déformation  $\varepsilon^*$  correspond à une hétérogénéité moyenne de déformation qui inclue des effets de taille et d'hétérogénéité de déformation inter et intra grain.

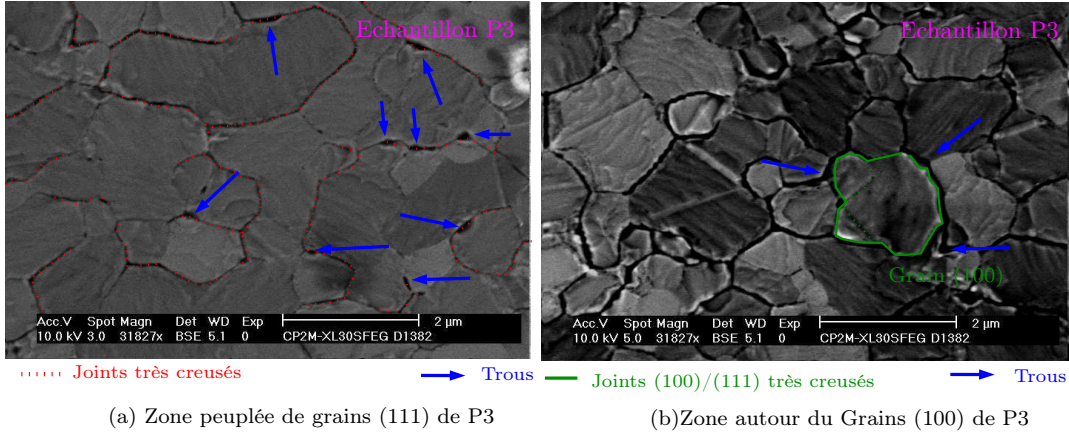


FIG. 4.9 – Défauts de la microstructure du polycristal isolé P3

#### 4.2.2 Comportement thermique moyen

Les échantillons S1 et P3 ont été caractérisés in-situ lors de cycles thermiques successifs (Four Anton Paar §. 3.4). Ces deux échantillons sont intéressants car ils ont été caractérisés localement en microdiffraction synchrotron.

##### Etude des déformations perpendiculaires lors de cycles thermiques

La configuration hybride-analyseur a été utilisée, ainsi seuls les pics les plus intenses 111 ou 222 ont été mesurés. L'évolution des déformations perpendiculaires  $\varepsilon_{\perp}$  est alors accessible. Avec l'échantillon S1, le pic 111 a été mesuré sur quatre cycles de 20 à 450°C sous air. Pour P3, trois cycles de 20 à 350°C sur la réflexion 222 ont été réalisés également sous air. La déformation est calculée à partir de la position  $2\theta$  ajustée par une fonction pseudo-Voigt (Eq. 3.2.1) et en prenant en compte la dilatation naturelle  $a_0(T)$  du paramètre de maille de l'or.

Les cycles thermiques des deux échantillons sont très semblables (Fig 4.10). Pour faciliter la comparaison de ces cycles thermiques, deux grandeurs :  $\langle \alpha_{exp} \rangle$  et  $\langle \varepsilon_{exp}^{\perp} \rangle_{lim}$  ont été définies.  $\langle \alpha_{exp} \rangle$  correspond à la pente moyenne de la courbe  $\varepsilon_{\perp}(T)$  dans sa partie linéaire.  $\langle \alpha_{exp} \rangle$  est homogène à une dilatation thermique. Pour l'échantillon P3 lors du 3<sup>ème</sup>, une pente  $\langle \alpha_{exp} \rangle \sim 1.17e^{-5} K^{-1}$  est mesurée (cf Tab. 4.3). Cette valeur peut être comparée à la pente thermoélastique attendue en  $-\eta_{111}\Delta\alpha \sim 1.73e^{-5} K^{-1}$  (cf §. 1.4). Le coefficient  $\langle \varepsilon_{exp}^{\perp} \rangle_{lim}$  correspond à la limite au delà de laquelle le cycle thermique n'est plus linéaire dans un critère de 10%.

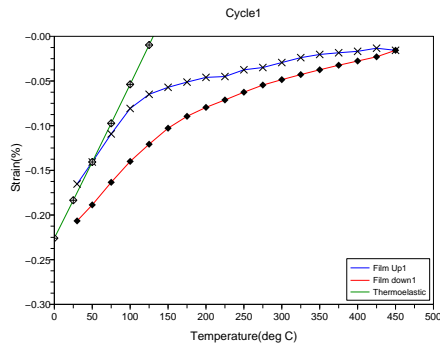
La pente initiale ne correspond pas au comportement thermo-élastique attendu. Il pourrait s'agir d'un problème d'adhérence du film sur le substrat. Cette adhérence est une inconnue, et reste difficile à caractériser. Le substrat en verre est très peu électronégatif et peut laisser penser à une adhérence partielle. Cependant des comportements mécaniques plus subtils (interactions entre grains par exemple)

S1	$\langle \alpha_{exp} \rangle$	$\langle \varepsilon_{exp} \rangle_{lim}$	P3	$\langle \alpha_{exp} \rangle$	$\langle \varepsilon_{exp} \rangle_{lim}$
Cycle1	1.21e-5	-0.064 %	Cycle1	1.198e-5	-0.019
Cycle2	1.18e-5	-0.051 %	Cycle2	1.154e-5	-0.014
Cycle3	1.16e-5	-0.050 %	Cycle3	1.150e-5	-0.017
Cycle4	1.17e-5	-0.052 %	-	-	-

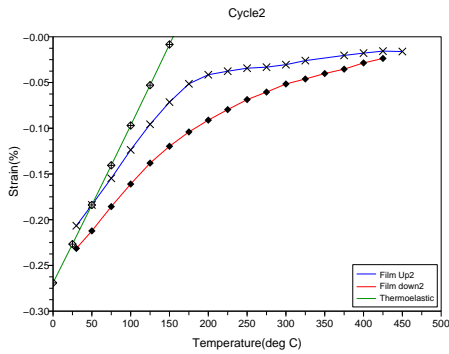
TAB. 4.3 – *Pseudo Coefficient de dilatation thermique effectif moyen pour les échantillon S1 et P3 (mesure analyseur)*

peuvent également expliquer cet écart à la pente thermo-élastique. Lors de la descente en température, la déformation suit un chemin différent laissant apparaître une hystérisis. Les cycles ne sont pas fermés : la déformation finale est différente de la déformation initiale. D'autre part la limite  $\langle \varepsilon_{exp} \rangle_{lim}$  a tendance à légèrement diminuer lors des cycles successifs.

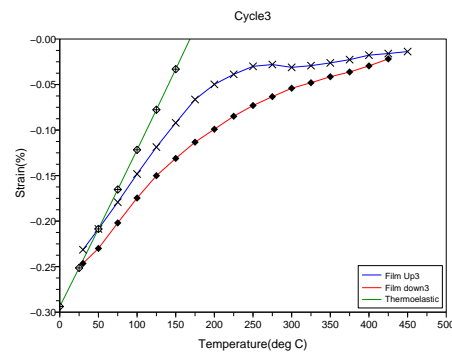
Ces cycles demeurent complexes et non directement comparables aux comportements classiques précédemment exposés (§. 1.4). La partie non linéaire des cycles apparaît alors que le film est encore en tension et alors que l'énergie élastique diminue. Ces cycles seront comparés par la suite aux comportements de grains uniques et une interprétation sera esquissée.



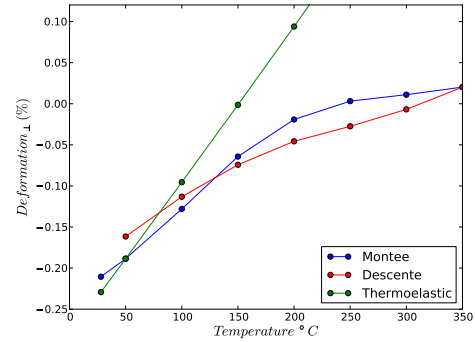
(a) S1 - Cycle 1



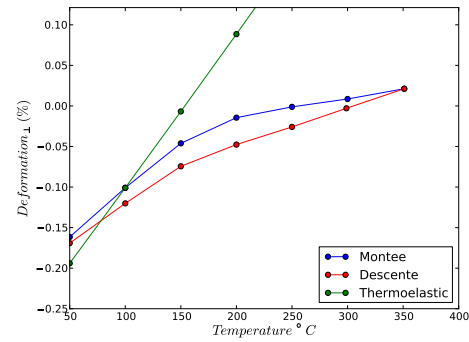
(b) S1 - Cycle 2



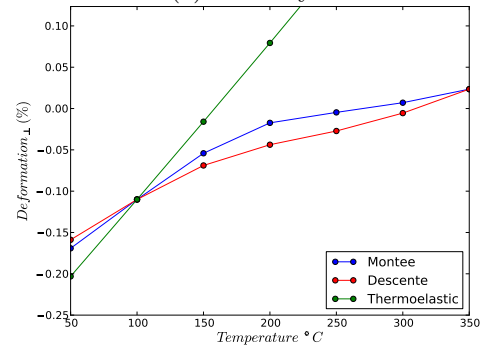
(c) S1 - Cycle 3



(d) P3 - Cycle 1



(e) P3 - Cycle 1



(f) P3 - Cycle 1

FIG. 4.10 – Evolution avec la température de la déformation perpendiculaire  $\varepsilon_{\perp}$  lors de cycles thermiques successifs pour l'échantillon S1 (a,b,c) et l'échantillon P3 (d,e,f)



**Largeur des pics en température** Ces cycles ont été réalisés avec la configuration haute résolution qui rend la fonction instrumentale négligeable (cf §.3.2.1). Les largeurs de pics peuvent donc être analysées. L'évolution en température des largeurs  $\Delta q_{111}$  pour l'échantillon S1 et  $\Delta q_{222}$  pour l'échantillon P3 est similaire. La largeur commence par diminuer lors de la montée en température puis à haute température recommence à augmenter. Lors de la descente, un comportement semblable est observable. Les largeurs sont presque réversibles avec une faible hystérésis. Les cycles successifs sont assez stables avec une petite diminution de la largeur à température ambiante. Les largeurs  $\Delta q_{max}^{222}(P3) = 5.16e^{-3}\text{\AA}^{-1}$  et  $\Delta q_{max}^{111}(S1) = 4.73e^{-3}\text{\AA}^{-1}$  correspondent à des dimensions équivalentes  $2\pi/\Delta q$  de  $\sim 130\text{ nm}$  pour S1 et  $\sim 166\text{ nm}$  pour P3 à température ambiante. Ces dimensions ne correspondent pas à l'épaisseur des deux échantillons. Cet élargissement est donc la signature d'inhomogénéités de déformation inter et intra grain.

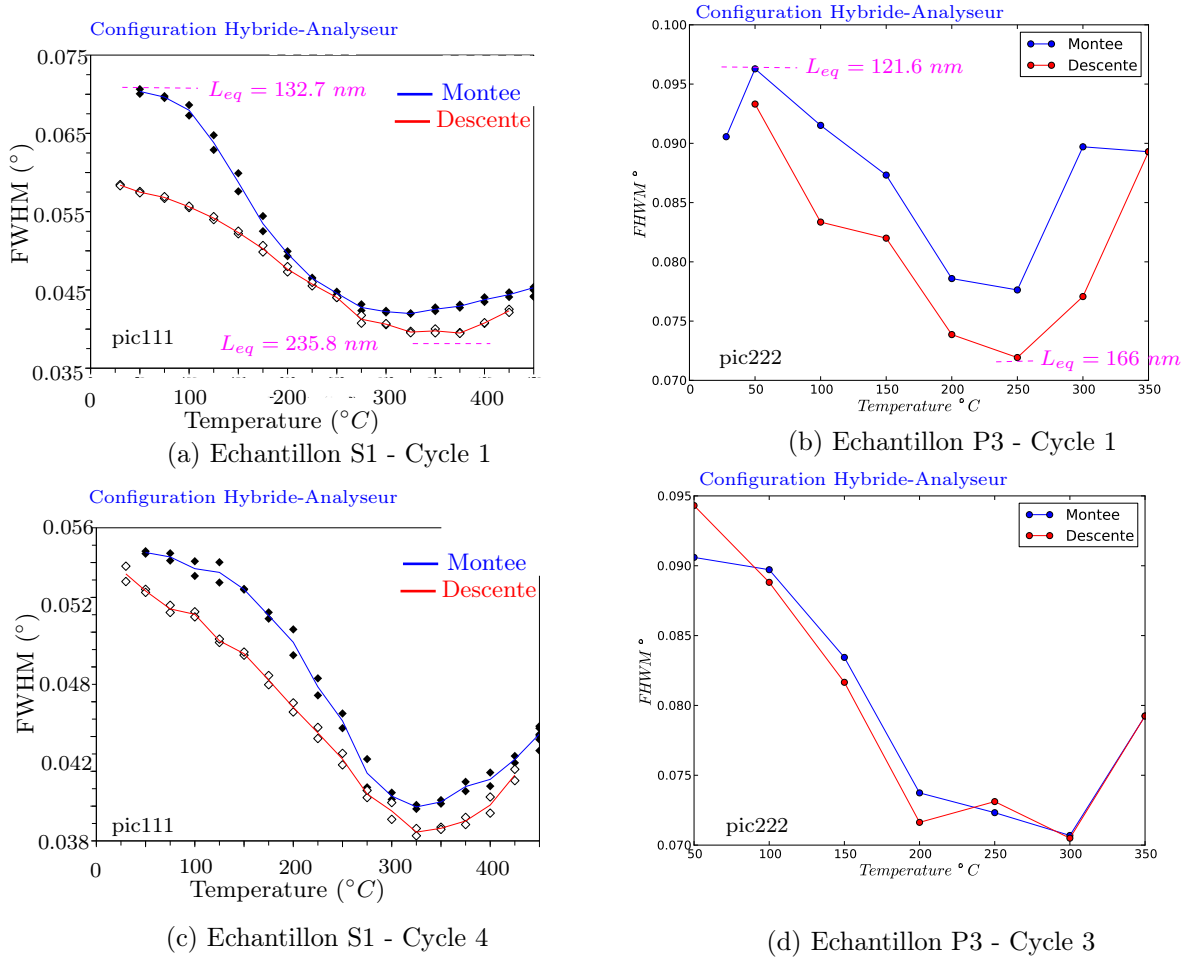


FIG. 4.11 – Evolution des largeurs lors des cycles thermiques pour les échantillons S1 (pic111) et P3 (pic222)

### 4.3 Etude des déformations moyennes de grains uniques

Lorsque l'on diminue la taille du faisceau incident et si le flux incident est suffisamment important, il est possible d'observer le signal de diffraction d'un grain unique. Le rayonnement synchrotron est indispensable pour satisfaire à ces exigences. Seuls quelques grains sont en condition de diffraction et seuls ceux présents dans l'angle solide de diffraction couvert par la caméra sont détectables (fig 4.12a,b). Si les échantillons présentent une mosaïcité, le signal des grains apparaissent à différentes positions le long du balayage de l'angle d'incidence. D'autre part, la position sur l'anneau de Debye dépend de l'orientation dans le plan des grains diffractant. Ainsi à une certaine incidence  $\omega$ , un anneau de Debye granulaire est attendu. Plus la caméra est proche de l'échantillon plus le nombre de grains potentiellement détectables est important.

Cette section se propose d'expliquer comment il est possible d'analyser la structure fines de ces anneaux de Debye granulaires pour caractériser le comportement mécanique local de films minces polycristallins. Cette démarche se rapproche des techniques dite de diffraction trois dimensions des rayons X ou 3DXRD (*3D X-Ray Diffraction Microscopy*) notamment utilisées et développées dans les articles [Poulsen 2004, Jakobsen 2006, Alpers 2006, Jakobsen 2007, Ludwig 2009]. Cette technique est très élaborée et permet d'obtenir des informations 3D sur l'orientation des grains et leur déformation.

Dans le cas de l'échantillon P3, l'anneau de Debye 111 a été collecté à une énergie d'environ  $\simeq 12keV$  avec une très bonne résolution dans l'espace réciproque. Plus précisément lorsqu'une dizaine de grains sont illuminés, des anneaux de Debye discontinus sont observés sur la caméra (fig. 4.12a). La position sur l'anneau des pics de diffraction dépend du niveau de déformation et de l'orientation des grains. Les conventions angulaires utilisées sont celles précédemment explicitées (§. 3.3.4) : les angles  $Del$  et  $Nu$  sont les deux rotations sur lesquelles la caméra est fixée. L'angle  $Del$  correspond à  $2\theta$  lorsque  $Nu = 0$ . L'angle  $\omega$  est l'angle d'incidence. Une fois les anneaux mesurés sur un large balayage en  $\omega$ , il est possible de tracer une carte  $(Nu, \omega)$  où chacun des pics de diffraction apparaissent séparément. Il s'agit en quelque sorte d'une figure de pôle haute résolution (cf fig. 4.12c).

#### 4.3.1 Analyse des anneaux de Debye

Les mesures ont été effectuées sur la ligne de lumière ID01. La caméra MediPix est placée à 64 cm de l'échantillon correspondant à une ouverture angulaire de  $1.2^\circ$ . Le faisceau est focalisé par les lentilles de béryllium. Un faisceau projeté sur l'échantillon d'environ  $3 \times 2 \mu m$  est obtenu (§. 3.2.2). Ainsi typiquement en considérant un diamètre moyen de grain autour de  $500nm$  (cf fig 4.2c), environ 36 grains sont illuminés simultanément. Comme la mosaïcité de notre échantillon est autour de  $5^\circ$  (cf rocking curve 4.4b ou figure de pôle 4.5c), il est attendu 9 pics de diffraction dans une figure de pôle d'ouverture angulaire  $1.2 \times 2^\circ$ . Pour augmenter le nombre de grain diffractant dans cette portion d'espace angulaire, une telle carte est acquise

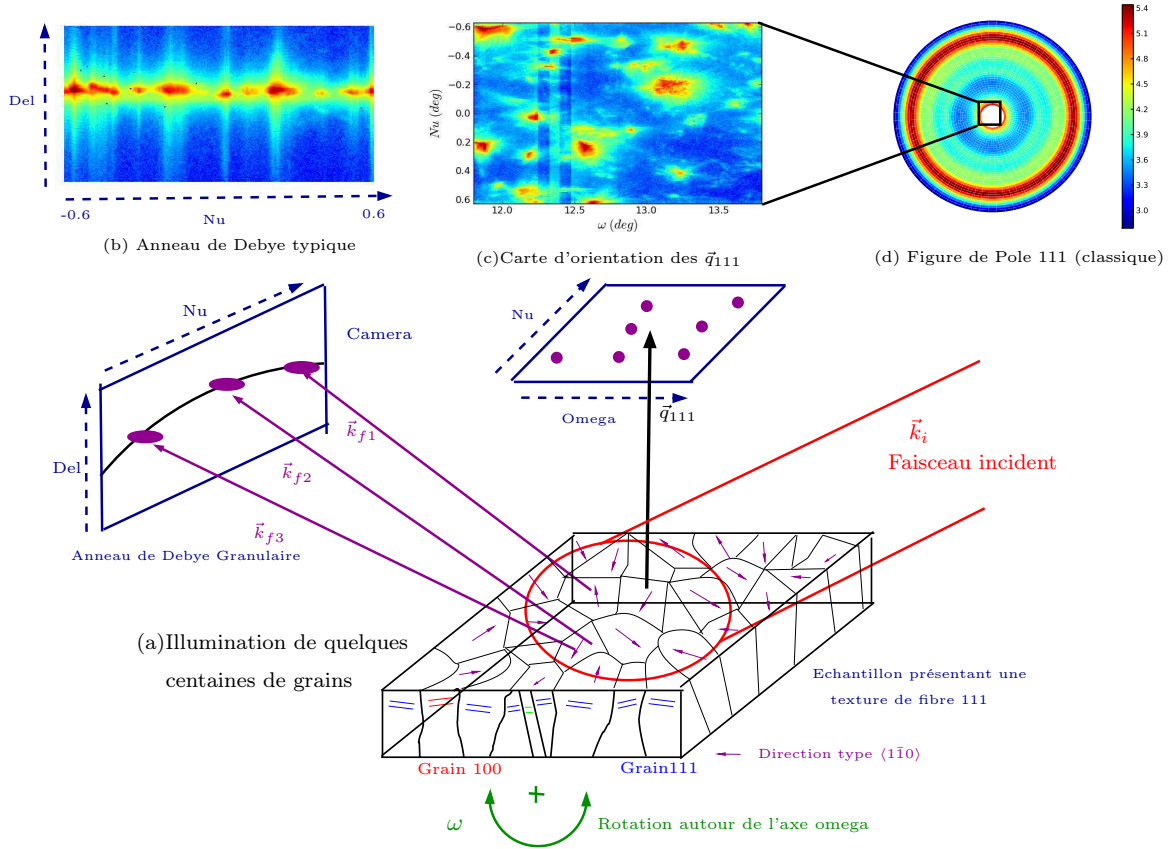


FIG. 4.12 – Principe de l'acquisition d'une portion haute résolution d'une figure de pôle par mesure d'anneau de Debye lors d'une rocking curve

pour deux positions en  $x$  en déplaçant l'échantillon de  $6\mu m$ . En sommant pour les deux positions en  $x$  (fig. 4.13a), environ 25 grains apparaissent sur cette carte. Ce nombre est bien en accord avec les tailles de grains et la mosaïcité de l'échantillon. 22 d'entre eux sont sélectionnés pour être analysés. Une sous-boîte 3D est extraite du tenseur de données complet pour chacun de ces 22 pics. Le barycentre du pic est alors calculé. Un ajustement à trois dimensions est ensuite réalisé pour chacune de ces sous-boîtes. Plus précisément les largeurs sont ajustées par des pseudo-Voigt asymétriques à partir des rocking curves dans les trois directions. Dans la direction du balayage  $\omega$ , il s'agit de la rocking curve conventionnelle. Dans les deux autres directions, il s'agit de rocking curves virtuelles obtenues en réalisant un balayage numérique à partir des données 3D. Pour la direction  $Nu$ , un balayage 1D est obtenu en sommant les cartes  $(Del, \omega)$  pour chaque valeur de  $Nu$ . Cette technique est utilisée pour être moins sensible à l'allure complexe des pics de diffraction. En effet, un ajustement directement en 3D est plus difficile pour ces pics distordus. A titre d'exemple, les ajustement pour les grains 5 et 8 sont représentés dans les figures

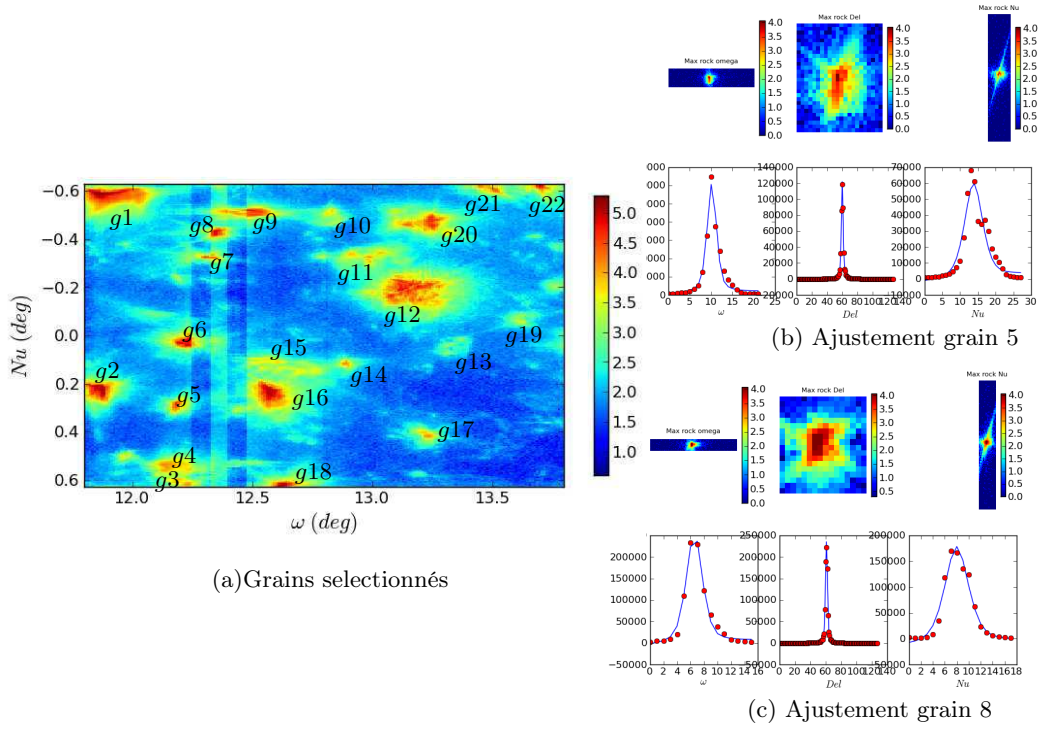


FIG. 4.13 – Ajustement du signal 3D de grain

4.13b,c. Les sous-images sont les représentations des cartes  $(Del, Nu)$ ,  $(Nu, \omega)$  et  $(Del, \omega)$  aux maxima respectifs des trois rocking curves.

### 4.3.2 Inhomogénéités inter-grain à température ambiante

Un point délicat pour caractériser ces mesures est de trouver les bons paramètres quantitatifs. Les pics sont complexes ce qui rend la tâche d'autant plus difficile. Avec ces données brutes d'ajustements, les largeurs dans les trois directions sont déduites en considérant les bonnes résolutions dans chacune des directions. La déformation est obtenue via les indices des pixels du barycentre de l'intensité et en appliquant la formule  $\cos(2\theta) = \cos(Del)\cos(Nu)$  (cf §. 3.3.4). La taille des pixels dans l'espace réciproque sont de  $\delta q_{Del} = 5.18e^{-4} \text{Å}^{-1}$  et  $\delta q_{\omega} = 9.30e^{-4} \text{Å}^{-1}$ . L'intensité intégrée de chaque sous-pic est également calculée. Elle donne une indication sur le volume diffractant et donc sur la taille des grains. Ces cinq paramètres sont alors représentés sous forme de distribution statistique. La distribution de déformation (Fig. 4.14a) est tracée, et montre une certaine largeur qui correspond à une hétérogénéité grain à grain de déformation moyenne. A cette température initiale ( $T = 50^\circ$ ) en ajustant par une gaussienne cette distribution, une hétérogénéité de  $\langle \varepsilon \rangle$  de largeur 0.040% centrée autour d'une valeur de  $-0.12\%$  est trouvée.

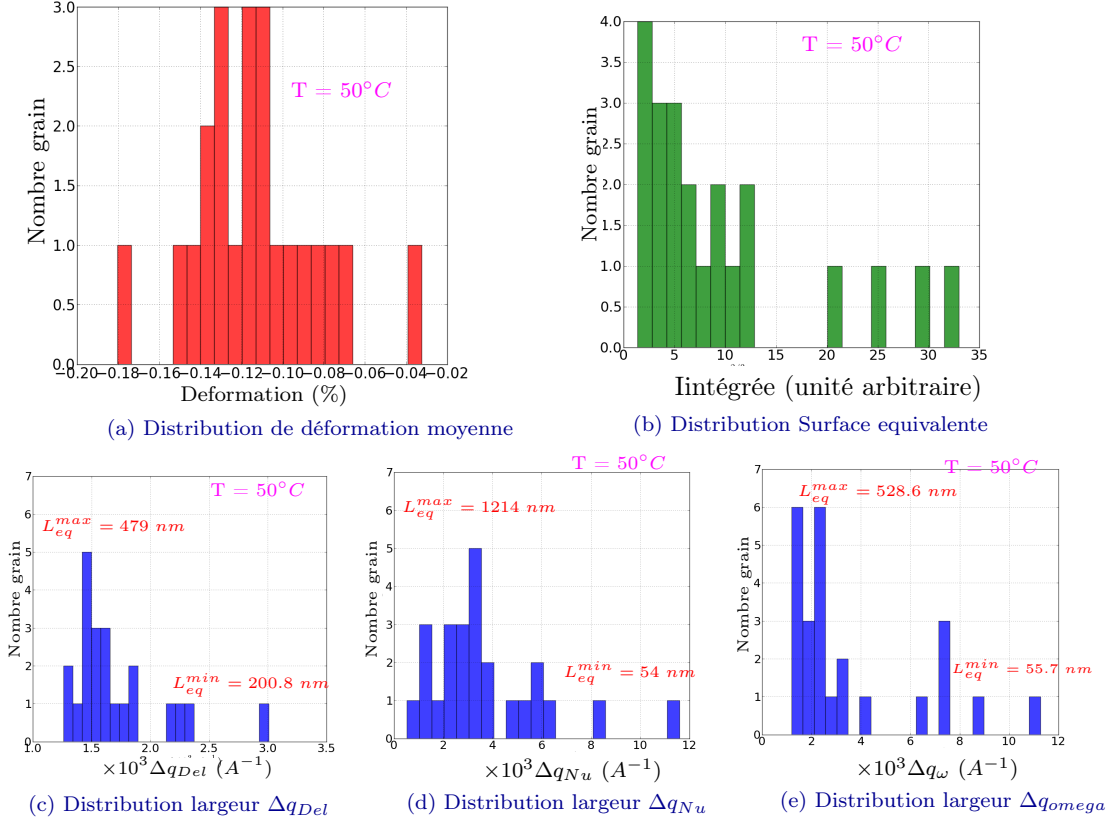


FIG. 4.14 – Distribution des déformation, des largeurs pour les 22 grains indexés

Comme à priori les 22 grains ont tous la même épaisseur  $h$ , l'intensité intégrée d'un pic est proportionnelle à la surface équivalente ( $V = hS \propto \int I(q)dq$ ) du grain correspondant. Ainsi, la distribution des intensités intégrées est donc tracée (Fig. 4.14b). Elle présente une forme sensiblement log-normale qui correspond à la distribution obtenue par analyse d'image (Fig. 4.2c). Les trois distributions de largeurs ont des formes plus perturbées. Les ajustements avec des distributions classiques n'est pas possible. Les valeurs de Scherrer équivalente  $\Delta q = \frac{2\pi}{L}$  minimales et maximales permettent de mieux les appréhender. Le cas de la distribution en  $\Delta q_{Del}$  est particulier. En effet à une projection près, les largeurs dans cette direction correspond sensiblement aux largeurs en  $\Delta q_z$  :

$$\Delta q_{Del} \simeq \frac{1}{\cos \theta} \Delta q_z \quad (4.2)$$

Or dans cette distribution, la contribution des effets de forme sur la largeur du pic est connue car l'épaisseur du film est connue.  $\Delta q_z^{Forme} = 2\pi/4850 \simeq 1.29e^{-3} \text{Å}^{-1}$ . Ainsi plus la largeur  $\Delta q_z$  du grain s'éloigne de cette valeur plus le grain est déformé de manière inhomogène dans la direction  $z$ . Le grain 10 (cf numérotation Fig. 4.13a) est

celui à priori le moins déformé puisqu'il présente une largeur  $\Delta q_z^{g10} = 1.31e^{-3}\text{\AA}^{-1}$ , la plus proche de celle correspondant à son épaisseur. A l'inverse le grain 15 présente la plus grande largeur avec  $\Delta q_z^{g15} = 3.12e^{-3}\text{\AA}^{-1}$ . Il est donc le grain le plus inhomogène dans son épaisseur parmi ces 22 grains.

Dans les deux autres directions, ce petit raisonnement simple n'est plus applicable directement. Tous les grains ont des dimensions dans le plan variable. Par exemple, le grain à largeur dans la direction Nu la plus grande donne comme dimensions équivalentes  $(L_{qz}, L_{Nu}, L_\omega) = (432, 586, 155) \text{ nm}$ . Il présente la 14ième plus grande intensité intégrée et possède une déformation moyenne de  $-0.097\%$ . Mais y a-t-il des corrélations entre largeurs, déformation moyenne, taille, orientation ? Il est difficile à ce stade des analyses de mettre en relation ces paramètres. La correspondance pic de diffraction/grain dans le polycristal doit être réalisée pour affiner l'interprétation mécanique des comportements décrits. Ce point particulier a donc fait l'objet d'une approche spécifique qui sera explicitée dans la section suivante (§. 4.4).

### 4.3.3 Evolutions avec la température

La procédure expérimentale "acquisition de l'anneau de Debye granulaire le long d'un large balayage  $\omega$ " est effectuée ensuite pour plusieurs températures croissantes de  $50^\circ$  à  $250^\circ\text{C}$  par pas de  $50^\circ\text{C}$ . La figure de pôle haute résolution est vérifiée et la procédure d'ajustement à 3 dimensions est recalculée pour les 22 grains pour chaque température. Les évolutions en température des distributions de déformation moyenne et des distributions de largeurs sont donc accessibles. La déformation est calculée en tenant compte l'évolution naturelle en température du paramètre de maille de l'or (cf §. 1.4). La valeur de température affichée par le contrôleur est corrigée (cf calibration §. 3.4). Comme précédemment, l'ajustement de ces distributions par des fonctions classiques ne fonctionne guère en raison du faible échantillonnage statistique. Néanmoins, un affinement de la distribution de déformation moyenne est observé en température (Figure 4.15 a,b,c). Cette distribution est centrée sur un niveau différent de déformation pour chaque température.

Les distributions  $\Delta q_z(T)$  sont reportées figure 4.15 d,e,f. La largeur minimale en  $\Delta q_z$  est stable. Le grain le moins hétérogène le reste au cours de cette montée en température. Une augmentation légère des largeurs est observée avec un glissement de  $1.6e^{-3}\text{\AA}^{-1}$  vers  $2.0e^{-3}\text{\AA}^{-1}$  pour une quinzaine de grains.

Pour chacune des températures, un pic 1D  $I(q_z)$  est calculé à partir de la contribution de ces 22 grains (Fig. 4.15 g,h,i). Ce pic équivalent  $\theta/2\theta$  est simplement obtenu en sommant les 22 pics provenant de chacun des 22 grains. Ils contiennent les informations de déformation moyenne, de largeur en  $q_z$  et d'intensité intégrés (amplitude). Il s'agit d'un pic "expérimental" qui peut être comparé à un pic symétrique classiquement obtenu en laboratoire, sauf qu'il est obtenu à partir du comportement individuel de seulement 22 grains alors qu'en laboratoire la moyenne est obtenue sur plusieurs millions de grains.

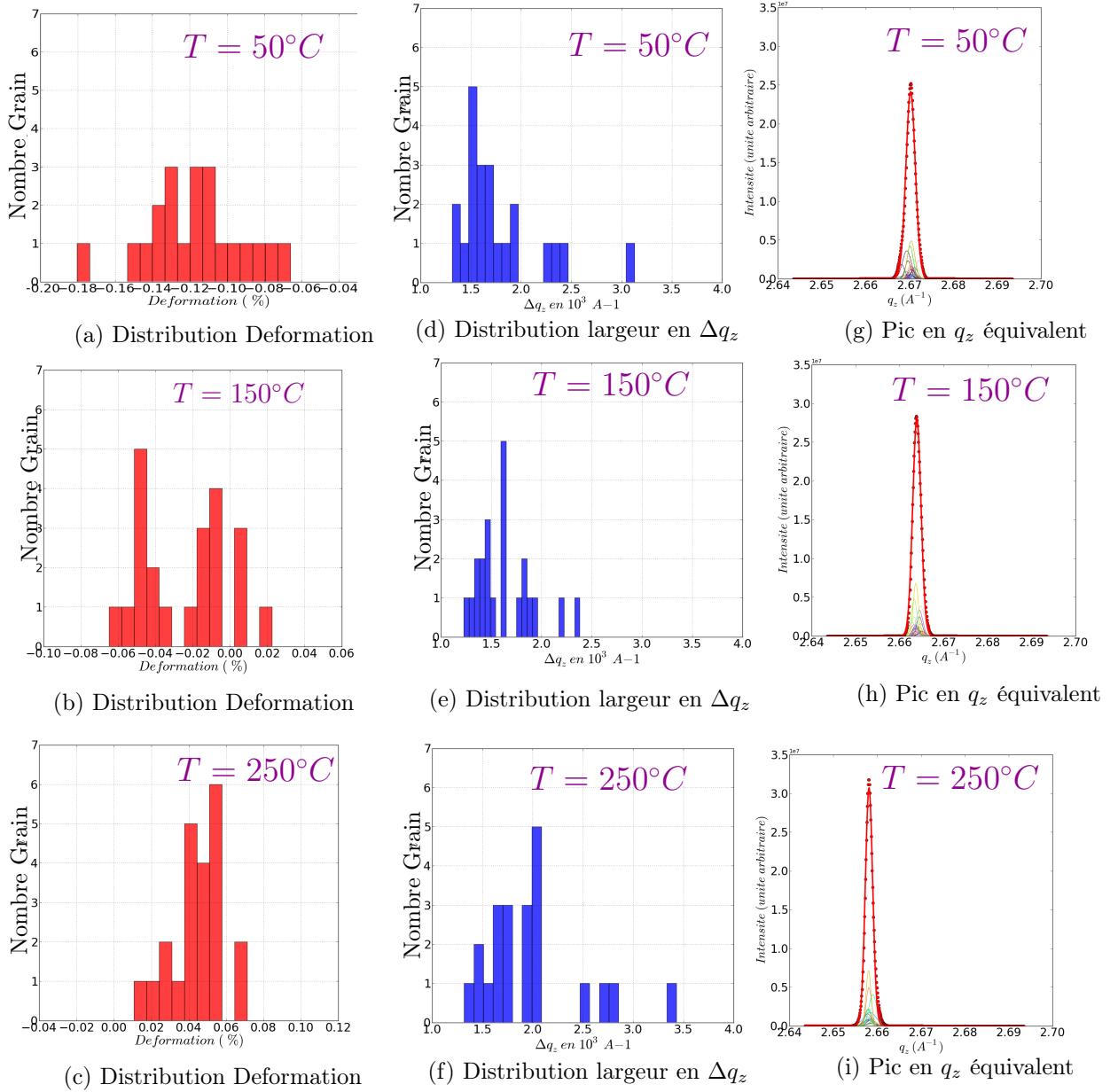


FIG. 4.15 – Evolution en température des distributions de déformation moyenne et de la largeur  $\delta q_z$  pour les 22 grains

## 4.3.4 Discussion

A partir du pic 1D équivalent au comportement sommé sur les 22 grains étudiés, les courbes  $\varepsilon_{\perp}(T)$  et  $Fwhm(T)$  sont obtenus en ajustant le pic 1D obtenu par une pseudo-Voigt. Ces deux courbes sont comparées avec les deux courbes similaires obtenues en laboratoire. Les deux courbes  $\varepsilon_{\perp}(T)$  laboratoire et 22 grains sont semblables présentant un comportement linéaire pour les faibles températures puis beaucoup plus plat à plus haute température. Les largeurs  $\Delta q_z(T)$  ne sont pas directement comparables puisqu'au laboratoire seul le pic (222) a été mesuré en configuration haute résolution (optique hybride et analyseur §. 3.2.1) lors d'un cycle thermique. Néanmoins les deux évolutions en température entre la largeur issue du pic équivalent 22 grains et la largeur laboratoire du pic (222) sont similaires. Ces largeurs décroissent jusqu'à environ  $200^{\circ}C$  puis réaugmentent ensuite. Elles sont minimales à peu près lorsque la déformation perpendiculaire passe par zéro.

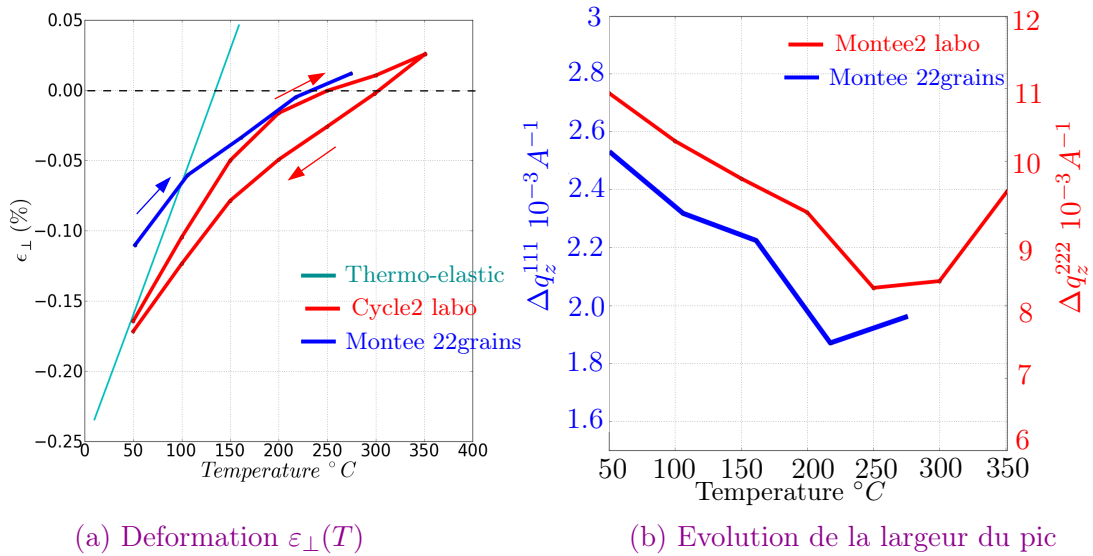


FIG. 4.16 – Comparaison entre le pic moyen sur 22 grains et pic obtenu au laboratoire

On peut donc conclure de cette étude que l'affinement de la largeur des pics observés en laboratoire lors des cycles thermiques semble provenir d'une réduction des hétérogénéités grains à grains de déformation moyenne. Cet affinement ne provient pas d'une réduction de la largeur des pics des grains individuels donc d'une diminution des hétérogénéités internes. Au contraire, les largeurs ont tendance à augmenter légèrement !

Il y a donc un phénomène physique qui a tendance à privilégier **une diminution des hétérogénéités des déformations moyennes inter-grain** dans la famille (111) majoritaire lors d'une sollicitation thermo-mécanique. Cet effet est assez net sur les résultats relatifs à cet échantillon. Il a nécessité l'analyse locale d'une



vingtaine de grains via la micro-diffraction monochromatique haute résolution.

D'autre part, le comportement moyenné sur 22 grains décrit déjà correctement le comportement moyenné sur des millions de grains obtenu avec des mesures de laboratoire .

**Remarques** Cette procédure présente encore quelques défauts et pourra être améliorée lors d'une future expérience. La figure de pôle a été obtenue uniquement en translatant une fois de  $6\mu m$  l'échantillon dans la direction perpendiculaire au faisceau. Il serait préférable au prix de quelques heures de mesure de plus d'effectuer un balayage ( $Del, Nu, \omega$ ) des anneaux de Debye à chaque position d'une grille  $(x, y)$  en translatant l'échantillon de 1 ou  $2\mu m$  par pas. Ceci permettrait de lever certaines ambiguïtés. La position des grains dans la microstructure serait ainsi connue approximativement. Une valeur d'intensité intégrée plus sûre pourrait être déduite. Un nombre plus important de grains pourrait également être analysé. La calibration de l'énergie devrait également être améliorée (i.e. obtenir un seuil plus propre que celui obtenu lors de cette expérience Fig. 3.6).

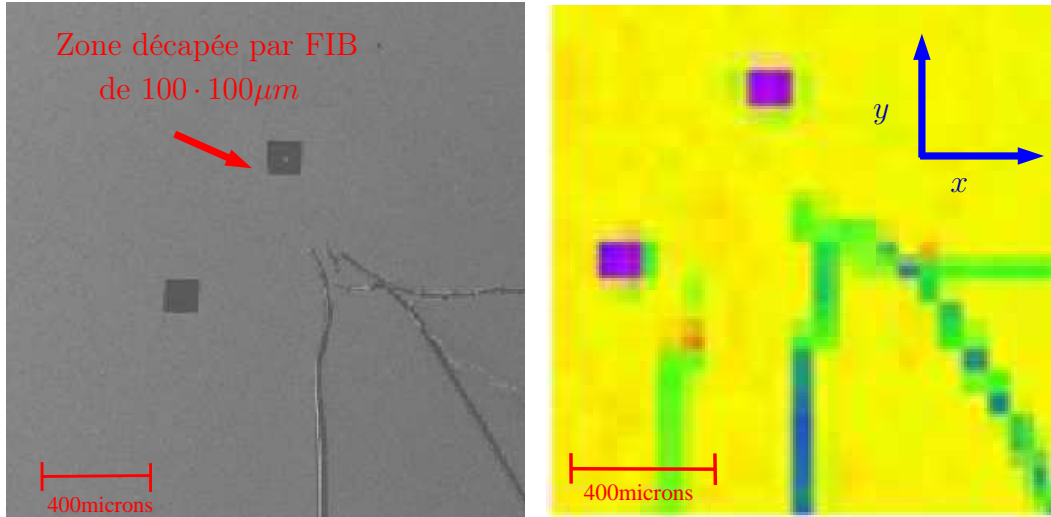
#### 4.4 Stratégie en vue de l'identification du grain diffractant

Il est intéressant d'évaluer le comportement d'un pic de diffraction dans l'espace réciproque. Mais il est plus instructif de connaître exactement de quels grains proviennent ces pics pour affiner les interprétations. Il s'agit d'établir la correspondance entre la figure de pôle haute résolution et l'espace direct. Une stratégie spécifique a donc été élaborée pour connaître avec certitude les grains diffractant.

Une géométrie d'échantillon particulière a été conçue pour faciliter la tâche. Une partie du film a été isolée pour obtenir un petit polycristal contenant seulement plusieurs centaines de grains. Deux échantillons S1 et P3 ont été préparés de cette manière. Le nombre de grains potentiellement candidats est largement diminué ce qui facilite la procédure. Sur l'échantillon P3 un polycristal d'environ  $15 \times 15\mu m$  est situé au centre d'une zone découpée d'environ  $100 \cdot 100\mu m$ . Sur S1 le polycristal isolé est plus petit autour de  $10 \times 10\mu m$ . Ces deux polycristaux sont alors facilement imagés par les techniques de microscopie électronique à balayage (cf fig. 4.17 pour S1 et Fig. 4.20 pour P3). Cette zone gravée a été obtenue en supprimant la matière constitutive du film mince par bombardement d'ion de gallium (*FIB : Focused Ion Beam*) avec un microscope à canon à ion dédié (gravure réalisée par C. Kirchlechner du Eric Schmidt Institute de Leoben). Un grain unique a été également gravé sur l'échantillon S2, afin d'obtenir un monocristal unique isolé de forme simple (rectangle Fig. 4.34).

**Fluorescence** Lors des expériences, la première étape était de positionner le micro-faisceau sur la zone ainsi élaborée. Il s'agit de repérer la zone où il n'y a plus de matière dans un premier temps, en translatant l'échantillon selon les axes

$x$  et  $y$  par rapport au faisceau. Comme l'échantillon est fortement texturé 111, une manière simple est d'enregistrer le signal de diffraction 111 sur une carte  $(x,y)$  en utilisant un compteur proportionnel ou en plaçant la caméra très proche en intégrant tout l'anneau de Debye. Cette première technique simple s'est avérée peu robuste



(a) Image MEB où les deux zones découpées sont facilement repérables

(b) Cartographie de fluorescence correspondante

FIG. 4.17 – *Design spécial de l'échantillon en vue de repérer le petit polycristal isolé*

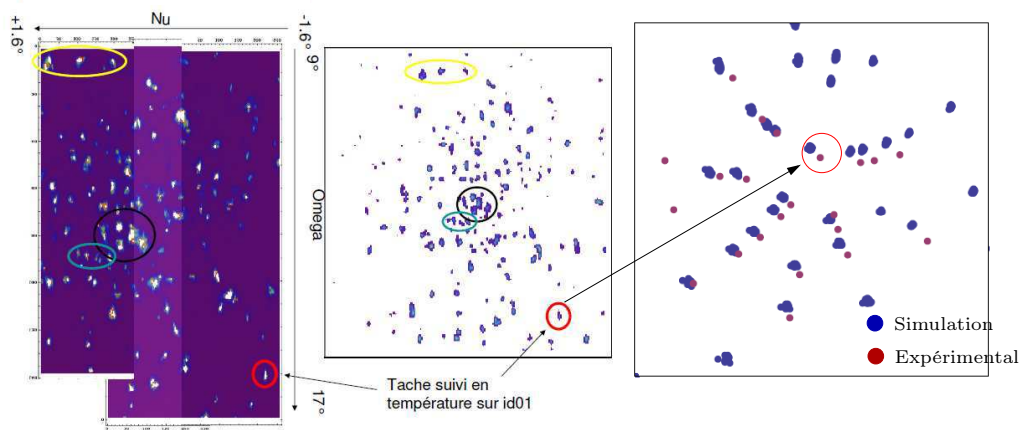
dans la pratique. Le contraste obtenu sur ces cartes est faible rendant difficile le repérage des zones d'intérêt. Des cartographies  $(x,y)$  avec des pas très fins doivent donc être réalisées pour être sûr de bien repérer la zone découpée de  $150 \times 150 \mu m$ . Cette approche est donc assez longue. Elle a été utilisée dans le cas de l'échantillon S1. Pour améliorer le contraste de ces cartographies de repérage, le signal de fluorescence de l'or a été collecté lors des expériences suivantes par l'intermédiaire d'un détecteur multi-canaux dédié (cf §. 3.3). La technique s'est avérée facile et surtout beaucoup plus rapide. A titre illustratif, une carte de fluorescence obtenue sur Cristal est comparée à une image de microscopie électronique dans la figure 4.17 pour l'échantillon S1. Pour l'échantillon P3 et S2, la fluorescence a également été avantageusement utilisée pour trouver les zones intéressantes.

Ceci implique néanmoins de travailler au dessus du seuil de l'Au situé à  $11.918 keV$ . Or la résolution de mesure dans l'espace réciproque diminue avec l'énergie (cf Eq. 3.5). Cette perte de précision peut être compensée en augmentant la distance caméra-échantillon. Malheureusement sur la ligne ID01, cette distance caméra-échantillon est limitée à  $1.14 m$ . Ainsi, travailler avec la fluorescence est un choix à mettre en perspective avec le choix de la résolution. A cette énergie, il est exclu de travailler en cohérence avec des grains plus grands que  $2 \mu m$  dans la direction  $Nu$

(cf §. 5).

**Multi-comparaisons** L'identification des grains dans l'espace direct s'est avérée complexe. La comparaison entre trois techniques différentes a été nécessaire. La procédure développée dans le cas de l'échantillon P3 est la suivante :

1. Acquisition de données nécessaires à l'élaboration d'une figure de pôle haute résolution lors de l'expérience de micro-diffraction monochromatique (cf §. 4.3)
2. Comparaison avec une carte similaire obtenue en micro-diffraction Laue
3. Extraction du signal Laue complet expérimental provenant du grain étudié
4. Comparaison des diffractogrammes Laue complets expérimental et simulé à partir des données de l'EBSD



(a) Cartographie réalisée sur ID01 (b) Cartographie réalisée sur BM32 (c) Comparaison Laue expérimental en Micro-diffraction Monochromatique en Micro-diffraction Laue et Laue simulé à partir de l'EBSD

FIG. 4.18 – Comparaison entre la micro-diffraction monochromatique (3DXRD), la micro-diffraction en faisceau blanc (Laue) et les résultats issus de la carte d'orientation EBSD

Des diagrammes Laue ont été acquis sur une grille  $(x, y)$  avec des pas de 1 micron sur la ligne BM32-ESRF au niveau de la zone isolée de l'échantillon P3. Le faisceau était de l'ordre du micron dans les deux directions. Une figure de pôle haute résolution a été calculée en sélectionnant uniquement le centre de la caméra CCD Marresearch utilisée en sommant tous les clichés de la grille  $(x, y)$ . Les deux figures de pôles haute résolution peuvent alors être comparées (Fig. 4.18a et b). Un bloc de 5 grains (ellipse jaune sur le graphe) est facilement reconnaissable<sup>4</sup>. L'identification

<sup>4</sup> Les grains repérés par l'ellipse noir sont les grains 2,5,6, 15 et 16 de l'analyse 3DXRD (cf §.4.3 )

sera décrite ici pour le grain repéré par un cercle rouge sur les figures. Il s'agit d'un grain délibérément choisi isolé dans l'espace réciproque.

Le signal 111 repéré en rouge sur le diffractogramme Laue est maximal au niveau d'une position  $(x_0, y_0)$  de la cartographie Laue. A cette position  $(x_0, y_0)$  environ 100 taches de diffraction sont encore présentes sur le diffractogramme complet. Le signal de 5 à 7 grains différents est donc mesuré à cette position  $(x_0, y_0)$  (cf Fig. 4.19). Pour isoler les pics Laue appartenant au grain recherché, il faut lancer une procédure d'indexation Laue. Cette indexation Laue met en rapport les différents pics de diffraction appartenant au même monocristal. Le programme Xmas développé par N. Tamura [Tamura 2003] a été utilisé. Finalement, le diagramme de Laue du grain étudié est isolé.

La carte EBSD fournie une correspondance entre l'espace réciproque et l'espace direct via la connaissance des angles d'Euler des grains imagés. Néanmoins les données EBSD disponibles donnent ces orientations avec une précision de l'ordre du degré soit une précision beaucoup plus faible que celles déductibles des diagrammes de micro-diffraction Laue. Mais l'échantillon présente une texture de fibre : les directions dans le plan sont donc distribuées sur un anneau de  $360^\circ$ . Ainsi, le problème de précision de l'EBSD est moins discriminant. Un diagramme de Laue peut être simulé à partir de ces données d'EBSD<sup>5</sup>. Ce diagramme peut alors être comparé avec le diagramme de Laue expérimental du grain isolé. Plusieurs grains sont testés jusqu'à obtenir une correspondance entre les diagrammes.

Finalement un seul grain correspond bien à la mesure expérimentale (Figure 4.18c). **L'identification est donc réussie !**

**Echecs** Avant d'utiliser cette approche complexe, des procédures plus simples ont été testées. Avec les échantillons S1 et P3, elles ont toutes échoué donnant uniquement des indications au micron près sur la position du grain diffractant.

- La taille des micro-faisceaux (lentilles de béryllium ou miroirs KB) est incompatible avec une identification directe en effectuant des balayages en  $(x, y)$ . Seule une zone de l'échantillon contenant une dizaine de grains peut être repérée.

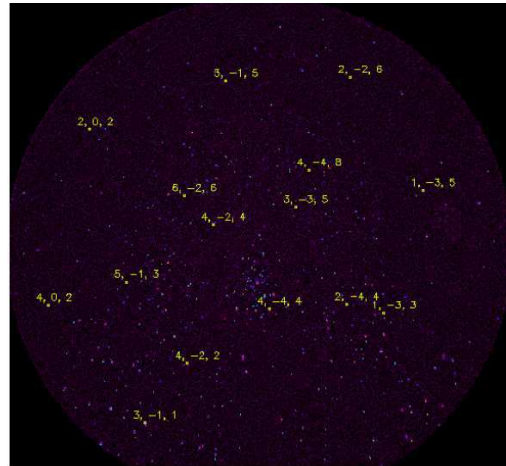


FIG. 4.19 – *Extraction du signal de Laue du grain étudié*

<sup>5</sup>L'orientation entre les angles d'Euler utilisés par le logiciel EBSD et le repère de l'échantillon est testée via le grain 100 du polycristal isolé qui est facilement identifiable.

- Les orientations hors plan des différents grains issus de la carte EBSD ne sont pas assez précises pour simuler directement une figure de pôle haute résolution. La position dans l'espace réciproque des pics symétriques correspondant aux différents grains ne peut être déduite avec assez de précision avec ces données EBSD.

**Résultats de l'identification avec l'échantillon P3** Cette technique est complexe mais elle est très fiable : les résultats issus des trois mesures différentes se confortent mutuellement.

Le grain (repéré par le cercle rouge) a été choisi pour une analyse complémentaire en diffraction cohérente. Ce grain est relativement isolé dans l'espace réciproque. Il est colorié en rouge sur les schémas de la figure 4.20. **Il sera désormais désigné par l'appellation #g1.** Ce grain a une extension d'environ  $1250 \times 950 \text{ nm}$  en surface. Sa plus grande direction est colinéaire à la direction du faisceau. Ces tailles proviennent des images de microscopie à balayage (Fig. 4.20). Il réside toujours une incertitude de quelques pourcents sur ces valeurs. La calibration absolue du microscope est incertaine.

D'autre part, certains des 22 grains précédemment étudiés en 3DXRD ont également été localisés avec cette procédure. Ils sont placés de manière aléatoire sur la surface du polycristal isolé (4.20a,b). Quatre d'entre eux ont pour premier voisin un grain de la famille minoritaire (100). Il y a également quatre couples de grains qui sont voisins entre eux.

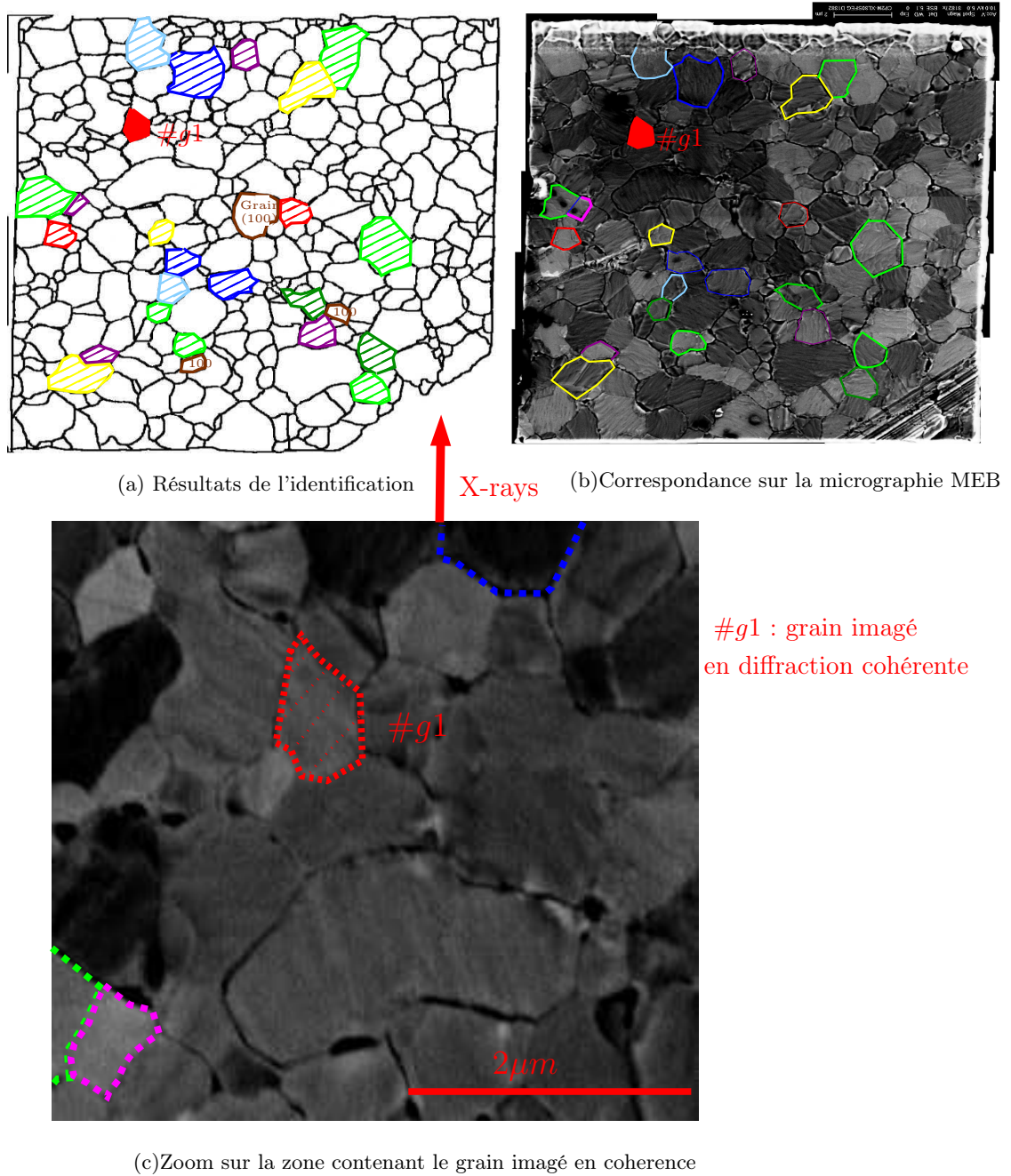


FIG. 4.20 – Identification par multi-comparaison dans l'espace direct des 22 grains étudiés en 3DXRD et du grain étudié en cohérence

### 4.5 Etude intra grain : Diffraction cohérente

Dans cette partie, des résultats de diffraction cohérente seront présentés. Cette partie se concentrera dans un premier temps sur la méthodologie de mesure, les aspects géométriques, les limitations expérimentales. Puis des analyses classiques (déplacement de barycentre, analyse des largeurs) seront effectuées. Une analyse plus poussée des résultats via les techniques de reconstructions de phases sera décrite en détails dans le chapitre suivant.

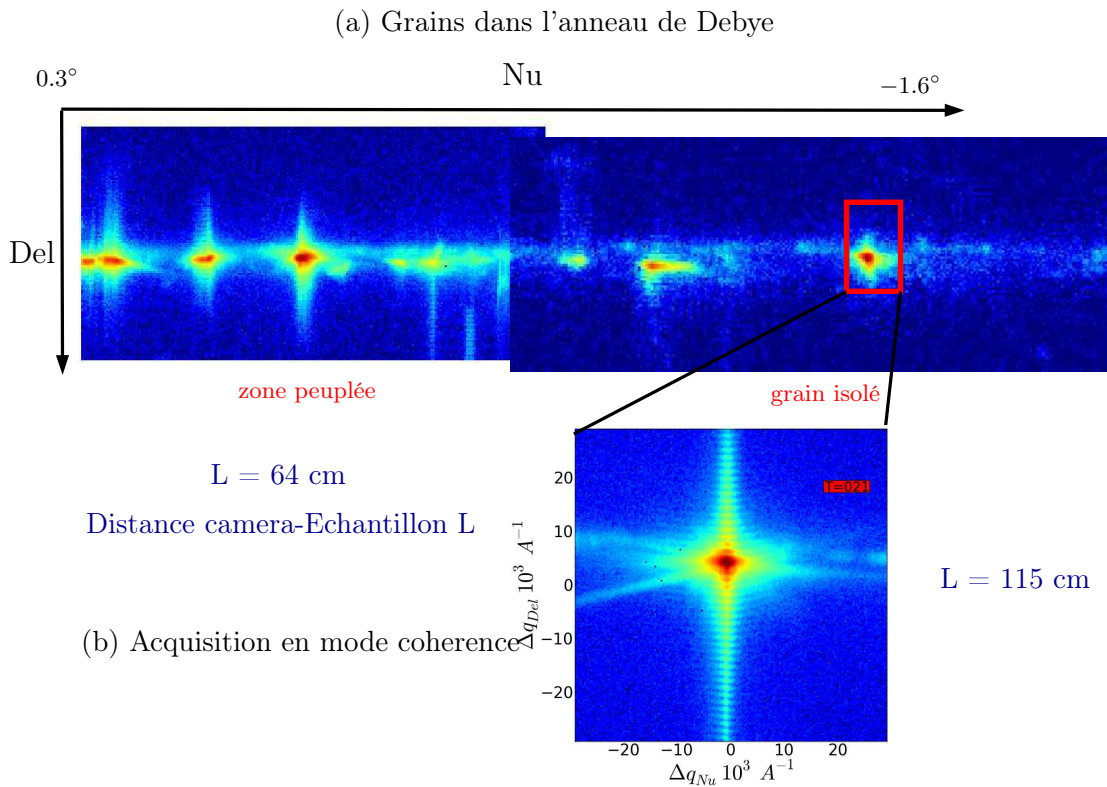


FIG. 4.21 – Sélection d'un grain isolé dans l'espace réciproque

Faire une mesure en cohérence est relativement simple dans la pratique dans le cas de petits objets. Il suffit d'illuminer l'objet avec un faisceau cohérent. Plus précisément, il faut que les longueurs de cohérence du faisceau soient plus importantes que les dimensions de l'objet. Dans le cas d'un film polycristallin, les grains sont entourés d'objets semblables. Comme vu précédemment, l'acquisition de figure de pôle haute résolution est la bonne solution pour repérer facilement les grains dont le signal de diffraction est isolé dans l'espace réciproque. Une fois le grain choisi, il suffit de reculer la caméra pour obtenir la résolution souhaitée dans l'espace réciproque. Le schéma 4.21 montre comment un pic de diffraction bien résolu est obtenu en reculant la caméra à 1.15 m. Le grain a été choisi délibérément en pied de mosaïcité

pour éviter de collecter au même endroit le signal de plusieurs grains différents.

Les mesures décrites dans la section 3DXRD sont également des résultats de cohérence ! La résolution de mesure est seulement trop faible pour observer les franges d'interférences <sup>6</sup>. Il est beaucoup plus facile d'interpréter un pic si il est illuminé par un faisceau cohérent. Il suffit d'utiliser la somme cinématique. Avec un faisceau faiblement cohérent, les résultats sont plus ardues à interpréter. Par abus de langage, on parle de mesures de cohérence pour des mesures acquises avec des résolutions compatibles avec des reconstructions de phase (i.e. sur-échantillonnage supérieur à 2).

#### 4.5.1 Aspects tomographiques

Les aspects géométriques sont évidemment essentiels dans une problématique d'imagerie 3D. Les principales caractéristiques utilisées lors des expériences seront décrites dans la partie qui suit. En imagerie de Bragg, la position du signal dans l'espace réciproque influence directement la géométrie de mesure.

##### 4.5.1.1 Réflexion symétrique

En considérant les caractéristiques des échantillons étudiés et des lignes de lumière où les expériences ont été réalisées, la mesure d'un pic symétrique est plus simple à réaliser. En particulier le goniomètre hétérogène de ID01 n'est pas adapté à la mesure de réflexions asymétriques non coplanaires surtout lorsqu'un four est installé <sup>7</sup>.

Une fois la zone de l'espace réciproque sélectionnée, il suffit de réaliser un balayage avec l'angle d'incidence  $\omega$  pour collecter un certain nombre de coupes 2D via le plan de la caméra. Ces coupes permettent d'obtenir le pic de diffraction 3D. Le schéma 4.22a résume la géométrie de mesure pour un pic symétrique. La caméra en raison de l'incidence non nulle coupe la tache de diffraction de manière inclinée (Fig. 4.22b).

Expérimentalement, la résolution dans la direction de la *rocking curve* est limitée par la précision du moteur  $\omega$ . Avec la Huber tower de ID01, les mouvements de  $0.001^\circ$  sont à proscrire : la précision est insuffisante et le codeur du moteur le fait osciller en essayant d'atteindre la position cible. Ces défauts de positionnement font apparaître des artefacts qui peuvent dans le pire des cas s'apparenter à des franges d'interférences.

Une fois ces coupes 2D collectées, il est facile de les combiner pour réaliser une représentation 3D. Ces représentations seront peu utilisées dans la suite car les détails de la figure de diffraction sont peu observables sur de telle figures (cf 4.25a,b).

<sup>6</sup>Dans la direction de l'épaisseur, les franges d'épaisseur peuvent être devinées sur les anneaux de Debye Fig. 4.12b

<sup>7</sup>En revanche dans le cas d'un film plus fortement texturé dans la direction perpendiculaire mais toujours présentant une texture de fibre, cette géométrie symétrique serait à éviter. Il serait très difficile de sélectionner un pic isolé. Dans ce cas mesurer une réflexion asymétrique serait plus avantageux, les taches étant plus isolées.



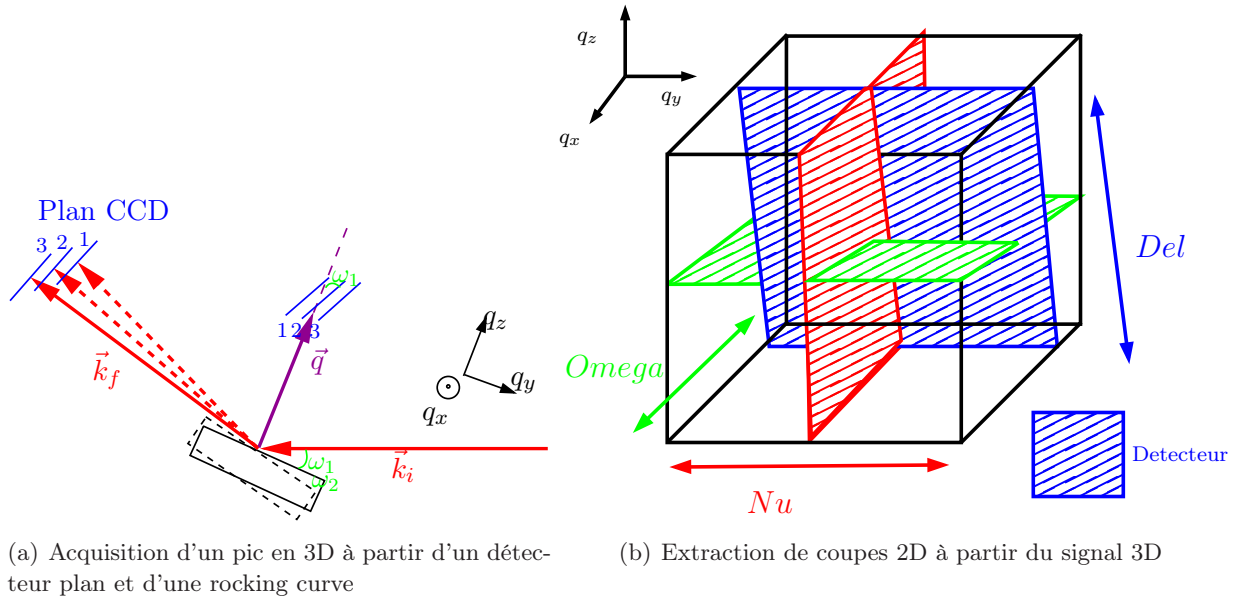


FIG. 4.22 – Deux manières particulières de découper l'espace réciproque

Trois coupes 2D extraites du signal et perpendiculaires 2 à 2 seront plutôt tracées. Les détails sont alors plus facilement identifiables, notamment les évolutions fines. Ces coupes ont été choisies pour être les plus représentatives possibles. Le schéma 4.22b décrit le choix effectué. La coupe caméra (plan repéré en bleu) est une coupe inclinée dans le repère  $(q_x, q_y, q_z)$  lié au grain diffractant.

**Exemple sur le grain #g1 de P3** Cet aspect tomographique sera illustré avec le pic symétrique 111 provenant du grain unique #g1 de l'échantillon P3. L'avantage de ces données sur le grain #g1 de P3 est la connaissance sans ambiguïté de l'objet diffractant (§. 4.4). Les structures fines de la tache de diffraction peuvent être mise en relation avec les dimensions caractéristiques de l'objet.

### Correspondance direction Espace Réel - direction Espace Réciproque

Les correspondances géométriques entre espace direct et espace réciproque doivent être réalisées avec précaution. L'échantillon a été placé sur le four de telle sorte que les cotés du polycristal isolé soient perpendiculaires au faisceau incident. L'orientation perpendiculaire au faisceau est également importante et strictement repérée. Cette direction est repérée sur le schéma 4.23c <sup>8</sup>.

La direction de la rocking curve (direction  $\omega$ ) correspond à la direction du faisceau. La direction *Del* à la direction de épaisseur de l'échantillon inclinée de  $\omega$ . La direction *Nu* correspond à la direction perpendiculaire au faisceau. Ainsi le plan de la caméra *Del* – *Nu* correspond à une coupe dans l'épaisseur du film inclinée

<sup>8</sup>Lors de cette expérience, ces même précautions ont été prises avec l'échantillon S2 dont certains résultats seront présentés §. 4.7

de l'angle d'incidence. Cette coupe est repérée en magenta dans le schéma 4.23a,b. La coupe  $\omega - Del$  correspond également à une coupe relative à l'épaisseur du film mais vue dans la direction du faisceau. Elle est représentée en rouge sur le schéma 4.23e,f. La coupe  $\omega - Nu$  correspond à une coupe parallèle à la surface du film. Elle est repérée en vert sur le schéma 4.23c,d. Cette coupe est la plus intéressante dans le cas des échantillons étudiés : les effets mécaniques les plus marqués se jouent dans le plan du film (direction de l'essai mécanique, effet d'orientation, de voisinage ...). Obtenir cette coupe avec une bonne extension et une bonne résolution exigent des temps de mesure long. Les détecteurs Pixel ont apporté une amélioration essentielle (cf §. 3.3.3) <sup>9</sup>.

**Sensibilité au champ de déplacement** Dans le cadre de l'approximation cinématique et du développement de Takagi, le pic de diffraction est sensible à la projection du champ de déplacement  $\vec{u}(x, y, z)$  sur  $\vec{G}$ . (cf §. 2.5.2). Pour un pic symétrique, le pic de diffraction sera sensible à la composante  $u_z(x, y, z)$ . Pour un grain (111), les plans (111) sont parallèles au plan du film :  $\vec{G}_{111} // \vec{e}_z$ . Par suite,

$$\vec{G} \cdot \vec{u} = G_{111} \cdot u_z(x, y, z)$$

Et finalement, l'intensité mesurée au voisinage de cette réflexion est de la forme :

$$I(\vec{q}) \propto \left| TF\{\rho(\vec{r})e^{i\frac{2\pi}{d_{111}}u_z(x,y,z)}\} \right|^2 \quad (4.3)$$

Le raisonnement est identique lorsque le pic 200 d'un grain (100) est mesuré. Les plans (100) sont parallèles à la surface de l'échantillon, donc  $\vec{G}_{200} // \vec{e}_z$  et  $A(\vec{q}) \propto TF\{\rho(\vec{r})e^{i\frac{2\pi}{d_{200}}u_z(x,y,z)}\}$ .

**Analyse de l'allure du pic 3D** Expérimentalement les résultats obtenus sur le grain #g1 ont été obtenu le long d'un balayage  $\omega$  de  $0.64^\circ$  avec des pas de  $0.005^\circ$ . Le faisceau a été focalisé par un système de lentilles de béryllium. Le grain était illuminé par un faisceau projeté d'environ  $(3 \times 2)\mu m$ . La configuration optique est décrite en détail dans la section 3.2.2. Le détecteur MediPix placé à  $1.14 m$  a été utilisé comme détecteur. A l'énergie de travail  $E = 11.931 keV$ , les résolutions dans les trois directions de l'espace réciproque sont les suivantes :

$$\delta q_{ccd} = \delta q_{Nu} = \delta q_{Del} = 2.913e^{-4} \text{ \AA}^{-1} \quad \text{et} \quad \delta q_\omega = 2.329e^{-4} \text{ \AA}^{-1} \quad (4.4)$$

Comme le découpage en  $\omega$  est fin, ces deux résolutions sont presque identiques. Le pic 3D a été acquis avec une large extension dans l'espace réciproque. Les informations dans le plan du film sont donc tout à fait satisfaisantes. A première vue une

<sup>9</sup>Les coupes similaires obtenues à partir des données 3D du grain de l'échantillon S1 (cf Annexe B.2) sont beaucoup moins résolues et étendues. Le balayage  $\omega$  comportait uniquement 31 ou 41 points avec des mesures de plus de 8 heures (utilisation d'une caméra directe (20 minutes de mesure effective)). Les détails dans le plan du film sont donc très réduits et les informations apportées sont réduites.

Direction	$\omega$	$Nu$	$z$
Taille en nm (MEB)	1250	950	-
$\Delta q_{Size}$ en $\text{\AA}^{-1}$	$0.50e^{-3}$	$0.66e^{-3}$	-
$\Delta q_{Exp}$ en $\text{\AA}^{-1}$	$4.47e^{-3}$	$1.58e^{-3}$	$1.37e^{-3}$

TAB. 4.4 – *Comparaison entre les largeurs expérimentales et largeurs déduites des effets de tailles dans les trois directions pour le signal du grain unique #g1 de P3*

analyse des largeurs dans les trois directions permet de prédire l'allure du champ de déplacement dans ce grain #g1. Le point le plus pertinent est l'écart entre la valeur  $\Delta q$  expérimentale et la largeur  $\Delta q_{Size}$  liée à l'effet de taille (cf Tableau 4.4). Une forte inhomogénéité de champ aura tendance à élargir fortement le pic et à augmenter cet écart. Dans le plan du film, les dimensions de l'objet sont connues de manière indépendante grâce aux micrographies MEB. L'écart entre  $\Delta q_{Size}$  et  $\Delta q_{Exp}$  est très important dans la direction  $\omega$ . Il est plus modéré dans la direction de  $Nu$ . Ainsi le champ de déplacement présente une forte inhomogénéité dans la direction  $\omega$ , et une inhomogénéité modérée dans la direction  $Nu$ .

D'autre part, le pic 3D présente de nombreux systèmes de franges. Les plus significatives sont les franges d'épaisseurs facilement visibles sur les coupes  $Del - Nu$  ou  $Del - \omega$ . Quantitativement une interfrange de 4.7 pixels est trouvée dans la direction de  $Del$  (cf Fig. 4.23a)i ). Cette interfrange après correction de projection implique une épaisseur du grain de 476 nm. En considérant cette dimension comme l'épaisseur du film (i.e. en supposant que ces franges situées loin du centre du pic ne sont pas influencées par le champ de déplacement<sup>10</sup>), une largeur  $\Delta q_{Size} = 1.31e^{-3}\text{\AA}^{-1}$  est trouvée. Cette valeur est très proche de la valeur expérimentale mesurée au centre du pic. A priori, les hétérogénéités du champ de déplacement sont très faibles dans l'épaisseur du film.

Les informations relatives à tous les autres systèmes de franges seront analysées en détail par l'intermédiaire des techniques de reconstruction de phase dans le chapitre suivant.

<sup>10</sup>Le caractère symétrique de ces franges de part et d'autre du centre du pic est un indice indirect qui prouverait que celles-ci ne sont pas influencées par un effet de champ de déplacement

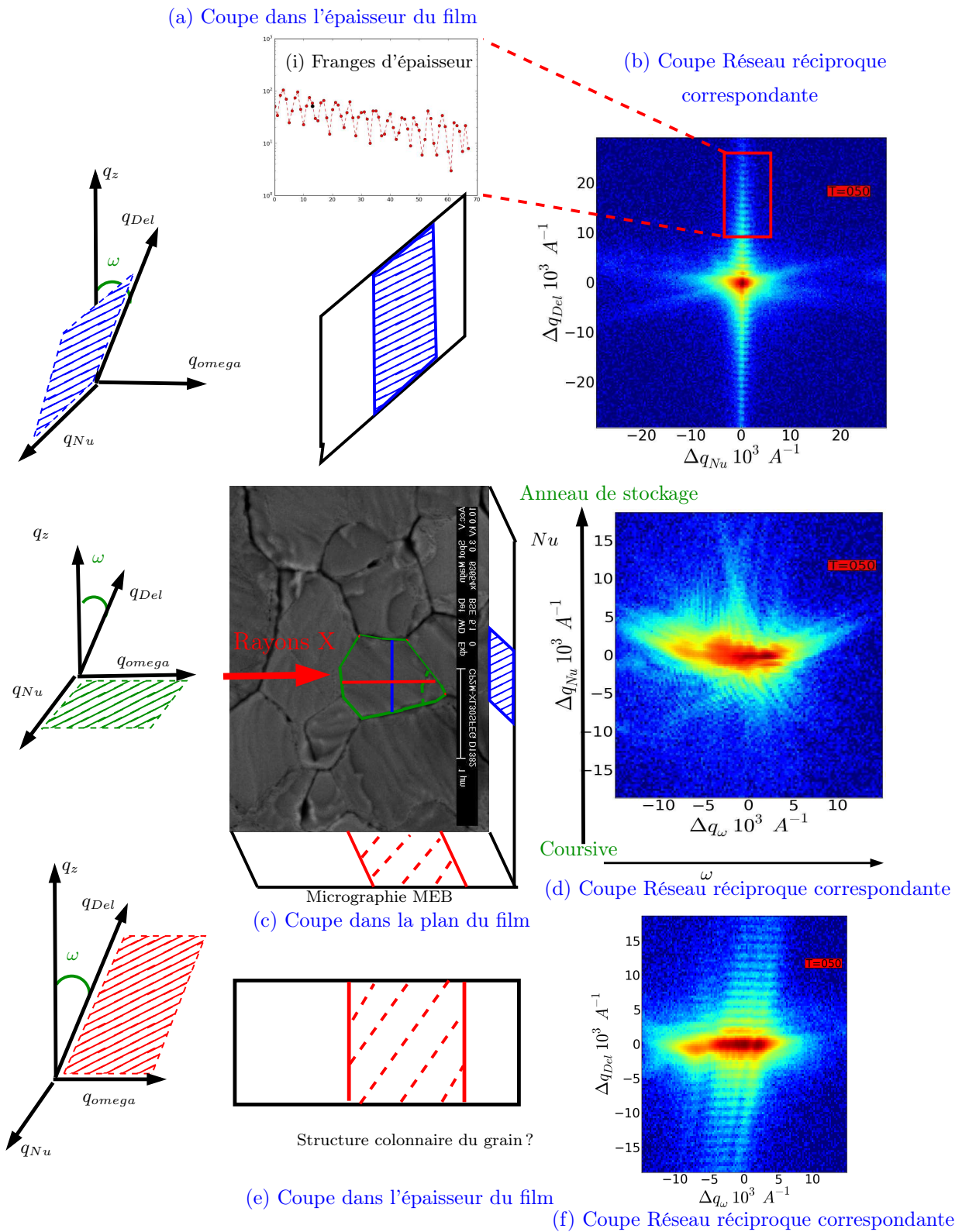


FIG. 4.23 – Correspondance entre les trois coupes 2D croisées issues du pic 3D et l'objet réel (grain #g1 de P3). Ce pic 111 a été obtenu sur la ligne ID01@esrf à  $E = 11.91\text{keV}$  avec la caméra Medipix (pixel  $55\mu\text{m}$ ) placée à  $1.14\text{m}$ .

#### 4.5.1.2 Réflexion Asymétrique

Une réflexion asymétrique particulière a été mesurée lors d'une campagne de mesure sur Cristal. La réflexion 220 (bas indice) a été choisie pour éviter d'obtenir une figure trop dominée par les déformations. Cette réflexion asymétrique a été mesurée en optimisant la géométrie de mesure. L'idée directrice est de placer astucieusement la caméra pour obtenir directement une coupe 2D du pic de diffraction parallèlement au plan du film (i.e. une coupe équivalente aux coupes  $(\omega, Nu)$  issues des pics symétriques 3D). Cette information bien résolue pourrait alors être acquise en évitant une longue acquisition 3D. Ce point est particulièrement intéressant lorsque seules des caméras à faible dynamique sont disponibles.

Pour un grain (111), on recherche donc à avoir un vecteur d'onde  $\vec{k}_f$  parallèle à la direction  $\vec{n}_{111}$ . Les vecteurs  $\vec{k}_f$  et  $\vec{q}_{220}$  sont donc fixés par construction : la direction [220] est inclinée de  $35.26^\circ$  par rapport à [111]. D'autre part, l'angle entre  $\vec{q}_{220}$  et  $\vec{k}_i$  est également de  $35.26^\circ$  dans un choix de géométrie coplanaire, le vecteur de diffusion étant la bissectrice entre les deux vecteurs d'onde incident et diffracté (Fig. 4.24b). Ainsi, il faut que l'angle  $2\theta$  soit égal à  $180^\circ - (35.26^\circ + 35.26^\circ) = 109.48^\circ$ . Il suffit alors de trouver la longueur d'onde correspondante à cet angle de Bragg  $2\theta_{220}$  :

$$\lambda = 2 \cdot d_{220} \sin(109.48^\circ/2) \simeq 2.35 \text{ \AA} \quad (4.5)$$

Cette longueur d'onde correspond à une énergie de  $5.265 \text{ keV}$ . A cette relativement basse énergie, l'absorption par l'air est importante. Il faut évacuer l'air sur le parcours du faisceau pour limiter cette absorption préjudiciable à la dynamique de mesure <sup>11</sup>.

La réflexion 220 d'un grain (111) de l'échantillon S0 a donc été acquise dans ces conditions de mesure avec la caméra Andor placée à l'angle  $2\theta_{220} = 109.5^\circ$  et située à  $1.2 \text{ m}$  (Fig. 4.24a). La résolution dans le plan de la caméra est particulièrement fine avec une taille de pixel de  $\delta q_{ccd} = 2.86 e^{-5} \text{ \AA}^{-1}$  dans l'espace réciproque. Il s'agit d'une réflexion asymétrique coplanaire, le pic de diffraction est donc sensible à la projection du champ de déplacement sur le vecteur de Bragg  $\vec{G}_{220}$ , soit en reprenant les notations utilisées dans la section §. 2.5.2 :

$$\vec{G}_{220} \cdot \vec{u} = \left| \vec{G}_{220} \right| \left( \sin \psi^I u_y(x, y, z) + \cos \psi^I u_z(x, y, z) \right) \quad \text{avec } \psi^I = 35.26^\circ \quad (4.6)$$

L'influence de la composante  $u_y$  est donc non négligeable sur ce pic de diffraction puisque  $\sin(35.26^\circ) = 0.58$ .

$$I(\vec{q}) \propto \left| TF \left\{ \rho(\vec{r}) e^{i \frac{2\pi}{d_{220}} (0.58 \cdot u_y(x,y,z) + 0.82 \cdot u_z(x,y,z))} \right\} \right|^2 \quad (4.7)$$

Une optimisation en (x,y) a été effectuée pour éviter de collecter le signal d'autres grains diffractant à proximité. La figure expérimentale présente des franges très

---

<sup>11</sup>Pour éviter de travailler à basse énergie, il serait possible d'imager dans ces conditions des réflexions à plus hauts indices. Pour un grain (111), mesurer la réflexion (331) inclinée de  $22^\circ$  revient à se placer à  $7.38 \text{ keV}$ . Pour un grain (100) mesurer la réflexion (420) inclinée de  $18.8^\circ$  implique de travailler à  $7.80 \text{ keV}$

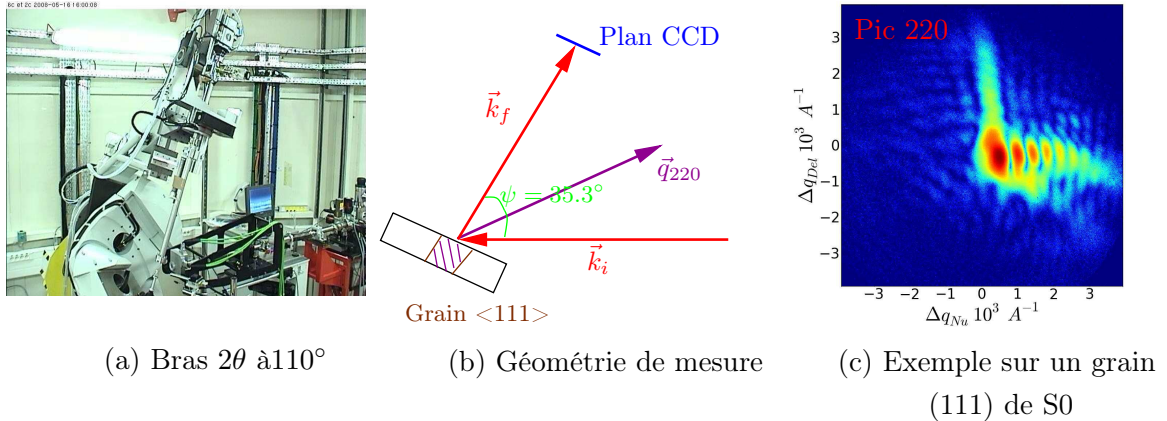


FIG. 4.24 – (a,b) Géométrie asymétrique avec caméra parallèle à la surface de l'échantillon (c) Coupe 2D de la réflexion 220 d'un grain de l'échantillon S0 (Mesures effectuées sur la ligne Cristal@Soleil, à  $E = 5.26\text{keV}$ , avec la caméra Andor (pixel  $13\mu\text{m}$ ))

marquées dans la direction  $q_x$  (direction Nu dans la représentation précédente Fig. 4.24c). Les franges sont définies avec une très grande précision avec environ 33.4 pixels soit une taille équivalente d'environ  $660\text{ nm}$ . D'autre part, ces franges présentent une très forte dissymétrie. Elles sont quasiment éteintes du côté gauche. Ce point particulier est la signature d'un gradient dans cette direction du champ de déplacement  $0.58 \cdot u_y + 0.82 \cdot u_z$ . Dans l'autre direction (direction  $\omega$  dans la représentation 3D classique), les franges sont plus difficilement discernables au niveau du maximum du pic. En regardant les franges secondaires dans cette direction, une distance caractéristique de  $558\text{ nm}$  est trouvée. Le grain imagé semble de ne pas présenter un forte rapport d'aspect dans le plan. Avec ces mesures, l'identification du grain diffractant n'a pas été possible car aucun repère n'avait été disposé sur l'échantillon S0.

#### 4.5.1.3 Rotation autour de $\vec{q}$

Lors de cette même expérience sur Cristal, une autre technique tomographique a été testée sur une réflexion symétrique 111. Cette réflexion a été acquise à trois dimensions sous deux azimuths perpendiculaires. L'idée était simplement de faire du 3D bien résolu dans les trois directions avec un temps de mesure compatible avec une caméra CCD à illumination directe. Cependant ce type d'approche n'est pas uniquement intéressante par rapport à des contraintes de détection. Elle peut être aussi particulièrement attractive pour des échantillons sensibles aux endommagements sous faisceau (*radiation damage*). Elle permet de mesurer un grand nombre de composantes de  $I(\vec{q})$  en un temps raisonnable d'exposition.

Théoriquement il suffit de tourner l'échantillon de  $90^\circ$  par rapport au faisceau in-

cident. Ainsi un premier pic 3D  $I_1(q_x^{Fine}, q_y^{Raw}, q_z^{Fine})$  est mesuré avec une résolution réduite dans la direction correspondant au balayage  $\omega$  et une très bonne résolution dans le plan de la caméra. Dans le repère  $(x, y, z)$  lié au grain (Fig. 4.25e), les directions  $q_x$  et  $q_z$  sont donc imagées de manière très résolue et  $q_y$  de manière grossière. Le même balayage  $\omega$  est réalisé après avoir tourné l'échantillon de  $90^\circ$ . Cette fois-ci le pic  $I_2(q_x^{Raw}, q_y^{Fine}, q_z^{Fine})$  est très résolu en  $q_y$  et  $q_z$  et peu résolu en  $q_x$ . Les deux pics peuvent ensuite être combinés en tenant compte l'inclinaison de la caméra dans les deux cas. Il s'agit de la même réflexion symétrique. Les deux mesures sont donc sensibles au même champ de déplacement  $u_z(x, y, z)$ .

Dans la pratique, mesurer ces deux azimuths n'est pas si facile. Un mouvement des moteurs de large amplitude est nécessaire, ainsi toutes les imperfections de réglages (négligeables sur de petits mouvements) ont une grande influence. Le moteur  $\phi$  a été utilisé pour effectuer la rotation de  $90^\circ$  de l'échantillon. La direction du vecteur de diffraction  $\vec{q}_{111}$  ne coïncide pas parfaitement avec l'axe de rotation  $\phi$ . De plus l'intersection de cet axe avec la surface de l'échantillon ne passe pas forcément par le grain qui diffracte. Ainsi à chaque pas en  $\phi$ , il faut optimiser les réglages (balayages  $x, y$  et  $\omega$ ) pour conserver l'alignement du faisceau sur le grain. Pour être sûr de ne pas perdre le signal, des petits pas en  $\phi$  ont été réalisés. Entre les deux positions extrêmes, les platines de translations  $(x, y)$  ont été translatées de moins de  $5\mu m$ . Ainsi l'axe de rotation  $\phi$  était situé relativement proche de notre grain. Une représentation 3D du pic et les coupes au maximum du balayage  $\omega$  sont tracées pour les deux azimuths dans la figure 4.25a,b,c,d. Une analyse rapide des interfranges permet de remonter aux tailles caractéristiques du grain  $(x_g, y_g, z_g) \simeq (700 \times 440 \times 375) nm$ . L'épaisseur mesurée ici est en accord avec l'épaisseur mesurée au MEB. La tache présente deux maxima locaux (bi-coeur). La position de ces deux maxima est reproduite dans les deux mesures. L'acquisition de ces deux azimuths a pris environ deux fois 6 heures. Obtenir la même résolution dans la direction  $q_y$  avec une seule mesure 3D aurait pris environ 7.5 jours! Cette expérience est décrite précisément dans l'article [Vaxelaire 2010a].

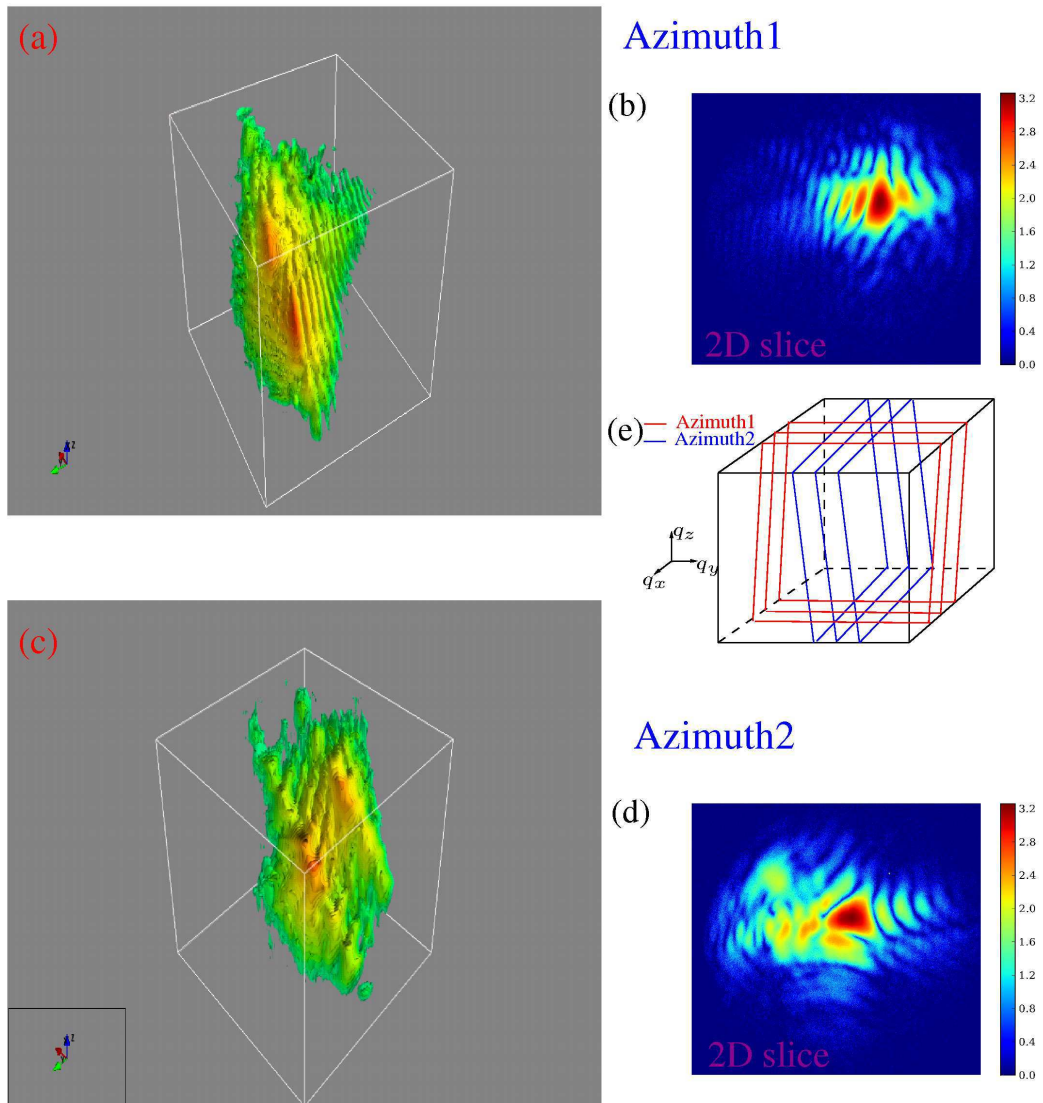


FIG. 4.25 – Pic 111 d'un grain de  $S0$  imagé en 3D selon 2 directions perpendiculaires (Mesures effectuées sur la ligne Cristal@Soleil, à  $E = 5.26\text{keV}$ , avec la caméra Andor (pixel  $13\mu\text{m}$ ))



#### 4.5.1.4 Aspects géométrique connexes

Certaines approximations dans l'analyse des données doivent être vérifiées. Les effets de cohérence partielle, de courbure de la sphère d'Ewald et les hypothèses du développement de Takagi ... sont succinctement évoqués dans le cas des données obtenues sur P3.

**Longueur de cohérence et géométrie de mesure** Le faisceau incident est un faisceau partiellement cohérent (cf §.2.1 et 3.2.3). Si l'objet est trop étendu, les plans atomiques les plus éloignés ne pourront plus interférer entre eux. Il faut que les dimensions caractéristique de l'objet étudié soient plus petites que les longueurs de cohérence du faisceau incident. Chacunes des trois longueurs de cohérence ont une influence différente sur l'objet.

La longueur de cohérence longitudinale est la plus critique. Deux centres diffuseurs pourront diffusés si et seulement si leur différence de chemin optique  $\frac{\vec{q} \cdot \vec{r}}{|k|}$  est inférieur à la longueur de cohérence  $\xi_{//}$ . On définit  $r_q$  comme la norme du vecteur  $\vec{r}$  projeté sur  $\vec{q}$ . On a alors  $r_q = Nd_{hkl}$  et proche d'un noeud de Bragg  $q = 2\pi/d_{hkl}$ . Ainsi :

$$\frac{\vec{q} \cdot \vec{r}}{|k|} \sim \xi_{//} \Rightarrow \frac{2\pi \cdot Nd_{hkl}}{2\pi/\lambda} \sim \xi_{//} \Rightarrow N \cdot \lambda \sim \xi_{//}$$

Le film P3 a une épaisseur de 476 nm, donc le grain #g1 est composé d'environ 2020 plans (111) dans la direction z. Ainsi à  $E = 11.931keV$ , la relation

$$N \cdot \lambda \sim 2100\text{Å} < \xi_{//} \sim 5200\text{Å}$$

est vérifiée (cf §. 3.2.3). Tous les plans constitutifs du grain peuvent interférer. Les deux longueurs de cohérence transverses sont moins critiques puisqu'elles sont supérieures aux dimensions du grain #g1. Elles peuvent être reliées à la dispersion angulaire du vecteur d'onde incident  $\vec{k}_i$  (cf §. 2.1).

**Effet de courbure de la sphère d'Ewald** L'indexation en q d'un pic de diffraction mesuré avec une caméra nécessite des précautions. Lors du développement simplifié décrit §. 3.3.4, une linéarisation est effectuée. En toute rigueur, les pixels ne couvrent pas tous le même angle solide. En bord de caméra, le pixel est en quelque sorte plus grand que le pixel central. Le demi-angle couvert par l'ensemble des pixels de la caméra est noté ici  $\Omega_{ext}$ . Le traitement simplifié qui consiste à affecter à chaque pixel de la caméra une extension constante  $\delta q_{ccd} = \frac{2\pi}{\lambda} \frac{Pixel\ Size}{L_{Sample-Ccd}}$  suppose d'approximer  $\tan(\Omega_{exp})$  à  $\Omega_{ext}$ . Dans le cas des mesures effectuées,  $\Omega_{ext} = 0.18^\circ$  donc  $|\tan(\Omega_{ext}) - \Omega_{ext}| < 10^{-6}$ . L'approximation est donc tout à fait acceptable.

Dans un second temps, il faut quantifier l'influence de la courbure de la sphère d'Ewald (cf Fig. 3.12b) sur les mesures. La distorsion maximale en bord de caméra dans la direction  $\omega$  est égale au facteur :

$$\frac{2\pi}{\lambda} (1 - \cos(\Omega_{exp})) \simeq 3e^{-5} \text{Å}^{-1} \tag{4.8}$$

Cette valeur correspond à environ un huitième de la taille de voxel dans la direction  $\omega$ . L'effet reste acceptable. D'autant plus que les composantes les plus intenses du signal sont situées proche du centre de la caméra où ces distorsions sont beaucoup plus faibles.

Dans un cas où la caméra serait plus proche de l'échantillon, l'effet serait plus gênant. Il faudrait indexer en  $q$  chaque voxel du tenseur 3D. Des interpolations 3D seraient alors nécessaires pour travailler sur une grille régulière.

**Limite de validité d'utilisation de la transformée de Fourier** Lorsque les longueurs de cohérence sont plus grandes que le cristal étudié, la somme cinématique peut être utilisée sans approximation. Mais le calcul utilisant la transformée de Fourier n'est pas forcément exact. Cette approximation sera de moins en moins valide lorsque le produit  $\Delta\vec{q}\cdot\vec{u}$  augmente. Un fort champ de déplacement et ou une mesure avec une large extension dans l'espace réciproque nécessite de prendre des précautions. Dans le cas du grain #g1 de P3, l'extension maximale des mesures est de  $\Delta q = |\vec{q} - \vec{G}| = 0.037\text{\AA}^{-1}$  : elle reste assez faible comparée à l'espacement entre les noeuds de Bragg. Evaluer l'amplitude du champ de déplacement est plus difficile. En considérant un déplacement correspondant à un décalage d'un plan atomique, on trouve  $\Delta q.u \simeq 0.085$ . Cette valeur semble compatible avec une approche type développement de Takagi.

Le critère  $\Delta q.u \rightarrow 0$  est un critère sévère. Souvent les composantes de  $I(q)$  pour  $q$  grand sont de plusieurs ordres de grandeur plus faibles que celles situées à proximité immédiate du vecteur de Bragg  $G_{hkl}$ . Ainsi leur influence n'est pas si importante dans le calcul. Néanmoins dans le cas d'échantillons très fortement déformés, l'utilisation de la somme cinématique peut s'avérer indispensable. Il faut en tout cas comparer les pics issus des deux méthodes de calcul pour être sûr. Numériquement l'analyse devient alors beaucoup plus lourde surtout avec un système à trois dimensions <sup>12</sup>.

#### 4.5.2 Mesures de plusieurs réflexions d'un même grain

Mesurer plusieurs réflexions d'un même cristal est particulièrement intéressant pour déterminer l'ensemble du champ de déplacement. Mais en mode cohérence haute résolution, ces mesures sont difficiles pour des raisons de temps d'acquisition et de réglage. Dans le cas des polycristaux, la principale difficulté est de trouver plusieurs réflexions du même objet et être sûr de la provenance du signal. Lors de la dernière campagne de mesure, il a été possible dans un premier temps de mesurer les deux réflexions 111 et 222 du grain #g1 de P3.

**Réflexion symétrique à l'ordre 1 et 2** Après avoir acquis le pic 111 de #g1 en 3D, le signal 222 a été recherché. Ce pic 222 est sensible à la projection du champ

<sup>12</sup>n'est pas comptable avec les algorithmes de reconstruction de phases classiques (cf §. 5.1.2)

$u$  sur le vecteur  $\vec{G}_{222}$ .

$$\vec{G}_{222} \cdot \vec{u} = G_{222} \cdot u_z(x, y, z) = \frac{2\pi}{d_{222}} \cdot u_z = \frac{2\pi}{d_{111}/2} = 2G_{111}u_z(x, y, z) \quad (4.9)$$

Ainsi le pic de diffraction dépend d'une phase  $G.u$  qui est le double par rapport au pic 111. Les hétérogénéités de déformation ont donc une influence exacerbée sur le pic de diffraction du deuxième ordre. Une comparaison des trois coupes croisées est réalisée dans la figure 4.26b. Il faut faire attention aux comparaisons immédiates

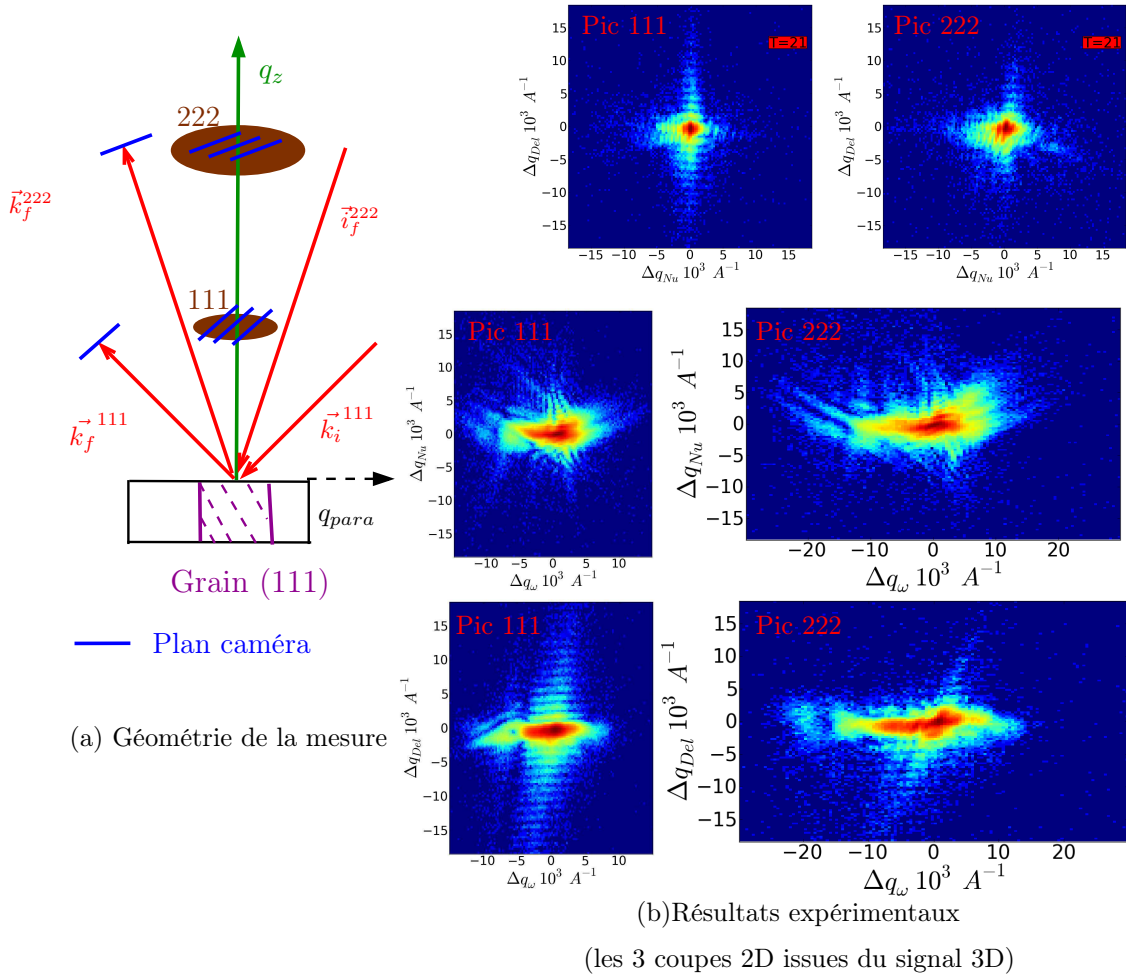


FIG. 4.26 – Comparaison à température ambiante (début du 3ième cycle) de la réflexion 3D 111 et 222 du grain #g1 (Mesures effectuées sur la ligne IDO1@esrf, à  $E = 11.91\text{keV}$ , avec la caméra Medipix)

entre les deux ordres : l'espace réciproque est mesuré de manière différente. Compte-tenu de la variation de l'angle de Bragg, le plan de la caméra intercepte le pic avec une inclinaison différente en l'occurrence  $16^\circ$  et  $29.5^\circ$  (Fig. 4.26a). De plus lors de ces

Direction	$\omega$	$Nu$	$z$
$D^*$ en $nm$	-	396	810
$\varepsilon^*$ en %	0.16	0	0.022

TAB. 4.5 – Paramètre déduit du graphe Williamson-Hall

mesures à l'ordre 2, le pas de découpage en  $\omega$  n'a pas été modifié. Ainsi, la résolution dans cette direction est plus grossière lors de la mesure du pic 222 puisque celle-ci est inversement proportionnelle à l'inverse de l'espace inter-planaire  $d_{hkl}$ .

$$\delta q_{\omega}^{111} = \frac{2\pi}{d_{111}} \delta\omega = 2.329e^{-4} \text{ \AA}^{-1}$$

$$\delta q_{\omega}^{222} = \frac{2\pi}{d_{222}} \delta\omega = 4.6574e^{-4} \text{ \AA}^{-1}$$

Lors de l'expérience, la recherche du pic 222 a été réalisée avec précaution pour être sûr d'imager le signal provenant du grain #g1. Vu l'allure des figures de diffraction aux deux ordres, il y a peu de doute sur le fait qu'il s'agisse bien de deux pics de diffraction provenant du même grain.

Une approche Williamson-Hall a été réalisée avec ces données (cf §. 2.3). Il s'agit de données en 3 dimensions, ainsi une largeur dans les trois directions  $Del$ ,  $Nu$ ,  $\omega$  est calculée pour les deux ordres. Les trois droites  $\Delta q(q)$  sont tracées figure 4.27.

Les valeurs déduites de cette analyse sont reportées dans le tableau 4.5. La valeur de  $\varepsilon^*$  est bien maximale dans la direction  $\omega$ . Il s'agit bien de la direction où le pic est le plus large et où les hétérogénéités de déformation sont attendues les plus intenses. Dans la direction de l'épaisseur, ce paramètre est le plus faible autour de 0.02%. En revanche dans la direction  $Nu$ , la pente est négligeable. Les distances caractéristiques ne sont pas en accord avec les dimensions réelles du petit cristal. En  $Nu$ ,  $D^*$  est sensiblement deux fois trop petit et en  $Del$  deux fois trop grand. L'hypothèse empirique de Williamson-Hall (i.e. contribution additive des effets de taille et d'effet de la micro-déformation sur la largeur des pics) est donc trop simpliste. Le champ de déplacement  $u_z(x, y, z)$  a une influence subtile sur les pics de diffraction 111 et 222.

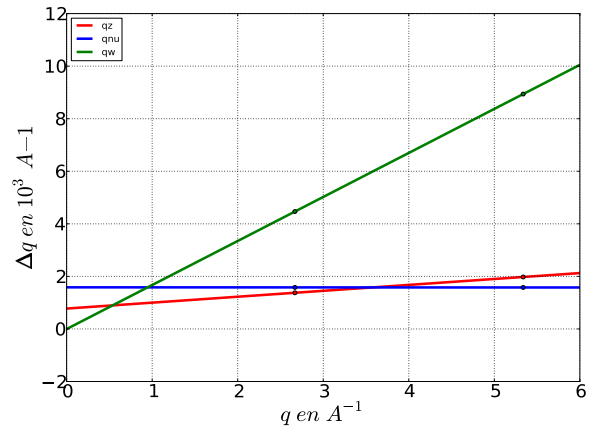


FIG. 4.27 – Graphique de Williamson-Hall sur le grain unique #g1

**Acquisition de réflexions asymétriques d'un même grain** Il n'a pas été possible de mesurer une réflexion asymétrique pour le grain #g1. Son orientation dans le

plan lors de l'expérience n'était pas encore connue. Il était donc impossible de savoir où se situait les réflexions asymétriques de type  $1\bar{1}1$ . Avec ce type de polycristaux, il faut être particulièrement vigilant pour être sûr d'imager une réflexion provenant du même grain. Il faut adopter une approche similaire à l'acquisition des figures de pôle haute résolution mais cette fois-ci en mesurant une portion de l'anneau incliné à  $70^\circ$ . La possibilité d'avoir les cartes d'orientation des grains (EBSD) avant l'expérience permet de prévoir à l'avance où le grain va diffracter et réduit a priori le temps de recherche. Il est bien sûr indispensable de vérifier la position de plusieurs taches provenant de plusieurs grains pour valider ces estimations. L'expérience est donc un peu plus ardue que celle présentée, mais elle n'est pas insurmontable avec un détecteur à haute dynamique et un goniomètre performant.

### 4.5.3 Mesures expérimentales des hautes fréquences

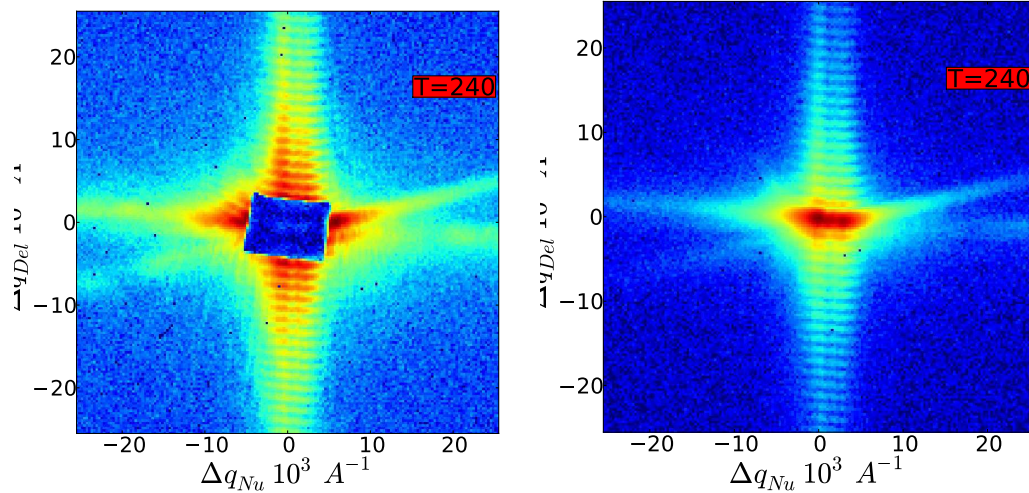
Pour l'analyse des données il est important de mesurer l'intensité de diffraction le plus loin possible autour des pics de Bragg. La limite serait de pouvoir mesurer correctement tout l'espace réciproque entre les noeuds de l'espace réciproque. Evidemment les possibilités expérimentales fixent les limites de ce qui est mesurable effectivement. Le premier facteur limitant est le flux du faisceau incident. Dans le cas des grains étudiés, il est préférable d'utiliser des lignes à onduleur. Le matériau a également une influence. Les grains étudiés sont de petits cristaux, l'intensité intégrée est proportionnelle à leur volume et au carré du facteur de diffusion atomique. Le choix de l'or est intéressant car il fait partie des matériaux simples qui ont le meilleur pouvoir diffractant.

La détection est également une limite pour mesurer loin de  $G_{hkl}$ . En effet l'intensité maximum est largement supérieure aux intensités situées plus loin. Ainsi les limites de saturation de la caméra sont rapidement atteintes lors des mesures. Les composantes à faible amplitude sont alors noyées dans le bruit. Ce problème est d'autant moins gênant que la caméra possède une bonne dynamique. Le problème de la dynamique peut également être contourné en sommant plusieurs centaines d'acquisitions du même signal ( cf procédure Droplet §. 3.3.3).

Un moyen encore plus efficace est de placer un *beam-stop* au niveau du maximum du pic de diffraction. Il s'agit simplement de placer un petit bout de plomb dans la direction de  $k_f^{Max}$ . Ainsi la caméra n'est plus éblouie au centre. Il faut alors adapter le temps de comptage et mesurer beaucoup plus longtemps pour avoir un signal satisfaisant. Cette approche a été utilisée avec le grain #g1 de P3 lors d'un petit balayage  $\omega$  en comptant 120s par coupes. L'image sommée sur toutes les coupes  $\omega$  est comparée à celle mesurée sans *beam-stop* (Fig. 4.28). Des détails fins apparaissent, mais la figure n'est pas extrêmement modifiée.

### 4.5.4 Diffraction cohérente en température

L'objectif initial du travail de thèse était non seulement de faire une mesure de diffraction cohérente en 3D d'un grain unique mais également de le suivre lors d'un



(a) Coupe Del/Nu avec beamstop à  $T = 240^\circ$     (b) Coupe Del/Nu sans beamstop à  $T = 240^\circ$

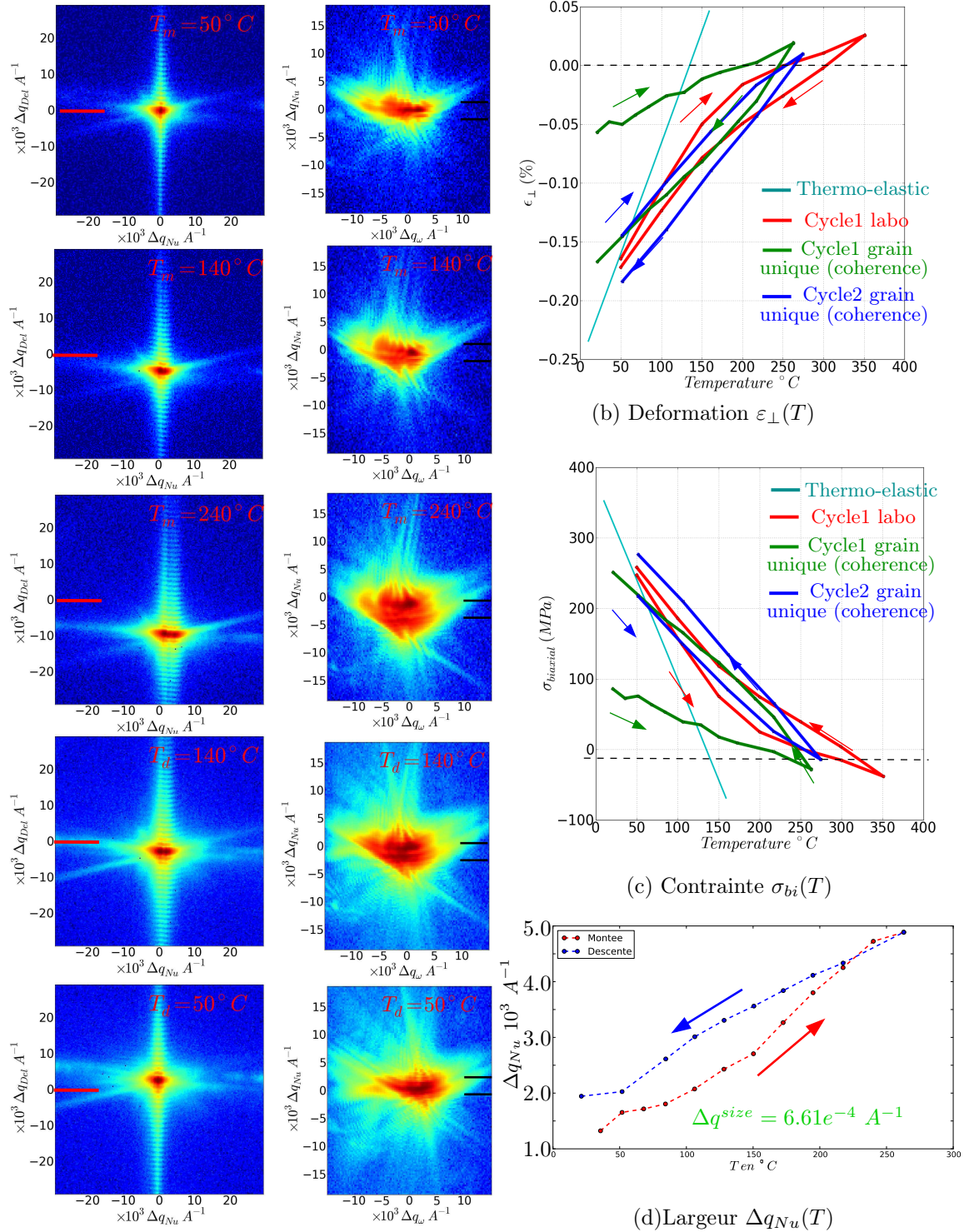
FIG. 4.28 – Coupe 2D de la réflexion 111 du grain #g1 P3 avec et sans beamstop (Mesures effectuées sur la ligne id01@esrf, à  $E = 11.91\text{keV}$ , avec la caméra Medipix)

essai mécanique. Comme pour les autres points, la méthodologie a été améliorée au fil des expériences synchrotrons. Les résultats relatifs à l'échantillon P3 sont les plus aboutis et seront exposés ici (résultats sur S0 et S1 annexe §. B). L'aspect suivi in-situ n'est pas le point le plus délicat dans cette technique de cohérence en vue de faire de l'inversion. Il suffit d'être attentif aux calibrations initiales. Le suivi nécessite juste une bonne planification de la mesure. Là encore l'apport des détecteurs Pixel est essentiel. La possibilité de mesurer un pic 3D en une vingtaine de minutes permet de réaliser un cycle thermique en un temps raisonnable. Avec les réglages entre chaque température, un cycle décrit par 25 points peut être réalisé en une journée. Le point le plus délicat reste l'identification du grain (1 à 2 jours de mesures). Lors de la montée en température, il est facile de suivre le grain intéressant. Il faut simplement faire des pas modérés en température ( $25^\circ\text{C}$ ) pour ne pas perdre le signal du champ de la caméra.

**Résultats sur le grain #g1 de P3** Le pic 111 du grain #g1 de P3 a été acquis de la même manière que celle décrit précédemment §. 4.5.1. Un premier cycle a été réalisé en mode cohérence haute résolution. Douze pics 3D en température séparés de  $20^\circ$  ont été acquis à la montée jusqu'à  $240^\circ\text{C}$ , puis douze à la descente. Un grand nombre d'information ont donc été collectées. Représenter toutes ces données est difficile. Ainsi seules certaines d'entre elles ont été sélectionnées dans la figure ?? . A la montée les trois pics à  $50^\circ$ ,  $140^\circ$  et  $240^\circ\text{C}$  et à la descente les pics à  $160^\circ$  et  $50^\circ$  ont été choisis. Les coupes  $Del - Nu$  sommées le long de  $\omega$  sont tracées. Un mouvement du barycentre du pic lié à l'évolution de la déformation moyenne est clairement visible (trait rouge pour guider l'oeil). Cette position n'est pas superposable entre

la montée et la descente. Pour être plus quantitatif, la déformation  $\varepsilon_{\perp}$  (fig. ??a) est calculée à partir du barycentre 3D en corrigeant la température (calibration four cf §.3.4) et en tenant compte l'évolution du paramètre de maille de l'or.

Sur cette figure ont été rajoutés le comportement thermoélastique en cyan, un second cycle relatif au grain #g1 mesuré en mode 3DXRD (en bleu) et le comportement moyen du film lors d'un cycle obtenu au laboratoire (en rouge). Lors de la première montée, le grain semble peu réagir à la sollicitation thermique. La courbe  $\varepsilon_{\perp}(T)$  est assez plate et loin du comportement thermoélastique. Lors de la descente et lors du second cycle, la variation de déformation est plus importante. La courbe  $\sigma_{biaxial}(T)$  est tracée dans l'hypothèse d'un comportement biaxial isotrope du grain. Il s'agit d'une approximation, l'état dans le grain étant sûrement non biaxial isotrope. Néanmoins, il peut fournir une idée sur le signe de l'état de contrainte dans le grain. Le grain semble passer d'un état en tension vers un état en compression pour des températures supérieures à  $230^{\circ}C$ .



(a) Coupes Del-Nu et  $\omega$ -Nu du pic 111 du grain #g1 en fonction de la température

FIG. 4.29 – (a) Diffraction cohérente en trois dimensions en température sur le grain #g1 de l'échantillon P3 (échelle logarithmique (maximum pic 5500 photons)). (b) Déformation perpendiculaire moyenne en fonction de la température dérivée du barycentre de la tâche. (c) Evolution de la contrainte biaxiale équivalente. (d) Evolution de la la largeur du pic dans la direction du perpendiculaire au faisceau (Mesures effectuées sur la ligne id01@esrf, à  $E = 11.91\text{keV}$ , avec la caméra Medipix (pixel  $55\mu\text{m}$ ))



**Discussion** Les coupes  $\omega - Nu$  en température sont également tracées (Fig. ??). Un élargissement conséquent se produit dans la direction de  $Nu$  (trait noir pour guider l'oeil). Dans la direction de  $\omega$ , le pic évolue beaucoup moins. Plus précisément les largeurs en  $\Delta q_{Del}$  et  $\Delta q_\omega$  évoluent peu, contrairement à la largeur  $\Delta q_{Nu}$  lors de ce cycle thermique. De plus cette largeur  $\Delta q_{Nu}$  présente un comportement quasi réversible entre la montée et la descente en température (Fig. ??c.). Le pic est légèrement plus large à la descente. Ces largeurs sont la conséquence d'hétérogénéités de déformations.

*Dans le plan du film les hétérogénéités de déformation augmentent  
préférentiellement en température dans la direction où celles-ci étaient les plus  
faibles initialement.*

Ce pic 111 est sensible essentiellement à la composante  $u_z(x, y, z)$  du champ de déplacement. En observant le comportement de la déformation moyenne, il est difficile de repérer un régime élastique puis un régime plastique. D'autre part une augmentation de la largeur du pic n'a pas forcément une origine plastique. Un champ de déplacements qui évolue de manière élastique peut entraîner un tel phénomène (cf §. 4.6). Il est donc difficile d'identifier l'origine mécanique de ce phénomène. Le simple fait que dans la direction où initialement les hétérogénéités sont les plus importantes les largeurs évoluent peu, est étonnant. En outre, l'évolution  $\Delta q_{Nu}$  est quasi réversible. Si la largeur est interprétée par des phénomènes plastiques, ceux-ci sont alors réversibles également s'expliquant alors par un mouvement de va et vient des défauts.

Par ailleurs la structure fine du pic évolue de manière complexe. De nombreux systèmes de franges évoluent. Loin du centre ces variations sont modérées. De nombreuses stries (*streaks*) pointant vers des directions aléatoires bougent subtilement (mouvement de défauts planaires?). La structure centrale de la tache évolue également. Tous ces éléments ont pour origine les évolutions du champ de déplacement au cours de l'essai mécanique. Une analyse plus quantitative sera tentée dans le chapitre suivant.

**Dommages mécaniques lors des cycles thermiques?** La microstructure du petit polycristal isolé a été imagée en microscopie électronique à balayage avant et après les cycles thermiques. Il s'agit de vérifier si des dommages morphologiques (fractures, extrusions de grains) se sont développés lors de ces cycles. Le film a potentiellement subi une sollicitation non négligeable avec l'application à sa base d'une déformation parallèle jusqu'à 0.5% à  $T = 350^\circ C$  (cf §. 1.4). Les images de microscopie 4.30a,b semblent néanmoins démontrer la non apparition de tels défauts morphologiques. D'autre part, des ridules sont observables dans la plupart des grains lorsque le grandissement maximal du microscope est utilisé (cf Figure 4.30d). Ces ridules sont orientées différemment d'un grain à l'autre Mais à l'intérieur d'un grain, elles sont sensiblement parallèles. Il s'agit d'images en détection d'électrons rétro-diffusés sensibles au contraste de canalisation sur toute l'épaisseur des grains. Ces

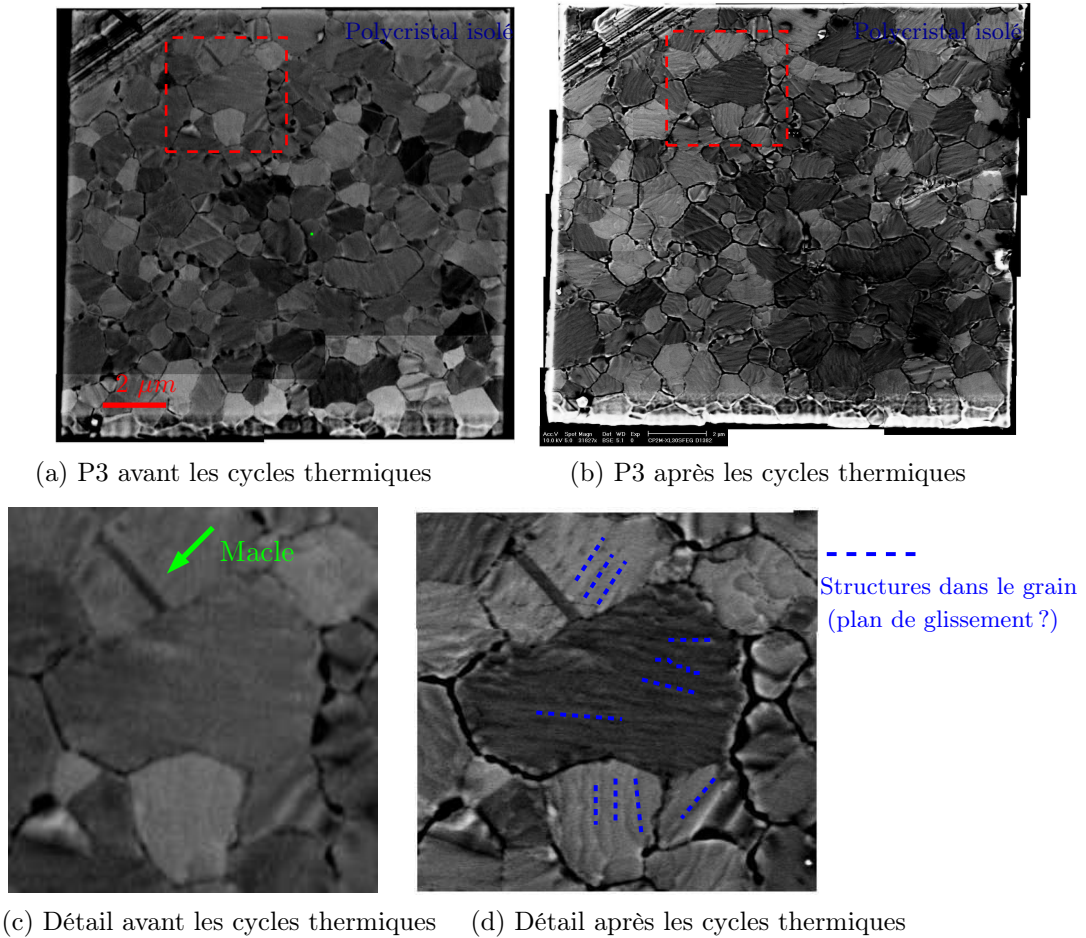


FIG. 4.30 – *Evolutions morphologiques du polycristal isolé de P3 avant et après les recuits*

ridules sont le signes de distorsions en volume. Elles pourraient être une signature des systèmes de glissements.

#### 4.5.5 Résultats complémentaires sur l'échantillon P3

D'autres grains du polycristal isolé P3 ont été également imagés lors d'une campagne de mesure sur la ligne Cristal. Ces résultats complémentaires sont succinctement présentés ici. L'énergie de travail était de  $11.92\text{keV}$  pour pouvoir utiliser la fluorescence de l'or. La géométrie symétrique de mesures a été utilisée. Le signal a été collecté avec la caméra à illumination directe Andor placée à  $1.2\text{ m}$ . La résolution dans le plan de détection était alors particulièrement fine avec  $\delta q_{\text{ccd}} = 6.544e^{-5}\text{ \AA}^{-1}$ . Le faisceau était préparé par les fentes F5 placées à  $15\text{ cm}$  de l'échantillon. Le faisceau projeté sur l'échantillon avait une extension d'environ  $5 \times 25\ \mu\text{m}$ . Cette

extension a été suffisante pour trouver la zone isolée mais insuffisante pour réaliser la localisation. Les grains (100) beaucoup moins nombreux ont donc été privilégiés dans un premier temps. Les grains (100) présents sur la zone isolée sont à priori au nombre de trois d'après la carte EBSD (Fig. 4.5a). Leur mosaïcité est importante, un large balayage  $\omega$  a donc été effectué pour les repérer.

**Grain (100) central** Tout d'abord, le signal 200 le plus intense a été mesuré le long d'un petit balayage  $\omega$ . Les coupes caméra  $Del - Nu$  sont tracées figure 4.31a. Le pic de diffraction est extrêmement perturbé et très étendu. Après vérification, il s'agit bien du grain (100) assez volumineux situé au centre de la microstructure isolée clairement visible en EBSD. La position de son pic 200 en  $\omega$  et  $Nu$  correspond bien aux angles d'Euler mesurés en EBSD et à la position repérée lors des expériences de micro-diffraction Laue. Les images de microscopie électronique à balayage (Fig. 4.31d2) confirme le caractère très perturbé de ce grain.

**Autres grain (100)** Un autre grain (100) a également été imagé en 3D à deux températures 50 et 100°C. L'évolution en température d'une coupe 2D est présentée figure 4.31b. Malheureusement contrairement à ce qui était envisagé ce grain ne correspond pas à l'un des trois grains (100) de la carte EBSD. Il s'agit soit d'un grain en volume <sup>13</sup>, soit il s'agit d'une poussière ou d'un résidu (100) présent dans la zone décapée (le faisceau illumine une partie de cette zone décapée).

**Autre grain (111) suivi en température** Finalement, un grain (111) de la famille majoritaire a été imagé le long d'un cycle thermique. Seule la coupe au maximum du balayage  $\omega$  a été acquise en mode de photon unique en raison des contraintes de temps de mesure (Fig 4.31c i-iv). L'évolution de la position du barycentre du pic permet de comparer le comportement de ce grain unique avec le comportement moyen du film. On retrouve l'allure caractéristique déjà obtenue avec le grain #g1 décrit précédemment (§. 4.5.4). La première montée en température est assez plate, puis le grain semble réagir plus à la sollicitation mécanique dans la descente. Malheureusement avec les données disponibles, la localisation dans l'espace direct est infaisable pour ce grain. Ces résultats sont décrits en détail dans l'article [Vaxelaire 2010b].

---

<sup>13</sup>le film est assez épais (485 nm), il est possible d'avoir des grains en volume comme dans un polycristal massif

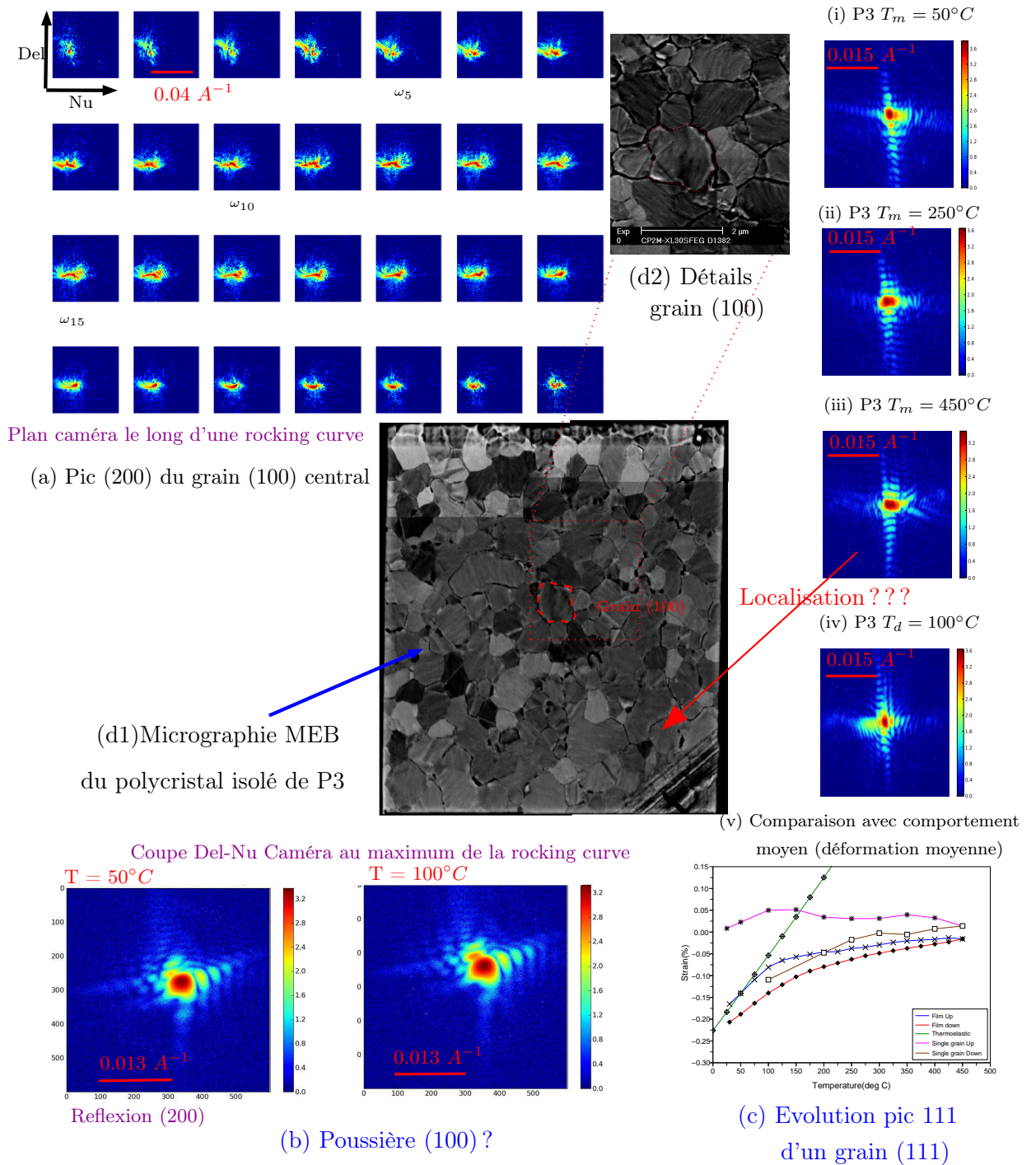


FIG. 4.31 – Diffraction cohérente sur d'autres grains de P3 (Mesures effectuées sur la ligne Cristal@Soleil, à  $E = 11.92keV$ , avec la caméra Andor (pixel  $13\mu m$ ))

## 4.6 Simulations Eléments Finis et diffraction cohérente

Des calculs éléments finis ont été réalisées pour obtenir des champs de déplacement réalistes afin de simuler au mieux le signal de diffraction de cohérente pour les échantillons S1 et P3. Les codes éléments finis de Zset/zebulon ont été utilisés. Ils ont récemment démontrés leurs performances dans l'étude de structures polycristallines complexes [Šiška 2007b, Šiška 2007a, Zeghadi 2007].

Une méthodologie spécifique a été mise en place pour calculer le signal de diffraction à partir des données issues des calcul éléments finis.

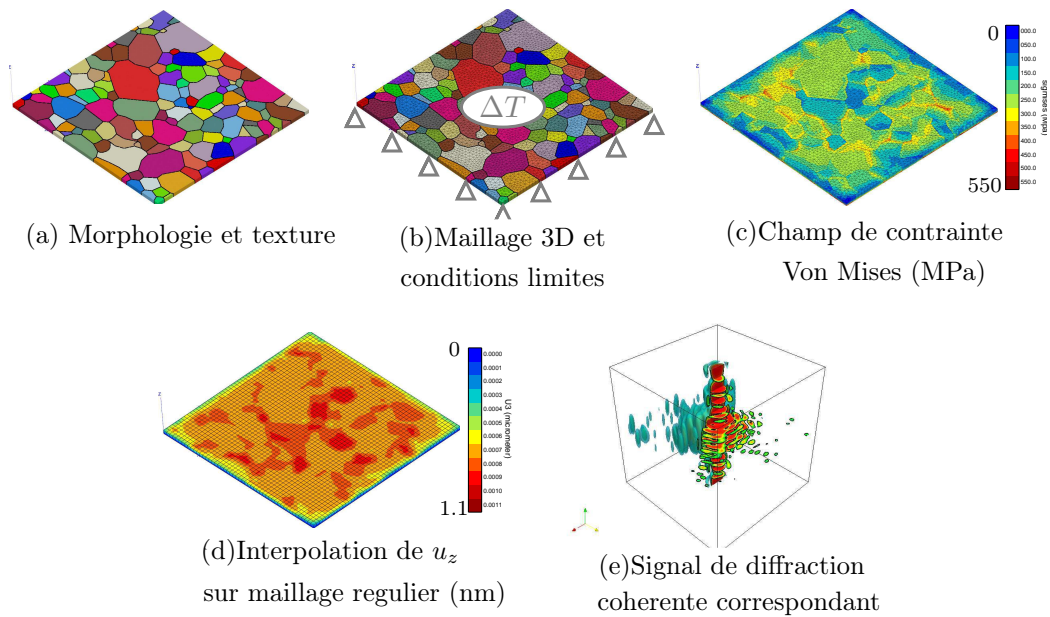


FIG. 4.32 – Méthodologie employée pour calculer le signal de cohérence d'un grain unique à partir d'une simulation éléments finis

- Un maillage prismatique représentatif de la microstructure polycristalline est créé.
- Les trois composantes du champ  $u$  sont calculées sur ce maillage en élasticité cristalline lors d'un chargement mécanique.
- Le champ de déplacement du grain choisi est extrait des résultats éléments finis. Il est interpolé sur une grille régulière.
- Le pic de diffraction est alors calculé par transformée de Fourier (cf §. 2.5). La résolution de mesure est choisie en ajustant les dimensions du tenseur.

Ces étapes sont résumées figure 4.32. L'influence de la densité de maillage a été étudiée pour trouver le meilleur compromis précision de simulation/temps de calcul [Proudhon 2011]. Même en élasticité, un maillage ultra-fin nécessite l'utilisation d'un calcul distribué sur plusieurs processeurs. Les agrégats polycristallins étudiés sont géométriquement complexes.

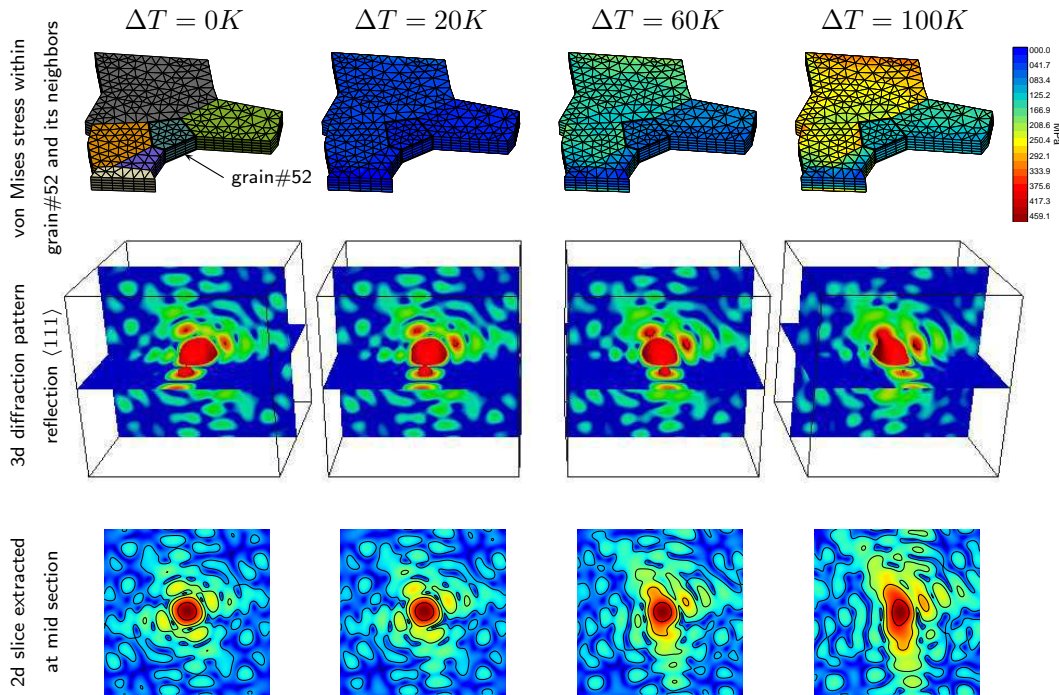


FIG. 4.33 – (a) Champ de contrainte Von Mises du grain sélectionné (b) Pic 111 3D correspondant (c) Coupe parallèle à la surface extraite du signal 3D.

**Exemple de calcul sur la microstructure de S1** La structure polycristalline de S1 a été maillée en plusieurs étapes. Le squelette formé à partir des joints de grains est utilisé (cf §. 4.1.1). La structure 3D est réalisée en extrudant cette structure 2D représentant la surface. Une structure colonnaire parfaite est donc supposée. Le maillage est ensuite créé en utilisant des procédures intégrées au code Zset/zebulon. Une texture est affectée à ce polycristal numérique. L'orientation précise de chaque grain n'est pas connue pour cet échantillon S1. Des valeurs des angles d'Euler compatibles avec la mosaïcité mesurée et la texture de fibre (i.e. orientation aléatoire dans le plan) sont donc affectées à la centaine de grains.

Le chargement mécanique a été choisi représentatif des expériences de diffraction in-situ réalisées. Une différence de température  $\Delta T$  est appliquée au système composé du substrat rigide en silice et du film mince d'or. Une déformation homogène  $\varepsilon_{//} = \Delta\alpha\Delta T$  est appliquée à la base du film (cf §. 1.4). Les calculs éléments finis sont ensuite réalisés en élasticité anisotrope en utilisant les constantes d'élasticité de l'or pur. Celles-ci sont supposées en première approximation constantes en fonction de la température. Un zoom sur l'état de contrainte von Mises est reporté figure 4.33 pour le grain 52.

Finalement la tache de diffraction 111 sensible à la composante  $u_z$  du champ de déplacement est calculée à trois dimensions pour les différentes valeurs de chargement  $\Delta T$  (Fig. 4.33). Une coupe parallèle au film est extraite. Celle-ci présente

progressivement des distorsions.

Ces résultats montrent que des distorsions importantes du signal de diffraction cohérente liées aux hétérogénéités du champ de déplacement peuvent avoir une origine élastique.

Cette démarche et ces résultats sont décrits dans l'article [Vaxelaire 2010b]. Des calculs encore plus réalistes sur la microstructure de P3 sont en cours de développement. Sur cet échantillon, les données expérimentales sont plus complètes. Les angles d'Euler sont connus grâce à la carte EBSD. Les niveaux de déformations moyens sont connus expérimentalement (§. 4.3).

## 4.7 Grains très déformés

Lors de la dernière campagne de mesure, un objet simple a été étudié. Un petit monocristal d'or a été gravé à partir d'un des échantillons polycristallins (échantillon S2 cf §. 4.1). Un grain de taille importante a été repéré au *FIB*, puis une zone de  $150\mu m$  a été supprimé autour de lui (gravure réalisée par C. Kirchlechner du Eric Schmidt Institute de Leoben). La forme du monocristal obtenu est alors un rectangle de  $1.050 \times 1.220 \mu m$  dans le plan et de  $0.375 \mu m$  en épaisseur. Le caractère mono-cristallin a été vérifié en micro-diffraction Laue à l'ALS (cf Fig. 4.34c). Le diffractogramme Laue est bien celui d'un monocristal orienté 111. La tache centrale 111 est "belle" à l'échelle de la résolution de cette expérience de micro-diffraction Laue (Fig. 4.34c)i).

Une figure de diffraction cohérente simple est normalement attendue. La contribution de la forme de l'objet est très simple : un produit dans les trois directions de sinus cardinal au carré. Cependant, expérimentalement le pic 111 est très loin de présenter cette allure. Lors de la sollicitation thermique, le pic se distord très fortement (Fig. 4.34d,e,f). La morphologie du mono-cristal comme le montre les images de microscopie électronique acquises avant et après le chargement thermique (Fig. 4.34a,b) ne présente pas d'évolution significative. La contribution de la forme sur le signal n'a pas évoluée lors de l'essai mécanique. Ces distorsions ont donc pour origine une évolution marquée des inhomogénéités de déformation intra-grain. Ces fortes hétérogénéités de déformation pourrait être le signe d'une densité élevée de défauts. Le cristal lors de son élaboration a subi une phase assez longue de bombardement d'ions gallium (*FIB*) qui l'a certainement endommagé<sup>14</sup>. Le *FIB* est en effet connu pour ces effets d'implantation d'ion gallium et la génération de défauts. Il reste très intéressant d'étudier ce cristal fortement distordu, non plus pour étudier l'élasticité cristalline mais pour étudier le comportement local des défauts lors de cette sollicitation thermique. De petites taches de quelques dizaines de pixel sont clairement observables tout autour du pic. On parle de speckle ou tavelures. Une étude de ces domaines peut être instructive.

---

<sup>14</sup>Les polycristaux isolés sur S1 et P3 ont également subi cette phase de bombardement ionique, mais les grains étudiés ne sont pas situés sur les bords contrairement à ce monocristal S2. Il est alors raisonnable de penser qu'ils sont beaucoup moins endommagés.

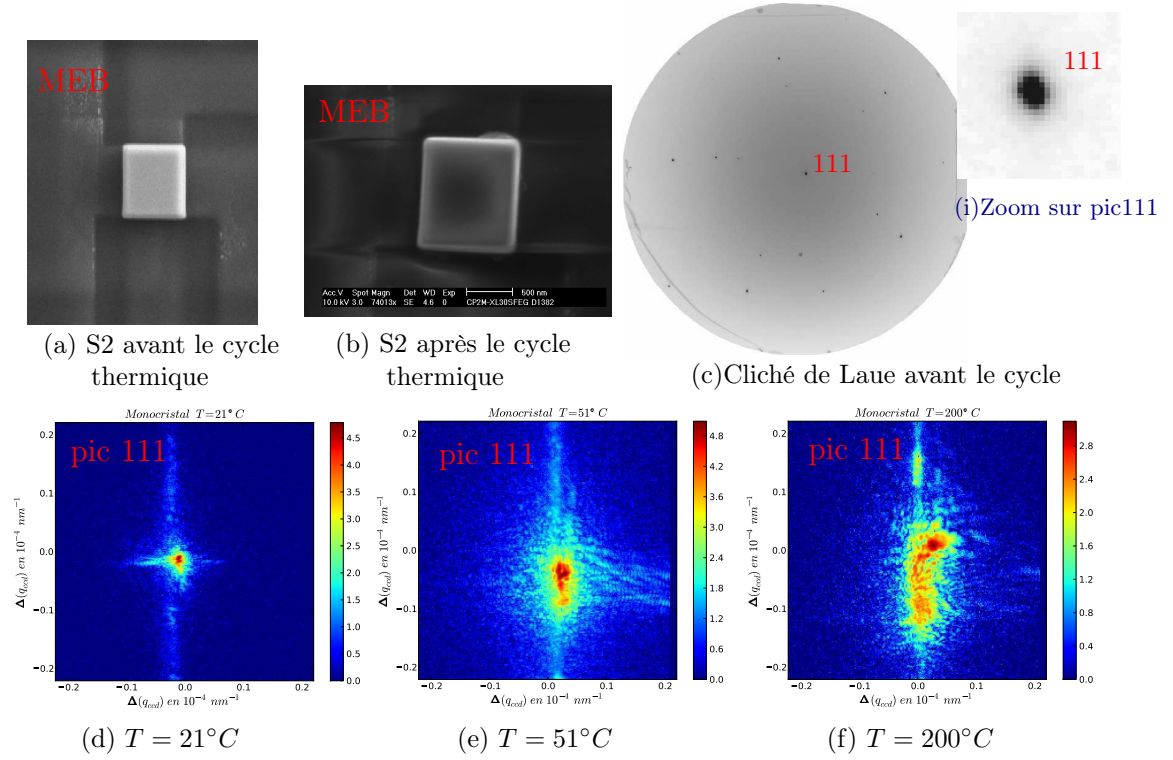


FIG. 4.34 – Monocrystal taillé dans le film S2 avant et après (a,b) le cycle thermique. (c,d,e) Evolution du pic 111 correspondant. (Mesures effectuées sur la ligne ID01@esrf, à  $E = 11.91\text{keV}$ , avec la caméra Medipix)

Expérimentalement le pic de Bragg 111 symétrique a été mesuré en effectuant des rocking curve de  $0.5^\circ$  d'amplitude avec des pas de  $0.01^\circ$ . Le signal est collecté avec des temps d'acquisition d'une seconde par la caméra MediPix placée à  $0.93\text{ m}$  de l'échantillon. Ce signal a été mesuré lors d'une montée en température de  $20^\circ$  à  $450^\circ C$ . L'évolution en température du pic symétrique 111 en trois dimensions a donc été acquise dans un mode cohérent haute résolution. Les résolutions dans le plan de la caméra et dans la direction de la rocking curve sont  $\Delta q_{ccd} = 3.5e^{-4}\text{ \AA}^{-1}$  et de  $\Delta q_\omega = 1.05e^{-3}\text{ \AA}^{-1}$ .

Lors de la montée en température, un pic secondaire décalé de  $0.15^\circ$  en omega apparaît progressivement. Une analyse plus détaillée de ce pic secondaire a été réalisée en le considérant comme un pic individuel. Le sous-pic 3D a été extrait du signal total. Le barycentre permet de calculer la déformation de la zone correspondant à ce sous-cristal (en tenant compte de l'évolution du paramètre de maille en température ainsi que la calibration du four). L'intensité intégrée est extraite pour évaluer le volume diffractant. La largeur en  $2\theta$  (i.e. dans la direction radiale) du pic est également ajustée. Ces paramètres sont tracés en fonction de la température dans



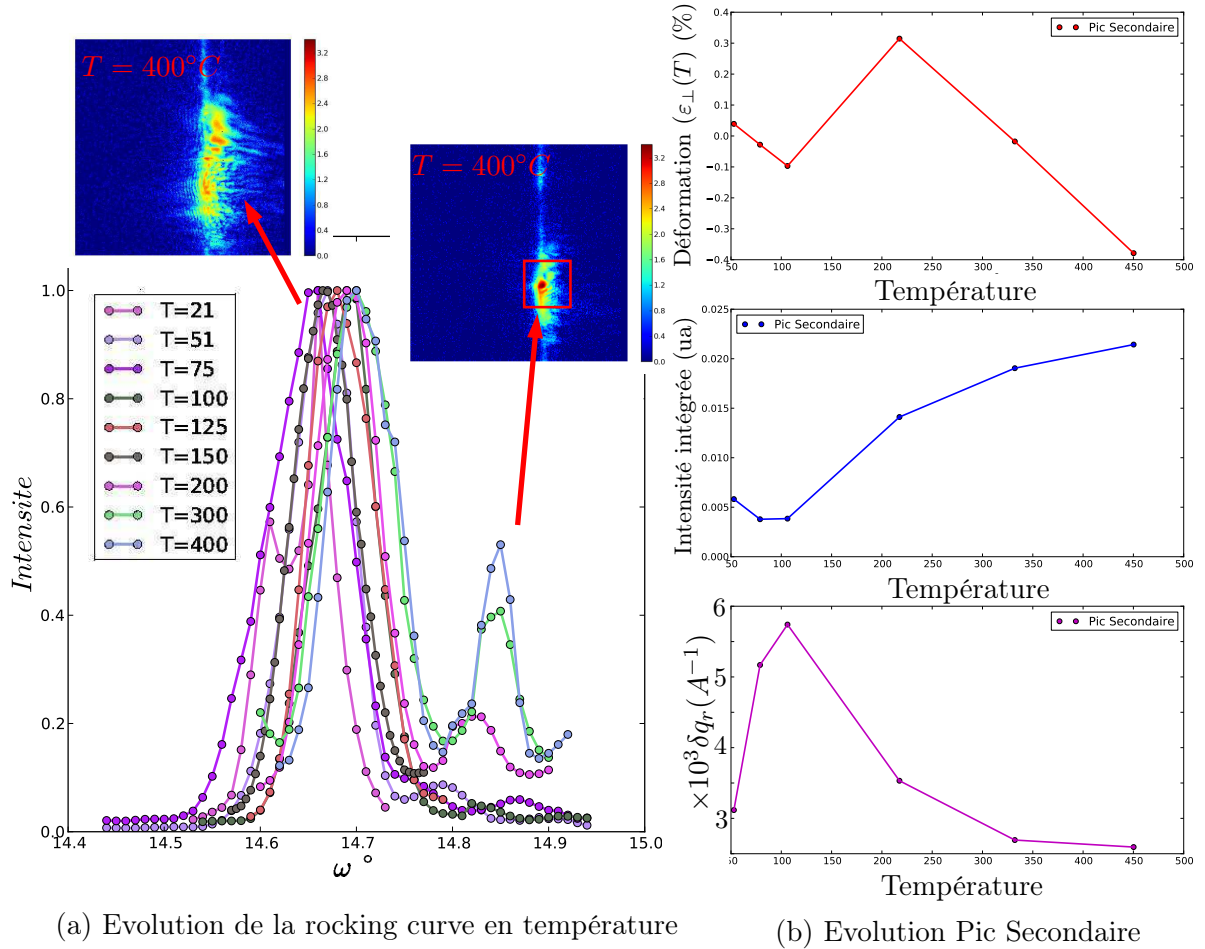


FIG. 4.35 – Apparition d'un pic secondaire au cours du cycle thermique

la figure 4.35b. Une corrélation marquée entre l'évolution du volume de cette zone secondaire et sa largeur en  $2\theta$  est observable. Le volume augmente tandis que la largeur du pic diminue dans la direction  $q_z$ . Les inhomogénéités de déformation dans la direction de l'épaisseur décroissent en température tandis que le volume augmente. La déformation perpendiculaire  $\varepsilon_{\perp}$  moyenne dérivée de la position du barycentre de cette tache secondaire présente un comportement plus perturbé au niveau de la zone de transition. Cette zone passe en compression vers  $150^{\circ}$  puis retourne en tension progressivement jusqu'à  $400^{\circ}$ . Cet affinement du pic et l'augmentation du volume relatif à ce sous-pic pourrait être interprété comme l'apparition progressive d'une zone où le réseau cristallin serait moins perturbé. Ce comportement pourrait alors être relié à un phénomène de migration des défauts hors de cette zone.

Les données collectées sont cependant insuffisantes pour pouvoir confirmer de manière catégorique ces intuitions. Mais il est probable que les phénomènes observés

sont la conséquence de réarrangements des dislocations dans ce petit cristal isolé. Ce type d'analyse semble intéressante à développer de manière plus détaillée pour étudier la dynamique de défauts en 3D de manière in-situ. De telles études en volume sont difficiles avec les techniques de microscopie électronique à transmission.

Des observations similaires ont été reportées dans les articles suivants [Jakobsen 2006, Jakobsen 2007]. L'échantillon étudié est une éprouvette polycristalline de cuivre. Une cartographie de la réflexion 400 issue d'un grain unique de  $5 \times 2 \mu m$  est acquise en mode haute résolution  $\Delta q \simeq 5.10^{-4} \text{\AA}^{-1}$  durant un chargement uniaxial en tension jusqu'à 2% de déformation. Cette expérience a été réalisée sur la ligne 1-ID-C de l'APS dédiée à la 3DXRD. Une évolution des sous-domaines est reportée et les auteurs concluent sur des phénomènes de réarrangements complexes des dislocations.

## Synthèse Chapitre 4

Des films minces polycristallins d'or ont été caractérisés par diffraction X à différentes échelles. En particulier, l'échantillon P3 montre des hétérogénéités de contraintes moyennes entre les différentes familles de grains dont il est composé. Une contrainte moyenne d'environ 240 MPa a été mesurée pour les grains (111) contre une contrainte d'environ 93 MPa dans les grains (100). Les macles (511) de la famille majoritaire (111) ont pu être caractérisées via l'acquisition de réflexions asymétriques choisies isolées dans l'espace réciproque. Les macles présentent un comportement intermédiaire iso-déformation/iso-contrainte avec les grains (111) dans lesquels elles sont enchâssées.

Dans la famille majoritaire (111) des hétérogénéités de déformation grain à grain ont été mises en évidence par des mesures de micro-diffraction monochromatique. L'état individuel d'une vingtaine de grains a pu être suivi lors d'un cycle en température. Des hétérogénéités de déformation moyenne inter-grain de 0.14% à température ambiante ont été mises en évidence pour 22 grains de cette famille (111). Ces hétérogénéités inter-grain diminuent lors d'une montée en température. De plus, le pic de diffraction obtenue en moyennant le signal de ces 22 grains est comparable au pic de diffraction obtenu au laboratoire moyenné sur des millions de grains.

D'autre part, les hétérogénéités internes dans un grain 111 unique ont été sondées avec une très bonne résolution par diffraction cohérente lors d'un cycle thermique. Le grain #g1 de P3 présente un signal de diffraction 3D très complexe dans le plan du film. Le pic(111) symétrique est sensible à la composante  $u_z(x, y, z)$  du champ de déplacement interne de l'objet. Les hétérogénéités internes dans ce grain semble être anisotropes, comme semble l'indiquer une forte dissymétrie du signal cohérent. Plus généralement, une méthodologie robuste a été mise en place pour étudier en diffraction cohérente un objet unique non isolé dans l'espace direct. Les aspects géométriques des mesures ont été étudiés en détail. Une approche pour identifier le grain diffractant a également été développée. La connaissance du grain diffractant facilite les analyses et les interprétations du signal de diffraction cohérente.

Des résultats complémentaires semblent indiquer l'influence complexe de la forme du champ de déplacement  $\vec{u}$  sur le signal de diffraction. Des simulations éléments finis ont montré qu'un champ  $\vec{u}$  d'origine élastique peut produire des distorsions importantes dans le signal de diffraction cohérente. D'autre part un échantillon contenant probablement de nombreux défauts présente également un pic très complexe.

# Imagerie Cohérente en condition de Bragg : cas d'échantillons fortement déformés

---

## Sommaire

<b>5.1</b>	<b>Principes généraux de la reconstruction de phase . . . . .</b>	<b>134</b>
5.1.1	Echantillonnage . . . . .	134
5.1.2	Algorithmique . . . . .	136
5.1.3	Détermination du support . . . . .	139
5.1.4	Affinement dynamique du support : ShrinkWrap . . . . .	140
<b>5.2</b>	<b>Etude numérique : Cas d' échantillons fortement déformés</b>	<b>142</b>
5.2.1	Influence du niveau de déformation de l'objet - Cas 2D . . . . .	142
5.2.2	Analyse quantitative des résultats . . . . .	146
5.2.3	Discussion . . . . .	152
<b>5.3</b>	<b>Aspects numériques et temps de calcul . . . . .</b>	<b>154</b>
<b>5.4</b>	<b>Revue de la littérature - Reconstruction de phase en géométrie de Bragg . . . . .</b>	<b>158</b>
5.4.1	Travaux 2D . . . . .	158
5.4.2	Travaux 3D . . . . .	161
5.4.3	Conclusion . . . . .	164
<b>5.5</b>	<b>Application aux données collectées sur les films polycristallins d'or . . . . .</b>	<b>165</b>
5.5.1	Reconstruction SW sur grain de S1 . . . . .	166
5.5.2	Reconstruction 3D en température sur le grain #g1 de P3 . . . . .	168
5.5.3	Discussion méthodologique . . . . .	175
<b>5.6</b>	<b>Techniques connexes et problématiques émergentes . . . . .</b>	<b>177</b>
5.6.1	Holographie . . . . .	177
5.6.2	Ptychographie . . . . .	178

---

Le grain #g1 de P3 a été mesuré de manière très précise dans l'espace réciproque. Est-il possible d'obtenir des informations supplémentaires concernant ses hétérogénéités internes de déformation avec ses mesures? Comme ce grain a été illuminé par un faisceau cohérent, l'amplitude diffractée à proximité d'un noeud de l'espace réciproque peut être vu comme une transformée de Fourier. La connaissance éventuelle de l'amplitude complexe implique donc la connaissance du champ de déplacement à l'intérieur de l'objet projeté sur  $\vec{G}$ .

$$f_0(\vec{r})e^{i\vec{G}\cdot\vec{u}(\vec{r})} = TF^{-1}\{A(\vec{q})\} \quad (5.1)$$

Malheureusement, seul le module de l'amplitude complexe est accessible expérimentalement. Ainsi, les informations liées au champ de déformation ne sont plus accessibles directement. Néanmoins, la nouvelle technique expérimentale connue sous le nom d'imagerie X Coherente (CXRI) semble être capable de surmonter cet obstacle. Son principe essentiel est de tirer avantage d'une extension du théorème d'échantillonnage de Shannon. Il est alors possible sous certaines conditions de reconstruire la phase de l'onde diffractée par l'intermédiaire d'algorithmes spécifiques. Le champ de déplacement peut alors être déduit de cette phase de l'onde diffusée.

Ce chapitre est entièrement consacré à cette technique d'analyse des données. Dans un premier temps, les principes généraux de la reconstruction de phase seront décrits : échantillonnage, algorithmes .... Une étude numérique de la procédure sera ensuite esquissée dans le cas d'échantillons fortement déformés. Cette étude numérique permettra d'illustrer et de préciser les différentes difficultés de la technique : convergence, influence du bruit, de l'échantillonnage... Cette étude sera suivie d'une revue de la littérature concernant l'imagerie cohérente en condition de Bragg. Tous ces points préalables permettront de mettre en perspective les différents choix effectués pour traiter les données expérimentales de diffraction cohérente obtenues sur les échantillons polycristallins. Des reconstructions 3D sur le grain #g1 lors du cycle thermique seront notamment décrites.

## 5.1 Principes généraux de la reconstruction de phase

La diffraction cinématique et la théorie du signal sont liées dans leurs formalismes respectifs par l'importance de la transformée de Fourier. L'espace fréquentiel et l'espace temporel de la théorie du signal sont les pendants de l'espace direct et réciproque de la diffraction. En utilisant la terminologie du traitement du signal, un cristal de taille fini peut être vu comme un signal de support fini (donc de carré sommable), l'amplitude diffractée comme le spectre du signal, l'intensité comme la densité spectrale de puissance.

### 5.1.1 Échantillonnage

La technique de reconstruction de phase est typiquement une technique de théorie du signal qui a été transposée à la diffraction. L'inversion est basée sur la notion centrale d'échantillonnage d'un signal.

**Echantillonnage de Shannon** Soit un signal  $\rho(r)$  de carré sommable et  $A(q)$  sa transformée de Fourier continue. Le signal  $\rho(r)$  est à support fini, il possède donc une dimension limite  $r_0$ . Le signal est inconnu et sa transformée de Fourier peut être mesurée seulement sur un réseau régulier de points : elle est échantillonnée. Cette discrétisation fait-elle perdre de l'information ? C'est là qu'intervient la notion d'échantillonnage de Shannon. Le théorème de Shannon stipule que :

*Le signal  $A(q)$  est parfaitement connue si celui-ci est connu sur une série de points espacés d'une valeur  $q_s$  inférieure à  $1/r_0$ .*

De plus, le signal peut être parfaitement reconstruit en utilisant la formule d'interpolation de Whittaker-Shannon :

$$A(q) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} A(nT) \cdot \text{sinc} \left( \frac{(q - nT)}{2T} \right) \quad \text{où } T < \frac{1}{r_0} \quad (5.2)$$

La connaissance parfaite (de manière continue) du signal  $A(q)$  induit la connaissance rigoureuse du signal  $\rho(r)$  par transformée de Fourier continue. L'exemple d'un objet

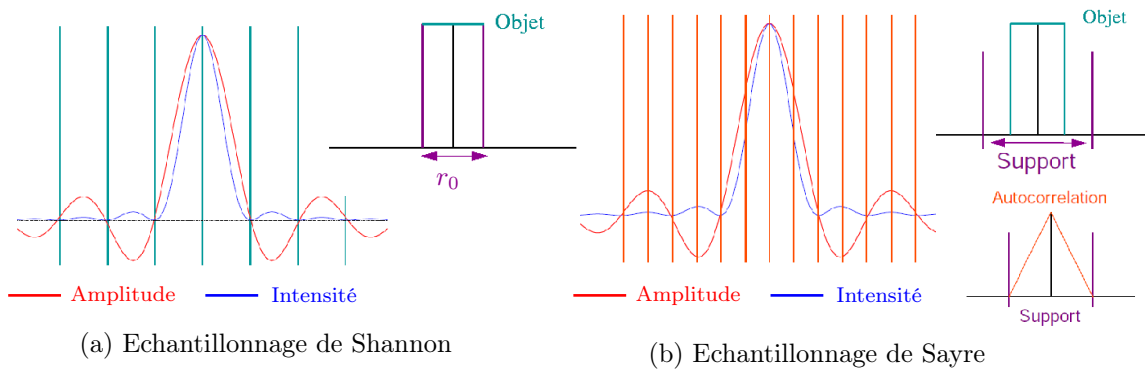


FIG. 5.1 – Illustration de l'échantillonnage sur un sinus cardinal 1D, transformée de Fourier d'une porte

$\rho(r)$  en forme de porte est instructif. Sa transformée de Fourier est un sinus cardinal (figure 5.1a). Un échantillonnage de Shannon correspond à la connaissance d'au moins un point sur chaque frange. En dessous de cet échantillonnage, il est logique de perdre l'information sur l'objet  $\rho(r)$  puisque les franges ne sont plus résolues.

**Cas d'une mesure restreinte dans l'espace fréquentiel** Dans la pratique, il est impossible d'échantillonner le signal jusqu'à l'infini, et de calculer la transformée de Fourier continue (somme infinie également). En généralisant l'approche développée §. 2.5.1, et en considérant une super-maille composée de  $m$  atomes, le vecteur position peut s'écrire :

$$\vec{r} = \vec{R}_n + \vec{R}_m + \vec{u}$$

L'amplitude diffractée peut alors s'écrire à proximité d'un noeud de Bragg :

$$A(q) \simeq \sum_{n=0}^N \left( \sum_{m=0}^{Maille} f_n(\vec{G}) e^{i\vec{G} \cdot \vec{R}_m} e^{i\vec{G} \cdot u} \right) e^{i\vec{q} \cdot \vec{R}_n} \quad (5.3)$$

$$\simeq \sum_{n=0}^N \left( \sum_{m=0}^{Maille} f_n(\vec{G}) e^{i\vec{G} \cdot u} \right) e^{i\vec{q} \cdot \vec{R}_n} \text{ puisque } e^{i\vec{G} \cdot \vec{R}_m} = 1 \quad (5.4)$$

On reconnaît une série de Fourier. On retombe sur l'hypothèse de Takagi, mais cette fois on considère le champ homogène dans la super-maille.

**Echantillonnage de Sayre** Lorsque seule l'intensité de la transformée de Fourier du signal est disponible, la moitié des informations sur l'objet est perdue. L'extension introduite par Sayre stipule alors que le signal peut être reconstruit si l'intensité du signal de Fourier est enregistrée avec une cadence d'échantillonnage deux fois supérieure à la cadence de Shannon  $q_{min} < \frac{1}{2r_0}$  [Sayre 1952]. Trivialement, si l'objet présente  $N$  inconnues. Il faut avoir au minimum  $2N$  points de mesure sur l'amplitude de sa transformée de Fourier pour reconstruire le signal. En reprenant l'exemple du signal en forme de porte, l'intensité diffractée est un sinus cardinal au carré. Il faut désormais décrire le signal avec au moins deux points par frange pour obtenir toute l'information nécessaire (figure 5.1b).

**Généralisation à 2D et 3D** Cette notion a ensuite été élargie aux cas complexes et multi-dimensionnels. Il a été montré qu'il est possible de reconstruire de tels signaux si cette condition de sur-échantillonnage  $\sigma^{Over} > 2$  est satisfaite. Avec des données 2D ou 3D, le rapport d'échantillonnage est défini comme le rapport :

$$\sigma^{Over} = \frac{\text{Nombre de mesures}}{\text{Nombre de points décrivant l'objet}} \quad (5.5)$$

De la même manière, il s'agit d'un rapport entre le nombre de points de mesure et le nombre d'inconnues. Cette notion de sur-échantillonnage 3D est discutée en détail dans l'article [Miao 1998]. Il est possible que  $\sigma_{3D}^{Over} = \sigma_x \times \sigma_y \times \sigma_z$  soit largement supérieur à 2, mais que dans une direction  $\sigma_i < 1$ . Dans ce cas la reconstruction sera partielle. Il y aura alors recouvrement des informations sur une partie du support dans cette direction.

### 5.1.2 Algorithmique

Si la condition d'échantillonnage de Sayre est satisfaite, il est possible de reconstruire la phase de l'onde diffractée. Ceci constitue une démonstration de possibilité. Mais contrairement au cas de l'échantillonnage classique de Shannon (Eq. 5.2), il n'existe pas de formule directe pour trouver cette phase manquante. Numériquement, le problème est ardu. Il s'agit d'une tâche d'optimisation non linéaire, avec de nombreuses variables. Le nombre de variables doit en outre être ajusté. Ces difficultés ont été surmontées par l'emploi d'algorithmes itératifs qui sont décrits ici.

## 5.1.2.1 Les algorithmes classiques

La structure actuelle des algorithmes s'est affinée progressivement. Les travaux de Gerchberg et Saxton sont les travaux pionniers [Gerchberg 1972]. Il s'agit d'un travail relatif à des mesures de microscopie électronique, où à la fois l'amplitude dans l'espace réciproque (diffraction) et dans l'espace direct (image) sont accessibles expérimentalement. La phase de l'onde perdue contient l'information recherchée. Une stratégie numérique a donc été mise en place pour la retrouver. Les amplitudes munies de leur phase dans les deux espaces sont reliées par transformée de Fourier directe ou inverse. Ainsi, une structure itérative (algorithme GS) entre espace di-

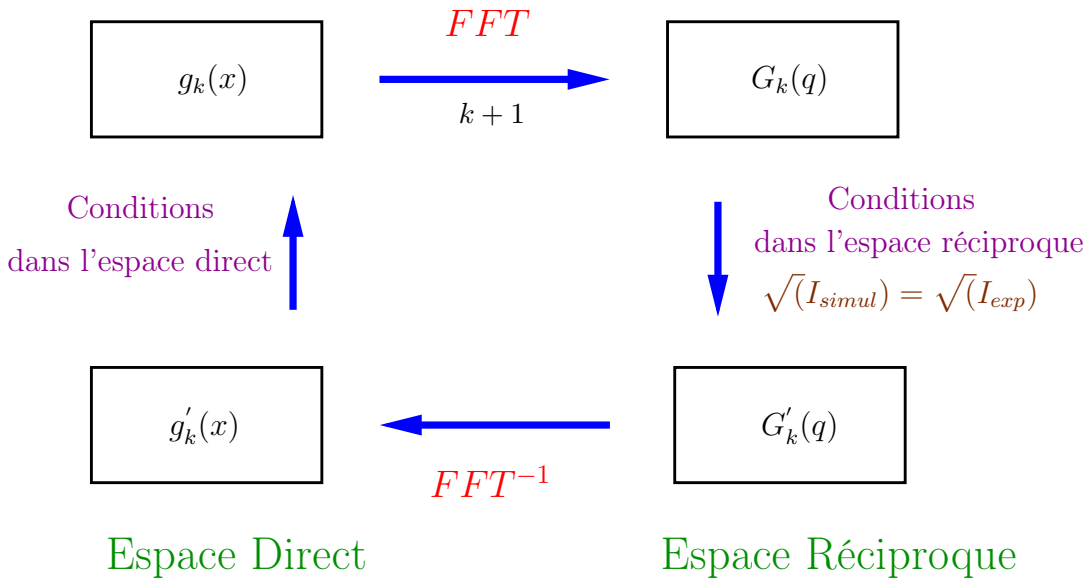


FIG. 5.2 – Architectures générales des algorithmes d'inversion

rect et espace réciproque a été proposée (fig. 5.2). A partir d'un estimé initial de phase, l'objet complexe est calculé par transformée de Fourier inverse. Une amplitude quelconque est reconstruite. Lors de cette première boucle, cette amplitude (ou forme) ne correspond pas forcément à la forme de l'objet. L'amplitude reconstruite est alors modifiée pour la faire correspondre à la mesure expérimentale. La phase est laissée inchangée. Avec cet objet corrigé, l'amplitude réciproque est recalculée par transformée de Fourier. De la même manière, l'amplitude diffractée ne correspond pas parfaitement à celle mesurée. Elle est donc recalée. Ce processus entre les deux espaces est répété un certain nombre de fois jusqu'à ce que les amplitudes reconstruites et expérimentales soient très proches. A la fin de la procédure, la phase de l'objet et de l'onde sont reconstruites.

Cette structure itérative a été généralisée au cas où seule l'amplitude dans l'espace réciproque est disponible. Les travaux de Fienup dans les années 80 ont posé les bases des procédures utilisées aujourd'hui [Fienup 1978, Fienup 1982, Fienup 1986,



[Fienup 1987]. Cette fois-ci, il n'y a pas d'information dans l'espace direct. La notion de support a donc été introduite dans l'algorithme *Error Reduction*. Le support correspond à une forme à l'intérieur de laquelle l'objet est incluse. La densité de l'objet doit être nulle à l'extérieur de ce support. La densité est donc forcée à zéro. Cette condition, en reprenant les notations introduites figure 5.2, se résume en :

$$\begin{cases} g_{k+1}(\vec{r}) = g'_k(\vec{r}) & \text{si } \vec{r} \in \text{Support} \\ g_{k+1}(\vec{r}) = 0 & \text{si } \vec{r} \notin \text{Support} \end{cases} \quad (5.6)$$

Dans l'espace de Fourier, la condition sur l'amplitude reconstruite est la même que dans l'algorithme GS

$$|G_{k+1}(\vec{q})| = |A_{recons}(\vec{q})| = \sqrt{I_{exp}(\vec{q})} \quad (5.7)$$

Cet algorithme *Error Reduction* sera désigné par la notation courte ER dans la suite. Un paramètre caractérisant la vraisemblance entre l'amplitude du pic reconstruit et expérimental est introduit. L'erreur métrique est l'écart quadratique moyen entre ces deux amplitudes :

$$E_r^2 = \frac{\sum (|A_r(q)| - \sqrt{I_{exp}})^2}{\sum I_{exp}} \quad (5.8)$$

Ce paramètre est un indicateur de la qualité de la reconstruction. Il est considéré comme un critère de convergence. Une bonne erreur métrique ( $< 10^{-3}$ ) signifie que moyennée sur tout le signal de diffraction, une erreur de moins de 0.1% entre les pixels est obtenue. Une bonne reconstruction aura donc une bonne erreur métrique. Dans la pratique, il a été observé que l'algorithme ER a tendance dans certains cas à être particulièrement lent. Des stagnations rédhitoires sont courantes avec une non évolution de l'erreur métrique. L'algorithme est en quelque sorte bloqué dans un minimum local.

Ainsi dès les travaux de Fienup, un algorithme plus performant a été implémenté. Il s'agit de l'algorithme nommé *Hybrid Input Output* qui sera désormais désigné HIO. Le HIO diffère dans la manière d'appliquer la condition dans l'espace direct. Les informations reconstruites sur la zone en dehors du support sont conservées. Elles sont soustraites lors de l'itération suivante moyennant un coefficient multiplicatif  $\beta$ .

$$\begin{cases} g_{k+1}(\vec{r}) = g'_k(\vec{r}) & \text{si } \vec{r} \in \text{Support} \\ g_{k+1}(\vec{r}) = g_k(\vec{r}) - \beta g'_k(\vec{r}) & \text{si } \vec{r} \notin \text{Support} \end{cases} \quad (5.9)$$

Le coefficient peut être entre 0 et 1. Il est souvent choisi entre 0.6 et 0.8. Il peut aussi être modifié en cours de reconstruction. Dans la pratique, cette adaptation est efficace et la convergence est rapide. Il introduit en quelque sorte à chaque itération une petite perturbation qui peut permettre de s'extraire d'un minimum local. Néanmoins parfois le HIO ne fonctionne pas. C'est pourquoi, une utilisation couplée des algorithmes ER et HIO est souvent privilégiée pour combiner les avantages des deux procédures.

**Formalisme des projections** Un algorithme HIO modifié a été introduit par la suite par Millane au début des années 90 [Millane 1990]. Plus récemment un formalisme plus général a été développé [Bauschke 2003, Elser 2003] basé sur le concept de projection sur des espaces de contraintes. Dans le cas de l'inversion qui est décrite ici, les espaces de contraintes sont des sous-ensembles  $\Delta_i$  inclus dans l'ensemble général des fonctions de  $L[\mathbb{R}^3; \mathbb{C}^3]$ . Ces sous-ensembles peuvent être choisis caractéristiques d'une propriété quelconque de l'objet (positivité de la phase, de la densité ...). L'algorithme HIO correspond une projection particulière dans ce formalisme très général. Une comparaison approfondie de ces algorithmes modernes est réalisée dans l'article [Marchesini 2007]. Leur rapidité et leur faculté à s'extraire des minima locaux est précisément caractérisé. Il est également montré qu'une combinaison des *ER* + *HIO* est assez robuste bien que moins rapide. Cette combinaison sera choisie lors reconstructions réalisées dans ce travail.

**Remarque** Ces algorithmes de reconstructions de phases sont particulièrement puissants. Leur point fort est de pouvoir faire un ajustement très précis du pic mesuré sans l'aide d'un modèle même avec un nombre de variables très important. A l'opposé, les techniques d'ajustement classiques nécessitent un modèle (phase polynomiale ...) et un nombre limité de variables. Il reste envisageable d'utiliser des techniques type recuits simulés ou Monte-Carlo. Un estimé assez proche de la phase est alors préférable. Cet estimé doit être déterminé par des caractérisations expérimentales ou théoriques préalables de l'objet.

### 5.1.3 Détermination du support

Le support introduit dans les algorithmes joue un rôle important. Il existe plusieurs techniques pour l'estimer. Dans certains cas, les dimensions de l'objet diffractant sont connues par une technique différente (microscopie électronique par exemple). Un support peut alors être créé à partir de cette connaissance. Sinon, lorsque l'objet n'est pas connu, il est possible d'approcher la forme de l'objet directement avec le signal de diffraction.

**Techniques d'autocorrélation** Le technique d'autocorrélation du signal de diffraction est classique pour déterminer la forme initiale du support. La fonction de Patterson, transformée de Fourier inverse de l'intensité, peut s'écrire comme le produit de convolution de la densité électronique

$$Patterson(\vec{r}) = \mathcal{F}^{-1}\{I(\vec{q})\} \quad (5.10)$$

$$= \mathcal{F}^{-1}\{A(\vec{q}) \cdot A^*(\vec{q})\} \quad (5.11)$$

$$= \mathcal{F}^{-1}\{\mathcal{F}(\rho(\vec{r})) \cdot \mathcal{F}(\rho(-\vec{r}))\} \quad (5.12)$$

$$= \rho(\vec{r}) \otimes \rho(-\vec{r}) \quad (5.13)$$

Ainsi la forme de l'autocorrélation contient une signature forte de la forme de l'objet. Trivialement à une dimension, le produit de convolution d'une porte par elle-même

donne un triangle de base deux fois plus large que la porte. Un seuillage à 50% permet de retrouver la forme initiale de l'objet. Dans le cas d'un objet 2D ou 3D possédant une densité non homogène, la forme de l'autocorrélation n'est plus si simple. Un seuillage adapté doit être réalisé pour que le support soit surestimé. Des techniques plus élaborées ont été imaginées pour obtenir un support plus étroit. La plus robuste est sans doute la technique de la triple intersection décrite dans l'article [Crimmins 1990].

**Limites avec des objets déformés** Dans le cas des objets déformés, la fonction de Patterson se réécrit :

$$\mathcal{F}^{-1}(I) = \rho(\vec{r})e^{i\vec{G}\cdot\vec{u}(\vec{r})} \otimes \rho(-\vec{r})e^{-i\vec{G}\cdot\vec{u}(-\vec{r})} \quad (5.14)$$

il ne s'agit plus d'un simple produit de convolution de la forme de l'objet. Les inhomogénéités de déformations via le champ de déplacement jouent un rôle important. Les hétérogénéités de déplacement élargissent le pic. Lorsque les déformations sont importantes, la figure de diffraction est très étendue dans l'espace réciproque. Ainsi, les informations sur les dimensions sont complètement brouillées. En conséquence, la Patterson sous-estime fortement la dimension de l'objet. Cette sous-estimation est irréversible! Travailler avec un support trop petit rend toute la procédure inopérante. Lorsqu'aucune information sur la forme de l'objet diffractant n'est disponible, il faut par défaut privilégier un support grand pour être sûr de ne pas le sous-estimer. En conclusion :

**Pour un objet déformé, il ne faut pas utiliser un estimé initial de support obtenu par autocorrélation.**

#### 5.1.4 Affinement dynamique du support : ShrinkWrap

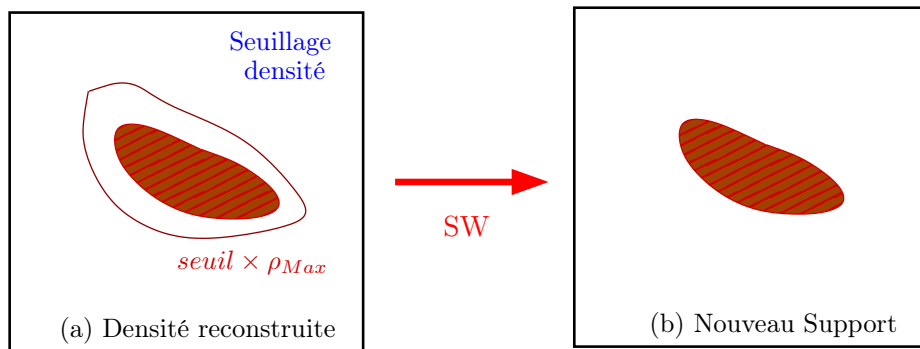


FIG. 5.3 – Principe de l'adaptation de support par l'algorithme shrink-wrap

Il est possible de modifier le support en cours de reconstruction. Cette méthode d'adaptation n'est pas à proprement parler un algorithme de reconstruction

de phase. Elle s'utilise plutôt en complément de ceux-ci. Elle a été introduite la première fois dans l'article [Marchesini 2003], dans le cas de reconstructions d'objet en imagerie à l'ordre zéro. Elle s'avère particulièrement efficace dans la pratique. Elle consiste à réduire le support au bout d'un certain nombre d'itérations entre l'espace direct et réciproque. Elle permet de réduire le nombre de variables laissées libres dans l'espace direct. Cette diminution du nombre de variables facilite grandement la convergence des procédures. Dans une problématique de reconstruction d'objets fortement déformés, cette méthode est particulièrement utile car comme démontré plus haut il est difficile de déterminer un support à partir des données de diffraction.

Dans la pratique comme brièvement schématisé figure 5.3, cette méthode consiste à effectuer un seuillage sur la densité reconstruite. Tous les pixels du support où la densité est faible, sont supprimés. Le seuil est choisi en général assez bas pour éviter de supprimer trop de variables, typiquement des seuils de 10 à 20% du maximum de  $\rho$  sont utilisées. Ce protocole est utilisable en 2D ou 3D. Dans la suite du chapitre, la méthode de shrink-wrap sera désignée par la notation SW.

## 5.2 Etude numérique : Cas d'échantillons fortement déformés

Pour illustrer ces techniques d'inversion, une étude sur des objets numériques 2D est dans un premier temps réalisée. Cette étude se concentrera sur l'influence du niveau de déformation sur la robustesse de la procédure. Tester les procédures de manière générale présente plusieurs difficultés majeures : le choix des algorithmes et des paramètres de réglage est large. Les calculs doivent être répétés dans les mêmes conditions plusieurs fois pour évaluer la sensibilité de l'approche vis à vis des phases aléatoires initiales. Les objets numériques doivent bien-sûr être le plus représentatif possible des conditions expérimentales.

Un cristal de forme irrégulière a été choisie. Il a été montré que les objets présentant des bords rectilignes sont plus facilement inversables [Fienup 1987]. Un tel objet test serait alors moins significatif. Des études complémentaires sur les algorithmes (projection, approche génétique...) et leurs paramètres (paramètres  $\beta$  du HIO ...) sont développées dans les thèses de G. Williams et A. Schropp [Williams 2004, Schropp 2007] sur divers objets non déformés.

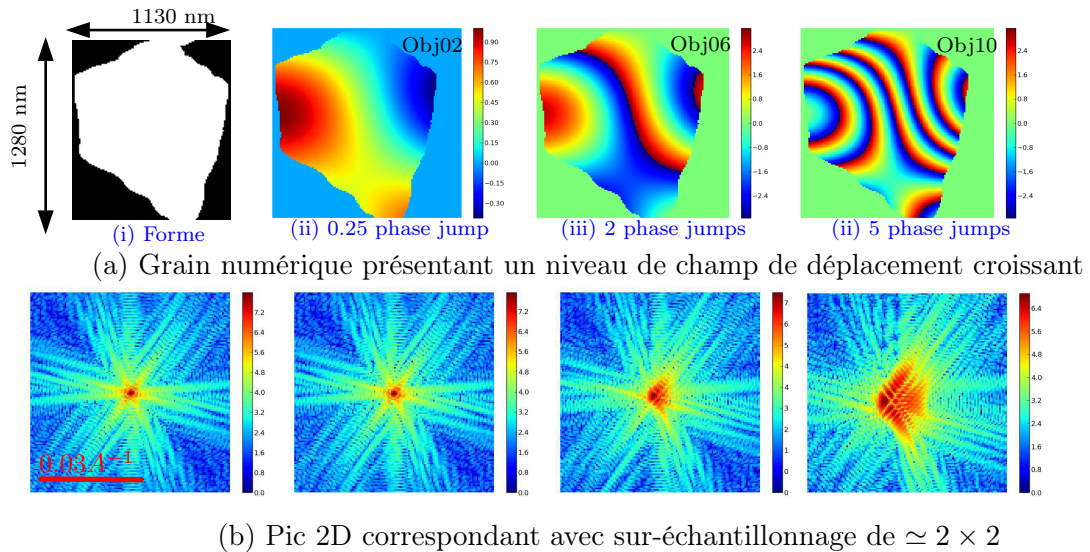


FIG. 5.4 – Description de l'échantillon numérique étudié

### 5.2.1 Influence du niveau de déformation de l'objet - Cas 2D

L'étude a été limitée à un cas 2D en variant le niveau de déformation, le sur-échantillonnage et le bruit de mesure. Aucune information sur l'objet n'est disponible. Une approche via adaptation de support SW sera adoptée.

**Préparation des données de diffraction numérique** Un objet présentant la même allure que le grain #g1 de P3 a été choisi. Une échelle a été choisie pour faciliter les comparaisons ( $1280 \times 1130 \text{ nm}$ ). Ce choix de dimensionnement est facultatif : il s'agit ici uniquement de tester les algorithmes. Les champs de déplacement  $u_x$  et  $u_y$  choisis correspondent à deux sinusoides croisées de période différentes.

$$u_x(x, y) = a_0 \cos\left(\frac{2\pi x}{2l_x}\right) \cdot \cos\left(\frac{2\pi y}{1.5l_y}\right) \tag{5.15}$$

$$u_y(x, y) = a_0 \cos\left(\frac{2\pi x}{5l_x}\right) \cdot \cos\left(\frac{2\pi y}{4l_y}\right) \tag{5.16}$$

$$\phi(x, y) = G_{11} \cdot (\cos(45^\circ)u_x(x, y) + \sin(45^\circ)u_y(x, y)) \tag{5.17}$$

Le pic (11) sensible à ces deux composantes est alors calculé pour 12 niveaux de déformation. Ils sont obtenus en augmentant l'amplitude  $a_0$  des sinusoides qui permet d'augmenter le niveau de déformation intra-grain. On notera que ces champs analytiques n'ont pas de sens physique particulier en terme mécanique. Compte-tenu de ces champs, plusieurs séries de pic de diffraction décrits avec des résolutions différentes sont calculés. La série nommée *Over4* correspond à un sur-échantillonnage dans les directions x et y de  $\sigma_x^{Over} \times \sigma_y^{Over} = 2.0 \times 2.26$ . Ces valeurs sont calculées en considérant les deux plus grandes dimensions de l'objet. L'échantillonnage surfacique est donc un peu plus important  $\sigma_{2D}^{Over} = 6.60 = 2.7^2$ . Dans ces conditions, l'extension dans l'espace réciproque vaut  $\Delta q = 0.0627 \text{ \AA}^{-1}$  et la résolution de  $\delta q = 2.45e^{-4} \text{ \AA}^{-1}$ . Les pics de la famille *Over16* correspondent à un sur-échantillonnage de  $\sigma_{2D}^{Over} = 26.5 = 5.13^2$ , l'extension est la même mais la résolution de mesure est plus fine  $\delta q = 1.22e^{-4} \text{ \AA}^{-1}$ .

Pour la famille *Over4*, l'évolution du pic en fonction des déformations intra-grain est présentée dans la figure 5.4. Les valeurs des déplacements maximaux sont reportées dans le tableau (5.1). Pour de faibles niveaux de déformation, la tache évolue peu (obj02 très proche du pic correspondant à la forme). En revanche lorsque plusieurs sauts de phase sont présents, la tache est au contraire très distordue. Pour l'objet10, les six sauts de phases correspondent à un déplacement accumulé de 6 plans atomiques sur les 5309 plans que contient l'objet.

$$6 \times 2\pi = \vec{G}\vec{u} = \frac{2\pi}{d}u \Rightarrow u = 6d$$

Une pseudo-déformation moyenne équivalente de 0.113% correspondrait à ce décalage de 6 plans atomiques. Ces valeurs sont tout à fait compatibles avec les déformations résiduelles attendues dans les films d'or polycristallins étudiés (cf §. 4.2).

Sur l'ensemble des pics 2D calculés, un bruit de type poissonien en  $\sqrt{I(q)}$  simulant le bruit de mesure est rajouté. Cette première série de pics sera nommée *Noise1*. Une seconde série de pics *Noise100* a été recalculée en divisant l'intensité par cent et en rajoutant ce même type bruit. On remarquera que l'adjonction de ce bruit poissonien, implique indirectement l'application d'un filtre passe-bas. En effet toute les valeurs de l'intensité inférieures à 1 sont transformées en zéro. Ce point

correspond à la réalité expérimentale, où la dynamique de mesure est forcément limitée. Au final pour le pic *Noise1 Obj10*, le maximum d'intensité est autour de  $I_{max} \simeq 8e^7$ . Cette valeur correspond à un rapport signal sur bruit de  $\simeq 3000$ . Le même pic pour *Noise100* aura une dynamique max de  $\simeq 8e^5$  soit un rapport signal sur bruit de 300. On notera que le rapport signal sur bruit est différent sur chacuns des pixels de la carte d'intensité. Un pixel situé à proximité immédiate du vecteur de Bragg réceptionnera beaucoup plus de photons et aura donc une meilleure statistique de mesure. Loin de la position de Bragg, le nombre de photons réceptionné est plus faible, le bruit a une plus grande influence. D'autre part, l'amplitude des hétérogénéités de déformation a une influence indirecte sur le rapport signal sur bruit via l'étalement de l'intensité intégrée sur de plus nombreux pixels. Pour le pic non déformé *Noise1-Obj00*, le maximum d'intensité est sensiblement 12 fois plus élevé que sur l'objet *Obj10* et possède donc un rapport  $R_{SNR} \simeq 10000$  : soit plus de trois fois meilleur.

**Reconstructions réalisées** Les reconstructions sont réalisées sans aucune information sur l'objet diffractant. Certains pics sont fortement distordus. Le support n'est pas estimé par autocorrélation. Un support de forme carré assez grand  $150 \times 150$  est choisi : 22500 inconnues sont laissées libres. En réalité, l'objet est décrit par 9925 points. Ce support est représenté par le cadre en pointillé rouge dans les figures du graphe 5.5. Des adaptations de support sont alors réalisées entre des cycles où ER et HIO se succèdent. Le seuil du SW est choisi assez faible avec  $seuil_{sw} = 0.1$ . Seuls les pixels dont la densité est inférieure à 10% de la densité maximale sont supprimés. L'idée est de les supprimer progressivement. Un seuil plus important peut s'avérer dangereux, avec la suppression de pixels qu'il ne fallait pas supprimer. Et comme la procédure est irréversible, la procédure est alors un échec. Ce choix de seuil assez bas, oblige par conséquence à réaliser un nombre important de SW ce qui allonge considérablement la procédure. Un nombre de vingt adaptations est donc choisi. Cette procédure se résume synthétiquement comme suit :

$$20SW \times (5 \times (128ER + 64HIO) + 256ER) + 256ER$$

L'influence du paramètre  $\beta_{hio}$  est plus délicat à interpréter. Il a été choisi à  $\beta_{hio} = 0.8$  car semble être un bon compromis souvent adopté. Dans la figure 5.5 plusieurs étapes de la reconstruction sont montrées pour l'*Obj10* en partant de 2 jeux de phases aléatoires différents. Lors des cinq premiers SW, un nombre important de pixels est supprimé. Entre ces deux tirages les différences sont encore peu visibles. En revanche lors des 10 SW suivants, clairement la reconstruction *Tirage 53* converge progressivement vers la bonne solution contrairement au *Tirage 15*. Pour mieux caractériser cette convergence, 100 reconstructions avec la même procédure sont lancées à partir de tirages initiaux de phase aléatoire différents. Cette étude statistique est un moyen d'appréhender l'influence du niveau de déformation sur la procédure. En particulier, pour chaque objet *Noise1*, un histogramme des erreurs métriques *Er* est tracé. Pour les objets modérément déformés une allure bi-modale est clairement observable (Fig. 5.6). Les reconstructions appartenant à la distribution de

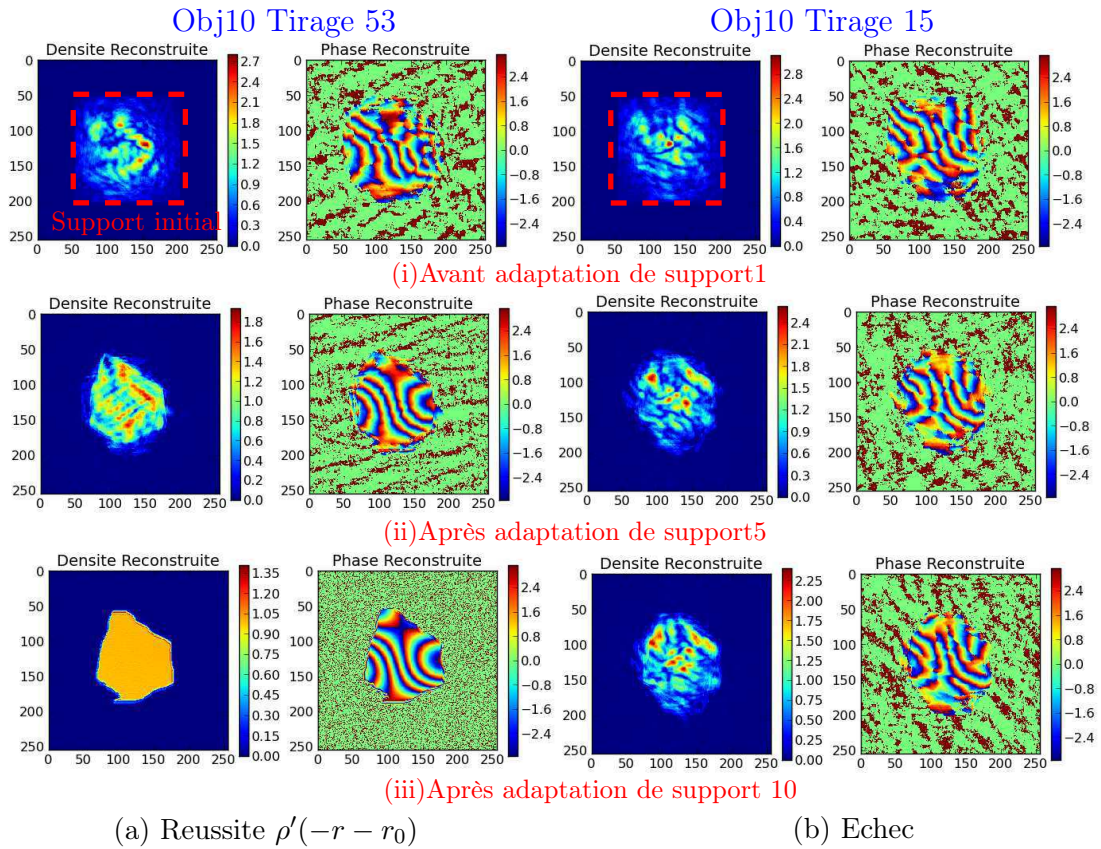


FIG. 5.5 – 2 reconstructions pour le pic correspondant à objet 10 (6sauts de phases)

faible erreur métrique sont des succès. Une observation des champs reconstruits le confirme. Lorsque les hétérogénéités de déplacement augmente, les reconstructions sont plus difficiles et le caractère bi-modal de l’histogramme des erreurs métriques est moins marqué. Un premier critère de succès est postulé : les reconstructions à faible erreur métrique ( $Er \sim 10^{-3}$ ) relativement séparée d’un niveau moyen d’erreur ( $Er \sim 10^{-2}$ ) sont des réussites. La courbe taux de réussite en fonction du nombre de saut de phase est tracée figure 5.6b.

Le taux de réussite monte jusqu’à 70% pour les objets sièges d’un demi saut de phase. Le nombre de réussites devient de plus en plus rare lorsque le nombre de saut de phase augmente. Pour l’ *Obj10* présentant 6 sauts de phase, seules trois reconstructions sur cent sont des succès. La courbe  $Er(\text{Itération})$  est tracée pour ces 3 réussites (5.6c). Un graphe équivalent lors d’un échec est également rajouté à titre de comparaison. L’erreur a une allure en dent de scie, des zones d’augmentation alternent avec des zones de diminution. Il s’agit d’une allure standard lorsque une alternance d’ER et HIO est utilisée. Lors des étapes de HIO, l’erreur augmente brusquement pour ensuite en général recommencer à diminuer. Ce comportement



	Obj00	Obj02	Obj04	Obj06	Obj08	Obj10
$\Delta(G.u)_{max}$ (rad)	0	1.525972	6.103887	13.73374	24.41554	38.149
Nbre de sauts de phase	0	0.24	0.97	2.19	3.88	6.07
Tirage1	0.004454	0.020897	0.018360	0.017579	0.022433	0.030244
.....	...	...	...	...	...	....
.....	...	...	...	...	...	....
Tirage100	0.005642	0.004511	0.020179	0.020394	0.023739	0.029161
Taux Réussite(%)	30	60	40	20		3

TAB. 5.1 – *Erreur métrique finale et taux de réussite en fonction du niveau de déformation (données Noise1)*

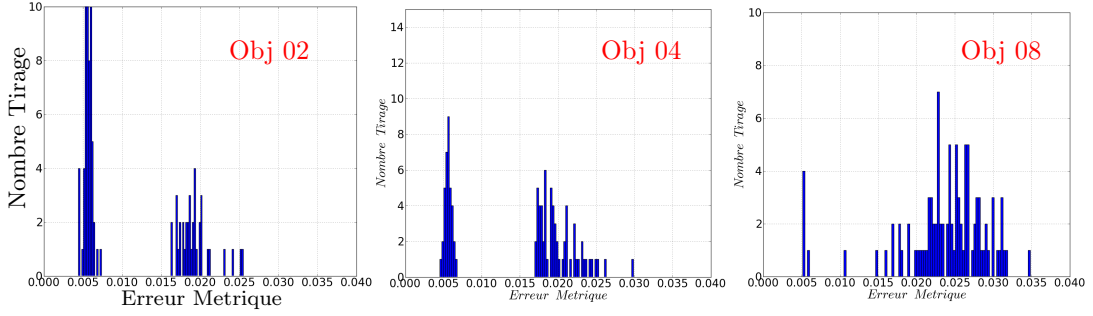
peut semble-t-il être vu comme la manière du HIO de s'extraire des minima locaux éventuels en augmentant temporairement les phases non présentes sur la zone complémentaire du support. Il est plus intéressant de remarquer une inflexion dans l'allure lors des 3 réussites. Au contraire lors des échecs l'erreur semble clairement stagner. Pour tous les autres niveaux de déformation, toutes les réussites présentent cette inflexion, qui est donc caractéristique de la convergence. La position de cette inflexion est variable pour les trois réussites, l'algorithme sort des minima locaux à un moment quelconque. Un nombre plus important de cycles permettrait-il d'augmenter la probabilité de converger vers la bonne solution ?

On remarque que l'objet non déformé à un taux de succès plus faible que les objets possédant moins d'un saut de phase. Pour les objets très peu déformés, l'intensité est répartie sur une plus faible zone dans l'espace réciproque, l'influence du bruit est différente. Cette constatation pourrait se rapprocher des observations décrites dans les articles [Quiney 2006, Williams 2006]. Il est montré qu'utiliser un faisceau possédant un front d'onde courbe (intermédiaire de lentille de Fresnel) facilite la convergence des algorithmes <sup>1</sup>.

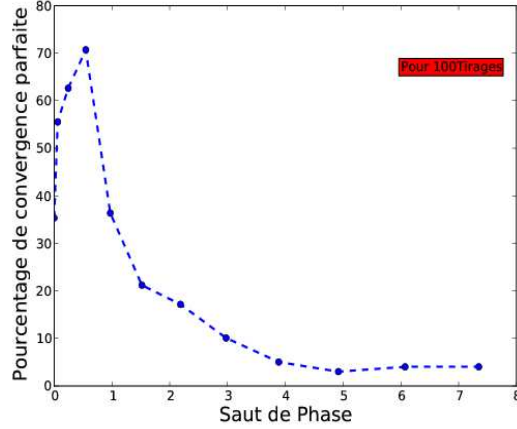
## 5.2.2 Analyse quantitative des résultats

Le critère sur la nature de la distribution des erreurs métriques  $Er$  est avantageux pour caractériser la convergence des reconstructions. Il s'appuie sur un critère objectif disponible dans le cas expérimental (connaissance uniquement de  $I(q)$ ). Néanmoins dans le cadre de cette étude numérique l'objet diffractant est parfaitement connu. Une quantification des résultats est possible. La procédure peut donc être caractérisée rigoureusement. L'analyse des données brutes d'inversion n'est pas directe. Elle nécessite une grande précaution et le développement d'une procédure spécifique.

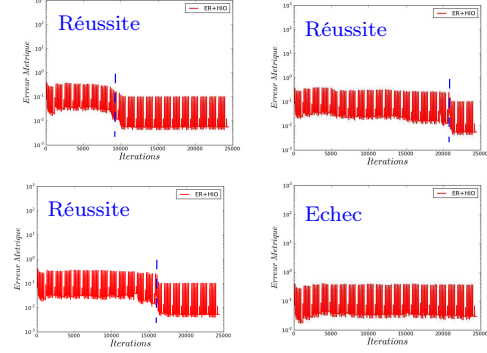
<sup>1</sup>Un front d'onde courbe peut s'apparenter à la présence d'hétérogénéité de déformation (cf §. 2.5.5).



(a) Histogramme ER (amplitude pic) en fonction du niveau de déformation



(c) Taux de réussite en fonction du niveau de déformation



(d) Allure de Er pour les 3 réussite et un échec pour l'objet10 (6sauts de phases)

FIG. 5.6 – Influence du niveau de déformation sur la convergence des reconstructions (critère de convergence s'appuyant sur l'allure de l'erreur métrique)

**4 types de solutions** Plusieurs solutions possèdent le même module de transformée de Fourier (cf §. 2.5). Quatre grandes familles de solutions sont possibles :

$$\rho(\vec{r})e^{i\vec{G}\cdot\vec{u}(\vec{r})} \quad (5.18)$$

$$\rho(-\vec{r})e^{-i\vec{G}\cdot\vec{u}(-\vec{r})} \quad (5.19)$$

$$\rho(\vec{r}-\vec{r}_0)e^{i\vec{G}\cdot\vec{u}(\vec{r}-\vec{r}_0)} \quad (5.20)$$

$$\rho(\vec{r}_0-\vec{r})e^{-i\vec{G}\cdot\vec{u}(\vec{r}_0-\vec{r})} \quad (5.21)$$

Le résultat est connu à une translation  $\vec{r}_0$  près. La solution inverse conjuguée est également possible à une translation près. Une technique est proposée ici pour comparer les résultats à l'objet initial. La comparaison est directement réalisée sur l'objet présentant les phases pliées (i.e. carte de déplacement connue dans un espace modulo  $2\pi$ ). Une erreur de forme  $E_{Forme}$  entre l'objet réel et l'objet reconstruit est considérée en sommant tous les pixels en trop ou en manque. Ici la forme de l'objet reconstruit est déterminé par un seuillage strict, tous les pixels où la densité est

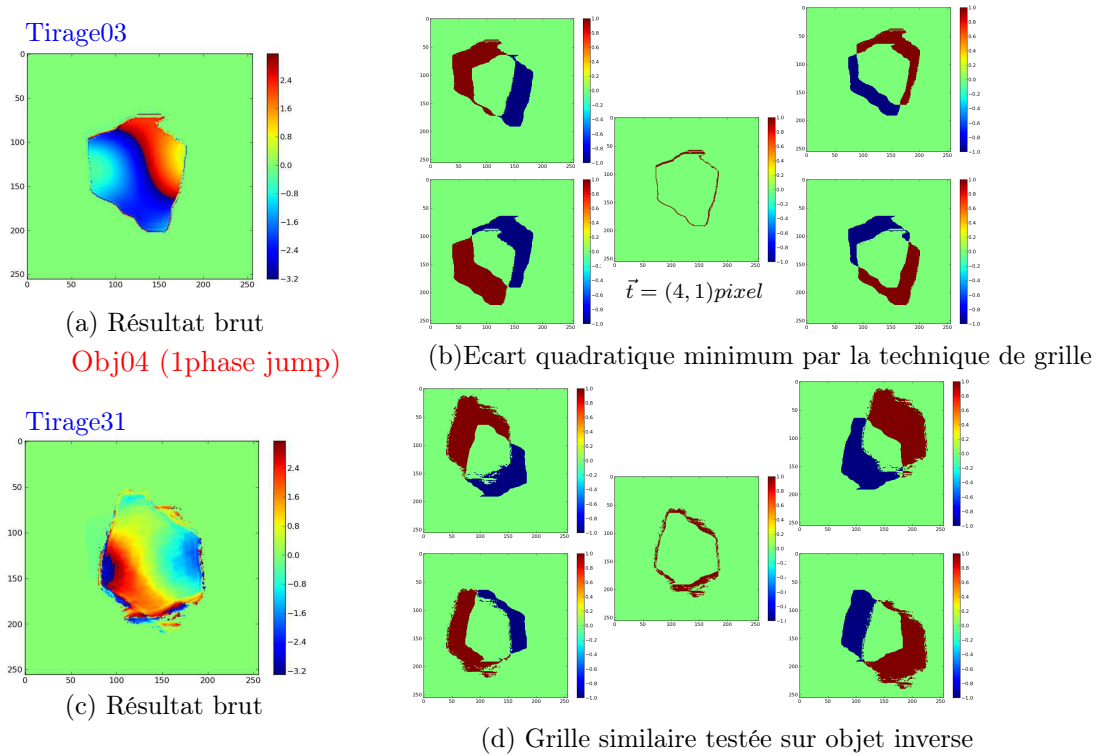


FIG. 5.7 – Procédure de traitement quantitatif des résultats bruts issus de l'inversion

supérieure à zéro sont pris en compte. Cette comparaison est répétée en traduisant l'objet de  $n_x, n_y$  pixels. Pour limiter le temps de calcul, une approche par dichotomie est utilisée. Un premier calcul est réalisé sur des grilles de translation à pas grossier (typiquement pas de 10 pixels). Deux grilles grossières sont calculées pour les deux orientations possibles. Quelques points sont présentés sur la figure 5.7 pour deux tirages. L'erreur de forme minimale est alors sélectionnée entre ces 2 grilles grossières. Ce choix permet de repérer la bonne orientation de l'objet reconstruit. Ce choix d'orientation est assez stable même pour les objets possédant une forte erreur de forme. Dans un second temps, un nouveau calcul est effectué sur une grille fine en utilisant les informations d'orientation et de la valeur grossière de la translation. Finalement à la fin de la procédure la translation optimale est connue à un pixel près. Cette technique de dichotomie n'est pas obligatoire mais elle s'est avérée efficace pour diminuer le temps de calcul. La procédure a été lancée sur les 2500 reconstructions (soit 42 heures sur un processeur).

A partir de cette connaissance de translation optimale, il est possible de caractériser l'erreur sur l'amplitude et la phase de l'objet reconstruit. Pour caractériser

leurs vraisemblances , les grandeurs  $Da_i^2$  et  $Xir_i^2$  sont introduites :

$$Xir_i^2 = \frac{1}{\sum s_i} \cdot \sum s_i \cdot (\phi_r - \phi_0)^2 \quad (5.22)$$

$$Da_i^2 = \frac{1}{\sum s_i} \cdot \sum s_i \cdot (\rho_r - \rho_0)^2 \quad (5.23)$$

Elles correspondent à des erreurs globales sur une zone  $s_i$  de l'objet. Elles sont

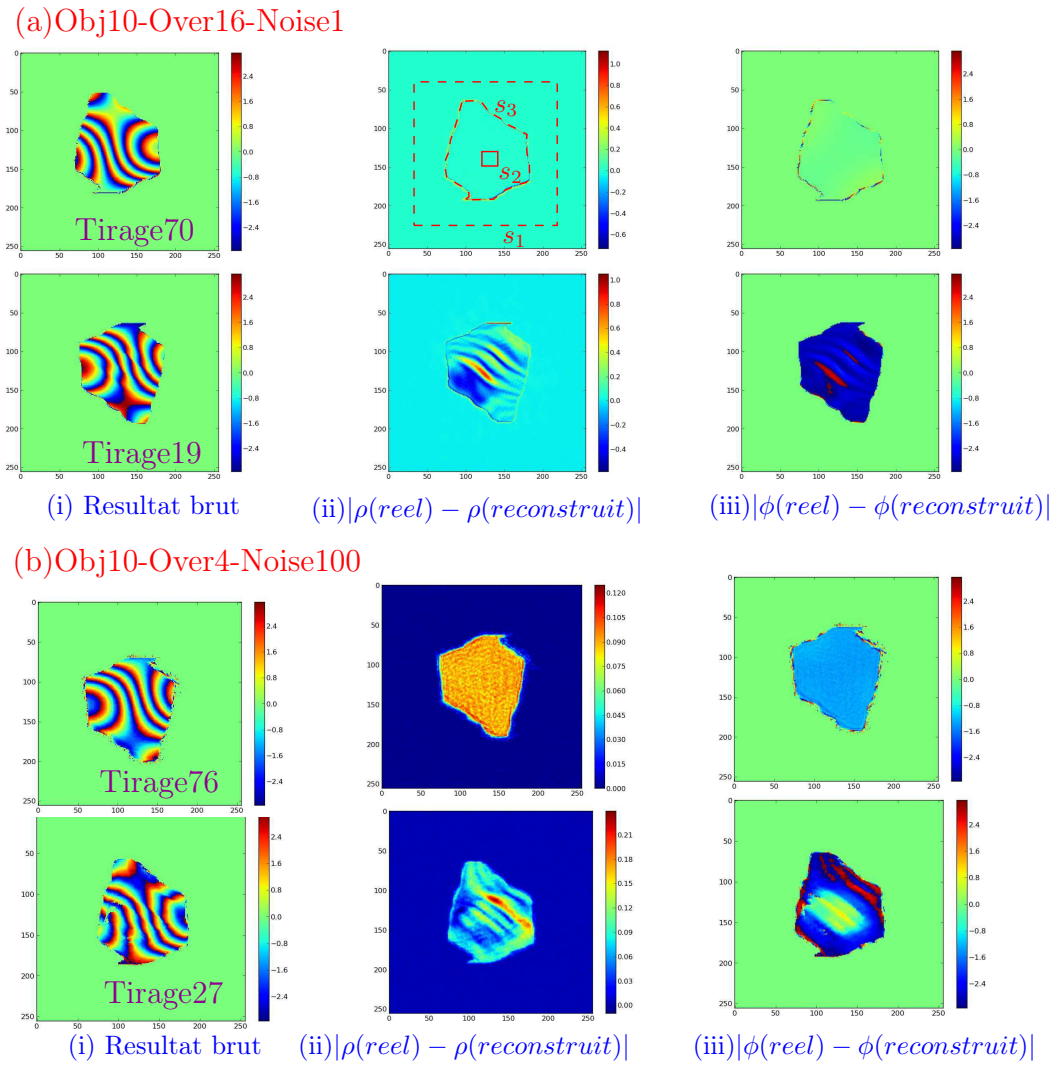


FIG. 5.8 – Quantification de la reconstruction sur objet 10 (6 sauts de phases) pour deux niveaux de bruit

homogènes à un écart type donc leurs carrés à une variance. Plusieurs zones  $s_i$  ont été choisies pour caractériser l'influence locale.  $Xir_3$  et  $D_3$  correspondent aux écarts types sur la zone correspondant à la forme exacte de l'objet. La zone 2 correspond

à une petite zone centrale et la zone 1 au tenseur entier <sup>2</sup>. Des exemples de reconstruction sur l'objet10 sont tracés dans la figure 5.8 pour deux niveaux de bruit. Les résultats bruts sont mis en relation avec les cartes de différences  $\phi_r - \phi_0$  et  $\rho_r - \rho_0$ . Pour les réussites, des bandeaux autour du périmètre de l'objet sont visibles. Ils correspondent à l'erreur de forme qui oscille entre 5 et 10% en surface pour les meilleurs résultats. Pour les réussites les cartes de différences sont très proches entre elles et très proches de la solution de l'optimale. Pour les échecs, les cartes de différence sont très importantes aboutissant à des écarts moyennés de plusieurs dizaines de pourcent.

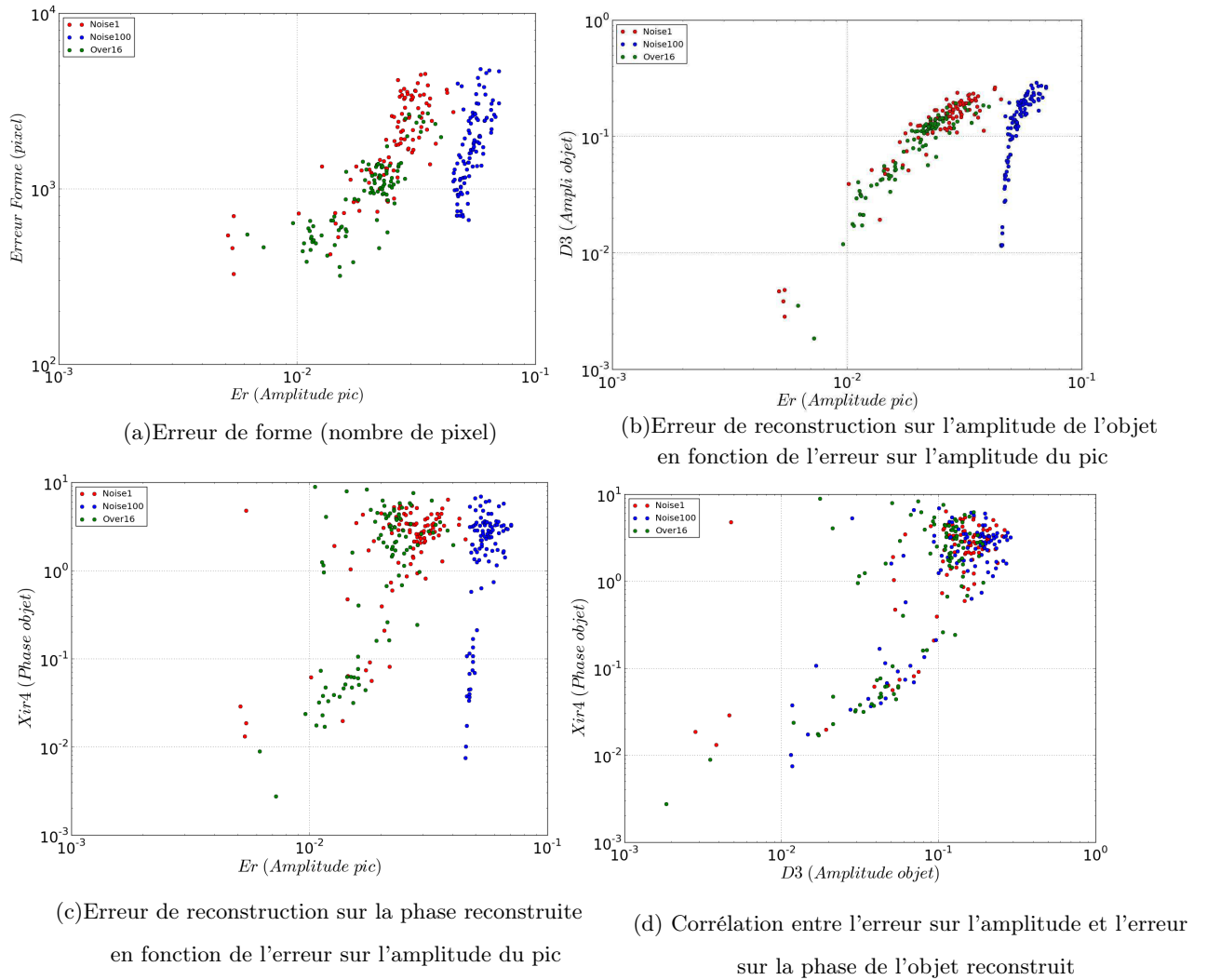


FIG. 5.9 – Influence du bruit et de l'échantillonnage sur la reconstruction de l'objet10

<sup>2</sup>Ces zones  $s_i$  sont des masques composées de 1 à l'intérieur de la région et de zéros à l'extérieur (fig. 5.8a ii))

	Er (coups)	$Xir3^2$	$D3^2$	Erreur forme(pixel)	$n^\circ$ Tirage
Noise1	0.0062	0.00886	0.00352	548	70
Noise1	0.0072	0.00273	0.00185	465	85
Noise1	0.0072	0.00273	0.00185	465	85
Noise1	0.0151	1.592	0.0461	319	19
Noise100	0.0454	0.0744	0.0117	1100	76
Noise100	0.0454	0.00744	0.0117	1100	76
Noise100	0.0455	0.01007	0.0115	1229	6
Noise100	0.0525	3.93627	0.00128	662	27

TAB. 5.2 – Caractéristiques des meilleures constructions de l'objet10 en considérant différents critères pour Noise1 over 16 et Noise100

Pour faciliter la visualisation de ces grandeurs quantitatives obtenues sur ces 2500 reconstructions, des graphes  $Xir(Er)$ ,  $Da_i(Er)$  et  $E_{Forme}(Er)$  sont tracés. L'exemple de l'objet 10 est reporté dans la figure 5.9. Sur ces figures sont reportés également les mêmes grandeurs pour deux sur-échantillonnages *Over16* et *Over4* (point vert et rouge) et deux niveaux de bruit *Noise1* et *Noise100*<sup>3</sup>(point bleu). Ainsi 300 reconstructions sont comparées simultanément pour ce niveau de déplacement intra-grain. Les résultats des données *Over16* sont en moyenne meilleurs que ceux *Over4*. L'influence du bruit est particulièrement instructive. Pour *Noise1* un comportement linéaire (graph en loglog) en  $Xir(ER)$  est sensiblement observable. Un resserrement de la distribution autour d'un niveau d'Er ( $\sim 10^{-1}$ ) se précise pour *Noise100*. Parmi tous ces points à *Er* très semblables, certains possèdent de bonne vraisemblances en  $Xir$  et  $D$ . Les bons résultats sont donc moins facilement discernables des mauvais lorsque seule l'Er est disponible. En raison du bruit, l'erreur métrique *Er* est comme bloquée par un mur à  $10^{-2}$ .

D'autre part pour mettre en évidence la corrélation entre erreur sur densité et phase reconstruite, le graph  $Xir(Da)$  est reporté (fig 5.9d). Une corrélation moyenne apparaît clairement. Les réussites ont à la fois une bonne vraisemblance en  $D$  et  $Xir$ . Cependant elle n'est pas parfaite. La meilleure reconstruction en terme de densité ne l'est pas forcément en terme de phase et vice versa. L'influence du bruit joue un rôle important dans ces phénomènes. De la même manière, les reconstructions dont l'ajustement de la forme est le meilleur ne sont pas forcément les meilleures en terme de phase ou densité. A titre illustratif, la meilleure reconstruction en terme de forme est présentée dans le tableau 5.2 : il s'agit d'un échec de reconstruction !

**Précision sur le champ  $u$  reconstruit** Pour la série *Noise1*, la meilleure reconstruction de l'Obj10 en terme de  $Xir$  est obtenue avec les données les mieux sur-échantillonnées. Cette constatation est logique, plus de données sont disponibles pour déterminer un même nombre d'inconnues. Un calcul d'incertitude sur le champ

<sup>3</sup>avec même échantillonnage *Over4*

de déplacement s'écrit simplement :

$$\phi = G \cdot u = \frac{2\pi}{d} u \Rightarrow \Delta u = \frac{d}{2\pi} \Delta \phi$$

L'incertitude sur la phase peut être assimilée à l'écart type sur l'objet *Xir*. Pour la meilleure reconstruction *Obj10*, l'incertitude sur le déplacement est  $\Delta u \sim 0.03232 \text{ \AA}$ . Cette valeur correspond à environ 0.013 de la distance interplanaire  $d_{111}$ . **La technique de reconstruction de phase est précise même avec des données bruitées !**

Cette valeur est à comparer aux précisions de  $3pm$  obtenues par les techniques de microscopie électronique haute résolution en mode analyse de phase géométrique (*GPA :Geometric Phase Analysis*) [Hytch 2003]. Les deux techniques sont donc similaires en terme de précision. En revanche, la résolution spatiale en microscopie est meilleure  $< nm$ .

**Résolution effective des reconstructions** Pour toute technique d'imagerie, la question de la résolution est essentielle. Il faut bien distinguer l'extension dans l'espace réciproque qui nous donne une taille de pixel dans l'espace réel, et la capacité à décrire effectivement un détail dans l'espace direct. Expérimentalement, la meilleure résolution obtenue avec un objet cristallin est de  $5nm$  en imagerie à l'ordre zéro [Schroer 2008]. La résolution dépend intimement de la possibilité de mesurer de grandes valeurs de  $q$  dans l'espace réciproque. Cette possibilité dépend donc à la fois de la source utilisée et de l'échantillon. La détermination de l'extension maximale acceptable  $\Delta q_{max}$  est subjective. Le mieux est de tester sur la reconstruction dans l'espace direct cette résolution en regardant la netteté d'un détail. En toute généralité il reste difficile d'affecter une résolution à la technique d'imagerie cohérente. Elle dépend du flux incident, du pouvoir diffractant de l'échantillon et de la détection !

### 5.2.3 Discussion

**Il semble possible de reconstruire le champ de déplacement dans un grain fortement déformé d'environ  $1\mu m$  sans connaissance particulière de l'objet diffractant avec une très bonne précision.**

Mais

- Le taux de réussite en utilisant une combinaison de SW + ER + HIO sur 25 000 cycles décroît drastiquement avec le nombre de sauts de phase. De nombreuses reconstructions doivent être lancées pour espérer obtenir quelques bonnes solutions.
- Une dynamique trop faible rend les bonnes solutions plus difficilement discernables des mauvaises par l'intermédiaire de l'erreur métrique sur l'amplitude du signal diffracté.

**Standardisation des procédures ?** Cette approche statistique et quantitative semble être une première étape en vue d'une éventuelle standardisation des procédures d'inversion. Ici l'étude est limitée à une forme et un champ de déplacement particulier (pour se rapprocher des données expérimentales obtenue sur le grain #g1 de P3). Avoir une vision générale de la technique nécessite de tester les procédures sur un large éventail de paramètres :

- une variété de formes d'objet <sup>4</sup>
- une variété de type de champs  $u$  inhomogènes
- en rajoutant sur le signal de diffraction simulé une variété d'imperfections expérimentales (la diffusion diffuse, du signal provenant d'un autre objet, des imperfections de faisceau, front d'onde ...)
- .....

Ces différents éléments doivent être alors testés en variant les conditions de reconstructions :

- en variant le dimensionnement des cycles (plus ou moins de cycles, paramètre  $\beta_{hio}$ , nombre de SW ...)
- quantification du rôle des phases initiales. Une sélection des meilleurs germes de phases aléatoires (une approche génétique semble être bénéfique [Chen 2007] ...).
- test sur des objets déformés des algorithmes modernes tel le HPR, DM, RAAR
- ....

Le tout bien sûr préférentiellement avec des objets 3D. Cette liste n'est pas exhaustive. Une standardisation complète de la technique semble lointaine. L'apparition d'une technique robuste est souhaitable, mais elle nécessitera d'être rigoureusement testée.

---

<sup>4</sup>Des objets numériques classiques existent déjà comme les étoiles de Siemens pour tester les résolutions, ou le fantôme de Shepp-Logan (objet 3D non connexe utilisé pour tester les techniques de tomographie).



### 5.3 Aspects numériques et temps de calcul

Lors de cette étude numérique, 2500 calculs sur de petits objets  $256 \times 256$  ont été lancés. Chacun des calculs est composé de 25000 cycles durant sensiblement 27 minutes, soit en cumulé environ 47 jours de calcul sur un simple ordinateur de bureau. Faire la même étude avec un objet  $128 \times 128 \times 128$  prendrait sensiblement 11 ans et demi sur ce même ordinateur ! La question du temps de calcul est une question essentielle dans cette problématique de reconstruction de phase algorithmique. La puissance de calcul est clairement un enjeu. Des solutions stables et performantes doivent être utilisées.

**FFT et Inversion** Le point clef de l'algorithme est l'usage intensif des transformées de Fourier. L'optimisation de la procédure se joue donc au niveau de cette opération. Heureusement, il existe des algorithmes performants pour calculer les transformées de Fourier discrètes : l'algorithme FFT (*Fast Fourier Transform*) [Cooley 1965]. La complexité des codes FFT est sensiblement en  $n \log(n)$  contrairement à un calcul direct qui serait en  $n^2$ . Les algorithmes FFT ont connu de nombreux développements depuis leur apparition. Désormais une des meilleures solutions libres est la librairie *FFTW* [Frigo 2005]<sup>5</sup>. Elle est complète avec notamment la possibilité de calculer des FFT multi-dimensionnelles complexes en version simple ou distribuée<sup>6</sup>.

Cet algorithme FFTW a la particularité d'être optimisé pour des tailles de tenseurs qui sont des puissances de 2. Au contraire il sera dramatiquement plus lent pour des tailles de tenseurs dont l'une ou plusieurs des dimensions est un nombre premier. Quelques exemples de temps de calcul sont donnés dans le tableau 5.3. Expérimentalement, à la suite de cette constatation, lors des mesures 3D un nombre adéquat de coupes a été acquis pour travailler avec une taille de tenseur compatible avec les meilleures potentialités des algorithmes de FFT (typiquement en faisant 128 coupes en  $\omega$ ).

Un autre point important à anticiper est la taille de mémoire nécessaire pour les cycles de reconstructions. Avec le HIO, il est nécessaire de stocker 4 tenseurs sur la mémoire RAM lors de la boucle. En double précision (float) chaque élément du tenseur est codé sur 64 bits ou 8 octets<sup>7</sup>, ainsi la mémoire nécessaire pour un objet de  $128 \times 128 \times 128$ , est d'environ 67Mo. Cette taille reste tout à fait acceptable. Avec un processeur muni d'une mémoire de 2GB, la taille limite de tenseurs est  $400^3$ . Quelques exemples sont reportées dans la tableau 5.3 : pour un tenseur  $1024^3$ , 35 Go de RAM sont nécessaires !

Pour des tenseurs 3D volumineux il n'est plus possible de travailler avec des processeurs uniques. Il faut alors distribuer le calcul en parallèle sur plusieurs processeurs. Néanmoins la FFT est une tâche délicate à distribuer : de nombreuses com-

<sup>5</sup><http://www.fftw.org/>

<sup>6</sup>Version distribuée via MPI uniquement pour la version 2.1.5

<sup>7</sup>1byte = 8 bit = 1 octet. Les mémoires RAM sont par usage quantifiées en GigaOctet (Go) ou GigaByte (GB)

Tenseurs	Mémoire nécessaire(MB)	Temps FFT Python (FFTW en s)	Temps FFT Scilab4.1 (en s)
1024 x 1024	33.5	0.26	2.048
384 x 576 x 41	290.2	3.99	19.70
1024 x 1024 x 22	738.2	8.22	-
128 x 128 x 128	67.1	0.57	4.02
256 x 256 x 127	266.3	7.23	14.55
256 x 256 x 128	268.4	1.99	16.40
256 x 256 x 256	536.9	4.66	39.29
1024 x 1024 x 1024	34359.7	-	-

TAB. 5.3 – Temps pour effectuer une FFT pour différentes tailles de données avec des langages de programmation différents sur un processeur d'une des lames du cluster

munications entre processeurs sont nécessaires au cours du calcul. Ainsi le surcoût parallèle peut rendre cette solution non pertinente selon le mode de communication entre processeurs. Le graph 5.10b résume le gain de temps de calcul en utilisant une procédure parallèle pour différent modes de communication. Le *Speed-out* (gain de rapidité dû à l'utilisation du calcul parallèle) est assez décevant pour le protocole GigabitEthernet, très satisfaisant pour les multi-coeurs. Le protocole infiny Band propose des speed-out intermédiaires.

Les reconstructions de phase réalisées dans l'article [Chapman 2006] sont à signaler. Des calculs sont faits à partir de données  $1024^3$  soit avec un besoin de mémoire de plus de 32Go. Une approche parallèle a donc été adoptée sur un cluster 32 processeurs infiny Band Macintosh Xserve G5 (4GB de RAM par noeud). Pour les FFT, une librairie (*dist\_fft*) spécifique a été utilisé. Cette librairie a été spécialement implémentée pour ce projet par les ingénieurs du Apple Advanced Computation Group. Grâce à cette mise en oeuvre numérique, les reconstructions 3D ont pu être réalisées proprement en effectuant plus de 300 fois les calculs. Sans cet outil numérique puissant, toutes les vérifications qui appuient ce travail aurait été impossibles.

**Solution mise en oeuvre** Un cluster NEC 64 processeurs GB ethernet a été utilisé pour les analyses de données de ce travail de thèse. Il est clairement non avantageux de distribuer le calcul de la FFT avec ce cluster, mais ses possibilités de calcul ont tout de même été très utiles. L'étude numérique sur les objets 2D a été réalisée sur 12 processeurs, ainsi le temps de calcul a été réduit à deux campagnes de 2 jours de calcul. Dans la pratique, les codes ont été lancés sur le cluster en utilisant deux solutions distinctes.

**Version Ngrid Engine** La version la plus simple pour lancer plusieurs calculs simultanément sur un cluster est la solution NgridEngine. Les n calculs sont chargés

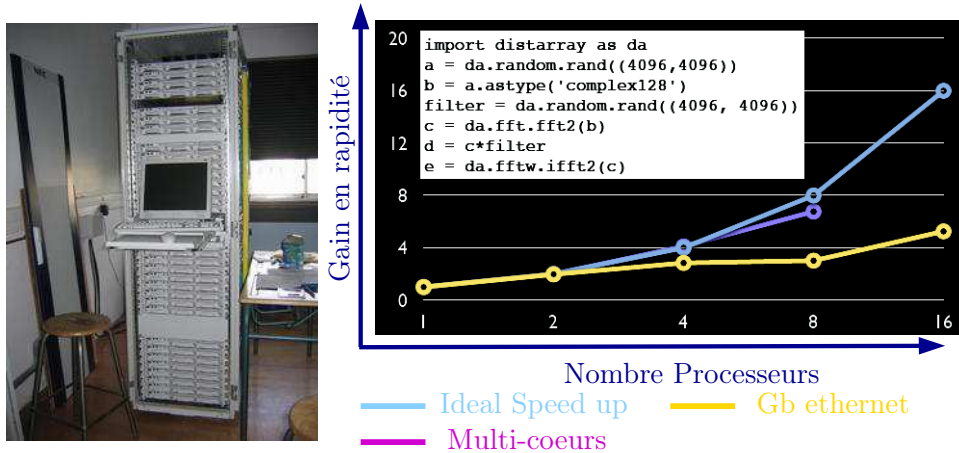


FIG. 5.10 – (a) Cluster utilisé pour ces études et (b) Performance des FFT parallélisées selon le protocole de communication entre les processeurs (source B. Granger)

avec la fonction qsub. Un fichier de lancement de tâches (ou fichier *.bash*) est donc de la forme :

```
#!/bin/bash
qsub -V -cwd calc0.bash
....
qsub -V -cwd calc10.bash
```

Où le fichier *calc0.bash* contient le code à exécuter, par exemple `scilab -nwni -nb -f Reconstruction0.sce`. Le code *Reconstruction0.sce* est un code qui pourrait s'exécuter sur une machine simple. L'avantage de cette technique est la simplicité d'utilisation : la machine maître (ou Front-end) affecte les calculs aux processeurs libres. En revanche, il faut générer tous les codes un par un. Des interactions entre les calculs en cours d'exécution sont également impossibles avec ce protocole.

**Version MPI** La solution MPI permet mieux de tirer avantage des possibilités parallèles avec des possibilités de communication entre les différents calculs exécutés sur différents processeurs. Ce protocole peut s'utiliser très simplement dans des codes python grâce au package *mpi4py*. Pour lancer ces tâches, un script *.bash* de la forme suivante a été utilisé :

```
#!/bin/bash
xhost +
DISPLAY=10.1.1.1 $ DISPLAY
mpirun -np 12 -x DISPLAY -mca btl self,tcp --nolocal --hostfile hosts.txt
python2.4 Tirage0.py
....
```

```
mpirun -np 12 -x DISPLAY -mca btl self,tcp --nolocal --hostfile hosts.txt
python2.4 Tirage99.py
```

Ici le code `Tirage0.py` est un calcul qui correspond à l'étude numérique sur les 12 niveaux de déformation. Ainsi, ce script lance 12 calculs simultanément sur les 12 processeurs choisis dans le fichier `hosts.txt`. Ici, cette tâche est répétée 100 fois à la suite pour obtenir la statistique sur les cents tirages aléatoires de phases initiales (cf §. 5.2). La ligne `DISPLAY=10.1.1.1 $DISPLAY`, est une petite astuce qui permet d'utiliser la machine maître (front end) pour sauver des images pendant le calcul. Cette étape ne peut être réalisée sur les noeuds qui ne possèdent pas de serveur d'affichage (display), alors que le package `pylab` en a besoin pour sauver des figures. Dans le code `Tirage0.py`, les lignes suivantes sont utilisées pour initialiser le partage des calculs entre les différents noeuds.

```
from mpi4py import MPI
comm = MPI.COMM_WORLD
rank = comm.Get_rank()
size = comm.Get_size()
##
Iexp = open(I[rank])
....
```

La fonction `Get_rank()` est appelée. Elle permet de lancer sur le noeud `rank` un calcul à partir du pic expérimental  $I[rank]$  correspondant à un niveau de déformation spécifique indexé par `rank`.

Pour utiliser plus astucieusement les calculs lancés simultanément, la fonction `gather` est également attractive. Imaginons lancer 12 calculs à partir de phases initiales différentes. Au bout de  $n$  itérations le choix du meilleur germe de phase peut être effectué en choisissant la plus petite erreur métrique sur ces 12 reconstructions en cherchant l'indice du minimum de la liste des 12 erreurs métriques. Cette liste est communiquée à chaque processeur (les 11 autres valeurs proviennent des 11 autres processeurs) via la fonction `ListeEr = comm.gather(Er)`. Le calcul peut alors se poursuivre à la volée sans intervention manuelle avec ce germe sélectionné.

Les possibilités sont nombreuses et cette démarche combinant la puissance du calcul parallèle MPI avec la simplicité du langage python est attractive. Les études systématiques en 3D restent toutefois difficile à réaliser. Avec les codes utilisés ici, la même étude statistique (§. 5.2) de l'influence du niveau de déformation sur les reconstructions avec des objets  $256^3$  prendrait 130 jours de calculs en utilisant les 64 processeurs du cluster NEC. Il semble alors nécessaire de réaliser cette étude soit avec un cluster de 1024 processeurs similaires, soit avec des clusters plus performants soit en optimisant les codes. Des calculs avec des processeurs possédant un important nombre de coeurs ou des calculs sur cartes graphiques pourraient dans l'avenir devenir des alternatives intéressantes.

## 5.4 Revue de la littérature - Reconstruction de phase en géométrie de Bragg

Une revue partielle des résultats expérimentaux relatifs à la procédure d'inversion en géométrie de Bragg est présentée maintenant. Dans les différents travaux présentés, des points délicats ont été rencontrés. Ils constituent, ainsi que les solutions proposées, un point de départ important pour tout projet d'inversion. Les spécificités de l'inversion en 2D puis en 3D seront décrits dans les deux prochains paragraphes.

### 5.4.1 Travaux 2D

**Remarque préalable** En géométrie de Bragg, une coupe 2D du signal de diffraction est sensible à la forme et au champ de déplacement de l'objet en volume. En effet pour une réflexion symétrique, l'objet reconstruit correspond à la projection selon  $\vec{e}_z$  du facteur  $f_0 e^{i\vec{q} \cdot \vec{u}}$ , ou plus précisément :

$$\int_z f_0 e^{i\vec{q} \cdot \vec{u}(x,y,z)} dz \quad (5.24)$$

Si le champ  $\vec{u}(x, y, z)$  est indépendant de  $z$ , la reconstruction sera la suivante :

$$\text{Objet} = N_z f_0 e^{i\vec{G} \cdot \vec{u}(x,y)} \quad (5.25)$$

où  $N_z$  est le nombre d'atome présents dans l'objet dans la direction  $z$ . Ce développement et certaines de ces implications sont traités dans l'article [Labat 2007]. Plusieurs points essentiels découlent de cette constatation :

- L'inversion 2D unique à partir d'un objet intrinsèquement 3D rend l'analyse du résultat non trivial. La densité et la phase reconstruite ne sont pas représentatifs d'une coupe 2D de l'objet et de son champ de déplacement.
- **Les procédures de SW sont à éviter lors d'inversion de signal 2D !**  
La densité reconstruite peut être faible sur les bords de l'échantillon par effet de projection et non par absence de matière. Une adaptation de support peut alors supprimer une zone qui contient effectivement de la matière. La reconstruction est faussée! <sup>8</sup>

Travailler avec des données 2D reste néanmoins attractif, car les procédures d'inversion sont beaucoup moins lourdes. Des données provenant d'objet présentant un fort rapport d'aspect dans une direction peuvent être traitées en 2 dimensions. Les nano-fils ou des lignes de SOI sont des objets très allongés dans une direction. Inverser une coupe 2D perpendiculaire à la grande dimension  $\vec{e}_z$  est alors possible. Implicitement dans les résultats, une stricte homogénéité de l'objet dans cette grande dimension est supposée. Les caractéristiques générales des résultats qui vont être discutés sont reportées dans le tableau récapitulatif 5.4.

<sup>8</sup>Par exemple, le SW ne peut pas être utilisé sur les données obtenues sur la réflexion asymétrique 220 du grain inconnu de S0 §. 4.5.1.2

5.4. Revue de la littérature - Reconstruction de phase en géométrie de Bragg 159

	[Diaz 2009, Chamard 2009]	[Biermanns 2009]	[Favre-Nicolin 2009]
Objet	NW InAs $D$ 150nm	NW GaAs $D$ 600nm	NW Si $D$ 90nm
Set-up	Lentilles de Fresnel-ID01	Lentilles de Fresnel-ID01	Lentilles de béryllium
Bragg	111 symétrique	111 symétrique et 531 asymétrique	Reflexion 111
Camera	CCD Indirect 55 $\mu$ m	MediPix 55 $\mu$ m	CCD direct 20 $\mu$ m
Resolution	8 $\times$ 16nm		28nm
Dynamique			-
Estimé initial	Carré assez grand	Auto-corrélation	-
Procédure	$ER + HIO$	50ER + (100SW $\cdot$ (20HIO)) + ER	ER-Hio-Charge Flipping
Erreur Métrique final			-
Nb tirage	100	70	-
Déformation	Faible	Faible	Faible
Particularité	Etude de l'influence de composantes de I(q) manquantes (masque)		Endommagement sous faisceau
	[Chamard 2010a]	[Minkevich 2007]	
Objet	ZrC 120nm	SOI lines 1 $\mu$ m	
Set-up	ID01-Be lentilles	BM32- Haute résolution	
Bragg	111	Reflexion 004 symétrique	
Camera	CCD direct	Cartographie point par point avec analyseur	
Tenseurs	200 $\cdot$ 200	-	
Resolution	13nm	7.8 $\cdot$ 8.4nm	
Dynamique	1000	$\simeq$ 1000	
Estimé initial	carré	Projection forme MEB pour obtenir support	
Procédure	15(20Er+50HIO) + SW manuel + (Er+HIO)	mHIO avec conditions sur $u$ et $\rho$	
Erreur Métrique final	$< 2.10^{-4}$	$10^{-4}$	
Nb tirage		Nombreux	
Déformation	phi = 0.6rad - considéré comme artefact	$u_z^{max} = 11\text{\AA}$ (8 sauts de phase)	
Particularité	Projection 2D à partir objet 3D - Ajustement front d'onde courbe	Fortement déformé	

TAB. 5.4 – Quelques inversions 2D expérimentales en géométrie de Bragg

Trois études sur des nano-fils ont été réalisées en diffraction cohérente [Diaz 2009, Biermanns 2009, Favre-Nicolin 2009]. Dans les trois cas, des taches de diffraction 3D sont collectées lors d'un balayage en  $\omega$ . Une coupe perpendiculaire à l'axe du fil est extraite puis inversée avec les algorithmes classiques ER, HIO et SW. Dans les trois cas, de très faibles phases sont reconstruites. L'allure générale de ces coupes est clairement dominée par un effet de forme, les tiges correspondant aux différentes facettes des fils sont très nettement visibles. Physiquement cette absence d'hétérogénéité de déplacement est prévisible. Loin de la base des fils, les contraintes sont attendues relaxées comme le confirme certaines des simulations numériques. Expérimentalement de telles études sur des nano-fils se heurtent à la problématique de la dynamique de mesure et du flux incident. Le volume diffractant est particulièrement faible notamment pour des fils de Si de diamètre  $\sim 90nm$ . D'autre part pour être bien résolu dans le plan de coupe  $(q_x, q_y)$ , le balayage en  $\omega$  doit être particulièrement fin ce qui augmente le temps de comptage. L'étude sur les nano-fils de GaAs sont parmi les premières études qui ont bénéficiées des progrès apportés par le détecteur pixel MediPix. Le nano-fil Si  $\sim 90nm$ . a subi des endommagement sous faisceau ! Le rayonnement synchrotron focalisé deviendrait-il destructif pour les nanostructures ?

L'inversion d'un échantillon ZrC de forme octaédrique est particulièrement instructive [Chamard 2010a]. Il s'agit cette fois d'un objet intrinsèquement 3D. Les reconstructions ont été réalisées sur la coupe 2D correspondant au maximum du balayage  $\omega$ . La phase reconstruite est non négligeable  $0.6rad$ . De plus elle présente une symétrie centro-symétrique. Or la projection le long de  $\vec{G}$  du champ de déplacement ne peut pas présenter une telle symétrie. Par raison de symétrie, le champ de déplacement devrait être radial. Après une étude des différents artefacts possibles, il est montré qu'un front d'onde courbe peut expliquer cette forme surprenante de la phase. L'objet est en effet illuminé par un faisceau focalisé par des lentilles de béryllium. Une courbure de  $R = 90\mu m$  correspond bien aux résultats présentés.

**Pour des objets faiblement déformés, les défauts de front d'onde serait prépondérants ! Sans caractérisation préalable du front d'onde, il est impossible de conclure à propos de faible déformation par reconstruction de phase !**

Par corollaire, les distorsions du front d'onde par les lentilles de béryllium entraînent des distorsions de reconstructions inférieures à un saut de phase dans le cas ici présenté.

Les analyses relatives à un échantillon composé de lignes de SOI sont particulièrement instructives [Minkevich 2007]. Une cartographie  $(q_x, q_y)$  correspondant à une coupe transversale de ce réseau de lignes a été mesurée en diffraction haute-résolution. Elle présente un très fort élargissement dans la direction  $\vec{e}_x$ . Dans cette direction, un système de franges est présent. Ces franges nettes ne correspondent pas du tout à un effet de taille, mais à un effet du champ de déplacement. La cartographie n'est pas le résultat de la diffraction d'un objet unique. Il s'agit d'une somme incohérente du signal cohérent d'une seule ligne. Mais pourquoi les différentes lignes n'interfèrent pas entre elles ? Les lignes sont espacées de  $2\mu m$  soit une dimension inférieure à la longueur de cohérence ! Le signal n'interfère pas en raison du carac-

rière rugueuse du substrat. Les lignes n'ont aucune relation de phase entre elles à l'échelle du faisceau. D'autre part, les lignes sont désorientées de  $0.4^\circ$  par rapport au substrat. Le pic du substrat est donc situé loin du pic correspondant aux lignes. Le pic de substrat trop proche aurait ébloui le signal des lignes. Au final, le signal correspond à la contribution d'une ligne unique suffisamment intense pour être mesurée avec un analyseur (par effet subtil de somme incohérente). Cet échantillon est très particulier mais il s'est avéré parfaitement adapté à une procédure d'inversion<sup>9</sup>. En pratique, les mesures avec l'analyseur sont plus longues comparées à celles réalisées avec une caméra mais elles sont plus propres ( cf §. 3.2). Des procédures de reconstruction de phase ont donc été tentées, mais les approches classiques ont échoué. Des conditions supplémentaires dans l'espace direct ont été alors introduites par les auteurs pour contraindre les reconstructions :

- La densité a été forcée être constante à l'intérieur de l'objet excepté pour les bords où une décroissance est tolérée. La forme de l'objet est parfaitement connue. Les données de microscopie électronique sont utilisées pour déterminer le support initial.
- La dérivée de la phase est forcée à être bornée. Les variations du champ de déplacement sont localement faibles.
- Le signe de la dérivée de  $u$  est le même dans les deux demi-espaces . La déformation est attendue symétrique de part et d'autre du plan de symétrie qui coupe la ligne en deux.

Enfin avec ces conditions, la procédure a convergé vers des erreurs métriques très satisfaisantes en  $10^{-4}$ . Le champ de déplacement est quasiment polynomial (le champ  $u$  est proche d'un polynôme du second ordre). Les conditions ajoutées vont dans ce sens. Le point fort de cette étude est une vérification indépendante par éléments finis de la forme de la tache. La condition de chargement a été ajustée pour faire correspondre au mieux les deux taches de diffraction. Au final, les coupes 1D entre la reconstruction expérimentale et la simulation éléments finis coïncident très bien. La robustesse vis à vis d'autres champs inhomogènes de l'application de ces conditions supplémentaires a été étudiée plus généralement par la suite dans l'article [Minkevich 2008].

### 5.4.2 Travaux 3D

Lorsque les systèmes étudiés sont intrinsèquement volumiques, il est préférable de faire des reconstructions 3D. Elles sont plus difficiles. Une comparaison rapide avec les techniques d'imagerie 3D à l'ordre zéro est instructive.

**C'est quoi faire du 3D ?** Reconstruire en trois dimensions un objet à partir de son signal de diffraction cohérente peut être réalisé de différentes manières. Les

---

<sup>9</sup>Une interférence constructive entre des lignes parfaitement cohérente (i.e. substrat parfait) entraînerait un signal avec des satellites (signal composé d'une enveloppe et d'une pulsante). A ce jour, les procédures d'inversion ne peuvent pas prendre en compte un tel cas en géométrie de Bragg. Un cas d'une inversion d'un objet périodique a été traité en géométrie GISAXS [Vartanyants 2005].



deux articles [Dierolf 2010a, Jiang 2010] présentent des reconstructions 3D respectivement d'un os et d'une cellule de levure <sup>10</sup>. Ces deux reconstructions 3D ont été obtenues en deux étapes : une étape de reconstruction de phase puis une étape de tomographie. A l'ordre zéro, des coupes 2D collectées sur la caméra sont obtenues en tournant l'échantillon sur lui-même par rapport à un axe perpendiculaire au faisceau incident (axe  $\phi$ ). L'objet reconstruit à partir de ces coupes 2D est alors sensible à la densité traversée par le faisceau à cette position  $\phi_0$ . Expérimentalement, dans ces articles, ces coupes 2D de l'espace réciproque ont été inversées par des techniques différentes : par technique ptychographique (cf §. 5.6.2) dans le premier, par une approche génétique dans le second. Ces informations 2D sont ensuite assemblées pour former l'image 3D de l'objet étudié. Les techniques classiques de tomographie sont utilisées <sup>11</sup>. Au final, dans les deux cas une carte 3D de la densité de l'objet est obtenue avec une très bonne résolution.

Les reconstructions présentées dans l'article [Chapman 2006] sont instructives. Il s'agit également d'imagerie à l'ordre zéro. L'échantillon est composé d'une centaine de petites billes d'or disposées sur les arêtes d'une pyramide. Le signal 3D a été obtenu en tournant l'échantillon autour de l'axe  $\phi$  (confondu avec l'axe de la pyramide). Ces données ont ensuite été réunies dans un même tenseur régulier dans l'espace réciproque (indexation précise des pixels en  $q$  puis interpolation). Les codes d'inversion sont directement utilisés sur un tenseur  $1024^3$ . L'objet reconstruit est alors directement en 3 dimensions. Cette approche a nécessité une grande puissance de calcul spécialement mise en place pour ce projet (cf §. 5.3).

En diffraction de Bragg, seule l'inversion 3D directe a été tentée. Une approche tomographique n'a pas encore été réalisée. Il serait pourtant possible d'inverser des coupes 2D et de les ré-assembler par technique tomographique. Il faudrait extraire des coupes 2D qui se coupent toutes le long du vecteur  $\vec{G}$ . Cette étape demande une interpolation sur l'objet obtenu expérimentalement par balayage  $\omega$ .

**Principaux résultats 3D en géométrie de Bragg** Les travaux pionniers décrits dans les articles [Williams 2003, Pfeifer 2006], ont établi les bases de l'imagerie 3D en condition de Bragg. Le signal de diffraction est collecté lors d'un balayage en  $\omega$  d'une raie de diffraction. Le tenseur des données est inversé avec les algorithmes classiques. Dans ces deux études des gouttes d'or ou de plomb obtenues par démouillage sur un oxyde, ont été étudiées. Dans le cas de la goutte de plomb, la phase reconstruite comporte moins de un saut de phase. Les hétérogénéités de déplacement sont donc de faible amplitude. Mais les artefacts liés aux conditions expérimentales peuvent être du même ordre de grandeur que les phases trouvées. Les effets de l'indice de réfraction ont été traités ensuite dans l'article [Harder 2007].

<sup>10</sup>Les échantillons biologiques ont un très faible pouvoir de diffusion et sont facilement endommagés par le faisceau X. Les cellules de levures sont un sujet d'étude de choix car elles résistent bien au rayonnement.

<sup>11</sup>Les techniques de reconstructions tomographiques sont nombreuses, les plus utilisées sont les méthodes MIP *maximum-intensity projection*, FBP *filtered backprojection* ou EST *Equally Slopped Tomography*...

	[Williams 2003]	[Pfeifer 2006]
Objet	Gouttes d'Au ( $1 \times 3 \times 5$ ) $\mu m$	Gouttes de Pb $\simeq 750nm$
Set-up	34-ID-C	34-ID-C
Bragg	pic 111 symétrique	pic 111 symétrique
Camera	CCD direct	CCD direct
Tenseurs	$440 \times 440 \times 30$	$324 \times 192 \times 48$
Sur-échantillonnage		$\simeq 8 \times 5.2 \times 2.$
Estimé initial	Boite $100 \times 100 \times 20$	
Procédure	$\simeq 10 \times (150ER + 50HIO) = 2300iterations$	$200HIO + 1000ER$
Erreur Métrique finale	$\simeq 0.04$	$0.022 - 0.024$
Déformation	Non recherchée	$\phi \in [-1.6; 1.6]rad$
Résolution	$(80 \times 80 \times 450)nm$	$\simeq 20nm$
Nb tirage	15	
Particularité	Zone de faible densité interprétée comme étant des macles en volume	Champ de déformation interprété comme le résultat de 2 dislocations
	[Newton 2010b]	[Newton 2010a]
Objet	Pilier de ZnO $D \cdot h \simeq 1 \times 2\mu m$	Bande de SOI isolé $2.3 \times 0.7 \times 0.600\mu m$
Set-up	34-ID-C	34-ID-C
Bragg	6 réflexions indépendantes	111
Camera	CCD direct	CCD direct
Tenseurs		
Estimé initial	Auto-corrélation	
Procédure	$xSW(200PC - HIO + 2ER) + 200PC - HIO + 100ER + 100ER - Phase - only$	HIO + NDHIO
Erreur Métrique final	-	
Déformation	$u_{max} = 0.09nm \simeq 0.17 \cdot c_{ZnO} \Delta\varepsilon_{Recons} \simeq 3e^{-3}$	
Résolution	$50nm$ dans les trois directions	$\simeq 26 \times 15 \times 26nm$
Nb tirage	-	-

TAB. 5.5 – Résultats publiés relatifs à inversion 3D en condition de Bragg

Les défauts de l'illumination et du front d'onde n'ont pas été traités.

**Tenseur complet des déformations dans un pilier de ZnO** Une avancée méthodologique intéressante est décrite dans la publication [Newton 2010b]. Plusieurs raies d'un même mono-cristal de ZnO ont été inversées. Ainsi les trois composantes du champ de déplacement sont connues. Le tenseur total des déformations peut alors être déduit dans tout l'objet avec une très bonne résolution. Expérimentalement, la réussite des mesures sur plusieurs raies reposent sur deux particularités : l'échantillon et le dispositif expérimental. le micro-pilier est isolé dans l'espace direct (donc dans l'espace réciproque). Lors des grands mouvements du goniomètre nécessairement effectués pour aller chercher des réflexions asymétrique, l'objet est remis rapidement sur le faisceau grâce à un microscope confocal. L'expérience a été réalisée sur la ligne de lumière ID-34-C au synchrotron APS.

Néanmoins, l'objet reste très faiblement déformé :  $\Delta u_{max} = 0.09nm$  soit moins de un cinquième de plan atomique (plan de type 200). Les reconstructions restent donc sensibles à toutes les imperfections.

**Echantillon *Highly strained* ?** Une technique est proposée pour traiter le cas des échantillons fortement déformés [Newton 2010a]. L'approche traitée dans le cadre du formalisme des projections consiste à appliquer une condition sur la densité de l'objet en cours de reconstruction moyennant des seuils haut et bas. L'exemple numérique sur lequel est testé l'approche est modérément déformé : il est le siège d'une phase présentant un seul saut de phase ! Sa faculté à être efficace sur des échantillons siège de plusieurs sauts de phase reste à établir.

### 5.4.3 Conclusion

La convergence des algorithmes de reconstruction de phase reste un des verrous de l'imagerie cohérente en condition de Bragg. La technique semble fonctionner pour les objets très peu déformés. En revanche, pour les objets sièges de fluctuations importantes de déplacement, il est clair que la technique reste difficile. L'inversion expérimentale d'objets fortement déformés reste un vrai défi. Dans le cas d'un champ inhomogène  $u$  sensiblement quadratique, une reconstruction a fonctionné en 2D. Une reconstruction 3D irréfutable reste à établir. Il est encore nécessaire d'appuyer une reconstruction par des indices indépendants concordants.

## 5.5 Application aux données collectées sur les films polycristallins d'or

Fort des enseignements issus des simulations et des avancées décrites dans la littérature, des inversions des données expérimentales ont été tentées. Plusieurs approches ont été testées en considérant les principales caractéristiques des données obtenues. Trois grains ont été caractérisés en 3 dimensions lors des différentes campagnes de mesures. Mais quelles sont les données les plus adaptées à l'inversion ?

**Critères de sélection de données inversables** Les caractéristiques de ces trois familles de mesures sont rappelées dans le tableau 5.6. Les principaux critères que doivent remplir des données pour être intéressantes à inverser, sont par ordre d'importance les suivants :

1. Aucun recouvrement dans les trois directions (i.e.  $\sigma_i^{Over} > 1$ )
2. Sur-échantillonnage adéquat
3. Meilleure dynamique possible
4. Mesure la plus étendue possible dans l'espace réciproque

Dans la mesure du possible, il est préférable d'anticiper ces paramètres, en adaptant à l'avance les résolutions de mesures à la taille de l'objet étudié. Les résolutions de mesures dépendent de l'énergie, de la caméra, de la distance échantillon-caméra, du matériau, des réflexions de Bragg choisies. Ces dépendances impliquent une certaine variété de conditions de mesure dans le cas des échantillons d'or étudiés. Dans le cas des polycristaux étudiés, cette anticipation ne pouvait malheureusement être que partielle. En effet, l'objet diffractant n'a été connu avec certitude qu'après l'expérience. L'échantillonnage dans la direction  $\omega$  a été vérifié seulement après les mesures (cf §. 4.4). Les possibilités du moteur  $\omega$  (i.e. pas minimal) fixe la dimension limite pour éviter le recouvrement des données dans cette direction lors de l'inversion. Cette limite d'échantillonnage minimal a heureusement été remplie dans le cas des mesures sur les échantillons S1 et P3. Le second choix important est le choix judicieux du sur-échantillonnage. Un échantillonnage conséquent peut être bénéfique à la convergence des algorithmes. Mais si il est trop important, l'objet reconstruit est dramatiquement peu résolu dans l'espace direct<sup>12</sup>. Par exemple, mesurer un objet de  $1\mu m$  avec un sur-échantillonnage de 25 avec une caméra de 256 pixels, entraîne une reconstruction où l'objet est décrit seulement par 10 pixels. Il faut également toujours garder en tête que travailler avec des tenseurs de données importants a une influence directe sur le temps de calcul et par suite sur la possibilité de varier les tests de reconstruction. Des valeurs de sur-échantillonnage autour de 5 semblent être les plus adaptés.

La dynamique de mesure est importante pour décrire les détails fins des taches de diffraction. Cette dynamique de mesure dépend de nombreux paramètres, mais

<sup>12</sup>Si le champ de la caméra est trop petit, il est possible de la déplacer pour mesurer plus loin dans l'espace réciproque. Ceci s'avère néanmoins peu aisé lors de mesures en 3D.

Echantillon	S1	P3	S0
Energie $keV$	8.10	11.914	5.26
Tenseur	$384 \cdot 576 \cdot 41$	$128 \cdot 128 \cdot 128$	$1024 \cdot 1024 \cdot 22$
Max-Dynamique (photon)	$\simeq 12000$	$\simeq 50000$	3000
Somme photons collectés	$\simeq 32e^6$	$\simeq 30e^6$	$130e^6$
Resolution $\delta q_{ccd}$ ( $\text{\AA}^{-1}$ )	$1.0553e^{-4}$	$2.913e^{-4}$	$2.548e^{-5}$
Resolution $\delta q_{\omega}$ ( $\text{\AA}^{-1}$ )	$4.6577e^{-4}$	$2.3287e^{-4}$	$6.8464e^{-4}$
$(\sigma_{Del} \times \sigma_{Nu} \times \sigma_{\omega})_{Over}$	$\simeq (15 \cdot 8 \cdot 4)$	$4.8 \times 2.1 \times 2.2$	-
Taille pixel RD	$(15.5 \cdot 15.5 \cdot 20) \text{ nm}$	$(16.8 \cdot 16.8 \cdot 21.4) \text{ nm}$	
Nombre de pics	3 températures	25 températures	2 azimuth du même pic 111
Localisation grain	Approximative	Certaine	Pas du tout
Ordre2	Non	Oui	Non

TAB. 5.6 – Principales caractéristiques des données 3D collectées durant les différentes campagne expérimentales

il est préférable d'allonger le temps de mesure au mieux pour obtenir des pics couvrant jusqu'à cinq ordres de grandeurs. Ce point entre en compétition avec le sur-échantillonnage. Un allongement du temps de mesure implique une diminution du nombre de coupes le long du balayage en  $\omega$ . L'extension dans l'espace réciproque est un aspect lié à cette problématique de dynamique de mesure. Loin du noeud de l'espace réciproque, l'intensité diffractée est faible. Il faut alors ajuster au mieux la position de la caméra pour obtenir le meilleur couple échantillonnage-extension possible.

En résumé, "l'inversioniste" doit choisir les meilleurs compromis entre les possibilités expérimentales qui s'offre à lui et ces quatres points.

### 5.5.1 Reconstruction SW sur grain de S1

Les données 3D obtenues sur un grain du polycristal isolé de S1 remplissent ces principaux critères. Des calculs d'inversion ont été donc effectués sur ces données. La connaissance de l'objet diffractant est approximative, ainsi une approche d'inversion en utilisant une adaptation de support via la procédure de SW a été utilisée. Le support initial a été pré-supposé en prenant en compte les interfranges dans les trois directions. Dans le repère de mesures, ces interfranges donnent des tailles de  $(D_{Nu}, D_{\omega}, D_{Del}) = (750 \times 240 \times 390) \text{ nm}$ . Le support est donc choisi comme un parallélépipède correspondant à ces dimensions.

## 5.5. Application aux données collectées sur les films polycristallins 167

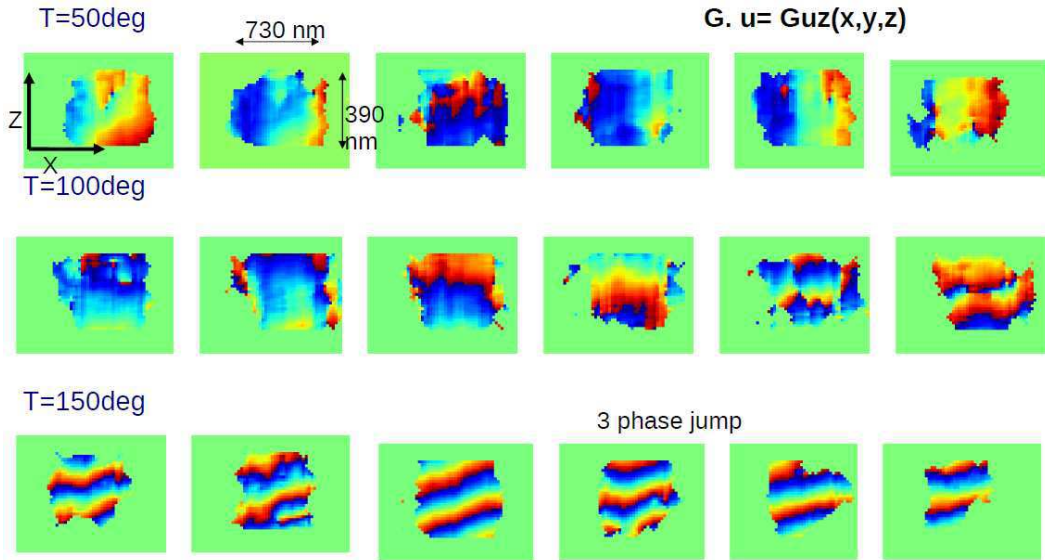


FIG. 5.11 – Tentative de reconstructions sur le grain de  $S1$  par  $SW$  (coupes au niveau du centre de l'objet espacées de  $\Delta y = 15 \text{ nm}$ )

Ce support a été utilisé pour un premier cycle composé d'une succession de  $750ER + 250HIO$ . Au bout de cette séquence, un  $SW$  a été effectué avec un seuil de 0.1. Le nouveau support est alors réutilisé pour la séquence suivante. Finalement la procédure est composée d'environ  $50000FFT$  (50 heures de calcul avec code scilab). Le nombre d'itération d'ER et HIO a été choisi assez grand pour essayer de faire concentrer au maximum la densité autour de la bonne solution. Cette reconstruction est effectuée sur les trois pics 3D obtenus à  $T = 50, 100$  et  $150^\circ C$ . Six coupes de la phase de l'objet reconstruit sont présentées dans la figure 5.11 pour les trois températures. Il s'agit de coupes 2D perpendiculaires à l'axe  $\vec{e}_z$  au niveau du centre du grain espacées de  $15 \text{ nm}$ . La forme reconstruite n'est pas identique pour les trois températures. Comme la forme du grain n'a pas évolué, il s'agit d'artefacts de reconstruction. Cette procédure simple basée sur les algorithmes ER, HIO et SW ne semble pas efficace avec ces données. Effectuer une reconstruction à l'aveugle sur ces grains polycristallins fortement déformés semble être difficile sans informations supplémentaires.

**Excentrement des données expérimentales** D'autre part à  $T = 150^\circ C$ , des sauts de phases sont reconstruits dans la direction  $z$ . Il s'agit en réalité d'un effet de dilatation thermique. Le barycentre de la tache de diffraction bouge avec l'évolution du paramètre de maille de l'or. Or cette composante linéaire du champ de déplacement n'est pas recherchée. Il est préférable de la supprimer pour analyser les données. Notons  $\Phi = \vec{G} \cdot \vec{u}$ , pour alléger l'écriture. Supprimer cette composante

homogène revient à ajuster une pente 3D moyenne du pic modulo  $2\pi$ .

$$\Phi'(\vec{r}) = \Phi_{retrieved}(\vec{r}) - (\vec{\alpha} \cdot \vec{r} + \beta) [2\pi] \quad (5.26)$$

Typiquement un gradient directionnel de saut de phase dans la direction du  $2\theta$  ( $\sim Del$ ) doit faire penser à la présence d'une déformation moyenne.

### 5.5.2 Reconstruction 3D en température sur le grain #g1 de P3

Le traitement des données du grain #g1 de P3 sera effectuée en injectant des informations supplémentaires lors des étapes de reconstruction.

**Données** Les données de P3 ont été collectées avec la caméra MediPix  $256 \times 256$  pixels, mais seule la partie centrale de  $128 \times 128$  pixels a été considérée. Le signal collecté sur les bords de la caméra est trop faible pour être pris en compte. Compte-tenu des paramètres expérimentaux, les résolutions de mesure sont les suivantes :

$$\begin{cases} \Delta q_{ccd} = 128 \cdot \delta q_{ccd} = 128 \times 2.913e^{-4} \text{ \AA}^{-1} \\ \Delta q_{\omega} = 128 \cdot \delta q_{\omega} = 128 \times 2.329e^{-4} \text{ \AA}^{-1} \end{cases} \Rightarrow \delta x_{Del} \cdot \delta x_{Nu} \cdot \delta x_{\omega} = (16.8 \cdot 16.8 \cdot 21.4) \text{ nm}$$

La taille des pixels équivalents dans l'espace direct sont autour de la vingtaine de nanomètres dans les trois directions. Comme les dimensions de l'objet diffractant sont connues, il est possible d'évaluer l'échantillonnage :

$$\sigma^{Over} = \sigma_{Del} \times \sigma_{Nu} \times \sigma_{\omega} = 4.8 \times 2.1 \times 2.2 \quad (5.27)$$

Chacunes des valeurs est bien supérieure à 1, il n'y aura pas de recouvrement de la reconstruction dans l'espace direct. Plus précisément en prenant en compte la forme exacte du grain, l'objet est représenté par 73428 pixels dans l'espace de mesure correspondant au pic 111. Le rapport de sur-échantillonnage volumique est donc :

$$\sigma_{Over}^{3D} = \frac{128 \times 128 \times 128}{73428} = 28.6 \simeq 3.06^3$$

La résolution est différente avec les données du pic 222. Le pas du balayage  $\omega$  est inchangé à  $0.005^\circ$ . Ainsi la résolution dans cette direction est plus faible pour ces mesures, ce qui implique une meilleure résolution dans l'espace direct de la potentielle reconstruction car l'extension de la mesure est plus grande :

$$\Delta q_{\omega}^{222} = 128 \times 4.6574e^{-4} \text{ \AA}^{-1} \Rightarrow \delta x_{\omega} = 10.5 \text{ nm}$$

Mais le rapport d'échantillonnage est diminué à  $\sigma_{\omega}^{222} = 1.08$  dans cette direction. La limite de recouvrement n'est pas franchie. la résolution dans le plan de la caméra et les sur-échantillonnages sont les même qu'à l'ordre 1 puisque la distance échantillon-caméra et l'énergie sont inchangées. Les données à l'ordre 2 peuvent également être inversées.

## 5.5. Application aux données collectées sur les films polycristallins **df69**

---

**Projection de la forme du support dans l'espace réciproque** La forme du grain diffractant est connue : sa contribution sur le signal de diffraction est donc calculable. Il suffit de projeter cette forme dans l'espace de mesure. Ceci est réalisé en plusieurs étapes resumées dans les schémas 5.12.

- La forme du grain est déduite de l'image de microscopie électronique (cf squelette §. 4.4) Une image binaire de la surface du grain est créée avec les résolutions de mesure MEB.
- Cette image binaire est ensuite redimensionnée. Il s'agit de se placer dans l'espace correspondant aux résolutions déduites de celle du pic de diffraction. La forme du grain dans cet espace apparaît aplatie dans la direction  $\omega$
- La surface du grain est ensuite extrudée en épaisseur avec la bonne extension et résolution. On suppose que le grain présente une structure colonnaire.
- Il faut passer dans un repère monoclinique incliné de l'angle d'incidence  $\omega$  (figure 5.12c,d). Lors du découpage, la caméra découpe le signal avec cette inclinaison (cf §. 4.5.1 )



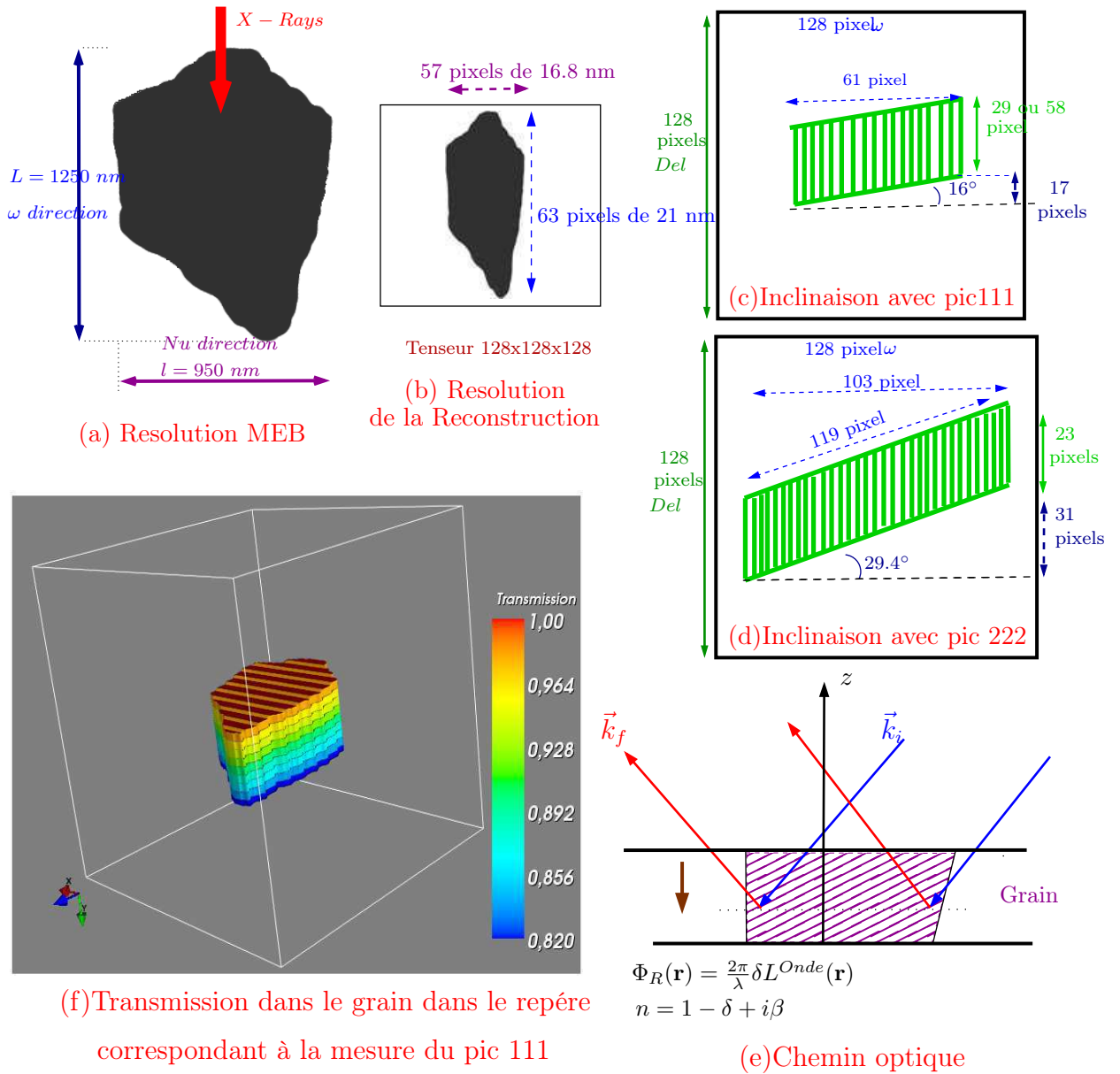
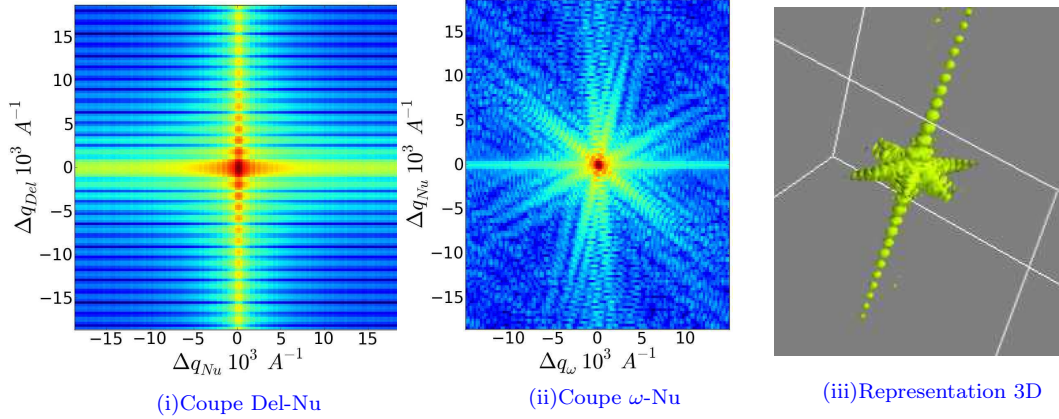


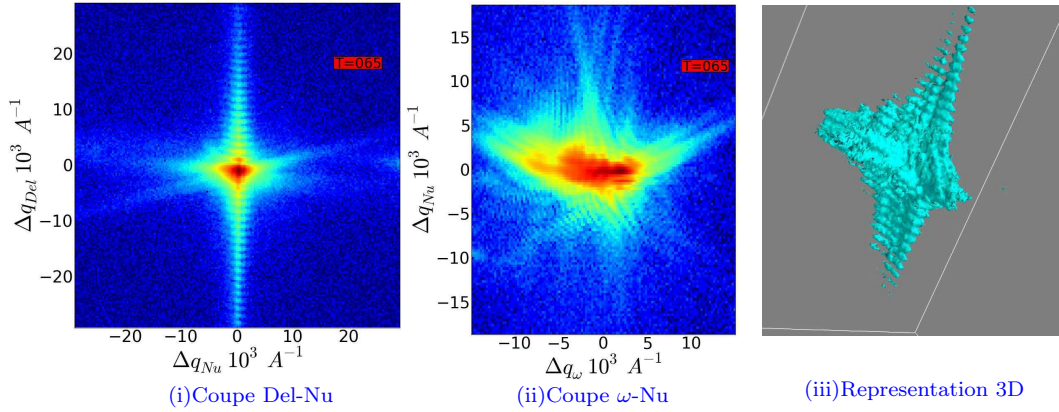
FIG. 5.12 – Création du support aux bonnes résolutions à partir de l'image MEB du grain imagé de l'échantillon P3

## 5.5. Application aux données collectées sur les films polycristallins 171

- Les effets du coefficient de réfraction doivent être pris en compte (cf §.2.5.4 et [Harder 2007]). Les calculs d'absorption sont très simples dans notre cas. Il n'y a qu'une dépendance en  $z$  puisque notre grain est entouré d'autres grains d'or (figure 5.12e). L'allure de la fonction transmission est tracée en 3D figure 5.12f. Au niveau de l'interface avec le substrat, le faisceau est absorbé de près de 18%.



(a) Pic de diffraction simulé à partir de la forme de l'objet



(b) Pic expérimental correspondant ( $T = 65^\circ$ )

FIG. 5.13 – Comparaison entre la figure de diffraction expérimentale sur le grain imagé de P3 (déformé) et le calcul de la même tache issue uniquement de la projection adéquate de la forme de l'objet dans l'espace réciproque

Avec ce support, il est alors aisé de calculer la contribution des effets de taille sur le signal de diffraction 111. Il suffit de calculer en 3D la transformée de Fourier de

$$I(q)^{Shape} = |TF\rho(\vec{r})|^2$$

Une comparaison avec le pic expérimental est représentée figure 5.13. En particulier les coupes  $Del - Nu$  et  $Nu - Omega$  sont représentées. Sur la coupe caméra (ici

dans les deux cas le pic est sommé selon l'axe  $q_\omega$  et  $q_z$ ), l'allure générale est respectée entre le calcul et le cas expérimental. En revanche, sur la coupe  $Nu - Omega$  les différences sont très fortes. Ces distorsions se voient également très bien sur une représentation 3D des deux pics (Fig 5.13 a)iii et b)iii). Ce calcul de l'influence de la forme confirme les conclusions de l'analyse des largeurs du pic.

**Les hétérogénéités de déplacement ont une influence prépondérante sur le signal de diffraction mesuré.**

**Procédure de reconstruction - Adaptation de l'algorithme** Pour contraindre la reconstruction de phase, des conditions supplémentaires ont été appliquées dans l'espace direct. La densité reconstruite doit correspondre à la forme de l'objet corrigée de l'absorption :

$$\begin{cases} \rho(\vec{r}) = \rho_0 \cdot e^{-\beta L(\vec{r})} & \text{si } \vec{r} \in \text{Support} \\ \rho(\vec{r}) = 0 & \text{si } \vec{r} \notin \text{Support} \end{cases} \quad (5.28)$$

En dehors du support, la densité est forcée à zéro. Il s'agit d'un Error Reduction adapté, il sera désormais désigné par  $ER_{Rho}$ . Dans la pratique, la valeur de  $\rho_0$  doit être choisie avec soin. La propriété de Parseval est utilisée. La somme du signal au carré est égal à la somme de ces composantes de Fourier au carré.

$$\int_{-\infty}^{+\infty} |x(t)|^2 dt = \int_{-\infty}^{+\infty} |X(f)|^2 df \Rightarrow \int |\rho_0 e^{i\vec{G} \cdot u(\vec{r})}|^2 d\vec{r} = \int I(\vec{q}) d\vec{q}$$

En considérant l'absorption, la valeur de la constante est donc ajustée comme suit :

$$\rho_0 = \sqrt{\frac{\sum I(q)}{N_x N_y N_z \sum Support_\beta^2}} \quad (5.29)$$

La taille du tenseur  $N_x N_y N_z$ <sup>13</sup> intervient dans le calcul. Finalement la séquence suivante de reconstruction est choisie :

$$10Seq \times (64ER + 32HIO + 64ER_{Rho}) + 128ER$$

Le dimensionnement de la procédure est assez économe. En effet la contrainte dans l'espace direct est forte. A priori un nombre limité d'itérations semble être suffisant. La condition de densité constante n'est pas appliquée lors des étapes de HIO. Ainsi, la reconstruction peut éventuellement s'échapper d'un minimum local. Cette procédure a été raisonnable en temps de calcul autour de 100 heures (équivalent 1 CPU) pour les 16 pics inversés. La procédure a été lancée 5 fois consécutivement sur 16 pics (10 pics lors de la montée, et 6 pics lors de la descente en température). Finalement, la reconstruction à plus faible erreur métrique est choisie.

<sup>13</sup>Cette normalisation dépend des *fft* utilisées.

## 5.5. Application aux données collectées sur les films polycristallins 178

---

**Résultats** L'évolution en température de trois coupes perpendiculaires de l'objet sont reportées figure 5.14. Il s'agit des trois coupes orientées comme dans la figure 4.23. A température ambiante sur la coupe  $Nu-\omega$ , la différence d'hétérogénéité entre les deux directions est claire. Il y a plus de sauts de phase dans la direction  $\omega$ . Lorsque la température augmente, cette différence a tendance à diminuer. Les sauts de phase sont plus uniformément répartis en surface. A la descente, les hétérogénéités diminuent dans la direction  $Nu$ . En fin de cycle, l'anisotropie  $Nu-\omega$  des hétérogénéités de déplacement est reproduite comme en début de cycle.

Cette signature dans la direction  $Nu$  se voit bien dans les coupes  $Del - Nu$ . Le nombre de sauts de phase augmente puis diminue. Dans l'épaisseur du film, un comportement moins hétérogène est observé. La phase est uniforme dans des bandes. Il y a peu d'évolution au cours du cycle. Les hétérogénéités de déplacement sont faibles et le restent dans cette direction. Toutes ces tendances reproduisent bien le pic de diffraction à chaque température. Les coupes caméra et  $Nu - \omega$  reconstruites sont tracées figure 5.14.

Pour le moment, il s'agit de résultats qualitatifs améliorés (les pics ne sont encore pas suffisamment bien reproduits (i.e.  $Er > 10^{-2}$ ). Néanmoins des informations supplémentaires sont apportées par rapport à une simple analyse de largeurs de pic.

**Améliorations à apporter** Une petite désorientation en  $Nu$  du support par rapport à la surface du grain pourrait être bénéfique à la reconstruction (cf figure 5.13a)i). Expérimentalement la tige pointant dans la direction  $Nu$  est légèrement inclinée. D'autre part, une tige importante n'est pas reproduite avec les facettes de la forme. Cette tige est à peu près séparée de  $70^\circ$  de la tige correspondant aux plans 111 parallèles à la surface. Ainsi, elle semble correspondre à une coupure très nette de l'objet suivant un plan de type 111. En toute vraisemblance, il s'agirait de la signature d'une macule. Comme sur les images de microscopie, elle n'est pas visible, il pourrait s'agir d'une macule enchâssée en volume. Des analyses complémentaires sont en cours avec ajustement du support. Il s'agit d'ajuster au mieux une macule en volume de forme inconnue dans le grain. La normale du plan de macule est heureusement connue avec précision grâce à la direction de la tige dans l'espace réciproque.

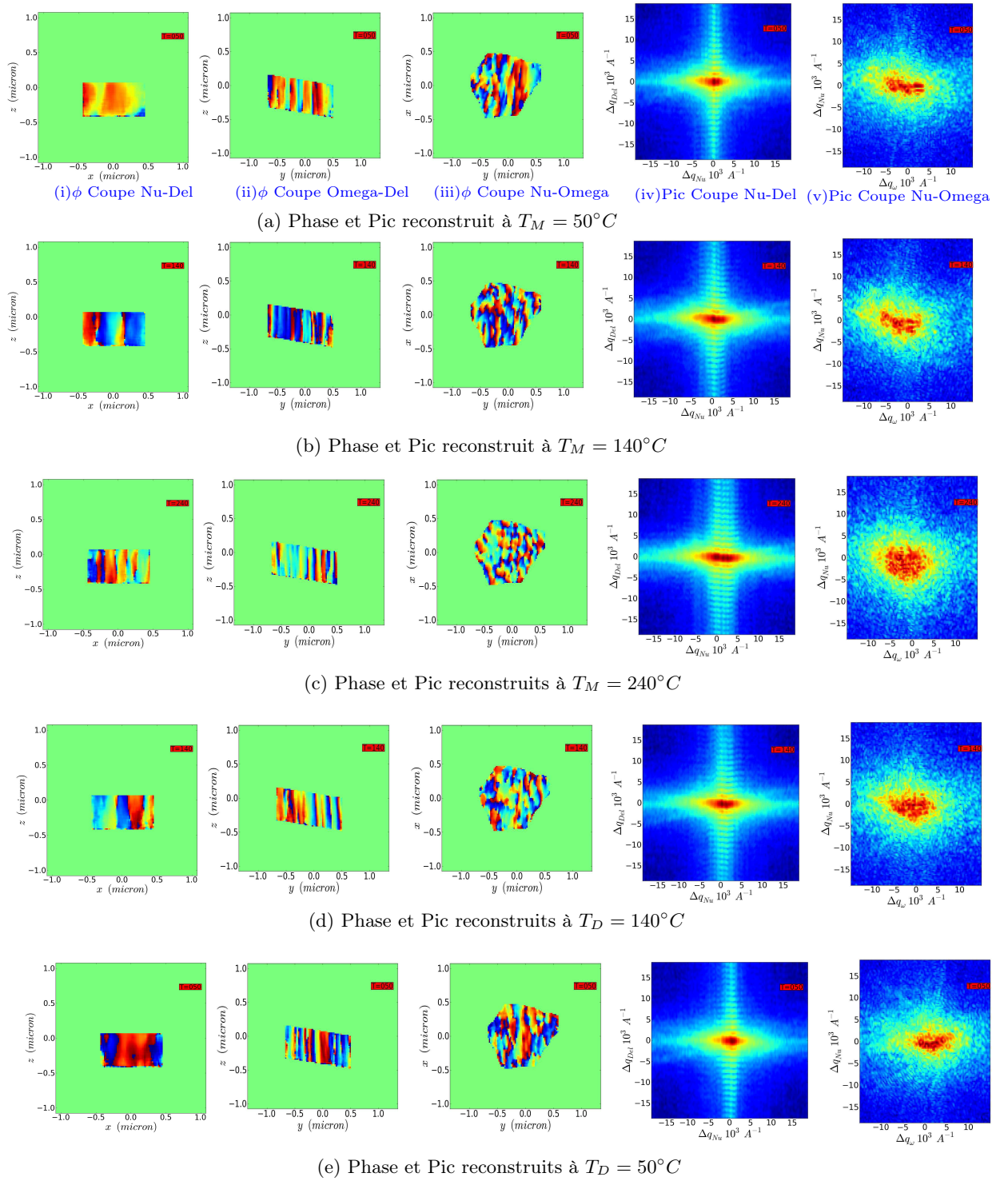


FIG. 5.14 – Résultats de l'inversion 3D en température sur le grain #g1 de P3

## 5.5. Application aux données collectées sur les films polycristallins 175

**Analyses quantitatives de ces résultats expérimentaux** Un traitement plus quantitatif de ces résultats nécessite un traitement particulier. Plusieurs sauts de phase sont reconstruits, la tâche est complexe. Pour quantifier proprement le champ de déplacement un dépliage de la phase est nécessaire. Mais ce dépliage de phase doit être réalisé seulement après avoir vérifié la non présence d'une composante homogène dans le champ de déplacement (cf §. 5.5.1).

Les pics  $I(q)(T)$  de #g1 de P3 ont été centrés avant le début des reconstructions autour du barycentre de la tâche. Ainsi, il ne devrait pas y avoir de composante linéaire dans le champ de déplacement reconstruit. De plus contrairement à l'étude numérique (§.5.2), les reconstructions ne sont pas laissées libres de converger à une translation près ou à l'orientation près puisque les étapes de  $ER_{Rho}$  force les phases à converger vers la solution centrée autour de la forme projetée.

**Dépliage de la phase** Le dépliage des sauts de phase est un point essentiel pour pouvoir utiliser les données après la reconstruction. Il s'agit simplement d'obtenir la carte du champ  $u$  dans un espace décimal et non plus modulo  $2\pi$ . Il est particulièrement ardu d'automatiser cette étape en 3D. Un cas simple à une dimension est illustré dans le schéma ci contre. Le dépliage de phase est un domaine de recherche à part entière. En effet, c'est une problématique rencontrée dans de nombreuses techniques interférométriques (Astro-physique- Interferometrie , réflectométrie ... ). Le point difficile est la recherche d'algorithmes performants dans le cas des objets trois dimensions. Des techniques efficaces ont tout d'abord été élaborées en 2D [Itoh 1982, Bioucas-Dias 2007] puis étendues au cas 3D [Hooper 2007, Zhong 2009].

Si le champ est déplié, il est très aisé d'analyser le champ de déplacement, son évolution avec la température... La déformation peut en être déduite. Les comportements mécaniques sont alors quantifiables à l'échelle de quelques dizaines de nanomètres.

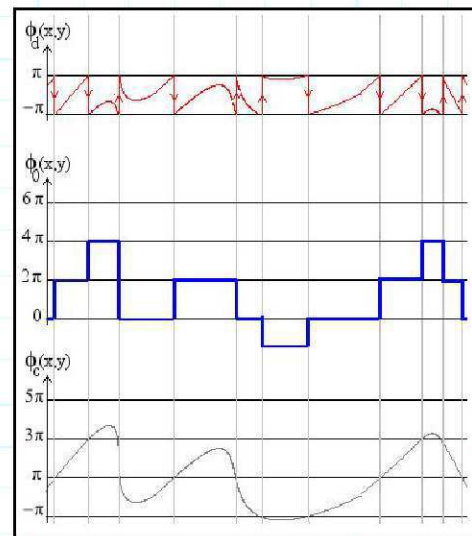


FIG. 5.15 – *Principe du dépliage de phase*

### 5.5.3 Discussion méthodologique

Quelles sont les limites expérimentales de cette technique de reconstruction de phase en condition de Bragg ?

**Limite de Taille de l'objet sondé** En dehors du problème de courbure de la sphère d'Ewald qui peut être réglé par interpolation astucieuse, le problème de la divergence du faisceau au niveau de l'échantillon est un facteur limitant rédhibitoire. En effet, la résolution dans la direction du faisceau ne peut être réduite sous la divergence de celui-ci. Ceci implique directement une restriction sur la taille maximale des objets observables. Les franges des objets trop grands auront du mal à être résolues. Il reste complexe de placer une caméra à plus de 2 mètres de l'échantillon avec des goniomètres quatre-cercles. Il faut également prendre en compte le problème du volume diffractant qui ne doit pas être trop réduit et les longueurs de cohérence. Ainsi la diffraction cohérente en vue de faire de l'inversion en condition de Bragg est utilisable pour une gamme d'objets dont les dimensions sont dans une gamme de  $100nm \rightarrow 2\mu m$ .

Comment vérifier le sens physique des résultats obtenus ? Il s'agit du point essentiel pour mettre en perspective les résultats obtenus par inversion. Comme vu précédemment, la notion de convergence des algorithmes ne possède pas forcément une réponse évidente. Il faut donc absolument des indices complémentaires qui corroborent les résultats d'inversion.

**Cas des grains polycristallins** La manière la plus élégante de vérifier les résultats d'inversion sur le grain #g1 de P3, aurait été de retrouver à partir du signal de diffraction en version shrink-wrap intégrale, la décroissance de la densité dû à l'absorption et surtout retrouver la forme de l'objet qui a été déterminée de manière indépendante. Cette possibilité n'est pas exclue dans l'absolu avec une procédure de reconstruction astucieuse.

La comparaison des résultats avec les simulations éléments finis peut constituer une preuve de la véracité de la reconstruction. Les simulations éléments finis sont possibles pour les agrégats polycristallins (élasticité et visco-plasticité) en utilisant des codes adéquats. Il reste néanmoins difficile d'introduire les bonnes conditions en terme de contraintes résiduelles dans les grains. Ces contraintes résiduelles et la présence de défauts ont une grande influence sur les taches de diffraction.

**Le problème redoutable de l'aliasing (Replis de spectre)** L'utilisation des FFT numériques entraîne un défaut de crénelage. Des tiges de diffraction traversent en quelque sorte le tenseur pour réapparaître à la position opposée. Il n'est malheureusement pas possible mathématiquement d'éliminer rigoureusement cet effet de crénelage. Mais il est toutefois possible de le réduire. Une technique courante est de suréchantillonner le signal à une fréquence d'échantillonnage nettement supérieure à la fréquence voulue, puis de lui appliquer des traitements (filtre passe bas...). On peut alors redescendre en toute sécurité à la fréquence d'échantillonnage de travail. Cette méthode nécessite une puissance de calcul très importante. Cette étape supplémentaire devrait être réalisée à chaque boucle des algorithmes d'inversion.

## 5.6 Techniques connexes et problématiques émergentes

Les reconstructions de phases 3D pour des objets fortement déformés est difficile et nécessitent beaucoup de précaution. La technique présente des limitations intrinsèques. La mesure expérimentale est maintenant largement maîtrisée mais l'étape numérique de reconstruction de phase pose encore des problèmes. C'est pourquoi, des techniques alternatives comme l'holographie ou la ptychographie sont en cours de développement pour contourner ces problèmes et/ou ces limitations. Cette section se propose d'aborder succinctement ces dernières avancées pour les mettre en perspective avec la diffraction cohérente classique.

### 5.6.1 Holographie

L'holographie est l'une des alternatives envisageables. Dans le domaine des rayons X, elle est rendue possible grâce à la cohérence du faisceau. Elle repose sur une propriété simple de la transformée de Fourier. Si un système composé d'un cristal déformé  $Obj(\vec{r})$  et un cristal de référence non déformé  $R(\vec{r})$  séparés d'une distance  $\vec{r}_0$ , est illuminée de manière cohérente. Alors la transformée de Fourier inverse du signal de diffraction (ou Patterson) peut se réécrire en utilisant la propriété d'associativité du produit de convolution :

$$\begin{aligned} Patterson(\mathbf{r}) &= \mathcal{F}^{-1}(I(\vec{q})) = (Obj(\mathbf{r}) + R(\mathbf{r})) \otimes (Obj(-\mathbf{r}) + R(-\mathbf{r})) \\ &= Obj \otimes Obj + R \otimes R + (Obj \otimes R)(\mathbf{r} + \mathbf{r}_0) + (Obj \otimes R)(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0) \end{aligned}$$

Si le cristal de référence est suffisamment petit pour le considérer comme un dirac, les termes  $(Obj \otimes R)$  se simplifient en  $Obj(\mathbf{r} + \mathbf{r}_0)$  et  $Obj^*(\mathbf{r} - \mathbf{r}_0)$ . En effectuant la transformée de Fourier inverse de l'hologramme, l'objet initial est donc reproduit deux fois en  $\mathbf{r} + \mathbf{r}_0$  et  $\mathbf{r} - \mathbf{r}_0$ . En géométrie de Bragg, la phase de l'objet est alors directement utilisable pour en déduire le champ de déplacement intra-grain.

**La procédure d'inversion est réduite à une seule transformation de Fourier inverse.**

Il s'agit du point fort de la technique. L'analyse de données est très simple! Cette technique a été utilisée en imagerie cohérente à l'ordre zéro notamment lors d'une expérience décrite dans l'article [Stadler 2008]. Plus récemment, elle a été appliquée à une réflexion de Bragg sur un échantillon de *SiGe* de 200 nm d'épaisseur [Chamard 2010b]. Il s'agit d'un résultat en 3D permettant de remonter au champ de déplacement interne dans l'objet.

**Exemple numérique** Pour illustrer cette technique, l'exemple numérique de la section 2 est repris avec l'objet 10 présentant 6 sauts de phase. Une référence est placée à environ  $2\mu m$  de l'objet (Fig. 5.16a). Un premier calcul est réalisé en considérant une référence parfaite de  $25 \times 25 nm$  possédant une densité constante et une phase nulle. Le pic de diffraction est calculé par transformée de Fourier et un bruit poissonien est ajouté. A partir de ces données numériques (la phase est perdue),



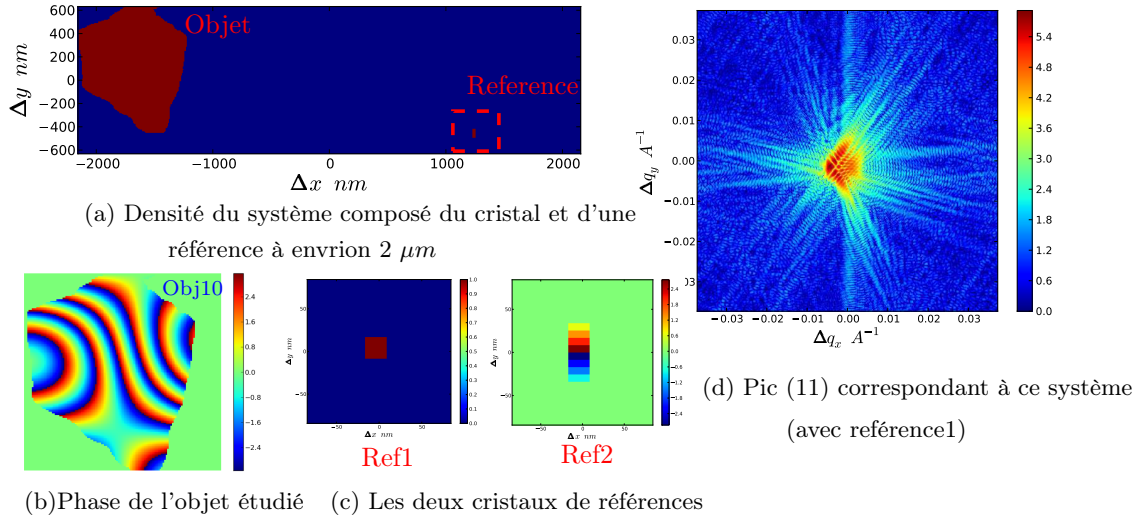


FIG. 5.16 – *Système numérique étudié par holographie*

la Patterson est déduite. L'amplitude et la phase de cette Patterson sont reportées figure 5.17a,b. Le détail de la reconstruction sur la zone d'intérêt est reporté figure 5.17c. Le résultat est impressionnant ! La phase est reconstruite très correctement. La forme est légèrement surestimée par effet de convolution avec la référence.

La même procédure est maintenant réalisée avec un cristal de référence imparfait. Cette référence 2 de forme rectangulaire  $75 \times 25 \text{ nm}$  est le siège d'un champ interne correspondant à un saut de phase. La reconstruction de l'objet est perturbée bien que l'allure générale soit encore respectée. Mais quantitativement, la précision sur le champ  $u$  est médiocre. La densité est moins uniforme et la phase présente des décrochages.

Il s'agit peut-être du point le plus gênant de la technique. Expérimentalement en condition de Bragg, il reste complexe d'élaborer un système avec une référence adaptée. Il faut avoir un cristal référence de même orientation, le plus petit possible, non déformé et situé à une position adéquate de l'objet d'étude. Ces contraintes vis à vis de l'échantillon sont lourdes. Pour un échantillon polycristallin, il faudrait graver un objet et une référence à partir d'un même grain pour avoir la même orientation. L'état de déformation interne de la référence serait indéterminé.

### 5.6.2 Ptychographie

La ptychographie est une technique de reconstruction de phase originale. Elle consiste à acquérir le signal de diffraction cohérente d'un objet en balayant un faisceau plus petit sur celui-ci. A chaque pas du balayage un recouvrement est assuré. Ainsi un nombre important d'informations issues de l'échantillon et du faisceau sont collectées lors de ces mesures. Un algorithme spécial (*PIE : Ptychographic Iterative*

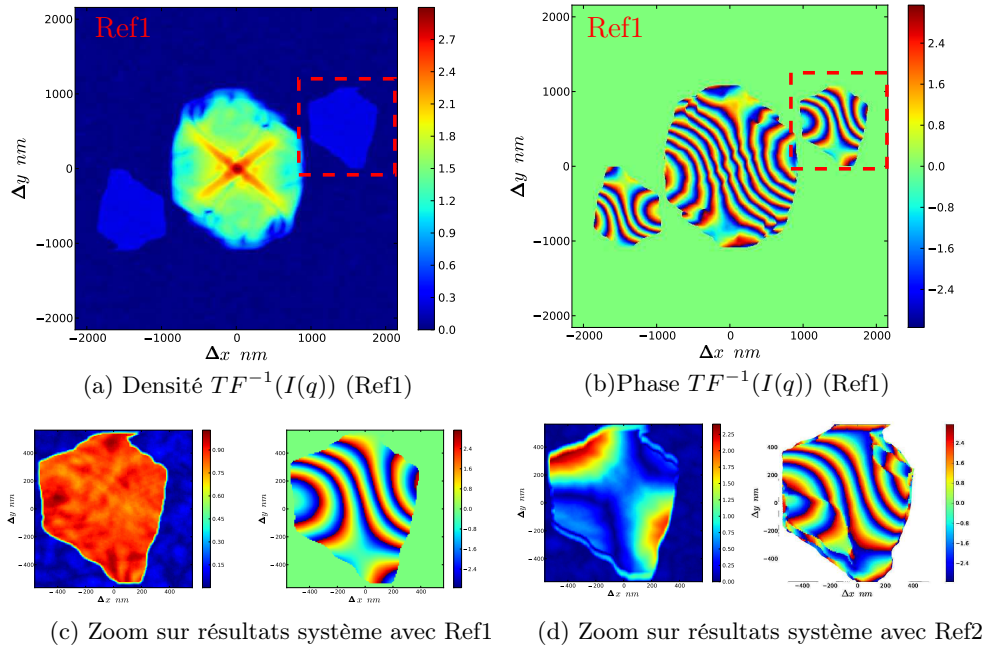


FIG. 5.17 – objet reconstruit en considérant les deux références

*Engine*) a été développé pour utiliser ces données [Faulkner 2004, Faulkner 2005]. Il semble particulièrement efficace et rapide. Les premiers travaux ont été réalisés en diffraction électronique. Puis ces idées ont été adaptées et utilisées dans le domaine de la diffraction des rayons X à l'ordre zéro [Dierolf 2010a, Dierolf 2010b] Cette technique semble particulièrement attractive pour plusieurs raisons :

- Des échantillons plus grands que le faisceau peuvent être étudiés, ouvrant la voie à de nombreux types de matériaux. En diffraction cohérente classique, les échantillons (dimensions) doivent être choisis avec soin.
- Les imperfections du faisceau incident peuvent être déduites des données. La reconstruction de l'objet est ainsi beaucoup plus sûre. Ce point est important puisque les optiques adaptées aux rayons X et sans aberrations sont toujours difficiles à concevoir. En diffraction cohérente classique, les défauts du front d'onde peuvent produire des artefacts non négligeables dans les reconstructions.
- La convergence de l'algorithme semble être très rapide. Cette étape serait une simple formalité, pouvant s'effectuer en direct lors des campagnes de mesures synchrotrons.

Cette technique est néanmoins un peu plus lourde expérimentalement. Elle reste à ce jour non transposée avec succès en géométrie de Bragg. Cette adaptation est l'objet de recherches. Dans le cas d'échantillons polycristallins (i.e. objet non isolé dans l'espace réciproque), cette technique est tout à fait utilisable. Il suffit de choisir un grain bien isolé dans l'espace réciproque (par exemple en faisant l'acquisition

d'une figure de pôle haute résolution §. 4.3). Lors des balayages, le faisceau illumine des grains voisins mais ces grains diffractent dans d'autres directions. Le signal est parfaitement utilisable. Cette approche pourrait être une alternative séduisante dans cette problématique d'étude du comportement mécanique des polycristaux.

## Synthèse Chapitre 5

Les techniques de reconstruction de phase peuvent être utilisées avec des échantillons fortement déformés. Néanmoins comme montrent des simulations numériques, le taux de réussite des reconstructions décroît fortement lorsque le nombre de sauts de phase présent dans les objets augmente. Un taux de 3% de réussite est obtenu pour des objets sièges de 6 sauts de phase. Mais lorsque la convergence est atteinte, les reconstructions sont très précises : les erreurs de reconstruction du champ de déplacement sont de l'ordre de 3 *pm* sur des données bruitées.

Les reconstructions de phases 3D sur des données expérimentales est un challenge difficile. A ce jour, aucune reconstruction 3D sur des objets fortement déformés a été réalisée. Les aspects numériques jouent un rôle important. Par exemple travailler avec des tenseurs  $1024 \times 1024 \times 1024$  nécessite d'effectuer des transformées de Fourier sur des objets de plus de 8 GB. Des conditions supplémentaires peuvent être rajoutées dans les algorithmes pour faciliter les reconstructions.

Finalement des reconstructions 3D sur le grain #g1 de P3 ont été effectuées lors de différentes étapes d'un essai thermo-mécanique. Ces reconstructions permettent d'évaluer le champ de déplacement  $u_z(x, y, z)$  dans ce grain unique en trois dimensions avec une très bonne résolution dans l'espace direct dans chacune des directions :  $\sim 17 \times 17 \times 22$  nm. Dans une direction, le champ de déplacement évolue fortement et suit un comportement quasi réversible lors de la descente en température. La réponse mécanique du grain #g1 est donc anisotrope.

# Conclusion

L'objectif général de ce travail de thèse était de caractériser expérimentalement et quantitativement le champ de déplacement  $\vec{u}(x, y, z)$  d'un grain unique sub-micronique d'un polycristal par imagerie cohérente en condition de Bragg lors d'une sollicitation thermo-mécanique.

Les principaux objectifs expérimentaux ont été remplis. Un grain sub-micronique de  $1250 \times 950 \times 476 \text{ nm}$  appartenant à un film mince polycristallin d'or a été imagé à 3 dimensions en diffraction cohérence lors d'un cycle thermique jusqu'à  $240^\circ\text{C}$ . Ce grain unique présente une forte hétérogénéité de déformation interne dans le plan du film comme le montre une analyse des largeurs du pic de diffraction symétrique 111 sensible à la composante  $u_z(x, y, z)$  du champ de déplacement. Ce grain a été identifié précisément dans le film polycristallin étudié qui présente une texture de fibre 111. Une zone du film d'environ  $10 \times 10 \mu\text{m}$  comportant une centaine de grains a été isolée. Ainsi il est possible d'effectuer une figure de pôle haute résolution de cette zone qui permet de sélectionner et d'identifier le grain le plus adapté aux mesures de diffraction cohérente.

D'autre part, l'analyse de la structure granulaire des anneaux de Debye obtenus en micro-diffraction monochromatique a permis de suivre le comportement d'une vingtaine de grains lors d'un cycle thermique. En particulier, une hétérogénéité de déformation moyenne inter grain importante de près de 0.14% a été mise évidence à température ambiante entre ces 20 grains. Ces données locales peuvent alors être comparées aux comportements moyens du film obtenu en diffraction de laboratoire. Les déformations moyennes  $\varepsilon_\perp$  sont de  $-0.16\%$  pour les grains (111),  $-0.20\%$  pour les grains (100) et  $-0.27\%$  pour les grains (511). Des hétérogénéités importantes de déformation entre les familles de grains (111), (100) et (511) sont donc observées à l'échelle macroscopique. Cette comparaison à l'échelle du film et des grains confirme l'importance des effets locaux dans ces films polycristallins : le comportement moyen n'est pas suffisant pour comprendre le comportement de ces films.

Les techniques de reconstructions de phases sont nécessaires pour obtenir des informations quantitatives sur le champ de déplacement à l'échelle nanométrique. Une inversion 3D pour des objets fortement déformés n'a pas été à ce jour réalisée. Un début de standardisation a été ici mis en place sur des objets numériques 2D fortement déformés. Une combinaison des algorithmes SW, ER, HIO donne un taux de réussite de 3% pour des objets sièges de 6 sauts de phase. Lorsque les procédures sont un succès, la précision sur champ de déplacement reconstruit est de l'ordre de  $3 \text{ pm}$  pour ces données présentant un bruit compatible avec des mesures expérimentales.

Les données expérimentales 3D d'un grain unique ont été reconstruites en adaptant les algorithmes. Cette adaptation consiste à appliquer une condition de densité constante corrigée de l'absorption. Elle nécessite de connaître parfaitement l'objet diffractant qui doit alors être projeté dans l'espace de mesure. Cette approche a

permis de reconstruire les pics expérimentaux à 3 dimensions avec une résolution d'environ  $17 \times 17 \times 22 \text{ nm}$  le long d'un cycle thermique. Ces reconstructions mettent en évidence l'apparition d'un gradient du champ de déplacement dans une direction du grain. Ce gradient est en outre quasi réversible lors du cycle thermique.

## Perspectives

Les possibilités expérimentales ont semble-t-il de l'avance sur les analyses quantitatives par reconstructions de phases. Le point de blocage de la technique reste la robustesse des algorithmes et les aspects numériques (mémoire et temps de calcul). Une voie pourrait être l'utilisation des techniques émergentes comme l'holographie, ou la ptychographie en condition de Bragg. Dans tous les cas, une standardisation des procédures doit être mise oeuvre. Des objets tests numériques et expérimentaux doivent être inversés pour tester en détail les différentes techniques et les différentes adaptations possibles des algorithmes. Les comparaisons entre les techniques est avantageuse pour conforter les résultats.

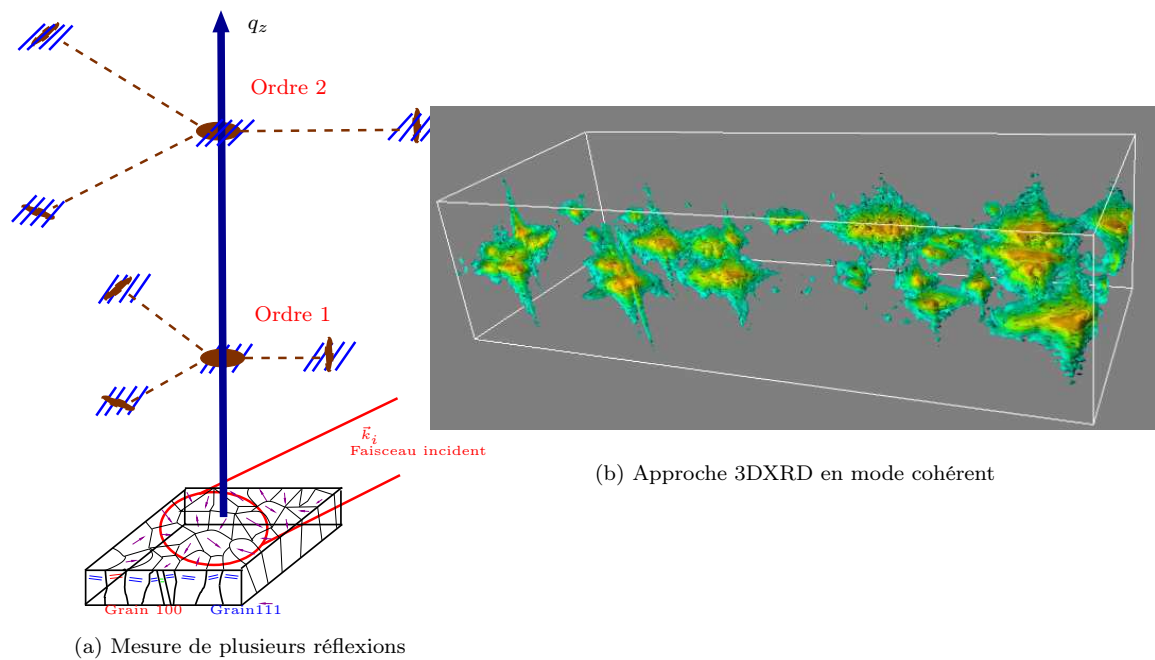


FIG. 5.18 – (a) Mesure complète de plusieurs réflexions indépendantes en vue de reconstruire le tenseur complet des déformations avec une résolution nanométrique (b) Cartographie expérimentale où le signal de cohérence d'une vingtaine de grains du film P3 est observable

Une fois ces points éclaircis, un large éventail de problèmes physiques pourront être étudiés avantageusement avec cette technique de métrologie 3D des défor-

mations. Certaines interrogations relatives à la mécanique des petits objets pourront alors être éclaircies. Un préalable nécessaire est l'étude en 3 dimensions de défauts isolés (dislocations, fautes d'empilements, macles ...) [Jacques 2011]. Le champ de déplacement local pourrait être suivi in-situ lors d'essai mécanique (nano-indentation ...). Pour les échantillons présentant des problématiques type inter-diffusion (nanofils coeur-coquille Au/Ag par exemple), une version anormale de la diffraction cohérente est tout à fait possible, avec potentiellement une sensibilité au champ de déplacement et au gradient de composition chimique.

**Fusion diffraction cohérente et 3DXRD** A très court terme, l'amélioration des détecteurs ouvre la voie à une étude plus complète des échantillons polycristallin. En effectuant un balayage type 3DXRD avec une très bonne résolution en translatant l'échantillon sur une grille (x,y), il est possible de reconstruire non plus le signal provenant d'un seul grain mais de reconstruire le signal de plusieurs dizaines de grains. Ainsi les études d'interactions entre grains (effet de voisinage, homogénéisation aux joints de grains...) sont possibles à l'échelle de la dizaine de nanomètres. Lors de la dernière expérience décrite dans ce travail, le signal de 20 grains (Fig. 5.18b) a été acquis en cohérence à trois dimensions. Seuls les résolutions de mesures limitées (liées à l'extension de la caméra utilisée) ont empêché d'ores et déjà de travailler simultanément avec ces 20 grains en mode cohérent.

En plus des mesures des pics symétriques 111, réaliser un balayage en  $\phi$  sur  $360^\circ$  en inclinant l'échantillon de  $70^\circ$  est possible. Les trois autres réflexions de type  $\{1\bar{1}1\}$  sont alors mesurées. Après avoir indexés ces pics provenant des différents grains, il serait possible de construire les trois composantes du champ de déplacement de cette vingtaine de grains. Le tenseur des déformations complet peut alors en être déduit.

**Résolution sub-nanométrique ?** Combiner les approches type cristallographie et inversion permettrait d'atteindre des résolutions sub-nanométriques dans les reconstructions de phases. En cristallographie, la position des pics de Bragg est mesurée très loin dans l'espace réciproque. Cette connaissance permet alors obtenir des informations très résolues dans l'espace direct (i.e. typiquement des cartes de densité électronique dans la maille cristallographique). Mais l'extension dans cet espace direct est faible se réduisant à cette maille. A l'opposé en diffraction cohérente, l'extension dans l'espace réciproque est réduite mais très résolue. Ainsi il est possible de reconstruire les densités sur de nombreuses mailles ( $\sim 1\mu m$ ) mais avec une résolution faible ( $\sim 10 nm$ ). Donc mesurer de nombreuses réflexions indépendantes sous plusieurs ordres en mode cohérence (Fig. 5.18a) provenant du même monocristal permettrait de construire un hyper-tenseur très résolu et présentant une large extension dans l'espace réciproque. Réaliser une reconstruction de phase sur cet hyper-tenseur permettrait alors d'obtenir une résolution de l'objet sub-micronique avec une résolution atomique et avec une sensibilité au champ de déplacement. Clai-rement il s'agit d'expériences qui poussent au plus loin les possibilités expérimentales des synchrotrons de troisième génération mais elles sont dès maintenant réalisables.

En effet dès maintenant avec les données expérimentales collectées sur le grain #g1 P3, il est possible d'effectuer une reconstruction de la composante  $u_z$  avec une résolution sub-nanométrique dans la direction  $z$ . Il s'agit de combiner les données des pics 111 et 222 dans un même tenseur (interpolation nécessaire). La résolution potentielle serait alors d'environ  $2.35 \text{ \AA}$  dans la direction  $z$ , soit en 3D de  $\delta x_{Del} \times \delta x_{Nu} \times \delta x_{\omega} = (16.8 \times 16.8 \times 0.235) \text{ nm}$  : Cette approche nécessite néanmoins de travailler avec des tenseurs de données très volumineux (i.e. 15 GB de mémoire nécessaire). Ce travail reste donc un défi numérique.

# Compléments d'élasticité

## A.1 Chargement thermique - Cas isotrope

Un film mince homogène (111) infini dans le plan soumis un chargement thermique présentant une surface supérieure libre, aura un tenseur des déformations de la forme suivante :

$$\bar{\varepsilon} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{//} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{//} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{\perp} \end{pmatrix} \quad (\text{A.1})$$

Pour l'écart entre les coefficients de dilatation thermique  $\Delta\alpha$  du système Au-Silice, une sollicitation thermo-élastique de  $\Delta T = 100^\circ\text{C}$  induit donc état de déformation :

$$\bar{\varepsilon} = \begin{pmatrix} 0.14 \% & 0 & 0 \\ 0 & 0.14 \% & 0 \\ 0 & 0 & -0.17 \% \end{pmatrix} \quad (\text{A.2})$$

Par suite l'état de contrainte biaxial isotrope correspondant sera :

$$\bar{\sigma} = \begin{pmatrix} 266 \text{ MPa} & 0 & 0 \\ 0 & 266 \text{ MPa} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{A.3})$$

## A.2 Tenseurs rigidité et souplesse dans un repère quelconque

La forme de la matrice réduite souplesse ou rigidité peut être anticiper grâce aux symétries des cristaux [Nye 1957]. Dans un cristal cubique, la direction [100] est un axe <sup>1</sup> d'ordre 4. Ainsi dans n'importe quel repère  $R = (\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)$  tel que  $\vec{e}_z$  soit colinéaire à une direction de type  $\langle 001 \rangle$ , le tenseur rigidité ou contrainte peut se simplifier en :

$$X'_{100} = \begin{pmatrix} X'_{11} & X'_{12} & X'_{13} & 0 & 0 & X'_{16} \\ & X'_{11} & X'_{13} & 0 & 0 & -X'_{16} \\ & & X'_{33} & 0 & 0 & 0 \\ & & & X'_{44} & 0 & 0 \\ & & & & X'_{44} & 0 \\ & & & & & X'_{66} \end{pmatrix} \quad (\text{A.4})$$

<sup>1</sup>rotation de  $\frac{2\pi}{4} = \frac{\pi}{2}$  d'autour de 100



De la même manière dans un cubique, la direction [111] est un axe d'ordre 3. Dans un repère  $R = (\vec{e}_x, \vec{e}_y, \vec{e}_z)$  tel que  $\vec{e}_z$  soit colinéaire à une direction de type  $\langle 111 \rangle$ , on aura :

$$X'_{111} = \begin{pmatrix} X'_{11} & X'_{12} & X'_{13} & X'_{14} & X'_{15} & 0 \\ & X'_{11} & X'_{13} & -X'_{14} & -X'_{15} & 0 \\ & & X'_{33} & 0 & 0 & 0 \\ & & & X'_{44} & 0 & 2X'_{15} \\ & & & & X'_{44} & 2X'_{14} \\ & & & & & 2(X'_{11} + X'_{12}) \end{pmatrix} \quad (\text{A.5})$$

Il y a des termes nuls dans ces deux cas ce qui simplifie les relations entre  $\varepsilon$  et  $\sigma$ . En revanche pour une macle 511, les matrices  $C$  et  $S$  sont beaucoup plus compliquées. En effet, le plan (511) est un miroir et aucunes autres propriétés de symétrie ne lui sont associées. Ainsi,  $C$  ou  $S$  aura les propriétés d'un monoclinique. Le tenseur  $C$  ou  $S$  aura donc la forme suivante dans le repère international :

$$X_{511} = \begin{pmatrix} X_{11} & X_{12} & X_{13} & 0 & X_{15} & 0 \\ & X_{22} & X_{23} & 0 & X_{25} & 0 \\ & & X_{33} & 0 & X_{35} & 0 \\ & & & X_{44} & 0 & X_{46} \\ & & & & X_{55} & 0 \\ & & & & & X_{66} \end{pmatrix} \quad (\text{A.6})$$

### A.3 Calcul analytique complet

Pour effectuer l'homogénéisation type Reuss ou Voigt (cf §. 2.3.2), il faut calculer les constantes élastique pour un grain orienté aléatoirement dans le plan. Cette direction dans le plan est noté  $\phi_1$  (cf angle d'Euler §. 1.1.2). Il faut effectuer le changement de base. Les matrices de changement de base pour un grain (100) tel que  $n_{100} // \vec{e}_z$ , pour un grain (111) tel que  $n_{111} // \vec{e}_z$  et pour une macle (511) tel que  $n_{511} // \vec{e}_z$  s'écrivent :

$$a_{100}^{\phi_1} = \begin{pmatrix} \cos \phi_1 & \sin \phi_1 & 0 \\ -\sin \phi_1 & \cos \phi_1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad a_{111}^{\phi_1} = \begin{pmatrix} \frac{\cos \phi_1}{\sqrt{2}} - \frac{\sin \phi_1}{\sqrt{6}} & \sqrt{\frac{2}{3}} \sin \phi_1 & -\frac{\cos \phi_1}{\sqrt{2}} - \frac{\sin \phi_1}{\sqrt{6}} \\ -\frac{\cos \phi_1}{\sqrt{6}} - \frac{\sin \phi_1}{\sqrt{2}} & \sqrt{\frac{2}{3}} \cos \phi_1 & -\frac{\cos \phi_1}{\sqrt{6}} + \frac{\sin \phi_1}{\sqrt{2}} \\ \frac{1}{\sqrt{3}} & \frac{1}{\sqrt{3}} & \frac{1}{\sqrt{3}} \end{pmatrix}$$

$$a_{511}^{\phi_1} = \begin{pmatrix} -\frac{5 \cos \phi_1}{3\sqrt{6}} - \frac{\sin \phi_1}{\sqrt{2}} & \frac{1}{3} \sqrt{\frac{2}{3}} \cos \phi_1 & -\frac{5 \cos \phi_1}{3\sqrt{6}} + \frac{\sin \phi_1}{\sqrt{2}} \\ -\frac{\cos \phi_1}{\sqrt{2}} + \frac{5 \sin \phi_1}{3\sqrt{6}} & -\frac{1}{3} \sqrt{\frac{2}{3}} \sin \phi_1 & \frac{\cos \phi_1}{\sqrt{2}} + \frac{5 \sin \phi_1}{3\sqrt{6}} \\ \frac{1}{3\sqrt{3}} & \frac{5}{3\sqrt{3}} & \frac{1}{3\sqrt{3}} \end{pmatrix}$$

Les calculs qui suivent ont été réalisés avec un logiciel de calcul formel <sup>2</sup>.

<sup>2</sup>Mathematica. Il existe des solutions libres : Maxima et son wrap Python Sympy.

### A.3.1 Rigidité C

$$C_{100}^{\phi_1} = \begin{pmatrix} C_{12}+2C_{44}+\frac{1}{4}(C_{11}-C_{12}-2C_{44})(3+\cos 4\phi_1) & C_{12}+2(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \cos \phi_1^2 \sin \phi_1^2 & C_{12} & 0 & 0 & -\frac{1}{4}(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \sin 4\phi_1 \\ C_{12}+2(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \cos \phi_1^2 \sin \phi_1^2 & C_{12}+2C_{44}+\frac{1}{4}(C_{11}-C_{12}-2C_{44})(3+\cos 4\phi_1) & C_{12} & 0 & 0 & \frac{1}{4}(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \sin 4\phi_1 \\ 0 & 0 & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ -\frac{1}{4}(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \sin 4\phi_1 & \frac{1}{4}(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \sin 4\phi_1 & 0 & 0 & 0 & C_{44}+2(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \cos \phi_1^2 \sin \phi_1^2 \end{pmatrix}$$

$$C_{111}^{\phi_1} = \begin{pmatrix} \frac{1}{2}(C_{11}+C_{12}+2C_{44}) & \frac{1}{6}(C_{11}+5C_{12}-2C_{44}) & \frac{1}{3}(C_{11}+2C_{12}-2C_{44}) & -\frac{(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \cos 3\phi_1}{3\sqrt{2}} & -\frac{(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \sin 3\phi_1}{3\sqrt{2}} & 0 \\ \frac{1}{6}(C_{11}+5C_{12}-2C_{44}) & \frac{1}{2}(C_{11}+C_{12}+2C_{44}) & \frac{1}{3}(C_{11}+2C_{12}-2C_{44}) & \frac{(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \cos 3\phi_1}{3\sqrt{2}} & \frac{(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \sin 3\phi_1}{3\sqrt{2}} & 0 \\ \frac{1}{3}(C_{11}+2C_{12}-2C_{44}) & \frac{1}{3}(C_{11}+2C_{12}-2C_{44}) & \frac{1}{3}(C_{11}+2C_{12}+4C_{44}) & 0 & 0 & 0 \\ -\frac{(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \cos 3\phi_1}{3\sqrt{2}} & \frac{(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \cos 3\phi_1}{3\sqrt{2}} & 0 & \frac{1}{3}(C_{11}-C_{12}+C_{44}) & 0 & \frac{(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \sin 3\phi_1}{3\sqrt{2}} \\ -\frac{(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \sin 3\phi_1}{3\sqrt{2}} & \frac{(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \sin 3\phi_1}{3\sqrt{2}} & 0 & 0 & \frac{1}{3}(C_{11}-C_{12}+C_{44}) & -\frac{(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \cos 3\phi_1}{3\sqrt{2}} \\ 0 & 0 & 0 & \frac{(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \sin 3\phi_1}{3\sqrt{2}} & -\frac{(C_{11}-C_{12}-2C_{44}) \cos 3\phi_1}{3\sqrt{2}} & \frac{1}{6}(C_{11}-C_{12}+4C_{44}) \end{pmatrix}$$

**Macle (511)** Comme nous ne sommes pas dans un plan compatible au miroir, le tenseur rigidité ne comporte aucun terme nul.

$$\begin{aligned}
C'_{11} &= \frac{1}{486}(3(113C_{11} + 49C_{12} + 98C_{44}) - 16(C_{11} - C_{12} - 2C_{44}) \cos 2\phi_1 - 112(C_{11} - C_{12} - 2C_{44}) \cos 4\phi_1) \\
C'_{12} &= \frac{1}{486}(113C_{11} + 373C_{12} - 226C_{44} + 112(C_{11} - C_{12} - 2C_{44}) \cos 4\phi_1) \\
C'_{13} &= \frac{1}{243}(17C_{11} + 226C_{12} - 34C_{44} + 8(C_{11} - C_{12} - 2C_{44}) \cos 2\phi_1) \\
C'_{14} &= \frac{5(C_{11} - C_{12} - 2C_{44})(4 \sin \phi_1 - 5 \sin 3\phi_1)}{243\sqrt{2}} \\
C'_{15} &= \frac{5(C_{11} - C_{12} - 2C_{44})(-12 \cos \phi_1 + 5 \cos 3\phi_1)}{243\sqrt{2}} \\
C'_{16} &= \frac{4}{243}(C_{11} - C_{12} - 2C_{44})(\sin 2\phi_1 + 14 \sin 4\phi_1) \\
C'_{22} &= \frac{1}{486}(3(113C_{11} + 49C_{12} + 98C_{44}) + 16(C_{11} - C_{12} - 2C_{44}) \cos 2\phi_1 - 112(C_{11} - C_{12} - 2C_{44}) \cos 4\phi_1) \\
C'_{23} &= \frac{1}{243}(17C_{11} + 226C_{12} - 34C_{44} - 8(C_{11} - C_{12} - 2C_{44}) \cos 2\phi_1) \\
C'_{24} &= \frac{5(C_{11} - C_{12} - 2C_{44})(12 \sin \phi_1 + 5 \sin 3\phi_1)}{243\sqrt{2}} \\
C'_{25} &= -\frac{5(C_{11} - C_{12} - 2C_{44})(4 \cos \phi_1 + 5 \cos 3\phi_1)}{243\sqrt{2}} \\
C'_{26} &= \frac{4}{243}(C_{11} - C_{12} - 2C_{44})(\sin 2\phi_1 - 14 \sin 4\phi_1) \\
C'_{33} &= \frac{1}{243}(209C_{11} + 34(C_{12} + 2C_{44})) \\
C'_{34} &= -\frac{40}{243}\sqrt{2}(C_{11} - C_{12} - 2C_{44}) \sin \phi_1 \\
C'_{35} &= \frac{40}{243}\sqrt{2}(C_{11} - C_{12} - 2C_{44}) \cos \phi_1 \\
C'_{36} &= -\frac{8}{243}(C_{11} - C_{12} - 2C_{44}) \sin 2\phi_1 \\
C'_{44} &= \frac{1}{243}(17C_{11} - 17C_{12} + 209C_{44} - 8(C_{11} - C_{12} - 2C_{44}) \cos 2\phi_1) \\
C'_{45} &= -\frac{8}{243}(C_{11} - C_{12} - 2C_{44}) \sin 2\phi_1 \\
C'_{46} &= -\frac{5(C_{11} - C_{12} - 2C_{44})(4 \cos \phi_1 + 5 \cos 3\phi_1)}{243\sqrt{2}} \\
C'_{55} &= \frac{1}{243}(17C_{11} - 17C_{12} + 209C_{44} + 8(C_{11} - C_{12} - 2C_{44}) \cos 2\phi_1) \\
C'_{56} &= \frac{5(C_{11} - C_{12} - 2C_{44})(4 \sin \phi_1 - 5 \sin 3\phi_1)}{243\sqrt{2}} \\
C'_{66} &= \frac{1}{486}(113C_{11} - 113C_{12} + 260C_{44} + 112(C_{11} - C_{12} - 2C_{44}) \cos 4\phi_1)
\end{aligned}$$

# Résultats complémentaires de diffraction cohérente

---

Des résultats de diffraction cohérente complémentaires sont reportés dans cette annexe. Dans un premier temps, des mesures en diffraction cohérente sur les échantillons S0 et S1 sont exposées. Des mesures de diffraction cohérente obtenues sur des échantillons ayant subi des essais de traction sont également brièvement décrites.

## B.1 Echantillons polycristallins

### B.1.1 Grain (100) de l'échantillon S0

Un grain (100) appartenant à l'échantillon S0 a été mesuré en cohérence. Pour cet échantillon présentant une texture de fibre 111 (cf §. 4.1), choisir un grain (100) est un bon moyen pour collecter un signal de diffraction provenant d'un grain unique et éviter les chevauchements dans l'espace réciproque. Dans le cas de cette expérience, seule une coupe 2D (Fig. B.1b) au maximum du balayage  $\omega$  a été acquise en mode cohérent (*Droplet*) lors d'une montée en température. Cette coupe 2D du pic 200 est très complexe (Fig. B.1c)i,ii). Des distorsions importantes apparaissent lors de la montée en température jusqu'à 150°. Ensuite cette coupe reste plus stable lors de la descente en température (Fig. B.1c)iv,v).

### B.1.2 Grain (111) de l'échantillon S1

Une expérience réalisée sur la ligne de lumière ID01, plus aboutie a été obtenue avec un grain de l'échantillon S1. Le pic 111 d'un grain 111 unique a été collecté en 3 dimensions à trois température différentes. Il s'agit de mesures effectuées en mode de comptage de photon (*droplet*). Ces mesures ont été réalisées avec une caméra à illumination direct (une trentaine de coupe en  $\omega$ ). Le faisceau est préparé par les lentilles de béryllium (cf §. 3.2.2). Le pic de diffraction 3D présente une structure complexe. Les franges d'épaisseur sont marquées. Le pic est très allongé dans la direction  $\omega$ . Une structure bi-coeur est également observable sur les coupes  $Del - \omega$ . Les évolutions avec la température sont modérées.

Pour analyser plus quantitativement le signal de diffraction, une identification du grain diffractant a été tentée. Pour identifier le grain diffractant, le faisceau a tout d'abord été placé sur le petit polycristal isolé en repérant l'espace vide l'entourant (Fig. B.2d). Une figure de pôle haute résolution (Fig. B.3b) a ensuite été acquise via une large rocking curve (cf §. 4.4). Cette opération a été répétée sur une grille

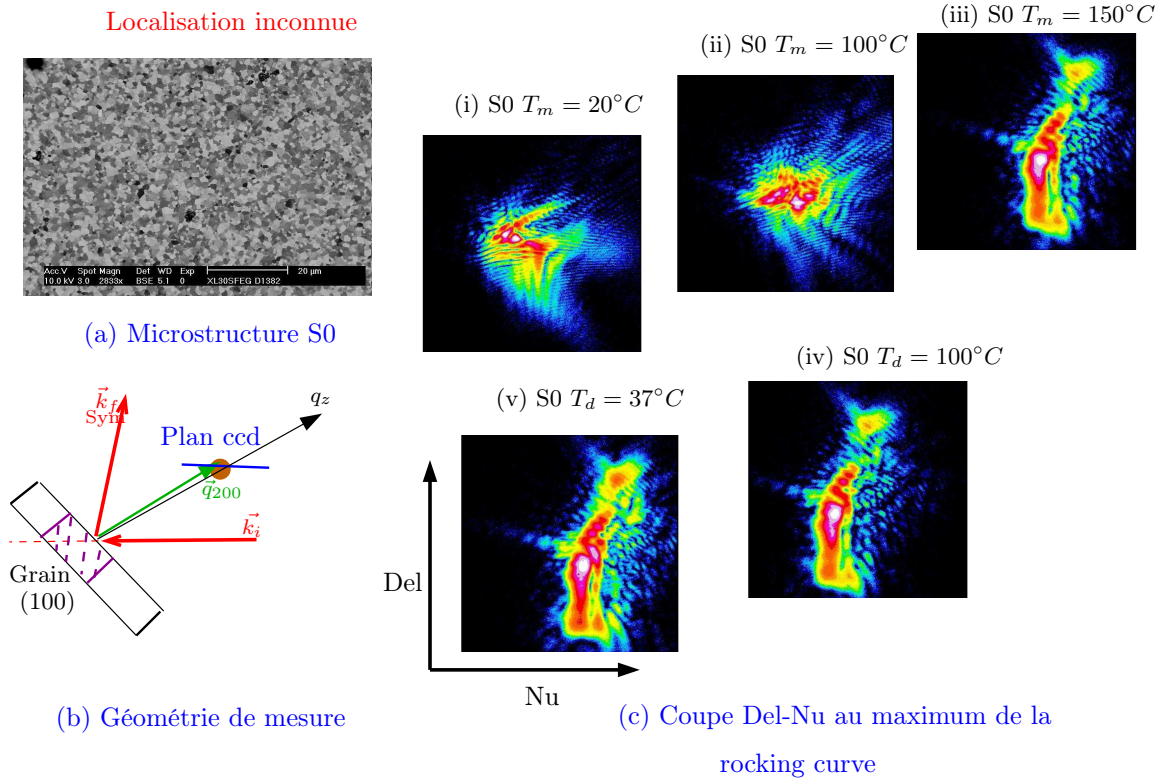


FIG. B.1 – Comportement d'un grain (100) de l'échantillon S0. (Mesures de la réflexion 200 réalisées sur ID01@esrf à  $E = 8.0\text{keV}$  avec caméra à illumination direct Princeton (Pixel :  $22\mu\text{m}$ ) en mode de comptage de photon unique)

$(x, y)$  comportant  $10 \times 10$  points en translatant l'échantillon de  $2\mu\text{m}$  à chaque pas. Différentes cartes  $(x, y)$  correspondant à différentes zones d'intégration dans l'espace réciproque sont reportées figure B.3c. Finalement une zone de l'échantillon est clairement repérée. Mais à l'intérieur de celle-ci (Fig. B.3d), une dizaine de grains sont encore possibles. Le grain repéré par le contour vert est le plus probable (Fig. B.2b).

Une image MEB a été effectuée après le cycle thermique. Des poussières se sont collées sur le petit polycristal. Un grain situé sur un bord de la microstructure (repéré par la flèche rouge sur la figure B.2e) s'est décollé de son voisinage.

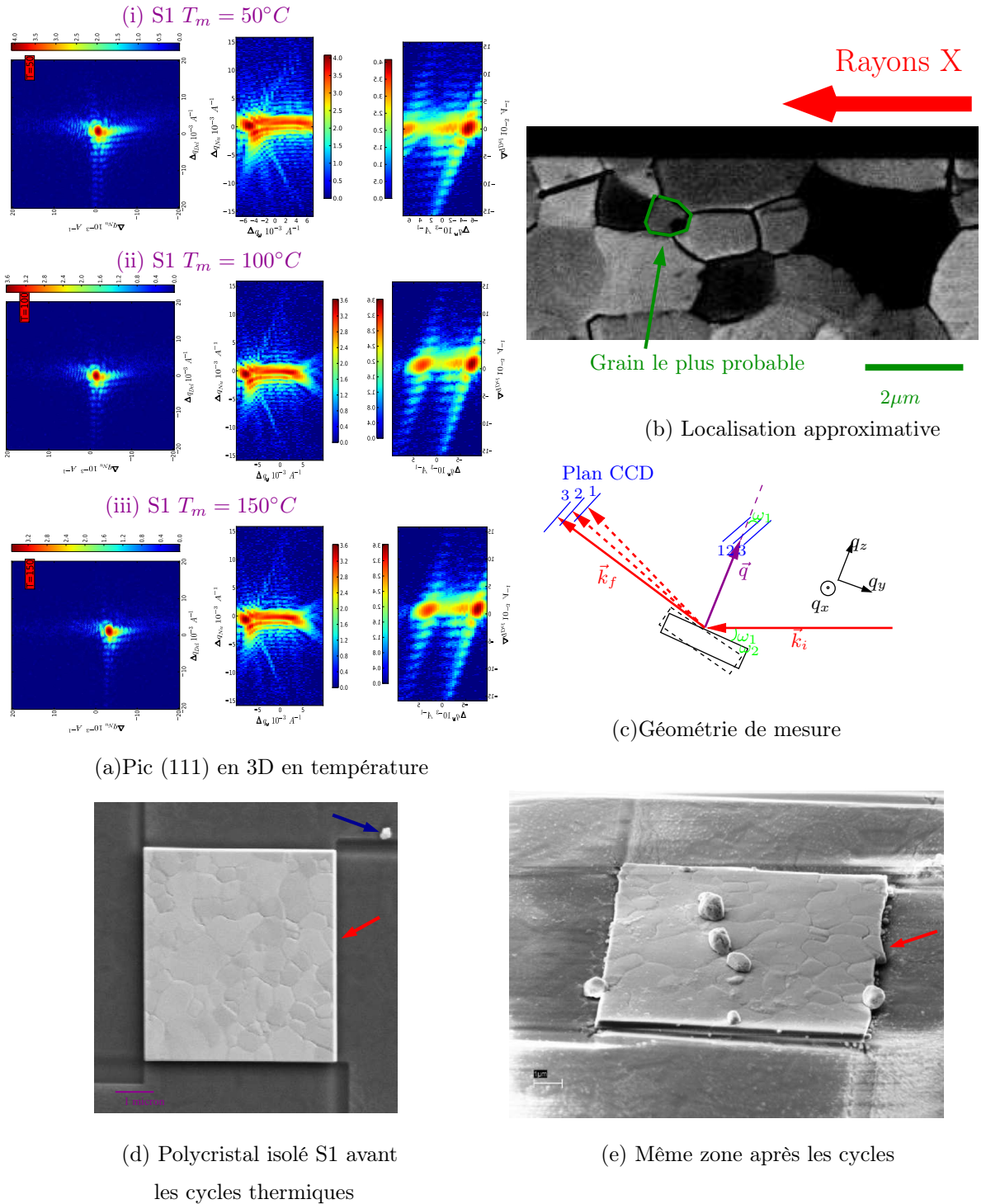


FIG. B.2 – (a) Pic 111 acquis en 3 dimensions en effectuant un balayage  $\omega$  (c) pour un grain(111) appartenant au polycrystal isolé de S1 (d). L'identification du grain diffractant est incertaine (b). Cette mesure a été effectuée sur ID01@esrf avec la caméra princeton à illumination directe (mode de comptage de photon unique, pixel =  $22\mu\text{m}$ ) à  $E = 8.10\text{ keV}$

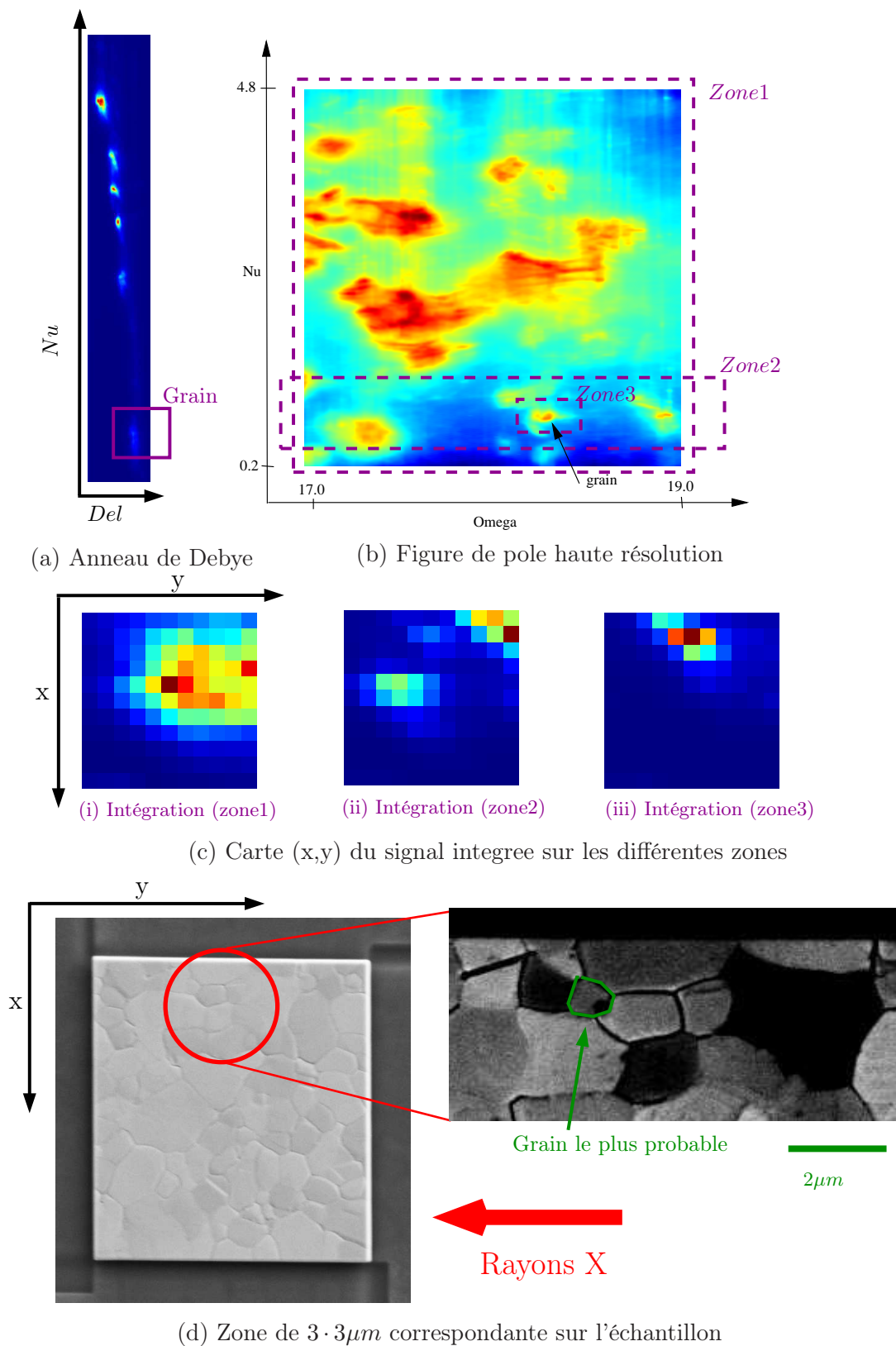


FIG. B.3 – Recherche du grain diffractant par technique à balayage en intégrant des zones plus en plus réduites de l'espace réciproque autour du signal de diffraction du grain sélectionné

### B.1.3 Grain (100) d'un film mince de cuivre

Des tests ont été effectués sur des films minces polycristallin en cuivre de  $500\text{ nm}$  d'épaisseur (Fig. B.4a). Le film est déposé sur un substrat de silicium (100). Une couche de quelques nanomètres de  $\text{SiN}$  sépare le substrat et le film (barrière). Un grain 100 a été imagé en mode cohérence le long d'un petit balayage  $\omega$ .

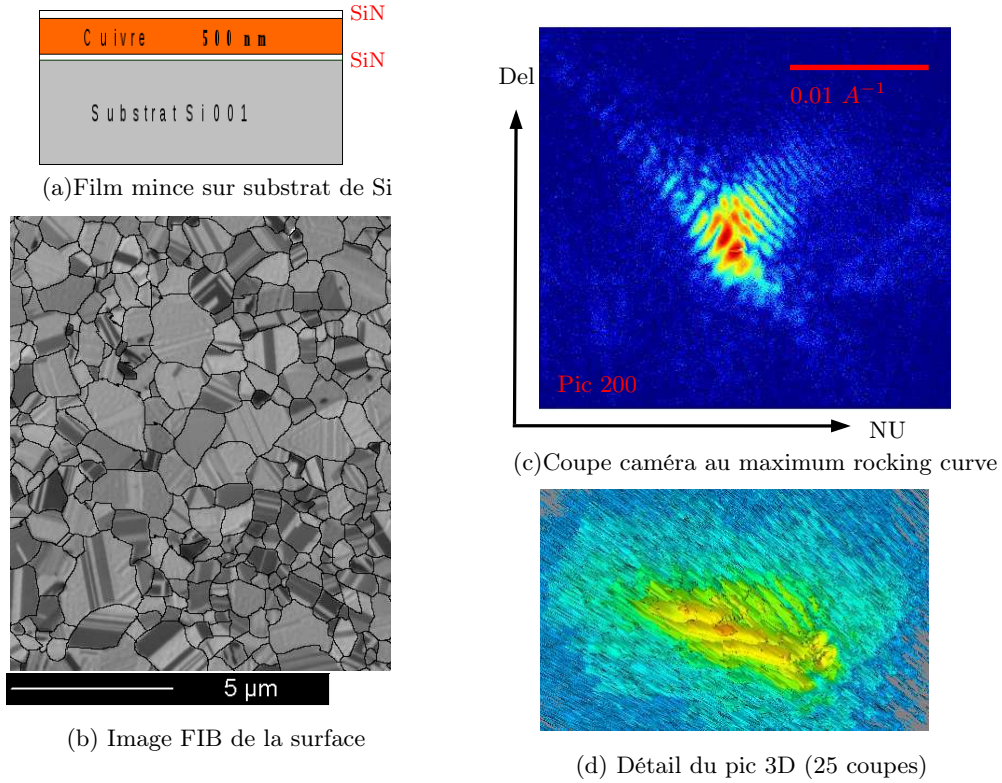


FIG. B.4 – Signal de diffraction cohérente issu d'un grain d'un film de cuivre de  $500\text{ nm}$  d'épaisseur déposé sur substrat de silicium (barrière de diffusion  $\text{SiN}$ ) et protégé par une couche d'encapsulation ( $\text{SiN}$ ) (Mesures de la réflexion 200 réalisées sur  $\text{ID01@esrf}$  à  $E = 8.0\text{ keV}$  avec caméra à illumination direct Princeton (Pixel :  $22\mu\text{m}$ ) en mode de comptage de photon unique)

## B.2 Autres chargements mécaniques

Des échantillons ayant subi des chargements mécaniques en traction ont été imagés en diffraction cohérente lors d'une campagne de mesure sur  $\text{ID01}$  à l'ESRF.

### B.2.1 Micropilier

Un micro-pilier de cuivre a été étudié de manière post-mortem en micro-diffraction monochromatique haute résolution (collaboration avec J. Keckes du Eric



Schmid Institute de Leoben). Ce pilier est un mono-cristal de cuivre de  $3\mu\text{m}$  de diamètre et d'environ  $20\mu\text{m}$  de long. L'axe du pilier correspond à la direction cristalline  $[\bar{2}34]$ . Ce pilier a été testé en traction grâce à l'implémentation d'une petite machine de traction dans un microscope électronique à balayage [Kiener 2008]. Le pilier a subi une traction uniaxiale dans l'axe du pilier. L'amplitude du test a été importante : jusqu'à 25% de déformation ont été appliqués (cf B.5a).

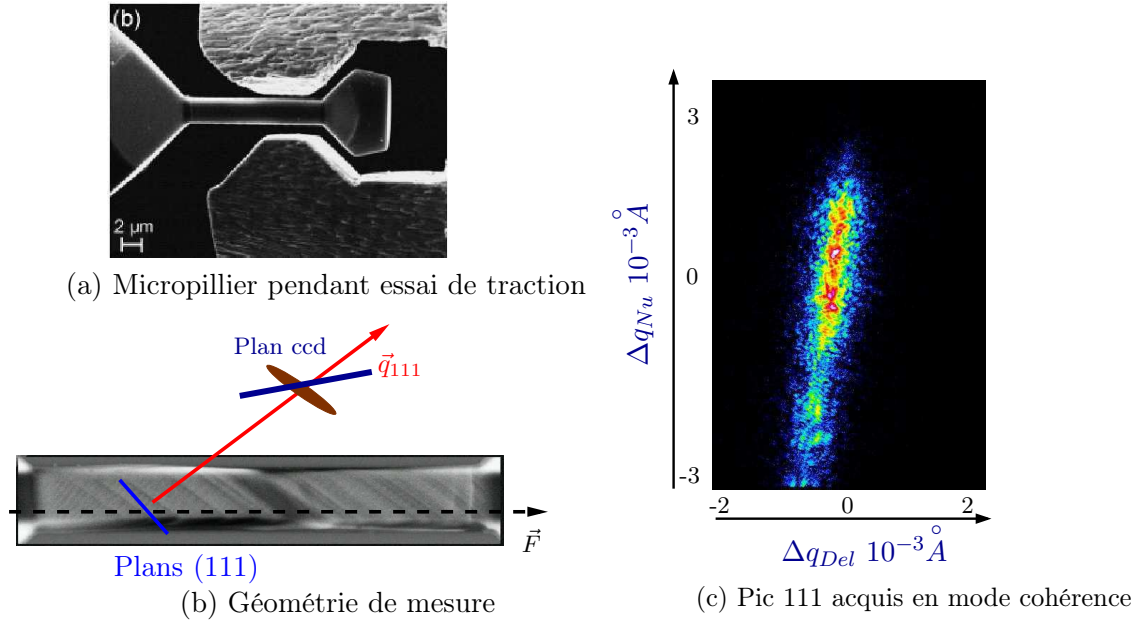


FIG. B.5 – *Diffraction Cohérente post-mortem sur micro-pilier de cuivre fortement chargé (déformation 25%). Coupe 2D au maximum de la rocking curve de la réflexion  $11\bar{1}$  réalisée sur ID01@esrf à  $E = 8.0\text{keV}$  avec caméra à illumination direct Princeton (Pixel :  $22\mu\text{m}$ )*

Une mesure en mode cohérence sur la ligne ID01 a été effectuée pour une position le long du pilier après cet essai mécanique. Le faisceau est focalisé par les lentilles de béryllium. La caméra placée à environ  $1\text{m}$  de l'échantillon CCD direct a été utilisée pour faire l'acquisition en mode *droplet* d'une coupe 2D. Cette coupe correspond au maximum de la rocking curve effectuée autour d'une réflexion de type 111 (Fig. B.5b). Cette figure de diffraction est très fortement perturbée (Fig. B.5c). Elle présente de nombreux speckles. On retrouve une figure similaire au polycristal S2 isolé (cf §. 4.7).

### B.2.2 Essai de traction sur film de cuivre polycristallin déposé sur kapton

Des tests ont également été réalisés sur la machine de traction Anton Paar avec un échantillon de cuivre polycristallin déposé sur du Kapton (collaboration avec J.

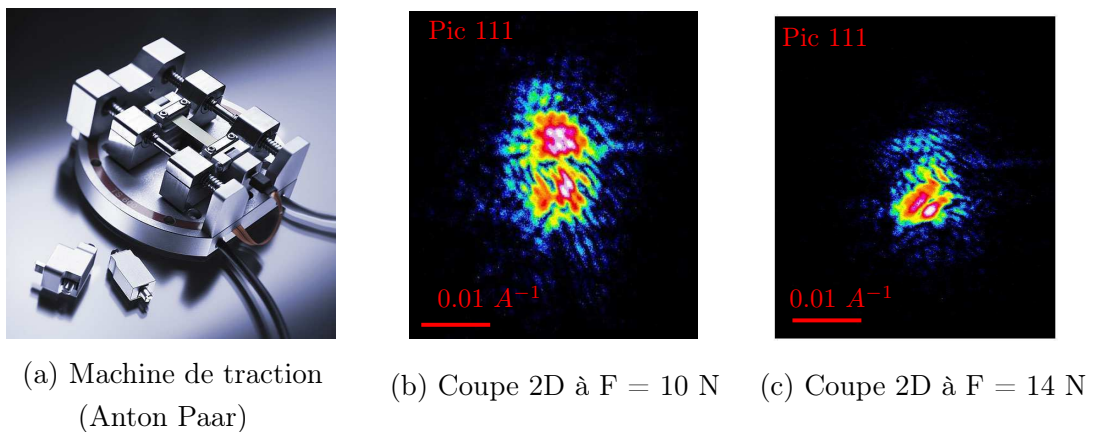


FIG. B.6 – Echantillon polycristallin de cuivre déposé sur un substrat Kapton imagé lors d'un essai de traction uniaxiale. Mesures de la réflexion 111 réalisées sur ID01@esrf à  $E = 8.0\text{keV}$  avec caméra à illumination direct Princeton (Pixel :  $22\mu\text{m}$ )

Keckes du Eric Schmid Institute de Leoben). Le Kapton est souvent utilisé pour des essais mécaniques en traction. Cette manière de contraindre l'échantillon est assez attrayante puisqu'il s'agit d'un essai mécanique assez simple : une traction uniaxiale. Deux figures de diffraction correspondant à deux niveaux de tension ont été mesurées (Fig B.6a,b). Expérimentalement, il fut très difficile de suivre le signal de ce grain unique lors de cet essai de traction. C'est pourquoi, ces essais mécaniques in-situ ont été par la suite abandonnés au profit d'essais thermo-mécaniques.

## Communications

Ce travail de thèse a donné lieu à des communications qui sont ici reportées.

### Publications

- [1] N. Vaxelaire, H. Proudhon, S. Labat, C. Kirchlechner, J. Keckes, V. Jacques, S. Ravy, S. Forest and O Thomas, *New Journal Of Physics*, **12**,35018 (2010)
- [2] N. Vaxelaire, S. Labat, V. Chamard, O. Thomas, V. Jacques, F. Picca, S. Ravy, C. Kirchlechner, J. Keckes, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, **268**,3,388-393 (2010)
- [3] H. Proudhon, N. Vaxelaire, S. Labat, S. Forest, O. Thomas, *Finite Elements simulations and coherent diffraction of elastoplastic polycrystalline aggregates* Online in *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences* doi :10.1016/j.crhy.2010.07.009 (2010)
- [4] C. Kirchlechner, D. Kiener, C. Motz, S. Labat, N. Vaxelaire, O. Perroud, J.-S. Micha, O. Ulrich, O. Thomas, G. Dehm, J. Keckes Online in *Philosophical Magazine*, <http://www.informaworld.com/10.1080/14786431003785639> (2010)

### Conférences Internationales (oral)

- EPDIC 12 (Darmstadt- Août 2010) : *Inter and intra Grain Strain Inhomogeneities in Au Polycrystalline Thin Films as probed by 3D Microdiffraction and Coherent Diffraction during Mechanical Loading*
- MID Workshop (Grenoble-Oct 2009) : *Coherent Diffraction Imaging as a tool to investigate Polycrystals Mechanics*
- E-MRS Spring Meeting (Strasbourg-Juin 2009) : *3D strain imaging in sub-micrometer crystals using cross-reciprocal space measurements : Numerical feasibility and experimental methodology*
- MRS Fall Meeting Boston (Nov 2008) : *Lattice rotation in tensile tested Cu micropillars : a synchrotron microdiffraction experiment*

### Conférences Françaises (oral)

- JMC 12 Troyes (août 2010) : *Coherent Diffraction Imaging as a tool to investigate Polycrystals Mechanics*

### Posters

- XTOP 2010 (Warwick-UK - Septembre 2010)
- Atelier2 Gdr Mecano(Paris-Juin 2009)
- Colloque Plasticité (Marseille-Juin 2009)
- Atelier1 Gdr Mecano (Marseille-Mars 2008 )

# Bibliographie

- [Alpers 2006] A. Alpers, H. F. Poulsen, E. Knudsen et G. T. Herman. *A discrete tomography algorithm for improving the quality of three-dimensional X-ray diffraction grain maps*. JOURNAL OF APPLIED CRYSTALLOGRAPHY, vol. 39, no. Part 4, pages 582–588, AUG 2006. 91
- [Als-Nielsen 2001] J. Als-Nielsen et D. MacMorrow. *Elements of modern x-ray physics*. John Wiley & Sons, 2001. 28
- [Arzt 1998] E. Arzt. *Size effects in materials due to microstructural and dimensional constraints : a comparative review*. Acta Materialia, vol. 46, no. 16, pages 5611 – 5626, 1998. 19
- [Baker 2001] S. P. Baker, A. Kretschmann et E. Arzt. *Thermomechanical behavior of different texture components in Cu thin films*. Acta Materialia, vol. 49, no. 12, pages 2145 – 2160, 2001. 13
- [Bauschke 2003] Heinz H. Bauschke, Patrick L. Combettes et D. Russell Luke. *Hybrid projection–reflection method for phase retrieval*. J. Opt. Soc. Am. A, vol. 20, no. 6, pages 1025–1034, 2003. 139
- [Bérar 2002] J.-F. Bérar, L. Blanquart, N. Boudet, P. Breugnon, B. Caillot, J.-C. Clemens, I. Delpierre P. an d Koudobine, C. Mouget, R. Potheau et I. Valin. *A pixel detector with large dynamic range for high photon counting rates*. Journal of Applied Crystallography, vol. 35, no. 4, pages 471–476, Aug 2002. 66
- [Beutier 2005] Guillaume Beutier. *Etude de nanostructures magnétiques par diffraction résonante et cohérente des Rayons X mous*. Thèse préparée à Institut National Polytechnique de Grenoble, 2005. 67
- [Biermanns 2009] Andreas Biermanns, Anton Davydok, Hendrik Paetzelt, Ana Diaz, Volker Gottschalch, Till Hartmut Metzger et Ullrich Pietsch. *Individual GaAs nanorods imaged by coherent X-ray diffraction*. Journal of Synchrotron Radiation, vol. 16, no. 6, pages 796–802, Nov 2009. 159, 160
- [Bioucas-Dias 2007] Jos M. Bioucas-Dias et Gonalo Valadao. *Phase Unwrapping via Graph Cuts*. IEEE Transactions on Image Processing, vol. 16, no. 3, pages 698–709, 2007. 175
- [Blandin 1966] A. Blandin, J. Friedel et G. Saada. *Les énergies de fautes d'empilement et de macles dans les métaux normaux*. J. Phys. Colloques, vol. 27, pages C3–128–C3–136, jul 1966. 6
- [Born 1959] M. Born et E. Wolf. *Principles of optics*. Pergamon Press Ltd., Oxford, 1959. 27
- [Brenner 1956] S. S. Brenner. *Tensile Strength of Whiskers*. Journal of Applied Physics, vol. 27, no. 12, page 1484, 1956. 19

- [Chamard 2009] V. Chamard, A. Diaz, J. Stangl et S. Labat. *Structural investigation of InAs nanowires with coherent X-rays*. The Journal of Strain Analysis for Engineering Design, vol. 44, no. 7, pages 533–542, Oct 2009. 159
- [Chamard 2010a] V. Chamard, M. Dolle, G. Baldinozzi, F. Livet, M. de Boissieu, S. Labat, F. Picca, C. Mocuta, P. Donnadiou et T. H. Metzger. *Strain analysis by inversion of coherent Bragg X-ray diffraction intensity : the illumination problem*. JOURNAL OF MODERN OPTICS, vol. 57, no. 9, pages 816–825, 2010. 47, 159, 160
- [Chamard 2010b] V. Chamard, J. Stangl, G. Carbone, A. Diaz, G. Chen, C. Alfonso, C. Mocuta et T. H. Metzger. *Three-Dimensional X-Ray Fourier Transform Holography : The Bragg Case*. Phys. Rev. Lett., vol. 104, no. 16, page 165501, Apr 2010. 177
- [Chang 1966] Y. A. Chang et L. Himmel. *Temperature Dependence of the Elastic Constants of Cu, Ag, and Au above Room Temperature*. Journal of Applied Physics, vol. 37, no. 9, pages 3567–3572, 1966. 20
- [Chapman 2006] Henry N. Chapman, Anton Barty, Stefano Marchesini, Aleksandr Noy, Stefan P. Hau-Riege, Congwu Cui, Malcolm R. Howells, Rachel Rosen, Haifeng He, John C. H. Spence, Uwe Weierstall, Tobias Beetz, Chris Jacobsen et David Shapiro. *High-resolution ab initio three-dimensional x-ray diffraction microscopy*. Journal of the Optical Society of America A, vol. 23, no. 5, pages 1179–1200, Mai 2006. 155, 162
- [Chen 2007] Chien-Chun Chen, Jianwei Miao, C. W. Wang et T. K. Lee. *Application of optimization technique to noncrystalline x-ray diffraction microscopy : Guided hybrid input-output method*. Phys. Rev. B, vol. 76, no. 6, page 064113, Aug 2007. 153
- [Cooley 1965] James W. Cooley et John W. Tukey. *An Algorithm for the Machine Calculation of Complex Fourier Series*. Mathematics of Computation, vol. 19, no. 90, pages 297–301, 1965. 154
- [Cowley 1975] J.M. Cowley. *Diffraction physics*. North-Holland Personal Library, 1975. 28
- [Crimmins 1990] T. R. Crimmins, J. R. Fienup et B. J. Thelen. *Improved bounds on object support from autocorrelation support and application to phase retrieval*. Journal of the Optical Society of America A, vol. 7, no. 1, pages 3–13, Janvier 1990. 140
- [Dehm 2003] Gerhard Dehm, T. John Balk, Hervais Edongu et Eduard Arzt. *Small-scale plasticity in thin Cu and Al films*. Microelectronic Engineering, vol. 70, no. 2-4, pages 412 – 424, 2003. Materials for Advanced Metallization 2003. 19
- [Diaz 2009] A. Diaz, C. Mocuta, J. Stangl, B. Mandl, C. David, J. Vila-Comamala, V. Chamard, T. H. Metzger et G. Bauer. *Coherent diffraction imaging of a single epitaxial InAs nanowire using a focused x-ray beam*. PHYSICAL REVIEW B, vol. 79, no. 12, MAR 2009. 159, 160

- [Dierolf 2010a] Martin Dierolf, Andreas Menzel, Pierre Thibault, Philipp Schneider, Cameron M. Kewish, Roger Wepf, Oliver Bunk et Franz Pfeiffer. *Ptychographic X-ray computed tomography at the nanoscale*. Nature, vol. 467, no. 7314, pages 436–439, 2010. 162, 179
- [Dierolf 2010b] Martin Dierolf, Pierre Thibault, Andreas Menzel, Cameron M Kewish, Konstantins Jefimovs, Ilme Schlichting, Konstanze von König, Oliver Bunk et Franz Pfeiffer. *Ptychographic coherent diffractive imaging of weakly scattering specimens*. New Journal of Physics, vol. 12, no. 3, page 035017, 2010. 179
- [Doyle 1968] P. A. Doyle et P. S. Turner. *Relativistic Hartree–Fock X-ray and electron scattering factors*. Acta Crystallographica Section A, vol. 24, no. 3, pages 390–397, May 1968. 29
- [Elsner 2003] Veit Elser. *Phase retrieval by iterated projections*. J. Opt. Soc. Am. A, vol. 20, no. 1, pages 40–55, 2003. 139
- [Faulkner 2004] H. M. L. Faulkner et J. M. Rodenburg. *Movable Aperture Lensless Transmission Microscopy : A Novel Phase Retrieval Algorithm*. Phys. Rev. Lett., vol. 93, no. 2, page 023903, Jul 2004. 179
- [Faulkner 2005] H.M.L. Faulkner et J.M. Rodenburg. *Error tolerance of an iterative phase retrieval algorithm for moveable illumination microscopy*. Ultramicroscopy, vol. 103, no. 2, pages 153 – 164, 2005. 179
- [Faurie 2009] D. Faurie, O. Castelnau, R. Brenner, P.-O. Renault, E. Le Bourhis et Ph. Goudeau. *In situ diffraction strain analysis of elastically deformed polycrystalline thin films, and micromechanical interpretation*. Journal of Applied Crystallography, vol. 42, no. 6, pages 1073–1084, Dec 2009. 14
- [Favre-Nicolin 2009] Vincent Favre-Nicolin, Joel Eymery, Robert Koester et Pascal Gentile. *Coherent-diffraction imaging of single nanowires of diameter 95 nanometers*. PHYSICAL REVIEW B, vol. 79, no. 19, MAY 2009. 159, 160
- [Fienup 1978] J. R. Fienup. *Reconstruction of an object from the modulus of its Fourier transform*. Optics Letters, vol. 3, no. 1, pages 27–29, Juillet 1978. 138
- [Fienup 1982] J. R. Fienup. *Phase retrieval algorithms : a comparison*. Appl. Opt, 1982. 138
- [Fienup 1986] J. R. Fienup et C. C. Wackerman. *Phase-retrieval stagnation problems and solutions*. J. Opt. Soc. Am. A, vol. 3, no. 11, pages 1897–1907, 1986. 138
- [Fienup 1987] J. R. Fienup. *Reconstruction of a complex-valued object from the modulus of its Fourier transform using a support constraint*. J. Opt. Soc. Am. A, vol. 4, no. 1, pages 118–123, 1987. 138, 142
- [Fox 1989] A. G. Fox, M. A. O’Keefe et M. A. Tabbemor. *Relativistic Hartree–Fock X-ray and electron atomic scattering factors at high angles*. Acta Crystallographica Section A, vol. 45, no. 11, pages 786–793, Nov 1989. 29

- [Frigo 2005] Matteo Frigo et Steven G. Johnson. *The Design and Implementation of FFTW3*. Proceedings of the IEEE, vol. 93, no. 2, pages 216–231, 2005. Special issue on “Program Generation, Optimization, and Platform Adaptation”. 154
- [Gangulee 1974] A. Gangulee. *Separation of the particle size and microstrain components in the Fourier coefficients of a single diffraction profile*. Journal of Applied Crystallography, vol. 7, no. 4, pages 434–439, Aug 1974. 35
- [Gerchberg 1972] R. W. Gerchberg et W. O. Saxton. *Phase determination from image and diffraction plane pictures in the electron microscope*. Optik, no. 35, pages 237–246, 1972. 137
- [Harder 2007] R. Harder, M. A. Pfeifer, G. J. Williams, I. A. Vartaniants et I. K. Robinson. *Orientation variation of surface strain*. Phys. Rev. B, vol. 76, no. 11, page 115425, Sep 2007. 162, 171
- [Hiki 1966] Yosio Hiki et A. V. Granato. *Anharmonicity in Noble Metals ; Higher Order Elastic Constants*. Phys. Rev., vol. 144, no. 2, pages 411–419, Apr 1966. 15, 213
- [Hirth 1992] John Price Hirth et Jens Lothe. Theory of dislocations. Krieger Publishing Company, Mai 1992. 6
- [Hooper 2007] Andrew Hooper et Howard A. Zebker. *Phase unwrapping in three dimensions with application to InSAR time series*. Journal of the Optical Society of America A, vol. 24, no. 9, pages 2737–2747, 2007. 175
- [Hytch 2003] Martin J. Hytch, Jean-Luc Putaux et Jean-Michel Penisson. *Measurement of the displacement field of dislocations to 0.03Å by electron microscopy*. Nature, vol. 423, no. 6937, pages 270–273, Mai 2003. i, 152
- [Itoh 1982] Kazuyoshi Itoh. *Analysis of the phase unwrapping algorithm*. Appl. Opt., vol. 21, no. 14, pages 2470–2470, 1982. 175
- [Jacques 2009] Vincent Jacques. *Application de la diffraction cohérente des rayons X l'étude de défauts topologiques dans les structures atomiques et électronique*. Thèse préparée au laboratoire de physique des solides, Université Paris XI, 2009. 59, 63
- [Jacques 2011] V. L. R. Jacques, S. Ravy, D. Le Bolloc'h, E. Pinsolle, M. Sauvage-Simkin et F. Livet. *Bulk Dislocation Core Dissociation Probed by Coherent X Rays in Silicon*. Physical Review Letters, vol. 106, no. 6, page 065502, Février 2011. 183
- [Jakobsen 2006] Bo Jakobsen, Henning F. Poulsen, Ulrich Lienert, Jonathan Almer, Sarvjit D. Shastri, Henning O. Sorensen, Carsten Gundlach et Wolfgang Pantleon. *Formation and Subdivision of Deformation Structures During Plastic Deformation*. Science, vol. 312, no. 5775, pages 889–892, 2006. 91, 131
- [Jakobsen 2007] Bo Jakobsen, Henning F. Poulsen, Ulrich Lienert et Wolfgang Pantleon. *Direct determination of elastic strains and dislocation densities in individual subgrains in deformation structures*. Acta Materialia, vol. 55, no. 10, pages 3421–3430, Juin 2007. 91, 131

- [Jiang 2010] Huaidong Jiang, Changyong Song, Chien-Chun Chen, Rui Xu, Kevin S. Raines, Benjamin P. Fahi mian, Chien-Hung Lu, Ting-Kuo Lee, Akio Nakashima, Jun Urano, Tetsuya Ishikawa, Fuyuhiko Tamanoi et Jianwei Miao. *Quantitative 3D imaging of whole, unstained cells by using X-ray diffraction microscopy*. Proceedings of the National Academy of Sciences, vol. 107, no. 25, pages 11234 –11239, Juin 2010. 162
- [Kiener 2008] D. Kiener, W. Grosinger, G. Dehm et R. Pippan. *A further step towards an understanding of size-dependent crystal plasticity : In situ tension experiments of miniaturized single-crystal copper samples*. Acta Materialia, vol. 56, no. 3, pages 580 – 592, 2008. 19, 194
- [Kirkpatrick 1948] P. Kirkpatrick et A. V. Baez. *Formation of Optical Images by X-Rays*. J. Opt. Soc. Am., vol. 38, no. 9, pages 766–773, 1948. 39
- [Kocks 2000] U. F. Kocks, Carlos Norberto Tomé, Hans-Rudolf Wenk et H. Mecking. *Texture and anisotropy : preferred orientations in polycrystals and their effect on materials properties*. Cambridge University Press, Août 2000. 14
- [Labat 2007] S. Labat, V. Chamard et O. Thomas. *Local strain in a 3D nano-crystal revealed by 2D coherent X-ray diffraction imaging*. Thin Solid Films, vol. 515, no. 14, pages 5557 – 5562, 2007. The Ninth International Conference on Surface X-Ray and Neutron Scattering - 9SXNS. 158
- [Le Bolloc'h 2002] D. Le Bolloc'h, F. Livet, F. Bley, T. Schulli, M. Veron et T. H. Metzger. *X-ray diffraction from rectangular slits*. Journal of Synchrotron Radiation, vol. 9, no. 4, pages 258–265, Jul 2002. 59
- [Leake 2009] Steven J. Leake, Marcus C. Newton, Ross Harder et Ian K. Robinson. *Longitudinal coherence function in X-ray imaging of crystals*. Opt. Express, vol. 17, no. 18, pages 15853–15859, 2009. 63
- [Livet 2000] F Livet, F Bley, J Mainville, R Caudron, SGJ Mochrie, E Geissler, G Dolino, D Abernathy, G Grubel et M Sutton. *Using direct illumination CCDs as high-resolution area detectors for X-ray scattering*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, vol. 451, no. 3, pages 596–609, 2000. 67
- [Ludwig 2009] W. Ludwig, A. King, P. Reischig, M. Herbig, E.M. Lauridsen, S. Schmidt, H. Proudhon, S. Forest, P. Cloetens, S. Rolland du Roscoat, J.Y. Buffière, T.J. Marrow et H.F. Poulsen. *New opportunities for 3D materials science of polycrystalline materials at the micrometre lengthscale by combined use of X-ray diffraction and X-ray imaging*. Materials Science and Engineering : A, vol. 524, no. 1-2, pages 69 – 76, 2009. Special Topic Section : Probing strains and Dislocation Gradients with diffraction. 91
- [Marchesini 2003] S. Marchesini, H. He, H. N. Chapman, S. P. Hau-Riege, A. Noy, M. R. Howells, U. Weierstall et J. C. H. Spence. *X-ray image reconstruction from a diffraction pattern alone*. Phys. Rev. B, vol. 68, no. 14, page 140101, Oct 2003. 141



- [Marchesini 2007] S. Marchesini. *Invited Article : A unified evaluation of iterative projection algorithms for phase retrieval*. Review of Scientific Instruments, vol. 78, no. 1, page 011301, 2007. 139
- [Matthews 1974] A.E. Matthews et J.W. Blakeslee. *Defects in epitaxial multilayers*. J. Cryst. Growth, no. 27, page 118, 1974. 19
- [Miao 1998] J Miao, D Sayre et HN Chapman. *Phase retrieval from the magnitude of the Fourier transforms of nonperiodic objects*. JOURNAL OF THE OPTICAL SOCIETY OF AMERICA A-OPTICS IMAGE SCIENCE AND VISION, vol. 15, no. 6, pages 1662–1669, JUN 1998. 136
- [Miao 1999] Jianwei Miao, Pambos Charalambous, Janos Kirz et David Sayre. *Extending the methodology of X-ray crystallography to allow imaging of micrometre-sized non-crystalline specimens*. Nature, vol. 400, no. 6742, pages 342–344, Juillet 1999. ii
- [Mignot 1975] J. Mignot et D. Rondot. *Methode de separation des dimensions de domaine et des microdeformations a partir des coefficients de fourier d'un seul profil de raie de diffraction X*. Acta Metallurgica, vol. 23, no. 11, pages 1321 – 1324, 1975. 35
- [Millane 1990] R. P. Millane. *Phase retrieval in crystallography and optics*. J. Opt. Soc. Am. A, vol. 7, no. 3, pages 394–411, 1990. 139
- [Minkevich 2007] A. A. Minkevich, M. Gailhanou, J.-S. Micha, B. Charlet, V. Charnard et O. Thomas. *Inversion of the diffraction pattern from an inhomogeneously strained crystal using an iterative algorithm*. Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics), vol. 76, no. 10, page 104106, 2007. 159, 160
- [Minkevich 2008] A. A. Minkevich, T. Baumbach, M. Gailhanou et O. Thomas. *Applicability of an iterative inversion algorithm to the diffraction patterns from inhomogeneously strained crystals*. Physical Review B, vol. 78, no. 17, page 174110, Novembre 2008. 161
- [Neighbours 1958] J. R. Neighbours et G. A. Alers. *Elastic Constants of Silver and Gold*. Phys. Rev., vol. 111, no. 3, pages 707–712, Aug 1958. 15, 20, 213
- [Newton 2010a] Marcus C. Newton, Ross Harder, Xiaojing Huang, Gang Xiong et Ian K. Robinson. *Phase retrieval of diffraction from highly strained crystals*. Physical Review B, vol. 82, no. 16, page 165436, Octobre 2010. 163, 164
- [Newton 2010b] Marcus C. Newton, Steven J. Leake, Ross Harder et Ian K. Robinson. *Three-dimensional imaging of strain in a single ZnO nanorod*. Nat Mater, vol. 9, no. 2, pages 120–124, Feb 2010. 163, 164
- [Nix 1989] William Nix. *Mechanical properties of thin films*. Metallurgical and Materials Transactions A, vol. 20, no. 11, pages 2217–2245, Nov 1989. 19
- [Nye 1957] J. F. Nye. Physical properties of crystals - their representation by tensors and matrices. Oxford Science Publication, 1957. 185

- [Pfeifer 2006] Mark A. Pfeifer, Garth J. Williams, Ivan A. Vartanyants, Ross Harder et Ian K. Robinson. *Three-dimensional mapping of a deformation field inside a nanocrystal*. Nature, vol. 442, no. 7098, pages 63–66, Juillet 2006. ii, 162, 163
- [Ponchut 2007] Cyril Ponchut, Joel Clément, Jean-Marie Rigal, Emmanuel Papillon, John Vallerger, Daniel LaMarra et Bettina Mikulec. *Photon-counting X-ray imaging at kilohertz frame rates*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol. 576, no. 1, pages 109 – 112, 2007. Proceedings of the 8th International Workshop on Radiation Imaging Detectors. 66
- [Poulsen 2004] H.F. Poulsen. Three-dimensional x-ray diffraction microscopy. Springer, 2004. 91
- [Prévoit 2007] Geoffroy Prévoit, Alessandro Coati, Bernard Croset et Yves Garreau. *Direct observation of elastic displacement modes by grazing-incidence X-ray diffraction*. Journal of Applied Crystallography, vol. 40, no. 5, pages 874–882, Oct 2007. 46
- [Proudhon 2011] H. Proudhon, N. Vaxelaire, S. Labat, S. Forest et O. Thomas. *Finite element simulations of coherent diffraction in elastoplastic polycrystalline aggregates*. Comptes Rendus Physique, vol. 11, no. 3-4, 2011. 126
- [Quiney 2006] H. M. Quiney, A. G. Peele, Z. Cai, D. Paterson et K. A. Nugent. *Diffraction imaging of highly focused X-ray fields*. Nat Phys, vol. 2, no. 2, pages 101–104, Février 2006. 146
- [Richter 2009] Gunther Richter, Karla Hillerich, Daniel S. Gianola, Reiner Monig, Oliver Kraft et Cynthia A. Volkert. *Ultra-high Strength Single Crystalline Nanowhiskers Grown by Physical Vapor Deposition*. Nano Letters, vol. 9, no. 8, pages 3048–3052, 2009. 19
- [Robinson 2003] I. K. Robinson, C. A. Kenney-Benson et I. A. Vartanyants. *Sources of decoherence in beamline optics*. Physica B : Condensed Matter, vol. 336, no. 1-2, pages 56 – 62, 2003. Proceedings of the Seventh International Conference on Surface X-ray and Neutron Scattering. 63
- [Rösner 2010] H. Rösner, N. Boucharat, K.A. Padmanabhan, J. Markmann et G. Wilde. *Strain mapping in a deformation-twinned nanocrystalline Pd grain*. Acta Materialia, vol. 58, no. 7, pages 2610–2620, Avril 2010. i
- [Sayre 1952] D. Sayre. *Some implications of a theorem due to Shannon*. Acta Crystallogr., vol. 5, no. 843, 1952. 136
- [Schroer 2008] C. G. Schroer, R. Boye, J. M. Feldkamp, J. Patommel, A. Schropp, A. Schwab, S. Stephan, M. Burghammer, S. Schoeder et C. Riekel. *Coherent x-ray diffraction imaging with nanofocused illumination*. PHYSICAL REVIEW LETTERS, vol. 101, no. 9, AUG 29 2008. 61, 152
- [Schropp 2007] A. Schropp. Experimental coherent x-ray diffractive imaging : Capabilities and limitations of the technique. Thèse de l’université technique de Dresden, 2007. 142

- [Spolenak 2003] R. Spolenak, W. L. Brown, N. Tamura, A. A. MacDowell, R. S. Celestre, H. A. Padmore, B. Valek, J. C. Bravman, T. Marieb, H. Fujimoto, B. W. Batterman et J. R. Patel. *Local Plasticity of Al Thin Films as Revealed by X-Ray Microdiffraction*. Phys. Rev. Lett., vol. 90, no. 9, page 096102, Mar 2003. 39
- [Stadler 2008] Lorenz-M. Stadler, Christian Gutt, Tina Autenrieth, Olaf Leupold, Stefan Rehbein, Yuriy Chushkin et Gerhard Grubel. *Hard X Ray Holographic Diffraction Imaging*. Physical Review Letters, vol. 100, no. 24, page 245503, 2008. 177
- [Takagi 1969] S. Takagi. *A Dynamical Theory of Diffraction for a Distorted Crystal*. Journal of the Physical Society of Japan, vol. 26, no. 5, pages 1239–1253, 1969. 40
- [Tamura 2003] N. Tamura, A. A. MacDowell, R. Spolenak, B. C. Valek, J. C. Bravman, W. L. Brown, R. S. Celestre, H. A. Padmore, B. W. Batterman et J. R. Patel. *Scanning X-ray microdiffraction with submicrometer white beam for strain/stress and orientation mapping in thin films*. Journal of Synchrotron Radiation, vol. 10, no. 2, pages 137–143, 2003. 101
- [Thompson 2000] C. V. Thompson. *STRUCTURE EVOLUTION DURING PROCESSING OF POLYCRYSTALLINE FILMS*. Annual Review of Materials Science, vol. 30, no. 1, pages 159–190, 2000. 16
- [Touloukian 1976] Y. S. Touloukian, R. K. Kirby, R. E. Taylor et P. D. Desai. Thermal expansion, volume 12. IFI/PLENIUM New-York-Washington, 1976. 19, 73
- [Tyson 1977] W.R. Tyson et W.A. Miller. *Surface free energies of solid metals : Estimation from liquid surface tension measurements*. Surface Science, vol. 62, no. 1, pages 267 – 276, 1977. 16
- [Uchic 2004] Michael D. Uchic, Dennis M. Dimiduk, Jeffrey N. Florando et William D. Nix. *Sample Dimensions Influence Strength and Crystal Plasticity*. Science, vol. 305, no. 5686, pages 986 –989, 2004. 19
- [Vartanyants 2005] I. A. Vartanyants, I. K. Robinson, J. D. Onken, M. A. Pfeifer, G. J. Williams, F. Pfeiffer, H. Metzger, Z. Zhong et G. Bauer. *Coherent x-ray diffraction from quantum dots*. Phys. Rev. B, vol. 71, no. 24, page 245302, Jun 2005. 161
- [Vaxelaire 2010a] N. Vaxelaire, S. Labat, V. Chamard, O. Thomas, V. Jacques, F. Picca, S. Ravy, C. Kirchlechner et J. Keckes. *3D strain imaging in sub-micrometer crystals using cross-reciprocal space measurements : Numerical feasibility and experimental methodology*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms, vol. 268, no. 3-4, pages 388 – 393, 2010. X-ray Techniques for Advanced Materials, Nanostructures and Thin Films : from Laboratory Sources to Synchrotron Radiation - Proceedings of the EMRS 2009 Spring Meeting - Symposium R. 112

- [Vaxelaire 2010b] N Vaxelaire, H Proudhon, S Labat, C Kirchlechner, J Keckes, V Jacques, S Ravy, S Forest et O Thomas. *Methodology for studying strain inhomogeneities in polycrystalline thin films during in situ thermal loading using coherent x-ray diffraction*. New Journal of Physics, vol. 12, no. 3, page 035018, 2010. 124, 128
- [Vinci 1995] R. P. Vinci, E. M. Zielinski et J. C. Bravman. *Thermal strain and stress in copper thin films*. Thin Solid Films, vol. 262, no. 1-2, pages 142 – 153, 1995. 19
- [Vodnick 2010] Aaron M. Vodnick, David E. Nowak, Stephane Labat, Olivier Thomas et Shefford P. Baker. *Out-of-plane stresses arising from grain interactions in textured thin films*. Acta Materialia, vol. 58, no. 7, pages 2452 – 2463, 2010. 13
- [Šiška 2007a] F. Šiška, S. Forest et P. Gumbsch. *Simulation of stress-strain heterogeneities in copper thin films : Texture and substrate effects*. Computational Materials Science, vol. 39, pages 137–141, 2007. 126
- [Šiška 2007b] F. Šiška, S. Forest, P. Gumbsch et D. Weygand. *Finite element simulations of the cyclic elastoplastic behaviour of copper thin films*. Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering, vol. 15, no. 1, pages S217–S238, 2007. 126
- [Warren 1950] B. E. Warren et B. L. Averbach. J. Appl. Phys., vol. 23, page 497, 1950. 35
- [Warren 1969] B. E. Warren. X-ray diffraction. Dover Publication, Inc., New York, 1969. 28
- [Williams 2003] G. J. Williams, M. A. Pfeifer, I. A. Vartanyants et I. K. Robinson. *Three-Dimensional Imaging of Microstructure in Au Nanocrystals*. Phys. Rev. Lett., vol. 90, no. 17, page 175501, Apr 2003. 162, 163
- [Williams 2004] G. J. Williams. *Microscopy of au microcrystals by coherent x-ray diffraction imaging*. Thesis from Graduate College of the University of Illinois at Urbana-Champaign, 2004. 142
- [Williams 2006] G. J. Williams, H. M. Quiney, B. B. Dhal, C. Q. Tran, K. A. Nugent, A. G. Peele, D. Pater son et M. D. de Jonge. *Fresnel Coherent Diffractive Imaging*. Physical Review Letters, vol. 97, no. 2, page 025506, Juillet 2006. 146
- [Williamson 1953] G.K Williamson et W.H Hall. *X-ray line broadening from fided aluminium and wolfram*. Acta Metallurgica, vol. 1, no. 1, pages 22 – 31, 1953. 35
- [Zaefferer 2008] S. Zaefferer, S.I. Wright et D. Raabe. *Three-Dimensional Orientation Microscopy in a Focused Ion Beam Scanning Electron Microscope : A New Dimension of Microstructure Characterization*. Metallurgical and Materials Transactions A, vol. 39, no. 2, pages 374–389, Janvier 2008. 8

- [Zeghadi 2007] A. Zeghadi, F. N’Guyen, S. Forest, A.-F. Gourgues et O. Bouaziz. *Ensemble averaging stress–strain fields in polycrystalline aggregates with a constrained surface microstructure–Part 1 : Anisotropic elastic behaviour*. Philosophical Magazine, vol. 87, no. 8-9, pages 1401–1424, 2007. [126](#)
- [Zhong 2009] Heping Zhong, Sen Zhang et Jinsong Tang. *Path Following Algorithm for Phase Unwrapping Based on Priority Queue and Quantized Quality Map*. In 2009 International Conference on Computational Intelligence and Software Engineering, pages 1–4, Wuhan, China, 2009. [175](#)

# Table des figures

1.1	<i>Densité de probabilité pour une loi Log-Normale . . . . .</i>	3
1.2	<i>Principe de la projection stéréographique . . . . .</i>	4
1.3	<i>Film présentant une texture de fibre <math>\langle 111 \rangle</math> ainsi qu'un grain (100) et une macle dans un des grains (111) . . . . .</i>	5
1.4	<i>Les 3 rotations successives de la transformation d'Euler . . . . .</i>	6
1.5	<i>(a) Schéma illustrant l'apparition d'un plan de maclage dû à une faute d'empilement. (b) Exemple de macles dans un film polycristallin d'or. . . . .</i>	6
1.6	<i>Shéma explicatif des tenseurs de déformation et de contrainte . . . . .</i>	8
1.7	<i>Equilibre entre un grain (111) et un grain (100) . . . . .</i>	13
1.8	<i>Géométrie de glissement uniaxial et biaxial . . . . .</i>	18
1.9	<i>Evolutions des constantes d'élasticité et de la dilatation de l'or avec la température . . . . .</i>	20
1.10	<i>Illustration du chargement par désaccord des paramètres de dilatation . . . . .</i>	21
1.11	<i>Allure idéalisée de la réponse thermique d'un film mince lors de deux cycles successifs. (a,b,c) Représentation de la déformation dans le plan, perpendiculaire au plan et courbe contrainte-déformation dans le cas d'une plasticité parfaite. (d,e,f) même courbe si la plasticité s'accompagne d'un durcissement . . . . .</i>	22
2.1	<i>Illustration classique des longueurs de cohérence . . . . .</i>	27
2.2	<i>Diffusion par un électron et un atome . . . . .</i>	28
2.3	<i>Facteur de diffusion pour Au et le Cu . . . . .</i>	30
2.4	<i>Fonction de Laue et largeur intégrale . . . . .</i>	32
2.5	<i>Calcul des largeurs des pics 111, 222 et 333 en vue de tracer le diagramme de Williamson Hall à partir de 2 distributions de taille et de déformation . . . . .</i>	37
2.6	<i>Quelques figures de pôle d'axe 111 correspondant à des textures classiques . . . . .</i>	38
2.7	<i>Principes généraux de la micro-diffraction Laue . . . . .</i>	39
2.8	<i>Lien entre l'espace direct et l'espace réciproque des résolutions et des étendues . . . . .</i>	41
2.9	<i>Géométrie de la mesure . . . . .</i>	42
2.10	<i>Exemple d'un champ de déplacement <math>\vec{u}</math> quelconque et du tenseur complet des déformations correspondant . . . . .</i>	42
2.11	<i>Différentes réflexions calculées à partir du champ <math>\vec{u}</math> précédent . . . . .</i>	44
2.12	<i>Phase <math>\mathbf{G} \cdot \mathbf{u}</math> et pic (11) déduit pour un niveau d'inhomogénéité de déformation croissante . . . . .</i>	45
2.13	<i>Déplacement du pic si le cristal est le siège d'un champ <math>u</math> linéaire . . . . .</i>	45
2.14	<i>Déphasage supplémentaire dû aux imperfections du front d'onde . . . . .</i>	47

3.1	<i>Scan dans l'espace réciproque</i> . . . . .	50
3.2	<i>Les trois diffractomètres utilisés pour les expériences</i> . . . . .	52
3.3	<i>Schéma représentatif des deux dispositifs les plus largement utilisés au laboratoire : mode haute résolution a) et haut flux b).</i> . . . . .	54
3.4	<i>(a) Comparaison des différents modèles de fit . (b) Extraction du signal ajusté issu de la <math>K_{\alpha 1}</math> en vert, de la <math>K_{\alpha 2}</math> en magenta à partir de l'ajustement couplé <math>Ka1 + Ka2</math> en bleu</i> . . . . .	55
3.5	<i>Caractéristiques principales des lignes Cristal(Soleil) et ID01(ESRF)</i>	57
3.6	<i>Mesure du seuil de fluorescence de l'Au lors de deux expériences</i> . . .	58
3.7	<i>Taille approximative (empreinte du profil central) du faisceau sur le grain en fonction de l'ouverture des fentes F5</i> . . . . .	59
3.8	<i>Faisceau focalisé par des lentilles réfractives</i> . . . . .	60
3.9	<i>Signal de sortie du détecteur multi-canal. Le pic sélectionné correspond à une raie <math>L\alpha</math> qui apparaît lorsque l'on dépasse le seuil.</i> . . . . .	64
3.10	<i>Le traitement droplet permet d'augmenter la visibilité des franges</i> . .	67
3.11	<i>(a) Influence de la fixation de la caméra, (b) Détection d'un rayon cosmique</i> . . . . .	68
3.12	<i>(a) Illustration du passage repère de l'échantillon au repère du détecteur, (b) Représentation de la caméra sur la sphère d'Ewald</i> . . . . .	69
3.13	<i>Les trois fours utilisés lors des différentes expériences</i> . . . . .	72
3.14	<i>Calibration du four de ID01 avec un monocristal de MgO</i> . . . . .	73
4.1	<i>Images par microscopie électronique à balayage des quatres échantillons étudiés en détail : images (a,c,d) obtenues en détection d'électrons rétrodiffusés et l'image (b) en détection d'électrons secondaires</i> .	77
4.2	<i>Informations morphologiques provenant de l'étude de la microstructure des films polycristallins</i> . . . . .	78
4.3	<i>Image MEB du bord du film S1</i> . . . . .	79
4.4	<i>Scan symétrique <math>\theta/2\theta</math> et rocking curve réalisés avec la source de laboratoire</i> . . . . .	80
4.5	<i>Cartographie EBSD et figure de pôle réalisées sur l'échantillon P3. Les mesures EBSD ont été effectuées par C. Kirchlechner à l'institut Eric Schmidt-Université de Leoben</i> . . . . .	81
4.6	<i>Cartes angulaires (<math>2\theta, \psi</math>) théoriques (a) et expérimentales (b) où sont positionnés les pics de diffraction des trois familles majoritaires (111), (100) et (511)</i> . . . . .	84
4.7	<i>Déformation calculée à partir de pics mesurés en géométrie coplanaire ou en géométrie non coplanaire</i> . . . . .	84
4.8	<i>(a) <math>\sin^2 \psi</math> pour les 3 familles (111), (100) et (511) de l'échantillon P3. (b) Graphe de Williamson-Hall pour P3.</i> . . . . .	86
4.9	<i>Défauts de la microstructure du polycristal isolé P3</i> . . . . .	87
4.10	<i>Evolution avec la température de la déformation perpendiculaire <math>\epsilon_{\perp}</math> lors de cycles thermiques successifs pour l'échantillon S1 (a,b,c) et l'échantillon P3 (d,e,f)</i> . . . . .	89

4.11	<i>Evolution des largeurs lors des cycles thermiques pour les échantillons S1 (pic111) et P3 (pic222)</i> . . . . .	90
4.12	<i>Principe de l'acquisition d'une portion haute résolution d'une figure de pôle par mesure d'anneau de Debye lors d'une rocking curve</i> . . .	92
4.13	<i>Ajustement du signal 3D de grain</i> . . . . .	93
4.14	<i>Distribution des déformation, des largeurs pour les 22 grains indexés</i>	94
4.15	<i>Evolution en température des distributions de déformation moyenne et de la largeur <math>\delta q_z</math> pour les 22 grains</i> . . . . .	96
4.16	<i>Comparaison entre le pic moyen sur 22 grains et pic obtenu au laboratoire</i> . . . . .	97
4.17	<i>Design spécial de l'échantillon en vue de repérer le petit polycristal isolé</i>	99
4.18	<i>Comparaison ente la micro-diffraction monochromatique (3DXRD), la micro-diffraction en faisceau blanc (Laue) et les résultats issues de la carte d'orientation EBSD</i> . . . . .	100
4.19	<i>Extraction du signal de Laue du grain étudié</i> . . . . .	101
4.20	<i>Identification par multi-comparaison dans l'espace direct des 22 grains étudiés en 3DXRD et du grain étudié en cohérence</i> . . . . .	103
4.21	<i>Sélection d'un grain isolé dans l'espace réciproque</i> . . . . .	104
4.22	<i>Deux manières particulières de découper l'espace réciproque</i> . . . . .	106
4.23	<i>Correspondance entre les trois coupes 2D croisées issues du pic 3D et l'objet réel (grain #g1 de P3). Ce pic 111 a été obtenu sur la ligne ID01@esrf à <math>E = 11.91\text{keV}</math> avec la caméra Medipix (pixel <math>55\mu\text{m}</math>) placée à 1.14m.</i> . . . . .	109
4.24	<i>(a,b) Géométrie asymétrique avec caméra parallèle à la surface de l'échantillon (c) Coupe 2D de la réflexion 220 d'un grain de l'échantillon S0 (Mesures effectuées sur la ligne Cristal@Soleil, à <math>E = 5.26\text{keV}</math>, avec la caméra Andor (pixel <math>13\mu\text{m}</math>))</i> . . . . .	111
4.25	<i>Pic 111 d'un grain de S0 imagé en 3D selon 2 directions perpendiculaires (Mesures effectuées sur la ligne Cristal@Soleil, à <math>E = 5.26\text{keV}</math>, avec la caméra Andor (pixel <math>13\mu\text{m}</math>))</i> . . . . .	113
4.26	<i>Comparaison à température ambiante (début du 3ième cycle) de la réflexion 3D 111 et 222 du grain #g1 (Mesures effectuées sur la ligne IDO1@esrf, à <math>E = 11.91\text{keV}</math>, avec la caméra Medipix)</i> . . . . .	116
4.27	<i>Graphique de Williamson-Hall sur le grain unique #g1</i> . . . . .	117
4.28	<i>Coupe 2D de la réflexion 111 du grain #g1 P3 avec et sans beamstop (Mesures effectuées sur la ligne id01@esrf, à <math>E = 11.91\text{keV}</math>, avec la caméra Medipix)</i> . . . . .	119



4.29	(a) Diffraction cohérente en trois dimensions en température sur le grain #g1 de l'échantillon P3 (échelle logarithmique (maximum pic 5500 photons)). (b) Déformation perpendiculaire moyenne en fonction de la température dérivée du barycentre de la tâche. (c) Evolution de la contrainte biaxiale équivalente. (d) Evolution de la la largeur du pic dans la direction du perpendiculaire au faisceau (Mesures effectuées sur la ligne id01@esrf, à $E = 11.91\text{keV}$ , avec la caméra Medipix (pixel $55\mu\text{m}$ )) . . . . .	121
4.30	Evolutions morphologiques du polycristal isolé de P3 avant et après les recuits . . . . .	123
4.31	Diffraction cohérente sur d'autres grains de P3 (Mesures effectuées sur la ligne Cristal@Soleil, à $E = 11.92\text{keV}$ , avec la caméra Andor (pixel $13\mu\text{m}$ )) . . . . .	125
4.32	Méthodologie employée pour calculer le signal de cohérence d'un grain unique à partir d'une simulation éléments finis . . . . .	126
4.33	(a) Champ de contrainte Von Mises du grain sélectionné (b) Pic 111 3D correspondant (c) Coupe parallèle à la surface extraite du signal 3D. . . . .	127
4.34	Monocristal taillé dans le film S2 avant et après (a,b) le cycle thermique. (c,d,e) Evolution du pic 111 correspondant. (Mesures effectuées sur la ligne IDO1@esrf, à $E = 11.91\text{keV}$ , avec la caméra Medipix)	129
4.35	Apparition d'un pic secondaire au cours du cycle thermique . . . . .	130
5.1	Illustration de l'échantillonnage sur un sinus cardinal 1D, transformée de Fourier d'une porte . . . . .	135
5.2	Architectures générales des algorithmes d'inversion . . . . .	137
5.3	Principe de l'adapataion de support par l'algorithme shrink-wrap . . . . .	140
5.4	Description de l'échantillon numérique étudié . . . . .	142
5.5	2 reconstructions pour le pic correspondant à objet 10 (6sauts de phases) . . . . .	145
5.6	Influence du niveau de déformation sur la convergence des reconstructions (critère de convergence s'appuyant sur l'allure de l'erreur métrique) . . . . .	147
5.7	Procédure de traitement quantitatif des résultats bruts issus de l'inversion . . . . .	148
5.8	Quantification de la reconstruction sur objet 10 (6 sauts de phases) pour deux niveaux de bruit . . . . .	149
5.9	Influence du bruit et de l'échantillonnage sur la reconstruction de l'objet10 . . . . .	150
5.10	(a)Cluster utilisé pour ces études et (b)Performance des FFT parallélisées selon le protocole de communication entre les processeurs (source B. Granger) . . . . .	156
5.11	Tentative de reconstructions sur le grain de S1 par SW (coupes au niveau du centre de l'objet espacées de $\Delta y = 15\text{ nm}$ ) . . . . .	167

5.12	<i>Création du support aux bonnes résolutions à partir de l'image MEB du grain imagé de l'échantillon P3 . . . . .</i>	170
5.13	<i>Comparaison entre la figure de diffraction expérimentale sur le grain imagé de P3 (déformé) et le calcul de la même tache issue uniquement de la projection adéquate de la forme de l'objet dans l'espace réciproque</i>	171
5.14	<i>Résultats de l'inversion 3D en température sur le grain #g1 de P3 . . . . .</i>	174
5.15	<i>Principe du dépliage de phase . . . . .</i>	175
5.16	<i>Système numérique étudié par holographie . . . . .</i>	178
5.17	<i>objet reconstruit en considérant les deux références . . . . .</i>	179
5.18	<i>(a) Mesure complète de plusieurs réflexions indépendantes en vue de reconstruire le tenseur complet des déformations avec une résolution nanométrique (b) Cartographie expérimentale où le signal de cohérence d'une vingtaine de grains du film P3 est observable . . . . .</i>	182
B.1	<i>Comportement d'un grain (100) de l'échantillon S0. (Mesures de la réflexion 200 réalisées sur ID01@esrf à <math>E = 8.0\text{keV}</math> avec caméra à illumination direct Princeton (Pixel : <math>22\mu\text{m}</math>) en mode de comptage de photon unique) . . . . .</i>	190
B.2	<i>(a) Pic 111 acquis en 3 dimensions en effectuant un balayage <math>\omega</math> (c) pour un grain(111) appartenant au polycristal isolé de S1 (d). L'identification du grain diffractant est incertaine (b). Cette mesure a été effectué sur ID01@esrf avec la caméra princeton à illumination directe (mode de comptage de photon unique, pixel = <math>22\mu\text{m}</math>) à <math>E = 8.10\text{ keV}</math></i>	191
B.3	<i>Recherche du grain diffractant par technique à balayage en intégrant des zones plus en plus réduite de l'espace réciproque autour du signal de diffraction du grain sélectionné . . . . .</i>	192
B.4	<i>Signal de diffraction cohérente issu d'un grain d'un film de cuivre de 500 nm d'épaisseur déposé sur substrat de silicium (barrière de diffusion SiN) et protégé par une couche d'encapsulation (SiN) (Mesures de la réflexion 200 réalisées sur ID01@esrf à <math>E = 8.0\text{keV}</math> avec caméra à illumination direct Princeton (Pixel : <math>22\mu\text{m}</math>) en mode de comptage de photon unique) . . . . .</i>	193
B.5	<i>Diffraction Cohérente post-mortem sur micro-pilier de cuivre fortement chargé (déformation 25%). Coupe 2D au maximum de la rocking curve de la réflexion <math>11\bar{1}</math> réalisée sur ID01@esrf à <math>E = 8.0\text{keV}</math> avec caméra à illumination direct Princeton (Pixel : <math>22\mu\text{m}</math>) . . . . .</i>	194
B.6	<i>Echantillon polycristallin de cuivre déposé sur un substrat Kapton imagé lors d'un essai de traction uniaxiale . Mesures de la réflexion 111 réalisées sur ID01@esrf à <math>E = 8.0\text{keV}</math> avec caméra à illumination direct Princeton (Pixel : <math>22\mu\text{m}</math>) . . . . .</i>	195



# Liste des tableaux

1.1	<i>Constantes d'élasticité pour quelques matériaux [Neighbours 1958] [Hiki 1966] et grandeurs élastiques associées . . . . .</i>	15
1.2	<i>Energies de surface pour le cuivre et l'or . . . . .</i>	16
1.3	<i>Les Systèmes de glissement dans un cristal cubique et calcul des facteurs de Schmid pour une traction uniaxial d'axe <math>\bar{2}34</math> . . . . .</i>	17
1.4	<i>Valeurs des coefficients de dilatation de quelques matériaux usuels à la température ambiante . . . . .</i>	20
2.1	<i>Coefficients Cromer-Mann issus du calcul en Hartree-Fock relativiste (équation d'ajustement 2.7) . . . . .</i>	29
2.2	<i>Valeur des indices de réfraction pour l'or et le cuivre pour deux énergies</i>	46
3.1	<i>Longueurs de cohérence longitudinal . . . . .</i>	61
3.2	<i>Longueurs de cohérence transversales . . . . .</i>	62
3.3	<i>Raies de fluorescence de l'Au avec leurs intensités respectives (le seuil d'absorption de l'or vaut 11.9187keV) . . . . .</i>	65
3.4	<i>Comparaison de l'ouverture angulaire des différentes caméra CCD utilisées lors des différentes expériences en fonction de la distance L échantillon-caméra . . . . .</i>	66
4.1	<i>Position dans l'espace réciproque des différentes réflexions relatives aux familles de grains (100), (111) et (511) pour un cubique. En bleu sont représentées les réflexions communes aux grains (111) et à leurs macles (511). En vert, les réflexions suffisamment séparées dans l'espace angulaire pour être prises en compte dans l'analyse. En marron, les réflexions différentes mais trop proches et finalement en noir les réflexions non mesurables expérimentalement pour des raisons géométriques. . . . .</i>	83
4.2	<i>Récapitulatif des grandeurs déduites de l'analyse <math>\sin^2(\psi)</math> . . . . .</i>	85
4.3	<i>Pseudo Coefficient de dilatation thermique effectif moyen pour les échantillon S1 et P3 (mesure analyseur) . . . . .</i>	88
4.4	<i>Comparaison entre les largeurs expérimentales et largeurs déduites des effets de tailles dans les trois directions pour le signal du grain unique #g1 de P3 . . . . .</i>	108
4.5	<i>Paramètre déduit du graphe Williamson-Hall . . . . .</i>	117
5.1	<i>Erreur métrique finale et taux de réussite en fonction du niveau de déformation (données Noise1) . . . . .</i>	146
5.2	<i>Caractéristiques des meilleures constructions de l'objet10 en considérant différents critères pour Noise1 over 16 et Noise100 . . . . .</i>	151

---

5.3	<i>Temps pour effectuer une FFT pour différentes tailles de données avec des langages de programmation différents sur un processeur d'une des lames du cluster . . . . .</i>	155
5.4	<i>Quelques inversions 2D expérimentales en géométrie de Bragg . . . .</i>	159
5.5	<i>Résultats publiés relatifs à inversion 3D en condition de Bragg . . . .</i>	163
5.6	<i>Principales caractéristiques des données 3D collectées durant les différentes campagne expérimentales . . . . .</i>	166

## Etude des Inhomogénéités de Déformation dans les Films Minces Polycristallins par Diffraction X Cohérente

Les comportements mécaniques des films minces polycristallins sont encore mal compris à l'échelle sub-micronique. En particulier des hétérogénéités locales de déformation importantes sont attendues, mais elles restent difficile à quantifier expérimentalement. Les nouvelles possibilités offertes par les micro-faisceaux synchrotron de rayons X ont donc été utilisées dans ce travail pour éclairer cette problématique. Une réflexion de Bragg provenant d'un grain unique sub-micronique a été acquise avec une très bonne résolution dans l'espace réciproque en trois dimensions lors d'un cycle thermique. Les propriétés de cohérence du faisceau ont été utilisées pour reconstruire à trois dimensions une composante du champ de déplacement intra-grain avec une résolution d'une vingtaine de nanomètres dans les trois directions. Cette technique est basée sur des algorithmes de reconstruction de phase qui néanmoins connaissent des stagnations dans le cas des échantillons fortement déformés. Une méthodologie basée sur la connaissance de la forme du grain a donc été développée pour contourner ces difficultés. Des analyses complémentaires de diffraction X de laboratoire et de microdiffraction monochromatique ont également mis en évidence des hétérogénéités importantes de déformation entre les différents grains.

**Mots clés :** Diffraction X Cohérente, Reconstruction de Phase, Micro-diffraction X, Polycristaux, Déformations, Contraintes, Elasticité , Simulation Eléments Finis

---

## Strain Heterogeneities in Polycrystalline Thin Films as Probed by X-Ray Coherent Diffraction

Strain heterogeneities in polycrystalline thin films are of great interest in technology because many fabrication and reliability problems are stress related. Nevertheless measuring local strains in sub-micron grains remains a real experimental challenge. This thesis is focused on recent and promising results in the field of strain measurements in small dimensions via X-ray micro-diffraction. A 3D mapping of 111 Bragg reflection from a Au sub-micron single grain was measured during a thermal cycle. Coherent properties of the beam has been used to retrieve a component of the displacement field in 3D from this single grain with a resolution around  $17 \times 17 \times 22 \text{ nm}$  via phase retrieval procedures. However algorithms do not always converge when the grain is highly strained. Thus alternative techniques are proposed and tested to overcome this stagnation. Complementary results from laboratory diffraction and micro 3D X-Ray Diffraction have also been analysed to compare strain at different scales. Strong strain heterogeneities has been evidenced between grains.

**Keywords :** Coherent X-Ray Diffraction, Phase Retrieval, X-Ray Micro-diffraction, Polycrystals, Strain, Stress , ELasticity, 3DXRD, Finite Element Modelling