Développement de la microdiffraction Kossel pour l'analyse des déformations et contraintes à l'échelle du micromètre : applications à des matériaux cristallins

Denis Bouscaud

▶ **To cite this version:**

Denis Bouscaud. Développement de la microdiffraction Kossel pour l'analyse des déformations et contraintes à l'échelle du micromètre : applications à des matériaux cristallins. Science des matériaux [cond-mat.mtrl-sci]. Arts et Métiers ParisTech, 2012. Français. NNT : 2012ENAM0012 . pastel-00705441

HAL Id: pastel-00705441
https://pastel.hal.science/pastel-00705441

Submitted on 7 Jun 2012

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.

2012-ENAM-0012

École doctorale n° 432 : Sciences des Métiers de l'Ingénieur

Doctorat ParisTech

T H È S E

pour obtenir le grade de docteur délivré par

l'École Nationale Supérieure d'Arts et Métiers

Spécialité " Mécanique des Solides, Matériaux, Procédés"

présentée et soutenue publiquement par

Denis BOUSCAUD

le 18 mai 2012

Développement de la microdiffraction Kossel pour l'analyse des déformations et contraintes à l'échelle du micromètre - Applications à des matériaux cristallins

Directeur de thèse : **Etienne PATOOR**
Co-encadrement de la thèse : **Sophie BERVEILLER, Raphaël PESCI**

Jury

M. Philippe GOUDEAU, Directeur de Recherche, Institut P', Université de Poitiers	Président
M. Yves BRECHET, Professeur, SIMAP, Institut National Polytechnique de Grenoble	Rapporteur
M. Manuel FRANCOIS, Professeur, LASMIS, Université de Technologie de Troyes	Rapporteur
M. Michel BORNERT, Ingénieur en Chef des Ponts, Eaux et Forets, Navier, Ecole des Ponts ParisTech	Examinateur
Mme Sophie BERVEILLER, Maître de Conférences, LEM3, Arts et Métiers ParisTech	Examinateur
M. Raphaël PESCI, Maître de Conférences, LEM3, Arts et Métiers ParisTech	Examinateur
M. Etienne PATOOR, Professeur, LEM3, Arts et Métiers ParisTech	Examinateur

T H È S E

Arts et Métiers ParisTech - Centre de Metz
Laboratoire d'Etudes des Microstructures et de Mécanique des Matériaux
UMR CNRS 7239

Avant-propos

Ces travaux de thèse se sont déroulés au Centre d'Enseignement et de Recherche d'Arts et Métiers ParisTech, au sein de l'équipe SMART (Systèmes Multiphasés, Applications, Rhéologie, Tenue en Service) du LEM3 (Laboratoire d'Etudes des Microstructures et de Mécanique des Matériaux - UMR CNRS 7239).

Je tiens à remercier cordialement :
- Philippe Goudeau, Directeur de Recherche CNRS, Institut P', Université de Poitiers
- Yves Bréchet, Professeur des Universités, Laboratoire SIMAP, Institut National Polytechnique de Grenoble
- Manuel François, Professeur des Universités, Laboratoire LASMIS, Université de Technologie de Troyes
- Michel Bornert, Ingénieur en Chef des Ponts, Eaux et Forets, Laboratoire Navier, Ecole des Ponts ParisTech

pour avoir accepté d'évaluer ce travail et le temps passé à en examiner les détails.

Cette thèse n'aurait pas pu se faire sans l'appui de mes trois encadrants :
- Sophie Berveiller, Maître de Conférences ;
- Raphaël Pesci, Maître de Conférences ;
- Etienne Patoor, Professeur des Universités.

Je les remercie pour la confiance qu'ils m'accordent depuis maintenant sept ans. En janvier 2005, ils m'ont intégré dans leur équipe pour un emploi d'ingénieur d'études en diffraction des rayons X puis ont accepté trois ans et demi plus tard ma candidature à cette thèse. Je les remercie sincèrement pour leur gentillesse et leurs encouragements.

Je remercie les équipes de direction de l'école et du laboratoire pour m'avoir autorisé en tant qu'ingénieur d'études à m'inscrire à l'école doctorale et à réaliser ces travaux de recherche.

Je tiens à remercier particulièrement Marc Wary, personne incontournable du laboratoire, qui a pris le temps de m'aider à résoudre certains problèmes techniques. Il m'a également épaulé en encadrant la moitié des TPs en matériaux et en m'accompagnant sur certains travaux non liés à la thèse. Je souhaite sincèrement qu'il évolue, il le mérite.

Une personne qui a travaillé beaucoup au développement de cette technique est Adam Morawiec, Professeur à l'Institute of Metallurgy and Materials Science de Cracovie. Les longues discussions très animées que l'on a pu avoir, à Metz ou à Cracovie, nous ont permis de lever certains verrous. Je le remercie également pour sa gentillesse et je souhaite que la collaboration avec Metz continue.

Je remercie également Marie-Hélène Mathon et Vincent Klosek du LLB (CEA Saclay) pour leur aide précieuse durant les analyses neutroniques, ainsi que Manfred Burghammer, responsable de la ligne de lumière ID13, pour sa disponibilité et son expertise au cours des deux campagnes d'analyses au synchrotron de Grenoble.

Je souhaite également remercier différents chercheurs qui m'ont apporté beaucoup durant ces travaux : Karin Inal de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne (à Gardanne) pour avoir été l'un des initiateurs à Metz de ce projet et pour avoir continué à apporter de l'énergie au développement de cette technique, Claire Maurice et Roland Fortunier de l'Ecole

Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne pour leur expertise en EBSD, Renaud Vayrette et Christain Rivero de STMicroelectronics pour leurs explications avisées quant à l'élaboration des échantillons de la microélectronique et pour la fourniture de ces derniers, Patrice Gergaud du CEA-Leti, Olivier Castelnau du Laboratoire des Procédés et Ingénierie en Mécanique et Matériaux et David Barbier pour les échantillons de germanium, de tungstène polycristallin et de fer-silicium, respectivement.

Je remercie chaleureusement toutes les personnes du centre pour les moments de convivialité partagés ensemble, autour d'un café par exemple, et je souhaite bon courage aux doctorants qui sont sur le point de terminer.

Merci aux collègues de l'Athlétisme Metz Métropole pour leur joie de vivre durant les séances de fractionné le long du canal ou au Mont Saint-Quentin. Merci également aux grimpeuses/eurs du Club Alpin pour les bons moments passés en salle, en falaise, dans la neige ou sur la glace.

Enfin je terminerai en remerciant mes amis et ma famille. Ils m'ont toujours encouragé et soutenu dans mes projets. Je leur souhaite du bonheur et de la sérénité. Un petit clin d'oeil à Maxime, un petit garçon qui a vu le jour au début de cette thèse et que j'ai vu grandir semaines après semaines. Ses premiers pas ont coïncidé avec les premiers résultats en contraintes et ses premiers mots avec le début de l'écriture de ce manuscrit. C'est un filleul exceptionnel, un vrai rayon de soleil.

Table des matières

Introduction générale *7*

Chapitre 1 : Etude bibliographique de la détermination des contraintes aux échelles micrométriques et état de l'art sur la microdiffraction Kossel *11*

1.1 Détermination des contraintes aux échelles micrométriques **12**

1.1.1 Définition et origine des contraintes résiduelles 12

1.1.2 Principales techniques de détermination des contraintes à l'échelle macroscopique 14

1.1.3 Nécessité d'obtenir les contraintes à une échelle mésoscopique 15

1.2 Techniques expérimentales permettant de mesurer les états de déformation à l'échelle microscopique **16**

1.2.1 La spectroscopie micro-Raman 17

1.2.2 La microdiffraction des rayons X en rayonnement synchrotron 18

1.2.3 La diffraction électronique en faisceau convergent (CBED) 21

1.2.4 La diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD) 23

1.2.5 Bilan comparatif des techniques 25

1.3 Etat de l'art sur la microdiffraction Kossel **26**

1.3.1 Obtention d'un cliché de diffraction 27

1.3.1.1 Principe de la technique 27

1.3.1.2 Pseudo-Kossel 30

1.3.1.3 Enregistrement du cliché 35

1.3.2 Indexation des lignes 37

1.3.2.1 Par comparaison avec un cliché simulé 38

1.3.2.2 Par des mesures sur le cliché expérimental 46

1.3.3 Détermination des paramètres cristallographiques du matériau 46

1.3.3.1 Orientation cristallographique 47

1.3.3.2 Paramètres de maille 52

1.3.4 Estimation des défauts internes 57

1.3.5 Mesure des déformations du réseau 57

1.3.5.1 Travaux de Dingley puis de Cunningham et Ashbee 58

1.3.5.2 Travaux de l'Université de Technologie de Dresde 59

1.3.5.3 Etat actuel à Metz 65

1.4 Bilan **67**

Chapitre 2 : Méthodologie pour l'acquisition des diagrammes de Kossel *69*

2.1 Montage expérimental permettant d'acquérir des clichés de diffraction Kossel **70**

2.1.1 Utilisation d'un microscope électronique à balayage 70

2.1.2 Utilisation d'une caméra CCD 72

2.1.2.1 Fonctionnement d'un capteur CCD 72
2.1.2.2 Critères de choix d'une caméra CCD 72
2.1.2.3 Evolutions possibles des caméras 74

2.2 Procédure de collection des clichés Kossel 75

2.2.1 Positionnement de l'échantillon 75
2.2.2 Choix de la distance caméra - échantillon 77
2.2.3 Paramètres d'acquisition de la caméra CCD 79

2.3 Résolution spatiale de la technique 79

2.3.1 Résolution en profondeur 80
2.3.2 Résolution latérale 81
2.3.3 Simulations de Monte-Carlo des trajectoires électroniques 86
2.3.4 Contamination de l'échantillon 89

2.4 Influence des paramètres matériaux 89

2.4.1 Influence du numéro atomique 89
2.4.2 Influence de la cristallographie 90
2.4.3 Influence de la taille de grains 91
2.4.4 Influence de l'état de surface 92

Chapitre 3 : Méthodologie permettant d'obtenir les états de déformation à partir des clichés de Kossel expérimentaux 95

3.1 Principe d'utilisation du logiciel KSLStrain pour la détermination absolue du tenseur complet des déformations 96

3.1.1 Paramètres d'entrée du logiciel 97
3.1.2 Positionnement manuel des lignes de Kossel 98
3.1.2.1 Principe 98
3.1.2.2 Types de profils - Dynamique de la diffraction des rayons X 100
3.1.2.3 Influence de l'angle d'incidence des électrons sur les profils de lignes 101
3.1.2.4 Bilan sur le positionnement manuel des lignes 104
3.1.3 Indexation des lignes et détermination de l'orientation cristallographique 106
3.1.4 Détermination du tenseur de déformations 108
3.1.5 Estimation de la précision en déformation de la technique 110
3.1.5.1 A partir de clichés simulés 111
3.1.5.2 A partir de clichés expérimentaux 112

3.2 Module permettant la détermination relative du tenseur complet des déformations 115

3.3 Influence de la puissance incidente du faisceau d'électrons sur la détermination du tenseur des déformations 119

3.3.1 Présentation de l'approche 120
3.3.2 Echauffement local du matériau soumis au faisceau électronique 123

3.3.3 Conséquence sur le tenseur complet des déformations 127

3.4 Bilan 130

Chapitre 4 : Validation de la détermination des contraintes par analyses comparatives sur monocristaux 131

4.1 Méthodologie pour l'analyse de contraintes monocristalline par diffraction 132

4.1.1 Présentation de la méthode 132

4.1.2 Diffraction des rayons X 136

4.1.3 Diffraction des neutrons 137

4.2 Obtention des contraintes à partir des déformations par microdiffraction Kossel ... 140

4.3 Analyses de contraintes sur des monocristaux supposés libres de contraintes 141

4.3.1 Monocristal de germanium 142

4.3.2 Monocristal de cuivre 145

4.3.3 Estimation des incertitudes des mesures par microdiffraction Kossel 146

4.3.4 Bilan de la comparaison 148

4.4 Analyses de contraintes de monocristaux sous chargement uniaxial 149

4.4.1 Descriptif des échantillons 150

4.4.2 Constantes d'élasticité 152

4.4.3 Analyses par microdiffraction Kossel 153

4.4.3.1 Au MEB 153

4.4.3.2 A partir d'un rayonnement synchrotron 159

4.4.4 Comparaison avec la diffraction des rayons X 163

4.4.5 Comparaison avec la diffraction neutronique 165

4.4.6 Bilan 166

Chapitre 5 : Utilisation de l'analyse de contraintes locales par microdiffraction Kossel pour la détermination des champs de contraintes intergranulaires 167

5.1 Analyses de contraintes sur matériaux à gros grains sollicités en traction uniaxiale 168

5.1.1 Alliage à mémoire de forme CuAlBe 168

5.1.2 FeSi 179

5.2 Analyses de contraintes sur matériaux à grains fins sollicités en traction uniaxiale . 188

5.2.1 Présentation de l'étude 188

5.2.2 Allure des clichés et limitations 191

5.2.3 Résultats de l'analyse des contraintes intergranulaires 192

5.3 Analyses de contraintes résiduelles sur des composants de la microélectronique 195

5.3.1 Capteurs MEMS 196

5.3.1.1 Présentation des échantillons 196

5.3.1.2 Analyses au MEB 198
5.3.1.3 Analyses à l'ESRF 199
5.3.2 Film de cuivre 201
5.3.3 Conclusions 204

Conclusion générale et perspectives 205

Références bibliographiques 211

Introduction générale

Le choix du matériau et le dimensionnement d'une pièce de structure se font notamment à partir de la connaissance de la sollicitation thermomécanochimique s'exerçant sur la pièce. Des contraintes internes au matériau, appelées contraintes résiduelles, doivent également être prises en compte. En effet, elles vont venir s'ajouter aux contraintes induites par le fonctionnement. Elles sont issues des hétérogénéités de déformation au sein du matériau apparues lors de fabrication de la pièce. Elles peuvent être bénéfiques : le grenaillage de précontraintes (qui créé des contraintes superficielles de compression) est, par exemple, utilisé pour améliorer la tenue en fatigue de diverses pièces de structure dans les domaines de l'automobile et de l'aéronautique. Mais elles peuvent aussi être néfastes et conduire à la rupture de la pièce.

Plusieurs techniques expérimentales sont utilisées afin de déterminer les contraintes résiduelles d'un matériau après les divers traitements chimiques et thermomécaniques. Les mesures sont la plupart du temps réalisées à une échelle macroscopique, représentative de la pièce dans son ensemble.

Les métaux sont généralement composés d'un ensemble de grains dont la taille varie de quelques nanomètres à quelques centimètres : chaque grain a une taille, une forme, une orientation cristallographique et un voisinage qui lui sont propres. Le comportement mécanique à une sollicitation thermomécanique peut être différent suivant le grain considéré. Des hétérogénéités de contraintes très importantes entre les grains peuvent être présentes. De plus, dans certains domaines comme la microélectronique, la miniaturisation des composants est de plus en plus importante, afin d'accroître par exemple la densité de stockage de l'information par exemple : la taille de certains de ces composants est aujourd'hui inférieure au micromètre. Il est donc de plus en plus important d'obtenir les états de contraintes à des échelles plus fines, de l'ordre du micromètre. De plus en plus de modèles numériques sont développés dans ce sens mais du côté expérimental, aucune technique n'est aujourd'hui utilisée de manière systématique pour alimenter et valider ces modèles. Plusieurs méthodes sont en cours de développement et commencent à fournir des données intéressantes. Certaines utilisent la finesse et la brillance du rayonnement synchrotron (Microdiffraction X), d'autres les électrons produits dans un microscope électronique à balayage ou à transmission (EBSD, CBED).

Dans cette optique, nous développons la technique de microdiffraction Kossel. Si son principe est connu depuis les années 30, il a fallu attendre le développement des détecteurs numériques dans les années 90 pour que cette technique commence à être utilisée pour la mesure des états de déformation du réseau cristallin. Le LPMM a commencé à s'intéresser à cette technique au début des années 2000 et les premiers clichés numériques ont été obtenus en 2003.

Cette technique est très intéressante car elle permet d'obtenir simultanément le paramètre de maille, l'orientation cristallographique et les déformations/contraintes à une échelle locale (volume sondé de quelques μm^3) dans les matériaux cristallins. De plus, l'analyse s'effectuant dans un microscope électronique à balayage, il est possible de visualiser simultanément la microstructure et d'associer ainsi les mesures à des éléments microstructuraux tels que des grains ou des phases, voire d'imaginer des profils de part et d'autre d'un joint de grains ou à proximité d'une fissure.

Dans cette thèse, nous proposons une méthodologie pemettant d'acquérir des clichés de microdiffraction Kossel, de les analyser et de déduire les déformations/contraintes de la zone sondée. Celle-ci a été optimisée par l'étude de tous les paramètres expérimentaux. La détermination des états de déformations/contraintes a été validée sur des échantillons témoins. Dans le but d'appliquer cette technique sur des échantillons complexes, des essais ont enfin été réalisés sur des matériaux polycristallins en diminuant progressivement la taille des grains analysés.

Ce manuscrit est organisé en cinq chapitres.

Le premier chapitre est consacré à une synthèse bibliographique des principales techniques utilisées pour la détermination expérimentale des états de déformations et contraintes à une échelle micronique voire submicronique. Le principe et des applications de la technique de microdiffraction Kossel sont également détaillés dans cette partie.

Le deuxième chapitre présente la méthodologie que nous avons définie pour l'acquisition de clichés de microdiffraction Kossel. Les spécificités du détecteur intégré au microscope électronique à balayage permettant la collection des diagrammes de diffraction Kossel sont expliquées. Des points importants sont évoqués comme le positionnement de l'échantillon par rapport au faisceau, les paramètres d'acquisition du système de détection et la résolution spatiale de la technique.

Après indexation des clichés de microdiffraction Kossel expérimentaux, l'état de déformation/contrainte peut être calculé. Le principe de fonctionnement du logiciel de traitement des données, 'KSLStrain', développé par Adam Morawiec, est présenté. Il permet, à partir d'un cliché de diffraction expérimental, de déterminer le tenseur de déformations complet associé. Cela fait l'objet du chapitre trois. Il comprend également une étude de l'influence de la puissance incidente du faisceau d'électrons sur la détermination du tenseur des déformations.

Le quatrième chapitre présente des résultats de validation de l'analyse de contraintes par microdiffraction Kossel. Des clichés ont été collectés sur des monocristaux supposés sans contraintes puis sur des monocristaux sous sollicitation mécanique, à partir d'une excitation électronique (en laboratoire) et d'une excitation synchrotron (aux grands instruments). Les résultats ont été comparés à la contrainte appliquée ainsi qu'aux résultats obtenus par d'autres techniques de diffraction. Une des originalités de ces travaux est le couplage de la technique avec des essais de traction uniaxiale *in situ*.

Le dernier chapitre est consacré à l'analyse *in situ* des contraintes intergranulaires dans des polycristaux à gros grains et à grains fins sollicités mécaniquement. Il se termine par l'étude d'un cas concret de la microélectronique : l'analyse des contraintes résiduelles au sein d'une structure MEMS (Micro Electro Mechanical System).

Chapitre 1 : Etude bibliographique de la détermination des contraintes aux échelles micrométriques et état de l'art sur la microdiffraction Kossel

Dans ce chapitre, nous traitons tout d'abord des contraintes résiduelles au sein des matériaux et de l'intérêt de les connaître à des échelles fines. Nous présentons ensuite le principe, les avantages et les limitations des quatre principales techniques expérimentales, autres que la microdiffraction Kossel, donnant accès à ces contraintes locales. Enfin, nous terminons par un état de l'art de la diffraction Kossel depuis sa découverte en 1934.

1.1 Détermination des contraintes aux échelles micrométriques

1.1.1 Définition et origine des contraintes résiduelles

« Les contraintes résiduelles sont des contraintes multiaxiales statiques autoéquilibrées existant dans un système isolé de température uniforme, en l'absence de tout chargement extérieur » [1].

Toute hétérogénéité de déformation introduite à une échelle de la structure entraîne la création de contraintes résiduelles (Figure I-1). De manière générale, les contraintes résiduelles sont le résultat d'une combinaison de plusieurs sollicitations qui peuvent être de nature mécanique, thermique ou métallurgique (transformations de phases conduisant à des variations de volume). Pour estimer la tenue en service d'une pièce, il est indispensable de les prendre en compte car elles vont s'ajouter aux contraintes induites par le fonctionnement.

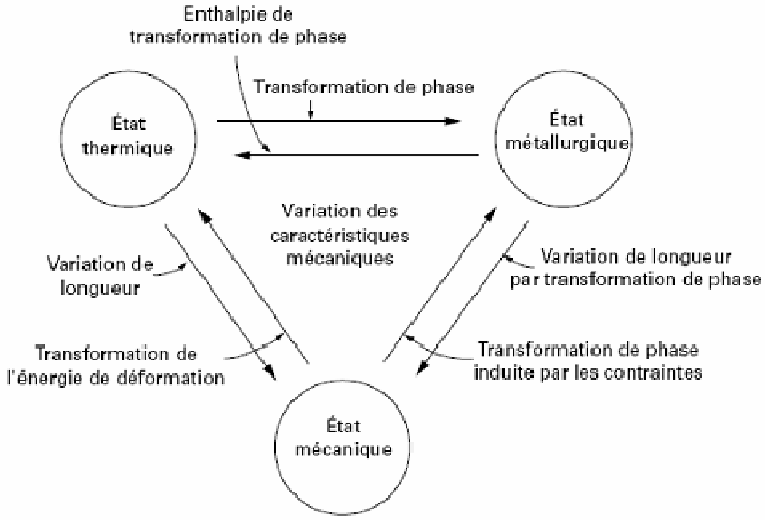


Figure I-1 : Origine des contraintes résiduelles. Interdépendance entre les différents états du matériau [1]

Du fait du caractère polycristallin et la plupart du temps polyphasé des matériaux métalliques industriels, les déformations à l'origine des contraintes résiduelles peuvent intéresser des domaines de taille macroscopique, microscopique ou submicroscopique [1, 2].

Selon l'échelle de la microstructure considérée, on peut distinguer trois ordres de contraintes (Figure I-2) :

- Ordre I : les contraintes d'ordre I (σ_I) sont considérées homogènes dans des domaines relativement importants, s'étendant sur un ensemble de grains. Elles décrivent un état de contraintes moyen du matériau à l'échelle macroscopique ;

- Ordre II : les contraintes d'ordre II (σ_{II}) décrivent l'état de contraintes du matériau à l'échelle mésoscopique. Elles sont représentatives des contraintes moyennes dans un grain. Elles décrivent également les contraintes moyennes par phase dans le cas d'un matériau polyphasé ;

- Ordre III : les contraintes d'ordre III (σ_{III}) sont les contraintes microscopiques. Elles sont hétérogènes même dans des zones s'étendant sur quelques distances interatomiques. Elles sont associées en majorité aux défauts du réseau cristallin (précipités, disclocations, joints de grains …).

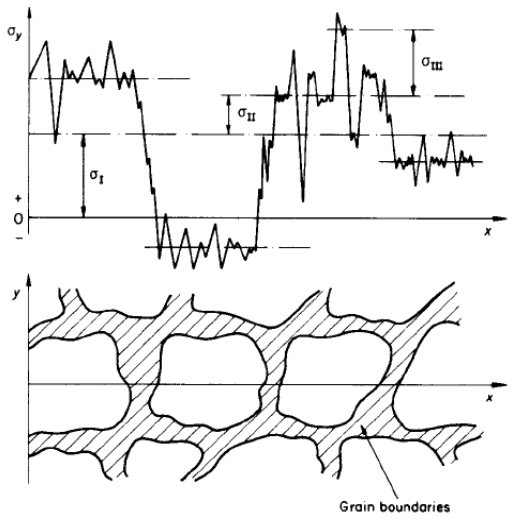


Figure I-2 : Les différents ordres de contraintes dans un polycristal [2]

La prévision des contraintes résiduelles en fonction des divers traitements subis par le matériau est très complexe. C'est pour cette raison qu'il est important de disposer d'une technique expérimentale d'analyse des contraintes aux échelles fines de la microstructure.

1.1.2 Principales techniques de détermination des contraintes à l'échelle macroscopique

Ruud [3] a présenté un état de l'art des quatre principales techniques expérimentales de détermination des contraintes résiduelles, généralement accessibles dans un laboratoire de recherche : le perçage incrémental, la méthode ultrasonore, le bruit Barkhausen et la Diffraction des Rayons X (DRX). Ces techniques mesurent des grandeurs directement reliées à des déformations à partir desquelles sont calculées les contraintes correspondantes. Elles ont été comparées suivant différents critères comme le caractère destructif ou non, la taille du volume analysé au sein du matériau, la précision, le coût et la rapidité de la technique (Figure I-3).

Method	Non-destructive	Reliability	Bulk stress	Stress direction	Resolution	Cost*	Portability	Speed
Stress relief techniques (mechanical methods)	No	Good	Yes	Yes	$\sim 4\ mm^3$	1 to 10	Yes	Poor
Hole drilling	Partially	Good	No	Yes	$> 30\ mm^3$	1	Yes	Poor
X-ray diffraction	Surface	Good	No	Yes	$< 1\ mm^3$	0.1 to 1	Yes	Poor to excellent
Ultrasonics	Yes	Poor	Yes	Yes	$> 5\ mm^3$	< 0.1	Yes	excellent
Barkhausen noise	Surface	Poor	No	Yes	$> 10\ mm^3$	< 0.1	Yes	excellent

* These estimated costs per reading are mainly for labour and do not include cost of equipment. They are normalized against the cost per reading of hole drilling.

Figure I-3 : Critères de sélection des méthodes de détermination des contraintes résiduelles [3]

Les méthodes mécaniques comme le perçage incrémental (ou méthode du trou) sont couramment utilisées sur des pièces de grandes dimensions mais sont destructives. En effet, elles sont basées sur la mesure des déformations induites par la relaxation lors du perçage de la pièce. Les méthodes ultrasoniques et magnétiques sont les plus rapides mais leur fiabilité est encore insuffisante pour que ces techniques trouvent des applications permanentes. La Diffraction des Rayons X (DRX) est la technique non destructive qui possède la meilleure résolution spatiale et qui est considérée comme la plus fiable. C'est pour cela qu'elle est fréquemment employée pour déterminer les états de contrainte des matériaux cristallins. Les diffractomètres de laboratoire classiques permettent d'analyser une surface de l'ordre du mm^2

(et une profondeur de quelques micromètres) et d'obtenir ainsi les contraintes d'ordre I dans le cas des polycristaux à grains fins, ou d'ordre II dans le cas des monocristaux ou des polycristaux à grains millimétriques.

1.1.3 Nécessité d'obtenir les contraintes à une échelle mésoscopique

Compte tenu du fort développement des microsystèmes et de la complexité croissante de la microstructure dans les nouveaux matériaux, il devient de plus en plus nécessaire de déterminer un état de contrainte à une échelle plus fine. Une détermination des contraintes grain à grain peut être nécessaire si des hétérogénéités sont présentes. Elles proviennent généralement des différences de phase, d'orientation cristallographique, de taille et de forme des grains. Elles sont également influencées par les grains voisins et la distance par rapport à la surface.

Des outils de simulation par éléments finis d'agrégats polycristallins permettent de prédire les états de contraintes inter- et intragranulaires. Des résultats de Barbe, Forest et Cailletaud montrent une forte augmentation des hétérogénéités de contraintes de l'échelle macroscopique à l'échelle microscopique [4]. Les paramètres du matériau choisis pour l'étude [4] correspondent à ceux d'un acier. Ils ont simulé l'état de déformation/contrainte de 200 grains orientés de manière aléatoire après un essai de traction uniaxiale (Figure I-4). Des variations de un à cinq pour les déformations et contraintes internes ont été obtenues. Les plus fortes variations par rapport à la valeur appliquée semblent concerner les grains ayant les volumes les plus faibles.

De plus, il peut être intéressant de quantifier les hétérogénéités de contraintes intragranulaires qui semblent être du même ordre de grandeur que les hétérogénéités intergranulaires [4], de caractériser l'influence des éléments microstructuraux comme les joints de grains ou les précipités.

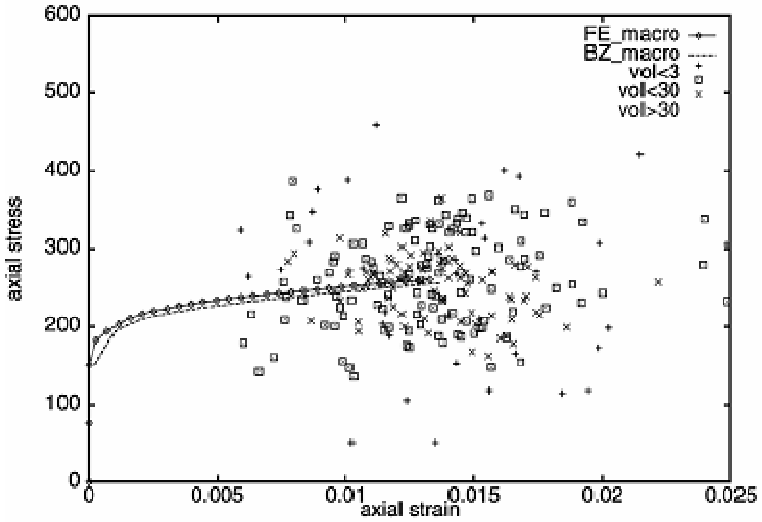


Figure I-4 : Répartition des états de déformation/contrainte dans les différents grains d'un polycristal en fonction de leur volume, après une sollicitation en traction uniaxiale d'environ 1,5 % [4]

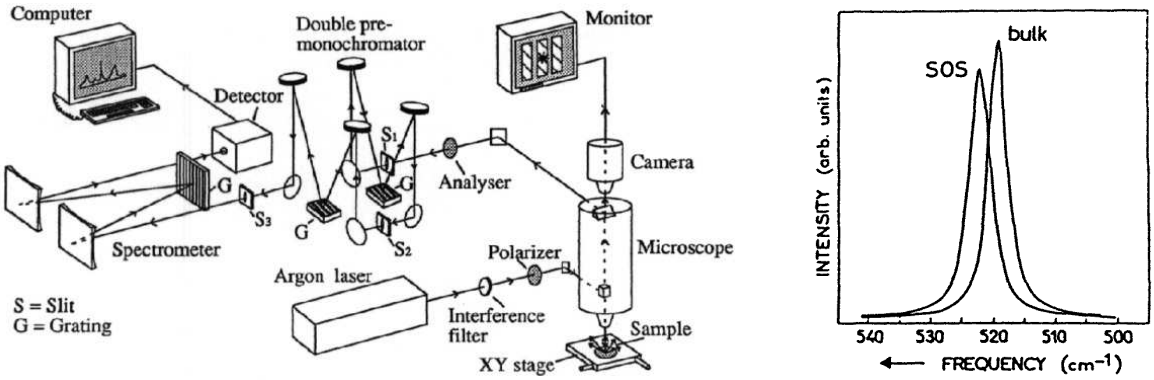
Dans certains secteurs d'activités comme la microélectronique, les composants sont de plus en plus petits et ils sont soumis à des chargements mécaniques ou thermiques importants. De hauts niveaux de contraintes peuvent ainsi conduire à la ruine du composant à cause de l'apparition de fissures, de *voids*, de *hillocks* [5] ou au contraire améliorer certaines propriétés, comme la mobilité des porteurs de charges [6]. Déterminer les contraintes au sein de ces petites structures est un véritable challenge.

1.2 Techniques expérimentales permettant de mesurer les états de déformation à l'échelle microscopique

A l'heure actuelle, il existe principalement quatre techniques autres que la microdiffraction Kossel permettant de mesurer les déformations du réseau cristallin à l'échelle microscopique : la spectrométrie micro-Raman, la microdiffraction des rayons X en rayonnement synchrotron, la diffraction électronique en faisceau convergent et la diffraction des électrons rétrodiffusés. Elles sont en perpétuel développement tout comme la microdiffraction Kossel. Les principes de ces techniques sont détaillés dans cette partie.

1.2.1 La spectroscopie micro-Raman

C'est une méthode optique qui est basée sur l'interaction entre un rayonnement monochromatique de lumière (des photons) et les vibrations collectives du réseau d'atomes (les phonons de la substance analysée). Elle consiste à focaliser la lumière d'un laser sur l'échantillon à l'aide d'un microscope optique et d'analyser la fréquence de la lumière diffusée (Figure I-5 (a)). En effet, les photons et les phonons interagissent entre eux de manière inélastique [7].



(a) (b)

Figure I-5 : Montage expérimental d'un spectromètre micro-Raman (a) - Spectre Raman (b) d'un silicium massif (bulk) et d'un film de silicium déposé sur un substrat en saphir (SOS) [7]

Les variations de la fréquence de vibration se traduisent par des décalages des pics Raman et permettent de remonter aux déformations du réseau. Sur la Figure I-5 (b), le décalage observé entre la fréquence de vibration du silicium massif et du film mince traduit des contraintes de compression de l'ordre de 700 MPa au sein du film. De Wolf et al. [8] ont analysé les contraintes résiduelles sur des lignes de tungstène déposées sur un substrat en silicium. Les lignes ont une longueur de 8 mm, une largeur de 1 à 4 µm et l'espacement entre les lignes est d'environ 2 µm. Les contraintes moyennes au sein des lignes ont été déterminées par DRX et les contraintes du substrat par spectroscopie micro-Raman. Une bonne corrélation a été démontrée et les résultats ont permis de valider des modèles numériques.

La résolution spatiale est donnée par la taille du faisceau laser incident et est de l'ordre du micromètre. La résolution en profondeur dépend du matériau étudié et de l'énergie du faisceau laser incident. Pour le silicium, elle est de l'ordre de 0,5 µm. Les résolutions en

déformation et contrainte sont respectivement données à 10^{-4} et 25 MPa pour le silicium. Il faut noter que les calculs de déformations ou de contraintes à partir des fréquences Raman ne sont pas simples. Toutes les composantes non nulles du tenseur de déformation influencent la position des pics Raman [7].

Les avantages de cette technique résident dans la facilité de mise en œuvre et dans les temps d'exposition et de traitement des données relativement courts. Cette méthode est malheureusement inutilisable sur les métaux, mais présente l'originalité de pouvoir être utilisée pour l'étude de certains types de matériaux comme les céramiques, les semi-conducteurs et les oxydes.

1.2.2 La microdiffraction des rayons X en rayonnement synchrotron

Les rayons X produits en laboratoire permettent, avec l'utilisation de capillaires, de descendre à des tailles de faisceaux de quelques centaines de micromètres. La microdiffraction des rayons X permet quant à elle des tailles de sonde de l'ordre du micromètre. Elle est ainsi parfaitement adaptée à une analyse intragranulaire ou à l'étude de composants de la microélectronique. Cette méthode a été développée initialement au synchrotron de Berkeley, à l'ALS (Advanced Light Source). Elle est utilisée aujourd'hui sur d'autres synchrotrons et notamment à l'ESRF (European Synchrotron Radiation Facility de Grenoble) sur la ligne BM32.

Cette technique utilise un faisceau polychromatique. En effet, les techniques de diffraction classiques consistent à fixer l'énergie des photons (ou la longueur d'onde) et cartographier les réflexions de Bragg en faisant tourner l'échantillon à l'aide d'un goniomètre. Cela est inapproprié pour des analyses sur des cristaux microniques car la sphère de confusion du goniomètre est estimée à environ 10 µm, c'est-à-dire que la position du spot risque de se déplacer de plusieurs micromètres au cours des rotations de l'échantillon. L'utilisation d'un faisceau polychromatique permet ainsi de conserver l'échantillon fixe et d'enregistrer en une seule acquisition de nombreuses réflexions correspondant à différentes longueurs d'ondes.

Le diagramme de Laue des grains analysés est enregistré par un détecteur bidimensionnel (Figure I-6). Des programmes permettent une indexation automatique des clichés et ainsi de

déterminer l'orientation du cristal avec une précision de 0,01° [9]. L'analyse en faisceau polychromatique permet d'obtenir le déviateur du tenseur des contraintes. Pour obtenir le tenseur complet de déformation élastique, il est nécessaire de faire une analyse supplémentaire en faisceau monochromatique. La résolution en déformation de cette technique est estimée à 2.10^{-4} [9].

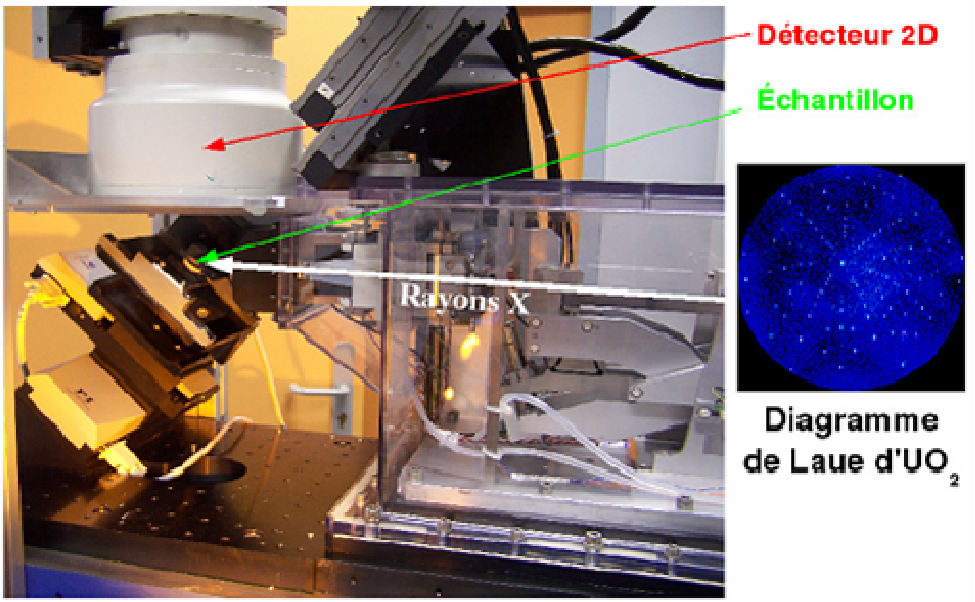


Figure I-6 : Montage permettant d'acquérir des clichés de microdiffraction Laue sur la ligne BM32 de l'ESRF [10]

MacDowell et al. [9] ont déterminé les contraintes présentes au sein d'interconnexions en aluminium de taille submicrométrique déposées sur un substrat en silicium monocristallin. Ces composants peuvent être soumis à un processus conduisant à leur endommagement, l'électromigration, qui peut être annihilé grâce à une accumulation de contraintes favorables au sein du matériau. Le repérage des différentes structures est effectué par fluorescence X en déplaçant l'échantillon devant le faisceau blanc. La taille du spot a été estimée à 0,9 µm. Un cliché de Laue (Figure I-7) est obtenu en 10 secondes environ. Le cliché du silicium sert de référence pour la calibration de la caméra CCD.

Des analyses similaires ont été effectuées à l'ESRF (ligne de lumière BM32) par Sicardy et al. [11] sur des lignes d'interconnexions en cuivre ayant une largeur d'un micromètre.

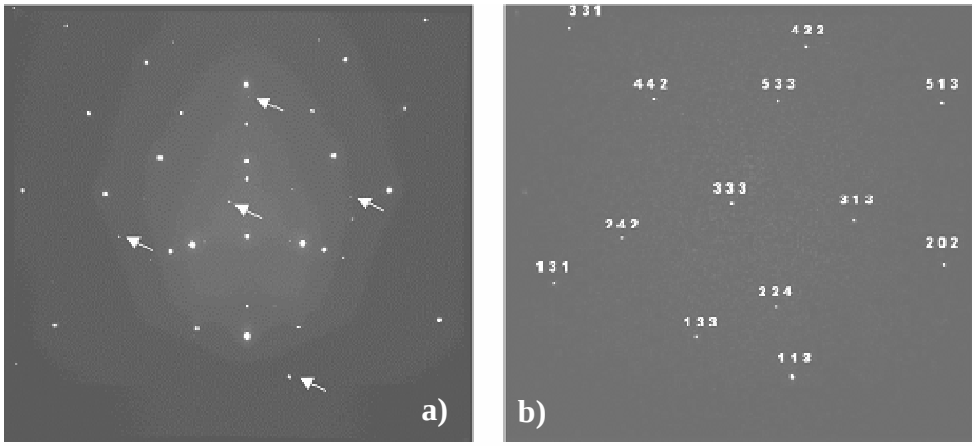


Figure I-7 : a) Cliché de Laue d'un grain d'une interconnexion en aluminium sur un substrat en silicium [9]. Le cliché est dominé par les spots du Si, les spots de faibles intensités (marqués par les flèches) correspondant au grain d'aluminium. b) Indexation du cliché avec soustraction des spots du substrat

Tamura et al. ont analysé les contraintes au sein de whiskers en étain [12]. Ce sont des fils monocristallins ayant un diamètre de 5 à 10 µm qui croissent à partir des dépôts et qui provoquent des courts-circuits au sein du composant (Figure I-8). Des contraintes de compression permettent leur croissance.

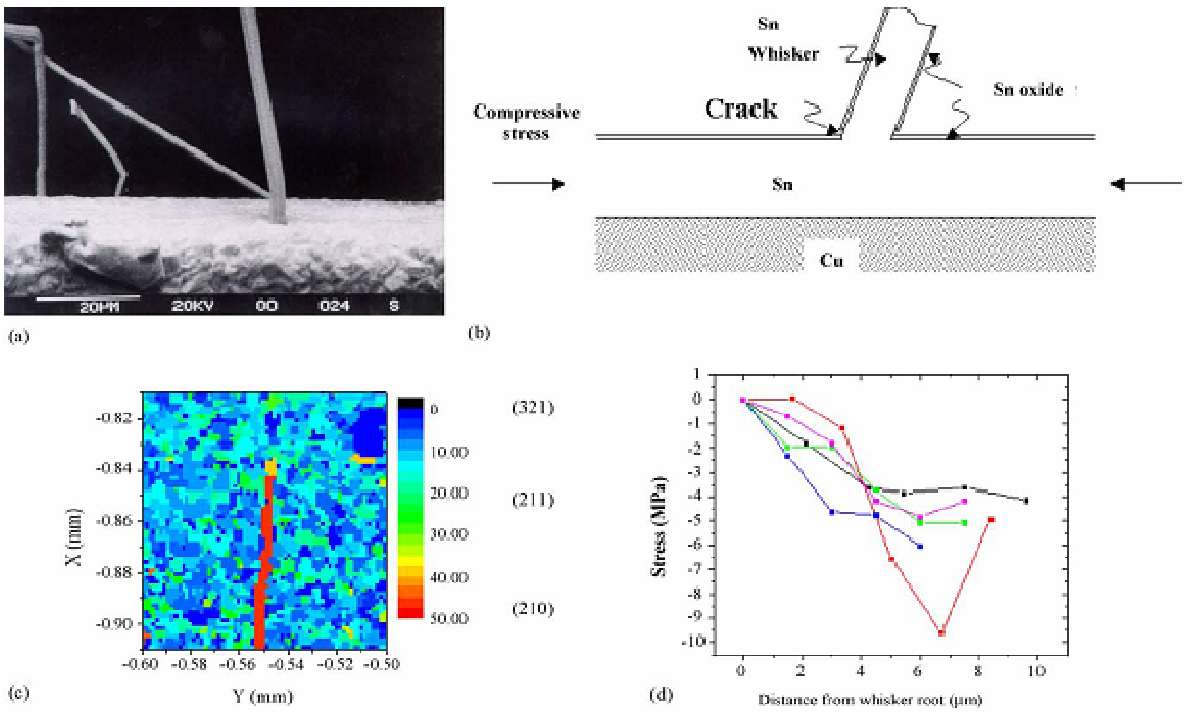


Figure I-8 : a) Image MEB de whiskers. b) Schéma expliquant le processus de croissance. c) Cartographie d'orientation d'un whisker et du dépôt. d) Gradient de contraintes à partir de la racine d'un whisker [12]

De la même manière, Goudeau et al. [13] ont effectué des cartographies de contraintes sur des films minces. Ils ont mis en évidence une relaxation de contraintes associée au phénomène de “buckling”.

Cette technique possède l'avantage de ne pas nécessiter de préparation préalable de l'échantillon, mais sa limitation principale réside dans son accessibilité. Les temps de faisceaux au synchrotron sont soumis à des comités de sélection ou s’achètent à environ 20 000 euros la journée.

1.2.3 La diffraction électronique en faisceau convergent (CBED)

La diffraction électronique en faisceau convergent est une technique de microscopie électronique en transmission qui comporte plusieurs variantes : la microdiffraction, la diffraction Kossel, la méthode CBIM (Convergent Beam Imaging), la diffraction en faisceau convergent défocalisé et la diffraction en faisceau convergent aux grands angles (LACBED). Dans toutes ces techniques, l'échantillon est illuminé par un faisceau incident convergent dont le demi-angle de convergence est situé dans un domaine angulaire qui s'étend de 0,01° à plusieurs degrés. Selon la technique, le faisceau est focalisé sur l'échantillon (microdiffraction, CBED et Kossel) ou défocalisé (LACBED, CBIM, CBED défocalisé) [14].

La technique la plus utilisée est le CBED en mode focalisé. Elle est basée sur le positionnement des lignes de forts indices {hkl}, les lignes de HOLZ (High Order Laue Zone). La position de ces lignes, enregistrées par une caméra CCD, dépend du paramètre de maille et leurs déplacements donnent une information sur l’état de déformation du cristal. Cette technique est réalisée à l’aide d’un microscope électronique à transmission, il est donc nécessaire de préparer une lame mince.

Des procédures d’indexation des clichés CBED ont été développées par Krämer [15] et Morawiec [16 - 18] notamment. Les aspects dynamiques liés à la diffraction des électrons conduisent à des ruptures et des courbures de lignes (Figure I-9) et doivent donc être pris en compte dans les algorithmes [18]. Les sensibilités à la déformation du réseau sont estimées à 2.10^{-4} environ [7, 16, 19].

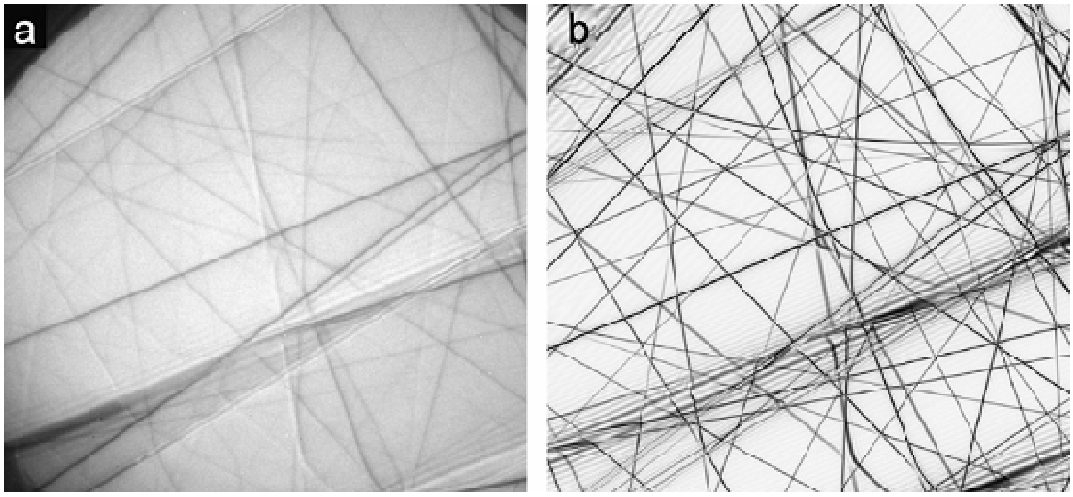


Figure I-9 : a) Cliché CBED expérimental d'un TiAl b) Cliché simulé en prenant en compte les aspects dynamiques de la diffraction [18]

L'avantage d'étudier un matériau avec un microscope électronique à transmission en mode focalisé est la résolution spatiale de l'ordre de quelques nanomètres que l'on peut atteindre. Par contre, cette technique est lourde d'emploi car il est nécessaire de préparer une lame mince (par amincissement ionique), et cette préparation entraîne une modification de l'état de contraintes du matériau. Cette technique peut être appliquée directement seulement dans le cas de faibles niveaux de déformation et d'une lame très épaisse (sans relaxation). Toda et al. [19] ont effectué des mesures sur des lames minces ayant une épaisseur de 600 nm pour éviter une relaxation des contraintes trop importantes, mais les lignes de HOLZ ont perdu en intensité à cause des diffusions inélastiques des électrons au sein de l'échantillon. Ils ont donc utilisé un filtre en énergie pour éliminer cette participation sur les clichés CBED.

Krämer et al. [20] ont déterminé les déformations locales au niveau d'interconnexions en aluminium de largeurs égales à 0,5 µm. Ils ont utilisé des tailles de sonde comprises entre 20 et 30 nm. Les lignes de HOLZ ont été indexées automatiquement à l'aide de la transformée de Hough. L'état de déformation a été déduit en comparant les clichés expérimentaux à des simulations prenant en compte les aspects dynamiques de la diffraction électronique.

Clement et al. [21] ont déterminé le champ de déformations généré par une couche de NiSi déposée sur un transistor n-MOS. Il a été montré, à l'aide d'un logiciel d'éléments finis, que la relaxation due à la préparation de la lame mince ne peut pas être négligée, même pour des échantillons d'épaisseur 300 nm.

Dans de nombreux cas, il est nécessaire de réaliser une modélisation complète. Des travaux de Clement et al. [22] et Houdellier et al. [23] ont eu pour objectif de simuler les clichés CBED en prenant en compte à la fois la dynamique de la diffraction et la relaxation des contraintes due à la préparation d'une lame mince.

1.2.4 La diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD)

L'analyse EBSD (Electron Back-Scattered Diffraction) est une méthode d'analyse cristallographique locale basée sur l'exploitation de diagrammes de diffraction des électrons rétrodiffusés (lignes de Kikuchi) au sein d'un microscope électronique à balayage. Cette technique a l'avantage d'être automatisée et commercialisée depuis les années 90 pour la détermination des orientations cristallographiques avec une précision de l'ordre de 0,5°. Des cartographies de plusieurs mm² voire plusieurs cm² sont envisageables, soit par balayage du faisceau électronique, soit par balayage de l'échantillon sous le faisceau. La résolution spatiale de cette technique est estimée à quelques dizaines de nanomètres environ. Des simulations de type Monte Carlo ont permis de déterminer quelle était la géométrie la plus favorable pour l'acquisition des clichés EBSD [24]. Typiquement, l'échantillon est incliné à 70° par rapport au faisceau incident car les électrons ont une profondeur d'échappement plus faible et une distribution énergétique très resserrée juste au-dessous de l'énergie initiale. Plusieurs centaines de clichés par seconde peuvent être enregistrés à l'aide d'une caméra CCD haute résolution ultra rapide, et indexés automatiquement.

La mesure des déformations élastiques est par contre plus difficile à mettre en oeuvre. Elle nécessite d'une part des clichés de meilleure qualité, et d'autre part une méthode de dépouillement plus précise. Bien qu'il ait été montré récemment qu'une précision de 2.10^{-4} pouvait être atteinte en déformation sur un cliché simulé [25], seule une déformation élastique relative entre deux clichés EBSD expérimentaux peut être actuellement obtenue avec une telle précision. Cette dernière a été validée par Villert et al. [26] en utilisant la méthode du « pattern shift » développée par Wilkinson [27, 28]. Les temps d'expositions sont de l'ordre de deux secondes par point [29, 30]. Un logiciel d'analyse des diagrammes de Kikuchi est commercialisé et s'appelle CrossCourt [31].

La méthode du « pattern shift » repose sur une corrélation entre deux clichés (état « déformé » et état de référence) réalisée sur un ensemble de « régions d'intérêt » (Figure I-10). Cette corrélation fournit le déplacement de points particuliers (centre des régions d'intérêt) entre les deux images. Ensuite, en utilisant une méthode inverse, on obtient la partie déviatorique du tenseur gradient des déplacements élastiques dans le cristal qui reproduit le plus fidèlement le déplacement de ces régions d'intérêt. A partir de ce tenseur, il est possible de déterminer la partie déviatorique du tenseur des déformations (partie symétrique), et donc des contraintes, ainsi que la rotation de corps solide entre ces deux images (partie antisymétrique). Cette méthode ne permet pas d'accéder directement à la partie sphérique de la déformation, car la dilatation volumique correspondante produit uniquement un léger élargissement des bandes de diffraction, qui n'est pas détectable par la technique de corrélation employée. Toutefois, avec l'hypothèse d'un état de contraintes planes, il est possible d'estimer indirectement les neuf composantes du tenseur.

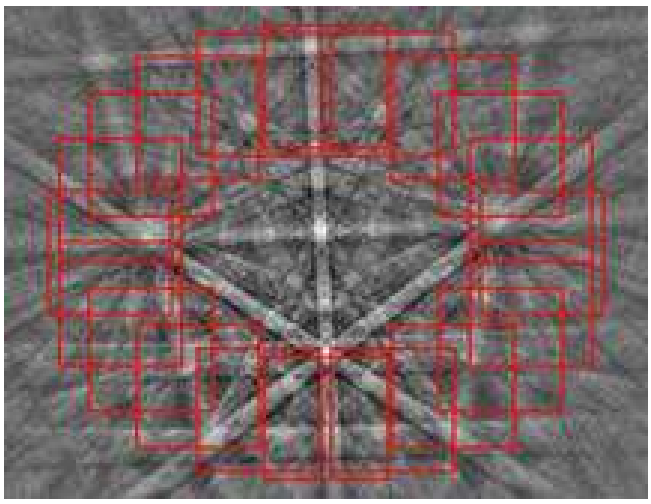


Figure I-10 : Exemple de régions d'intérêt utilisées dans la méthde du « pattern shift »

A l'aide de cette technique, Wilkinson et al. ont, par exemple, déterminé la distribution des déformations et des rotations élastiques au sein d'une couche épitaxiée de $Si_{1-x}Ge_x$ d'épaisseur 1 µm sur un substrat monocristallin de Si (Figure I-11) [29]. On remarque des niveaux de déformations relatives importants (plusieurs 10^{-3}) proche de l'interface dépôt - substrat et un état quasiment libre de déformations quand on s'en éloigne.

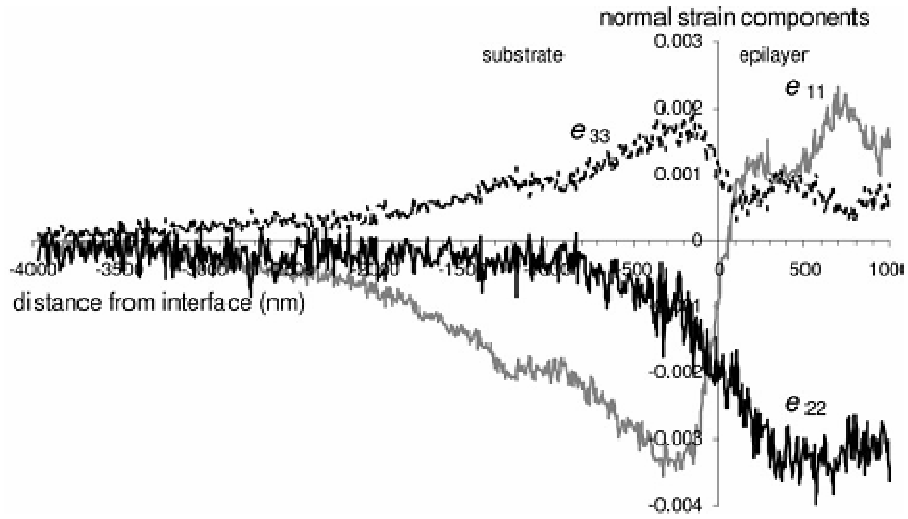


Figure I-11 : Distribution des composantes normales du tenseur des déformations déterminées par la méthode de cross-corrélation au sein d'une couche épitaxiée de $Si_{1-x}Ge_x$ sur un substrat monocristallin de Si [29]

1.2.5 Bilan comparatif des techniques

Le Tableau I-1 résume les principales caractéristiques de ces techniques expérimentales de détermination des déformations du réseau cristallin à l'échelle du micromètre. La microdiffraction Kossel qui sera présentée dans le prochain paragraphe, figure aussi dans ce tableau. Les critères retenus sont les suivants : le rayonnement mis en jeu, la précision dans la mesure de la déformation, la résolution spatiale et en profondeur et la mise en œuvre de la technique.

	Spectrométrie micro-Raman	**Microdiffraction X**	**CBED**	**EBSD**	**Microdiffraction Kossel**
Rayonnement mis en jeu	Laser / Photons	Synchrotron / Rayons X	MET / Electrons	MEB / Electrons	MEB / Rayons X
Précision en déformation	10^{-4}	2.10^{-4}	2.10^{-4}	2.10^{-4}	10^{-5}
Résolution spatiale	~µm	~µm	~10 nm	~50 nm	~µm
Résolution en profondeur	~100 nm	~µm	10 à 500 nm	~10 nm	~µm
Mise en oeuvre	simple mais inadaptée aux métaux	accessibilité difficile	préparation lame mince nécessaire	rapide, cartographies	plusieurs minutes

Tableau I-1 : Caractéristiques des principales techniques actuelles d'analyse des déformations aux échelles locales

La spectrométrie micro-Raman est une technique compétitive, facile à mettre en œuvre mais elle est malheureusement inutilisable pour les métaux.

La microdiffraction X en rayonnement synchrotron ne nécessite aucune préparation préalable de l'échantillon, contrairement aux techniques électroniques, mais les demandes de temps de faisceau sont soumises à des comités de sélection.

Les techniques basées sur la diffraction des électrons (EBSD et CBED) présentent les meilleures résolutions spatiales. Les clichés CBED étant obtenus avec un microscope électronique en transmission, la préparation délicate de la lame mince conduit à une relaxation des contraintes qui doit être prise en compte. La technique EBSD a l'avantage, tout comme la microdiffraction Kossel, d'utiliser un microscope électronique à balayage. C'est un appareil assez simple d'utilisation qui est présent de nos jours dans tous les laboratoires de recherche. L'acquisition rapide des clichés EBSD (de l'ordre de la seconde pour des clichés en déformation) permet d'envisager des cartographies précises. L'analyse de déformations par microdiffraction Kossel est plus longue que l'EBSD mais présente l'avantage d'être plus précise et peut donner des informations complémentaires du fait de sa résolution spatiale différente.

1.3 Etat de l'art sur la microdiffraction Kossel

Cette technique a été découverte par Walther Kossel, physicien allemand, en 1934 [32]. En bombardant un monocristal de cuivre avec un faisceau d'électrons de haute énergie, il a constaté que des phénomènes de diffraction se produisaient et pouvaient être enregistrés sur un film photographique. Au début des années 1950, Castaing [33] fut le premier à obtenir des clichés provenant de zones micrométriques quand il adapta la technique au sein d'une microsonde. Elle a été exploitée aussitôt pour la détermination des paramètres cristallins et des orientations. Il fallut par contre attendre les années 1990 pour l'analyse précise des déformations locales.

Par rapport aux techniques décrites dans le paragraphe précédent, la microdiffraction Kossel permet d'analyser les matériaux cristallins à partir d'un équipement courant dans un laboratoire et avec des résolutions spatiales et en déformations compétitives.

1.3.1 Obtention d'un cliché de diffraction

1.3.1.1 Principe de la technique

Lorsque l'on focalise un faisceau d'électrons, de photons ou de protons sur un matériau, ce dernier est excité et fluoresce. Une onde sphérique de rayons X caractéristiques de l'élément irradié est émise. Ces rayons X, ayant une longueur d'onde correspondant à celle de l'élément impacté par le faisceau d'électrons, vont ensuite être diffractés par le réseau cristallin, conformément à la loi de Bragg :

$$\lambda = 2d_{hkl}\sin(\theta_{hkl}) \qquad \text{(I-1)}$$

avec λ, la longueur d'onde du matériau,

d_{hkl}, la distance interréticulaire du plan (hkl) considéré,

θ_{hkl}, l'angle de Bragg du plan (hkl) considéré.

Plus précisément, le spectre de rayons X émis par le matériau se compose de deux parties : un spectre continu dû à la décélération des électrons (appelé bremsstrahlung) et un spectre de raies caractéristiques du matériau (Figure I-12).

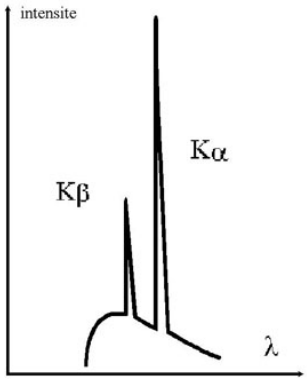


Figure I-12 : Spectre d'émission des rayons X

Les longueurs d'ondes λ à prendre en compte pour la microdiffraction Kossel sont celles du rayonnement K_α (séparé en deux rayonnements très proches $K_{\alpha1}$ et $K_{\alpha2}$) ainsi que du rayonnement K_β. Ce dernier est néanmoins beaucoup moins intense.

La diffraction va se traduire par une émission de cônes de Kossel, qui vont ensuite être interceptés par le biais d'un écran (Figure I-13). Deux paramètres géométriques correspondant à la localisation de la caméra (ou film photographique) par rapport à l'échantillon doivent être connus avec précision. Ce sont la projection orthogonale de la source de rayons X sur l'écran (appelée centre de projection) et la distance caméra - échantillon. Ces deux paramètres sont notés respectivement O et D sur la Figure I-13.

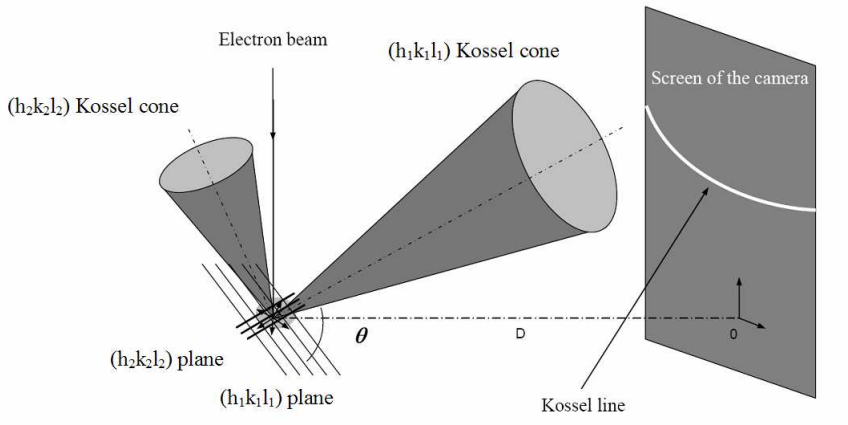


Figure I-13 : Principe d'émission des cônes de diffraction Kossel

L'écran peut être placé soit au-dessus de l'échantillon (réflexion), soit en dessous (transmission). L'obtention de clichés en transmission est réalisable à condition que l'échantillon soit suffisamment mince. Il faut que son épaisseur massique soit inférieure à $1/\mu$, μ étant le coefficient moyen d'absorption massique du matériau [34, 35].

Un exemple de cliché obtenu en réflexion sur un cristal de fer est donné Figure I-14. On observe un ensemble de lignes de Kossel, générées à partir du rayonnement $K_{\alpha 1}$ du fer et représentées par des coniques résultant de l'intersection de cônes de Kossel avec le plan de la caméra. Pour chaque plan (hkl) vérifiant la loi de Bragg, une conique sera interceptée par l'écran. Ces coniques peuvent être des cercles, des hyperboles ou des ellipses suivant l'orientation du plan (hkl) par rapport à la surface du matériau et au plan de la caméra. Le paragraphe 1.3.2 expliquera plus en détail la géométrie de ces clichés de diffraction.

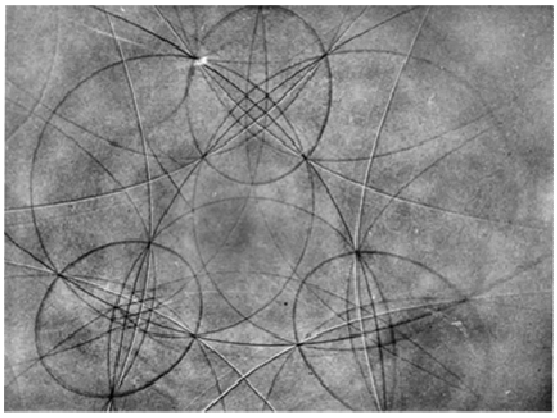


Figure I-14 : Cliché de Kossel d'un cristal de fer pur [36]

La plupart des expériences ont été réalisées en utilisant un faisceau incident d'électrons finement focalisé (taille de spots inférieure à 10 µm), produit à l'aide d'une microsonde ou d'un microscope électronique à balayage. Les rayons X générés s'échappent d'une profondeur équivalente à quelques micromètres. Le contraste des lignes de Kossel a la particularité d'être très faible dans le cas d'une excitation électronique : le rapport intensité sur bruit de fond est d'environ 2 % [37].

De plus, un cliché Kossel ne peut pas être obtenu pour tous les matériaux. Plus précisément, la technique s'applique aux matériaux dont le nombre atomique est supérieur à Z=20 (Ca) [35]. Pour les faibles numéros atomiques, il se peut que la loi de Bragg ne soit pas vérifiable. Par exemple, l'aluminium (Z=13) n'émet pas de cônes de Kossel car il va produire des rayons X ayant une longueur d'onde K_α trop grande (environ 8,34 Angströms). En d'autres termes, il faut absolument respecter la condition suivante :

$$\frac{\lambda}{2\,d_{hkl}} \leq 1 \qquad \text{(I-2)}$$

Pour les nombres atomiques élevés, on est limité par la valeur maximale de la tension d'accélération au sein du MEB (30kV dans notre laboratoire). En effet, pour que le matériau puisse produire des photons d'énergie E, il faut une énergie d'excitation (provenant du faisceau incident) deux à trois fois supérieure à E. Pour les numéros atomiques supérieurs à Z=32 (Ge), l'analyse doit donc se baser sur un rayonnement de type L. Des méthodes dérivées utilisant d'autres rayonnements permettant d'exacerber la fluorescence du matériau ont donc été développées.

1.3.1.2 Pseudo-Kossel

Les premiers travaux ont été réalisés par Borrmann en 1936 [38]. Il a enregistré des clichés Kossel en utilisant une source de rayons X externe au matériau. Cette technique, appelée pseudo-Kossel, permet d'analyser tous les éléments (donc tous les matériaux) comme en diffraction des rayons X classique.

Une des possibilités consiste à utiliser un matériau cible sur lequel on va focaliser le faisceau d'électrons. La cible va émettre des rayons X divergents dans tout le demi-espace qui vont ensuite être diffractés par l'échantillon. La longueur d'onde mise en jeu ici est celle de l'élément composant la cible. Des cônes vont être réceptionnés par l'écran de la même manière que pour la diffraction Kossel classique.

Däbritz et al. [39 - 41] ont développé un montage permettant, dans un MEB, de faire des analyses pseudo-Kossel en réflexion. Pour cela, ils ont fixé une cible (un film mince de fer par exemple) à l'extrémité d'un tube au sein duquel passe le faisceau d'électrons. Le diamètre interne du tube est égal à 0,2 mm. Pour changer de mode, ils ont eu l'idée d'intégrer à ce tube un déplacement latéral via un moteur (Figure I-15). On peut ainsi éloigner le tube du faisceau pour travailler en mode Kossel. Un déplacement vertical z permet de régler la distance cible-échantillon. La distance minimale qu'ils peuvent atteindre est de 0,01 mm : ils se placent plutôt entre 0,1 et 0,5 mm pour ne pas masquer la caméra, avec une précision de ± 0,02 mm.

Une autre méthode permettant d'obtenir des clichés pseudo-Kossel a été mise au point par Dingley [42, 43]. Il a focalisé le faisceau d'électrons sur des particules de nickel d'environ 5 µm déposées à la surface d'un échantillon en silicium (Figure I-16).

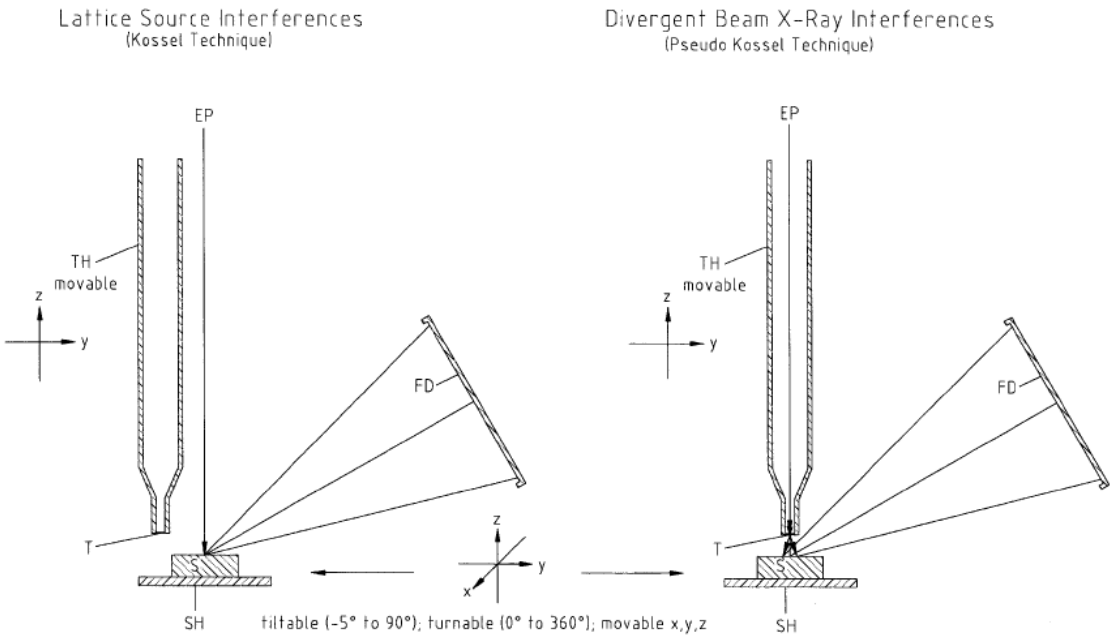


Figure I-15 : Schéma représentant les techniques de diffraction Kossel et pseudo-Kossel - EP : faisceau d'électrons, T : cible, TH : porte-cible déplaçable, S : échantillon, SH : porte-échantillon, FD : caméra [40]

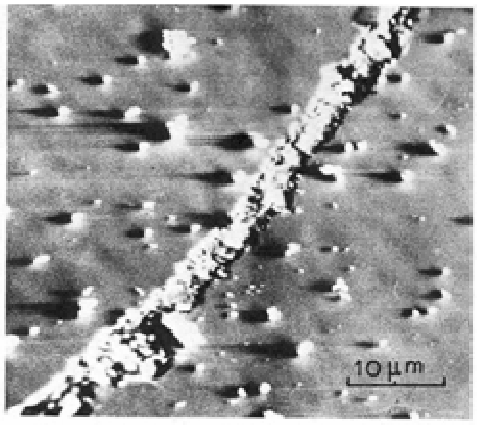


Figure I-16 : Image MEB des particules de nickel déposées à la surface d'un échantillon en silicium, au niveau d'une fissure [42]

Les avantages de la technique pseudo-Kossel sont les suivants :

- tous les éléments de la classification peuvent être analysés ;
- une énergie (ou une longueur d'onde) adaptée au matériau que l'on souhaite analyser peut être choisie ;
- un meilleur contraste est obtenu (Figure I-17) [39, 44, 45], car il n'y a ni rayonnement

de freinage de l'échantillon[1] (bremsstrahlung) ni électrons rétrodiffusés émis ;

- il n'y a pas d'échauffement de la matière causé par le faisceau électronique.

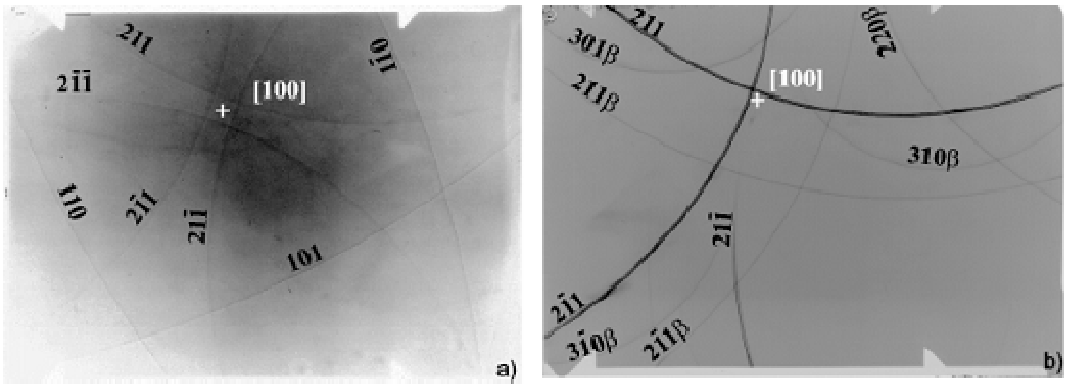


Figure I-17 : Comparaison des clichés obtenus sur un monocristal de fer - a) le cliché Kossel se caractérise par des lignes fines et un bruit de fond important - b) le cliché pseudo-Kossel se caractérise par un meilleur rapport signal / bruit (on retrouve les lignes d'interférences β) mais toutes les réflexions n'apparaissent pas (101 par exemple), une cible de fer a été utilisée et placée à 0,5 mm de l'échantillon [45]

Les principaux inconvénients de cette technique sont que l'on dégrade la résolution spatiale au moins d'un ordre de grandeur par rapport à la diffraction Kossel et que les clichés pseudo-Kossel conduisent à des mesures d'orientations et de paramètres cristallins moins précises (Figure I-18) [44]. En effet, la zone irradiée sera élargie et la pénétration accrue. En fonction de la nature de la cible et de la distance entre celle-ci et l'échantillon, la résolution latérale peut atteindre le millimètre et la pénétration, 100 µm.

Si l'on irradie plusieurs grains à la fois, on obtiendra des clichés difficilement exploitables, composés d'une multitude de portions de courbes de Kossel (Figure I-19) [39, 41]. Un autre inconvénient est que la source de rayons X émise par la cible, contrairement à la diffraction Kossel, n'est pas sphérique. Suivant l'orientation du cristal, certaines réflexions peuvent ne pas apparaître sur la caméra (Figure I-17). Enfin la mise en œuvre de cette technique est plus délicate que la diffraction Kossel classique. Une source externe doit être ajoutée, dans un espace réduit, au plus près de l'échantillon sans masquer celui-ci. Des analyses telles que des profils ou des cartographies de contraintes seront rendues plus difficiles.

[1] Le bremsstrahlung du matériau cible peut par contre atteindre la caméra. Par ailleurs, il peut provoquer de la fluorescence dans le matériau analysé.

Generation depth, lateral resolution and precision of the methods LSI, DBI and EBSD (by X-ray film/with CCD camera at the present state)

Component	LSI	DBI	EBSD
Generation depth	1–10 μm	1–100 μm	A few 10 nm
Lateral resolution	Only a few μm	μm to mm	>50 nm
Absolute crystallographic orientation	0.2°/0.4°	0.5°	About 1°
Relative crystallographic orientation	0.15°/0.3°	0.3°	0.5°
Precision of lattice constant, Δa	10^{-5} nm/10^{-4} nm	10^{-4} nm/10^{-3} nm	Only inexact

Figure I-18 : Comparaison des techniques (LSI = Kossel, DBI = pseudo-Kossel) en fonction des résolutions, des profondeurs affectées et des précisions dans l'obtention des paramètres cristallins [44]

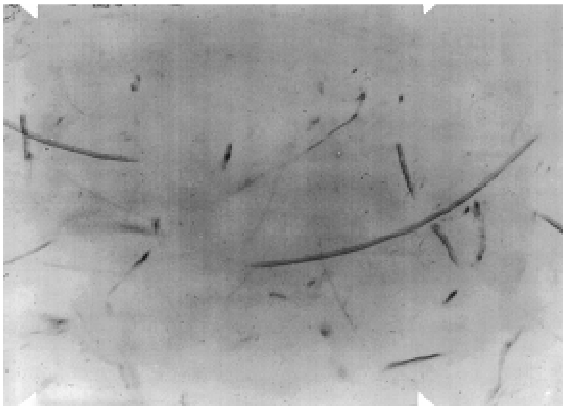


Figure I-19 : Cliché pseudo-Kossel d'un polycristal de cuivre, à taille de grains inférieure à la taille de sonde [39]

Langer et al. [46] ont développé un programme permettant de simuler les clichés pseudo-Kossel et déterminer ainsi à quel grain correspond telle ou telle ligne Kossel en se basant sur les localisations des interruptions des réflexions sur les clichés. Ce programme s'appelle KOPSKO. Il sera détaillé dans un prochain paragraphe. Une autre méthode a été développée par Zhang [47]. Il a utilisé une cible composée d'un matériau à deux éléments afin de doubler chaque réflexion (hkl) et de permettre ainsi une amélioration de l'indexation des lignes.

Une autre possibilité consiste à focaliser un faisceau de rayonnement synchrotron sur l'échantillon. Dans ce cas, les rayons X participant à la diffraction sont émis par le matériau lui-même sous forme d'une onde sphérique. Les premiers essais ont été effectués par l'équipe d'Ullrich dans les années 80 sur des monocristaux de cuivre et d'arséniure de gallium (GaAs) avec un faisceau polychromatique [48]. Puis, des clichés ont été obtenus sur divers matériaux comme $CuMn_4$, NaCl, $CaCO_3$, CaF_2, Ti, TiN, VO_2, V_2O_5 [37]. Ensuite, un meilleur rapport signal sur bruit a été obtenu par l'utilisation d'un rayonnement monochromatique. Schetelich et al. [49] ont choisi l'énergie du faisceau incident (Figure I-20) de telle manière qu'elle se

situe juste au-dessus du seuil d'absorption du matériau. La taille du faisceau primaire était par contre assez grande, de l'ordre de 200 µm de côté [49]. Plus récemment, Glazer et al. [50] ont utilisé un faisceau synchrotron (au CCLRC Daresbury Laboratory) et une cible en niobium pour obtenir un cliché pseudo-Kossel sur un monocristal de diamant.

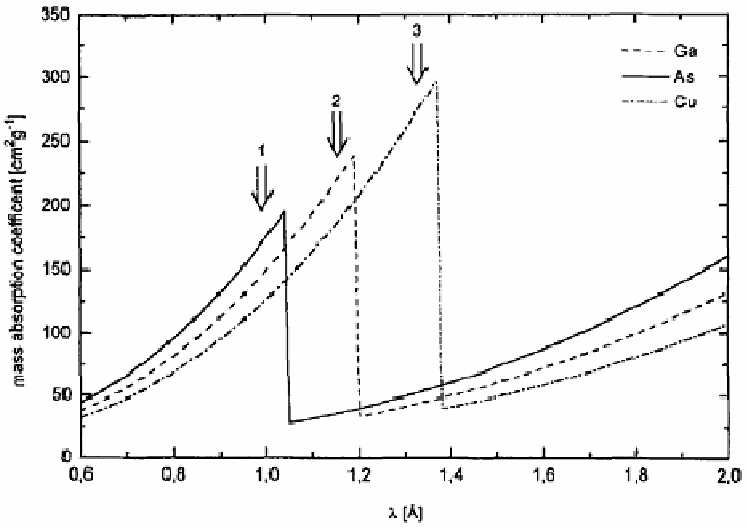


Figure I-20 : Choix de l'énergie (ou de la longueur d'onde) du faisceau de rayonnement synchrotron en fonction des coefficients d'absorption massique de divers éléments afin de maximiser la fluorescence du matériau [49]

On peut alors se demander s'il est concevable d'obtenir des clichés Kossel en utilisant un faisceau de rayons X produit en laboratoire sachant que la brillance est beaucoup plus faible qu'au synchrotron. Langer et al. ont utilisé deux montages différents pour exciter la fluorescence d'un échantillon par un rayonnement X polychromatique : à l'aide d'un spectromètre de fluorescence X [51] et en émettant des rayons X dans un MEB [52]. Pour les deux montages, ils ont focalisé finement le faisceau et augmenté sensiblement l'intensité du rayonnement X incident avec la mise en place d'une lentille polycapillaire (Figure I-21). Pour ces deux techniques, la résolution spatiale est de l'ordre de quelques dizaines de micromètres. L'inconvénient majeur de ces solutions réside dans les temps d'exposition qui atteignent une journée. Un exemple de cliché est donné Figure I-22.

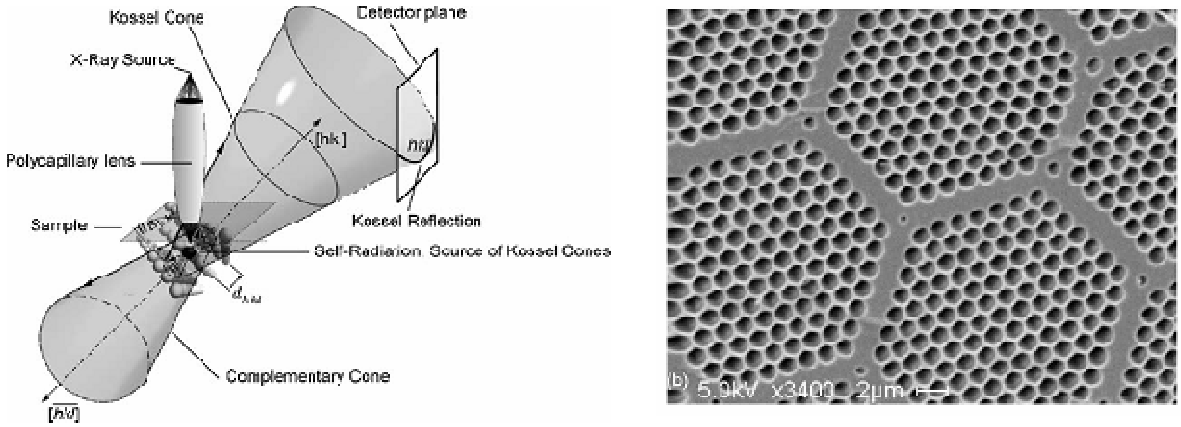


Figure I-21 : (a) Principe de la technique avec mise en place d'une lentille pour focaliser le faisceau (b) Vue de la section d'une lentille polycapillaire au MEB

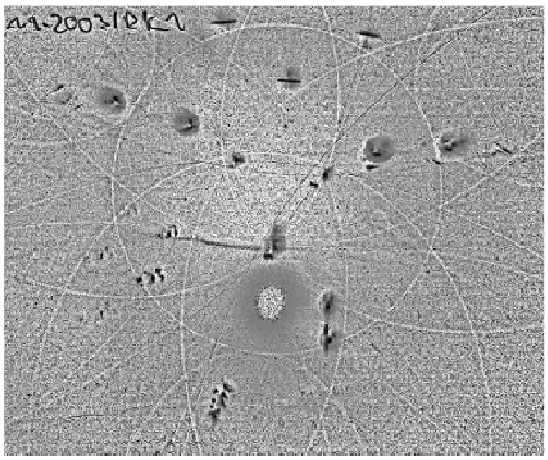


Figure I-22 : Cliché de pseudo-Kossel en transmission d'un monocristal de nickel, dans un spectromètre de fluorescence. Les spots de Laue sont présents sur le cliché (rayonnement polychromatique) [51]

Geist et Ascheron [53] ont quant à eux utilisé un faisceau collimaté de protons, à l'Université Karl Marx de Leipzig, pour étudier des échantillons de $CuAl_2$ et GaP. L'énergie du faisceau incident de protons a été choisie entre 0,5 et 1,5 MeV et le diamètre du faisceau est de l'ordre de 0,5 mm. Cette solution technologique ne semble pas adaptée du fait de sa complexité et de la résolution spatiale trop importante.

1.3.1.3 Enregistrement du cliché

Jusque dans les années 90, les clichés Kossel étaient enregistrés sur des films photographiques**.** Les films étaient placés à l'air ambiant à l'extérieur du microscope (ou de la

microsonde), derrière une fenêtre en béryllium (Figure I-23), dans le trajet des cônes de Kossel [42, 43]. On devait ensuite les développer dans un laboratoire photographique. Cette technique permettait d'obtenir d'excellents clichés (bonne résolution locale), mais le travail était fastidieux et long. Dans les années 70, du fait de sa complexité d'usage, la diffraction Kossel a été supplantée par d'autres techniques, notamment par la diffraction de poudre, pour la détermination des paramètres cristallins [54].

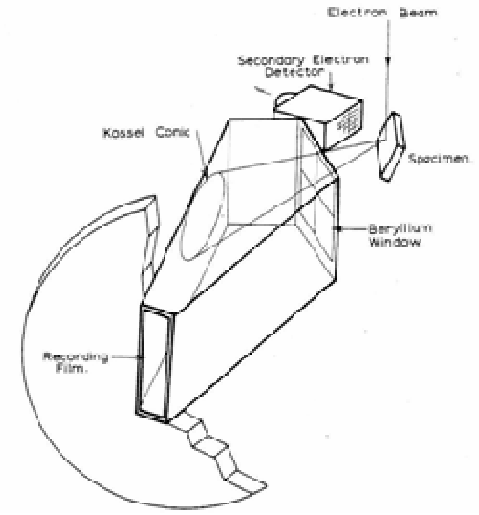


Figure I-23 : Montage mis au point par Dingley [43] pour l'enregistrement des clichés Kossel

Bauch et al. [37, 55] ont utilisé des plaques photosensibles, introduites quelques années auparavant dans le domaine médical, pour l'enregistrement des images. Ces plaques ont l'avantage d'être réutilisables mille fois contrairement aux films (une seule exposition) et les temps d'exposition sont réduits. Par contre, la qualité des enregistrements est insuffisante pour rivaliser avec les films photographiques [40].

Avec l'apparition des caméras CCD de haute résolution (taille de pixels de quelques micromètres), la détection des lignes a été facilitée. Un ordinateur pilote l'acquisition des images. Celles-ci sont numérisées. Les clichés sont ainsi exploitables directement par un programme d'indexation des lignes. L'automatisation complète de la procédure d'analyse des contraintes par diffraction Kossel devient donc concevable.

En 1995, Goehner et Michael [54] ont été les premiers à avoir implanté une caméra CCD haute résolution dans un microscope électronique. Ils ont choisi un scintillateur YAG couplé à une barrette CCD 1024 x 1024 pixels par l'intermédiaire de fibres optiques ayant un taux de

réduction de 2,5:1. Ils ont placé un filtre en aluminium fixé sur un polymère organique à l'avant du scintillateur afin d'éliminer les électrons rétrodiffusés.

En 1999, Däbritz et al. [40] ont utilisé une caméra CCD de technologie identique pour l'acquisition des clichés Kossel. Ils ont obtenu des clichés ayant une qualité moindre, mais plus rapidement qu'avec des films photographiques (Figure I-24). Au LPMM, à Metz, les premiers clichés numériques ont été obtenus en 2003 (cf 1.3.5.3).

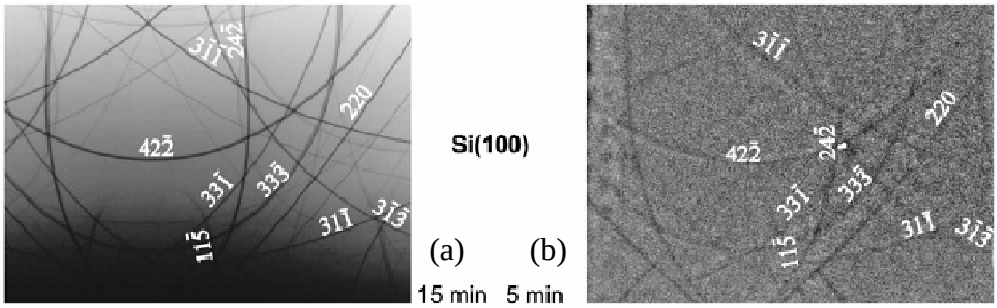


Figure I-24 : Comparaison de la qualité de clichés pseudo-Kossel enregistrés par l'intermédiaire d'un film photographique (a) et d'une caméra CCD (b), sur un monocristal de silicium. Temps d'expositions : (a) 15 minutes, (b) 5 minutes

En 2007, Böhling et al. [56] ont développé leur propre caméra qui a été intégrée au sein d'un microscope électronique à balayage. Ils estiment qu'une distance caméra - échantillon élevée (de l'ordre de 330 mm) et un grand angle de vue leur permettent d'obtenir des clichés de meilleure qualité.

1.3.2 Indexation des lignes

Une fois le cliché enregistré sur un film photographique ou par l'intermédiaire d'une caméra CCD, les lignes doivent être indexées : il faut déterminer à quel plan (hkl) elles correspondent. Il est possible, malgré la distorsion causée par la projection, de retrouver dans le cliché les symétries cristallines du matériau et donc de repérer les plans cristallins diffractants [36]. Mais la méthode qui a été la plus couramment utilisée consiste à comparer le cliché expérimental avec un diagramme simulé, et retrouver ainsi l'orientation du cristal [42]. Pour cela, il faut connaître notamment la longueur d'onde du matériau, la symétrie cristalline et le paramètre de maille théorique.

1.3.2.1 Par comparaison avec un cliché simulé

Il est nécessaire de comprendre, d'un point de vue géométrique, comment sont générées les lignes de Kossel sur un écran. Considérons un faisceau d'électrons impactant un monocristal (ou un grain d'un polycristal), de symétrie cubique, en un point O. En ce point, une source de rayons X divergente monochromatique va être créée. Les plans cristallins (hkl), de distances interréticulaires d_{hkl}, respectant la condition $2d_{hkl} \geq \lambda$ vont diffracter simultanément en émettant un cône de Kossel de sommet O, d'axe [hkl] perpendiculaire au plan (hkl) considéré et de demi-angle au sommet $(\pi/2 - \theta_{hkl})$. Le vecteur diffraction, noté $\overrightarrow{K_{hkl}}$, correspondant à la différence entre le vecteur de l'onde diffusée et le vecteur de l'onde incidente est représenté sur la Figure I-25.

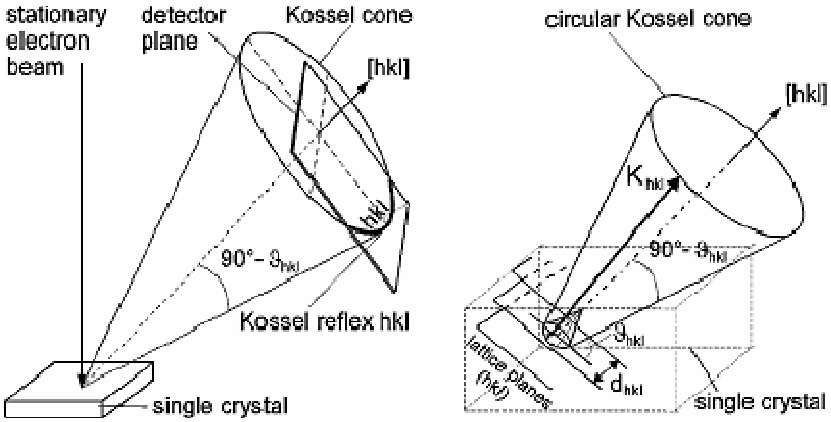


Figure I-25 : Schéma représentant la géométrie d'un cône de Kossel [45]

Le nombre de réflexions possibles d'un cristal diffractant pour une longueur d'onde λ donnée est limité par la relation $\theta_{hkl} < \pi/2$. Par exemple, pour un cristal ayant une symétrie cubique, les indices hkl doivent obéir à la relation suivante :

$$h^2 + k^2 + l^2 < \frac{2a}{\lambda^2} \qquad \text{(I-3)}$$

Pour chaque plan réflecteur (hkl), on peut ensuite calculer la distance interréticulaire d_{hkl} d'après la relation :

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \qquad \text{(I-4)}$$

ou l'angle de Bragg θ_{hkl} d'après :

$$\theta_{hkl} = \arcsin\left(\frac{\lambda}{2d_{hkl}}\right) = \arcsin\left(\frac{\lambda\sqrt{h^2+k^2+l^2}}{2a}\right) \quad \text{(I-5)}$$

Les lignes de Kossel apparaissant à l'écran correspondent à la projection gnomonique des cônes (Figure I-26). La courbure d'une ligne de Kossel donnée est directement reliée à l'angle de Bragg associé.

Soit Ψ un cône de Kossel généré à partir d'un cristal. Un repère cartésien est choisi de la manière suivante : O est le point source des rayons X et l'axe z est perpendiculaire au plan de la caméra, noté Φ. Les axes x et y sont choisis de telle sorte que les coordonnées du vecteur normalisé, noté $\vec{n}$, définissant l'axe du cône soient les suivantes : $\vec{n}$ = (0, $\sin\varphi$, $\cos\varphi$). R est la distance entre l'échantillon et la caméra.

Soient ϑ le demi-angle au sommet du cône et φ l'angle d'inclinaison du plan (hkl) considéré par rapport à la surface de l'échantillon. ϑ est relié à l'angle de Bragg θ_{hkl} par la relation suivante : $\vartheta = \frac{\pi}{2} - \theta_{hkl}$.

Soit Σ une sphère de centre O et de rayon R tangente à l'écran Φ. L'intersection du cône Ψ avec la sphère Σ est un cercle c. L'équation du plan contenant c est :

$$\sin\varphi \cdot y - \cos\varphi \cdot z = R \cdot \cos\vartheta \quad \text{(I-6)}$$

Ce plan est parallèle au plan (hkl) considéré.

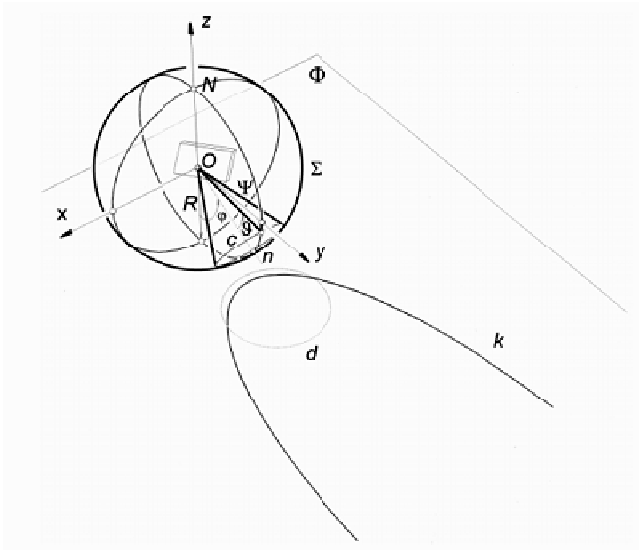


Figure I-26 : Représentation des projections stéréographique et gnomonique d'un cône de Kossel sur un écran [55]

La ligne de Kossel k est la projection du cercle c sur l'écran par rapport au point O. Cette projection est appelée projection gnomonique. Le cercle d est obtenu en réalisant une projection stéréographique (à partir du pôle nord N).

L'équation de k est :

$$\cos^2\vartheta \cdot x^2 + \left(\cos^2\vartheta - \sin^2\varphi\right) y^2 - 2R \cdot \sin\varphi \cdot \cos\varphi \cdot y + R^2 \cdot \cos^2\vartheta - R^2 \cdot \cos^2\varphi = 0 \qquad \text{(I-7)}$$

L'équation de d est :

$$\left(\cos\varphi + \cos\vartheta\right)\left(x^2 + y^2\right) - 4R \cdot \sin\varphi \cdot y + 4R^2\left(\cos\vartheta - \cos\varphi\right) = 0 \qquad \text{(I-8)}$$

Newman [57] a déterminé l'équation régissant la formation des lignes de pseudo-Kossel, en plaçant l'écran parallèle à la surface de l'échantillon (Figure I-27):

$$\begin{gathered}\left(x^2 + y^2\right)\cos^2\vartheta - x^2 \cdot \sin^2\varphi - \left(\cos\varphi\right)^{-1} \\ \cdot \sin\vartheta\left(\cos\varphi \cdot \cos\vartheta\left(y^2\left(\cos\varphi\right)^{-2} + x^2\right)^{0,5}\left(R + h\right) + x \cdot \sin\varphi \cdot \sin\vartheta\left(R - h\right)\right) = 0\end{gathered} \qquad \text{(I-9)}$$

avec h, la distance entre la source externe de rayons X (pseudo-Kossel) et l'échantillon.

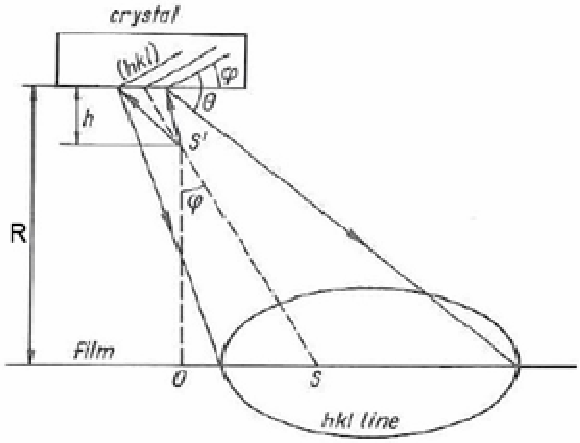
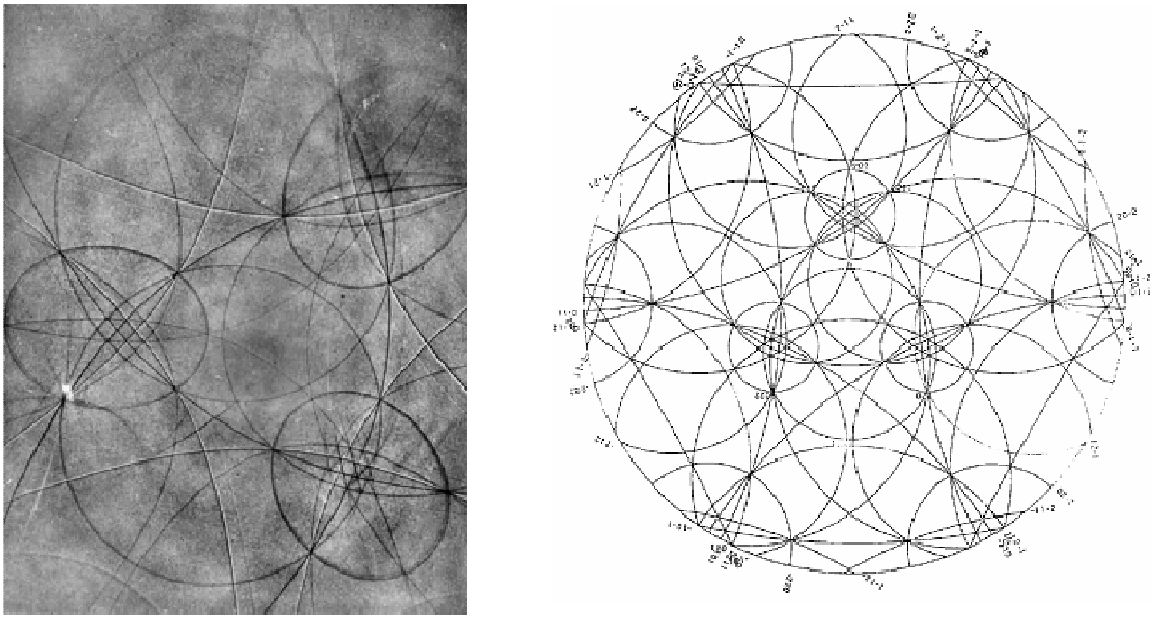


Figure I-27 : Géométrie de la diffraction pseudo-Kossel en réflexion [63]

Quand les distances R et h sont connues, la localisation des lignes est régie par seulement deux paramètres : ϑ, directement relié à l'angle de Bragg et φ, déterminé par l'orientation cristallographique. Il est ainsi possible de simuler des clichés Kossel ou pseudo-Kossel pour un matériau donné ayant une orientation donnée en fixant la distance échantillon - caméra.

Plusieurs équipes ont développé des outils d'aide à l'indexation des clichés Kossel. Les premiers travaux ont consisté à simuler des clichés en projection stéréographique. On peut citer les travaux de Lonsdale en 1947 [58], Hanneman et al. en 1962 [59] qui ont préparé des projections standard pour des cristallographies et des rayonnements courants après avoir calculé les angles de Bragg. Ensuite, les clichés ont pu être simulés par ordinateur, par Frazer [60] et Morris [61] en 1966 notamment. Tixier et Waché [36] ont indexé les lignes d'un cliché Kossel expérimental pour un cristal de fer en le comparant avec une projection calculée (Figure I-28). L'avantage de cette technique est que le centre de projection n'a pas besoin d'être connu.



(a) (b)

Figure I-28 : (a) Cliché Kossel d'un cristal de fer (film photographique), (b) Projection stéréographique standard pour une orientation (111) ; λ=1,9360 Å ; a=2,8664 Å

Plus récemment, Weber [62] a développé un programme nommé KOQUA permettant de simuler les clichés Kossel de toutes les structures cristallines. En comparant le cliché expérimental avec le cliché simulé, il est capable de déterminer les paramètres de maille à 0,005 Å près en modifiant petit à petit leurs valeurs au sein du programme jusqu'à obtenir une concordance optimale entre le cliché expérimental et le cliché simulé.

Des programmes traçant les projections gnomoniques ont aussi été développés. On peut citer par exemple le programme KOPSKO conçu par Langer et al. [45]. Les paramètres de maille et l'orientation du matériau doivent être renseignés et un cliché Kossel est simulé à partir des relations classiques de diffraction et de changements de repères. Les cônes de Kossel sont projetés un à un en utilisant un facteur d'échelle prenant en compte le positionnement de la caméra par rapport à l'échantillon. La Figure I-29 présente le détail du programme ; il permet de tracer l'hémisphère d'interférences complet en projection stéréographique et une section particulière en projection gnomonique (Figure I-30). Il a l'avantage de simuler des clichés pour les faibles symétries cristallines, telles que orthorhombique ou monoclinique.

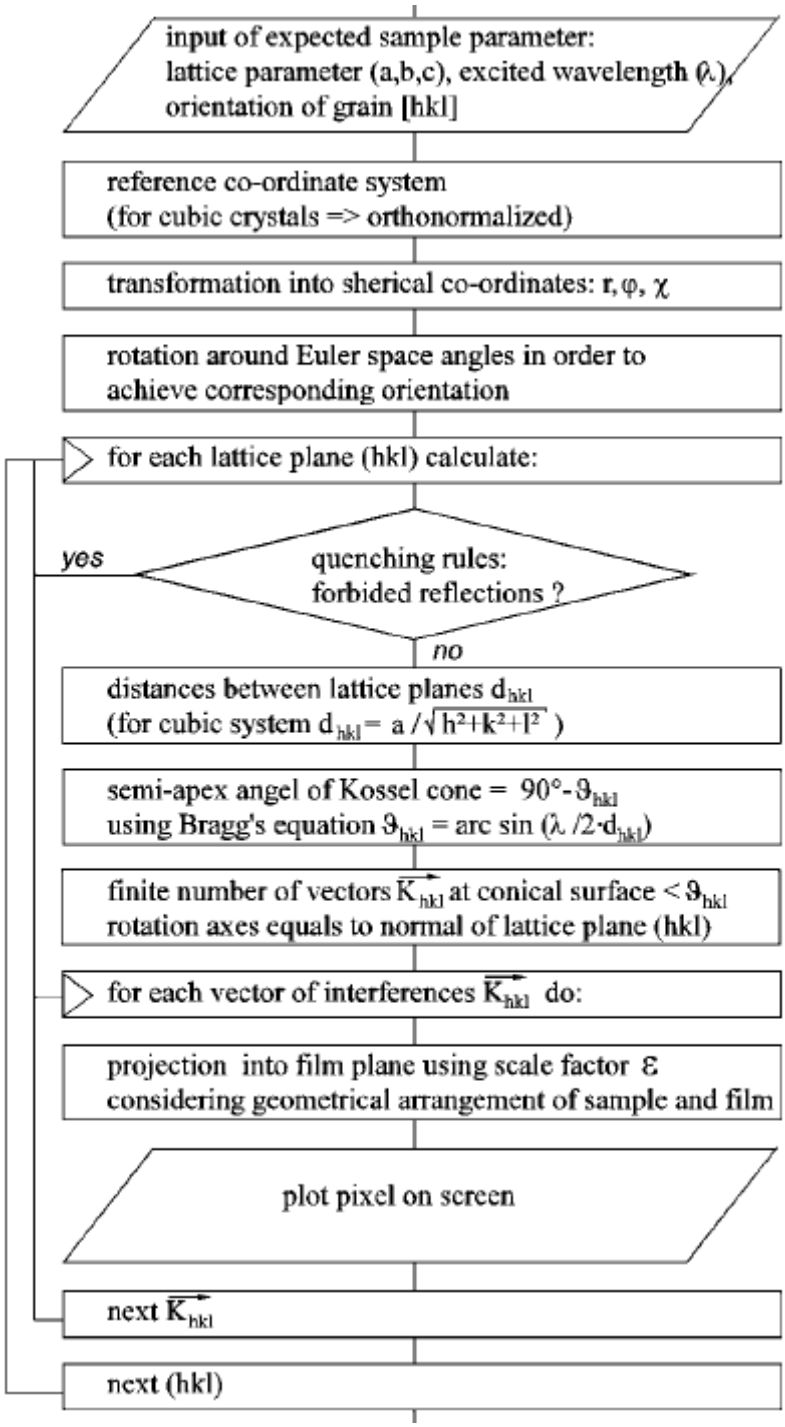


Figure I-29 : Détail de l'algorithme du programme KOPSKO [45]

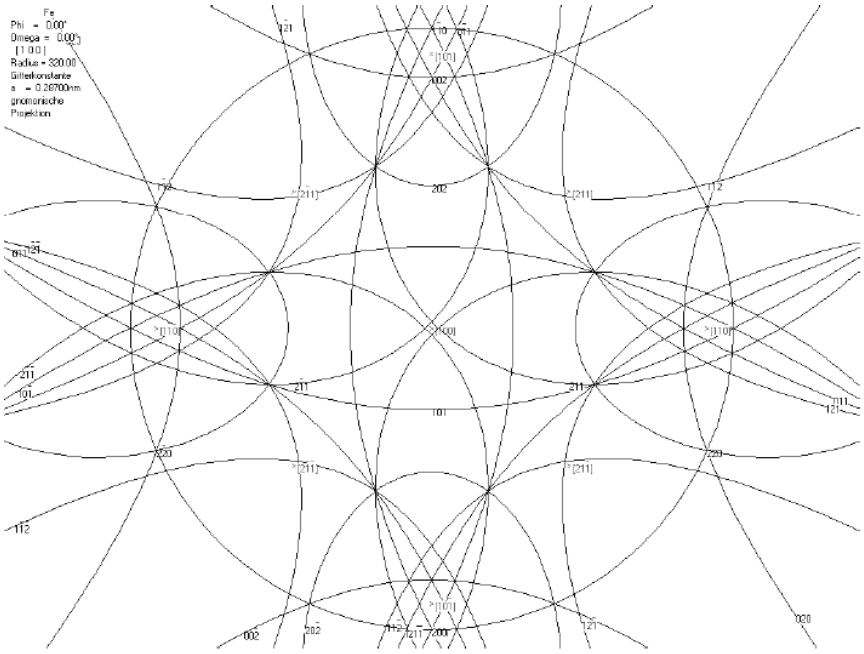


Figure I-30 : Cliché Kossel simulé (projection gnomonique) d'un monocristal de fer orienté [100] [45]

Les clichés obtenus par la méthode pseudo-Kossel peuvent aussi être indexés à partir de clichés simulés. Zhang et al. [63] ont utilisé l'équation de Newman afin de simuler par ordinateur les clichés pseudo-Kossel à partir des angles de Bragg et d'inclinaison du plan (hkl) par rapport à la surface de l'échantillon, pour chaque réflexion hkl permise par la cristallographie du matériau. Ils ont comparé leurs résultats à des clichés expérimentaux obtenus sur des monocristaux de silicium d'orientations connues (Figure I-31).

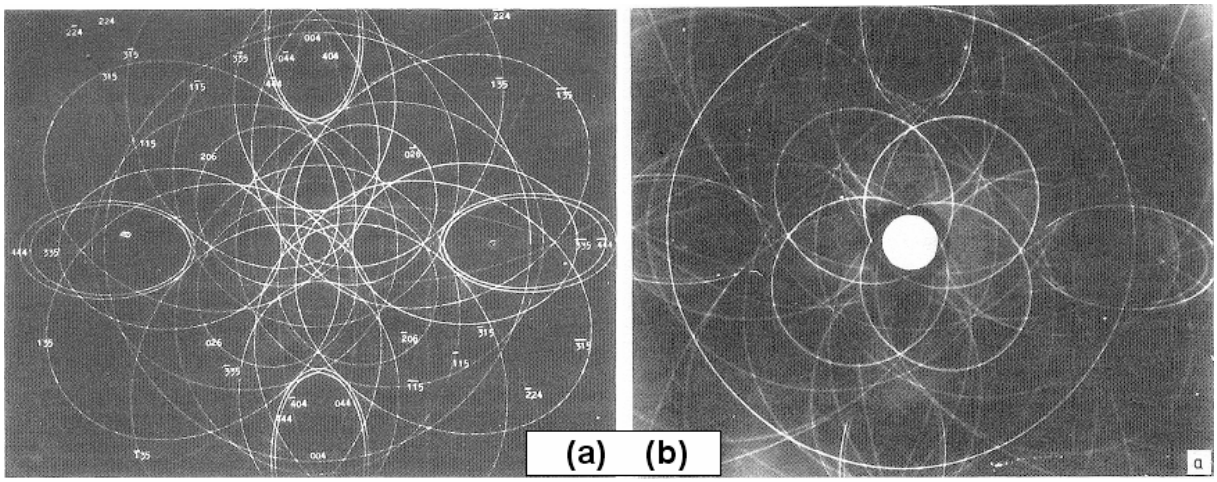


Figure I-31 : (a) Simulation par ordinateur d'un cliché de réflexion pseudo-Kossel (rayonnement CuK$_\alpha$) pour un cristal de silicium orienté <111>, (b) cliché expérimental correspondant [63]

Le programme KOPSKO [45] permet aussi de simuler les clichés pseudo-Kossel mais avec une amélioration par rapport au programme de Zhang. En effet, ils prennent en compte dans le calcul les interruptions des lignes de Kossel causées par l'effet de taille de grains et les ombrages dus au masquage par la cible. Ils déterminent tout d'abord les directions des rayons X incidents qui vont venir frapper l'échantillon. Pour cela, ils utilisent une procédure décrite sur la Figure I-32 pour déterminer l'ensemble des cônes de vecteurs $\overrightarrow{K_{hkl}}$ dont l'origine est le point d'impact des électrons sur la cible (et non l'échantillon). Le prolongement des vecteurs $\overrightarrow{K_{hkl}}$ sur l'échantillon donne la série de vecteurs $\overrightarrow{S_{hkl}}$. Pour définir si les vecteurs $\overrightarrow{S_{hkl}}$ impactent le grain G, des paramètres comme la localisation des joints de grains, la taille et la forme des grains doivent être pris en considération. Ensuite, grain par grain, les vecteurs $\overrightarrow{W_{hkl}}$ correspondant aux réflexions de Bragg sont calculés puis prolongés jusqu'au détecteur et la série de vecteurs $\overrightarrow{D_{hkl}}$ est déduite à partir de la distance échantillon - caméra et de l'angle d'inclinaison de la caméra β_2. Enfin la ligne de pseudo-Kossel correspondant au grain G par exemple est tracée.

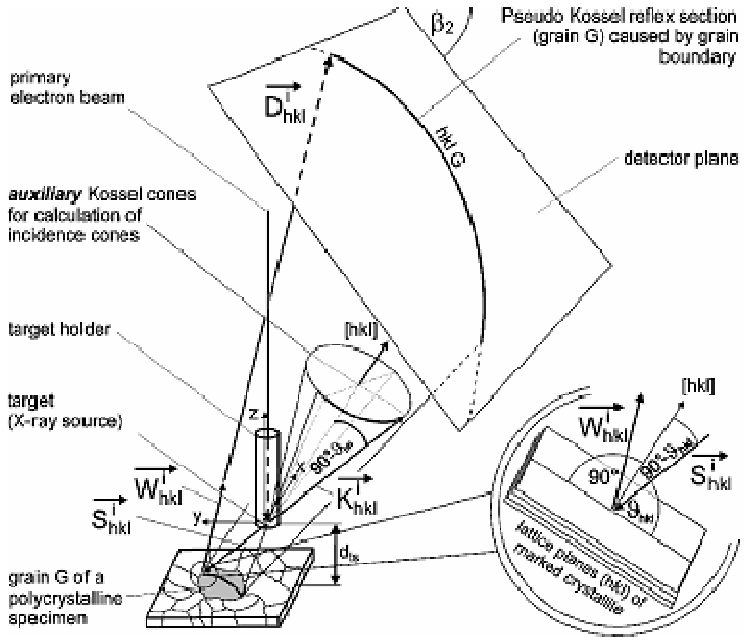


Figure I-32 : Représentation schématique du principe utilisant des vecteurs pour le tracé des lignes de pseudo-Kossel [45]

1.3.2.2 Par des mesures sur le cliché expérimental

Si le cliché ne peut pas être identifié parce qu'il manque des lignes ou qu'elles sont incomplètes, ou parce que le champ de vue est trop restreint, une approche utilisant la notion de produits scalaires de vecteurs ligne peut être adoptée. Soient les formules générales suivantes :

$$\vec{T_i} \cdot \vec{M_j} = \frac{h_i u_j + k_i v_j + l_i w_j}{\left(h_i^{\,2} + k_i^{\,2} + l_i^{\,2}\right)^{0,5}} = \cos\delta \qquad \text{(I-10)}$$

$$u_j^{\,2} + v_j^{\,2} + w_j^{\,2} = 1 \qquad \text{(I-11)}$$

où δ est l'angle entre le premier vecteur noté $\vec{T_i}$ de coordonnées (h_i, k_i, l_i) et le second vecteur noté $\vec{M_j}$ de coordonnées (u_j, v_j, w_j). Le vecteur $\vec{M_j}$ est un vecteur unitaire et ses coordonnées sont des cosinus directeurs. Si les vecteurs lignes $\vec{T_i}$ et $\vec{M_j}$ sont respectivement la normale à un plan diffractant et une génératrice du cône de diffraction associé, on peut écrire :

$$\vec{T_i} \cdot \vec{M_j} = \cos\delta = \cos\left(\frac{\pi}{2} - \vartheta_{hkl}\right) = \sin\left(\vartheta_{hkl}\right) = \frac{\lambda}{2d} \qquad \text{(I-12)}$$

A partir du cliché expérimental, le vecteur $\vec{M}$ peut être obtenu en effectuant des mesures le long de la ligne de Kossel considérée. A partir de trois valeurs différentes de $\vec{M}$ (trois lignes de Kossel différentes), le vecteur $\vec{T}$ associé peut être déduit. Les angles entre les axes des cônes repérés sur le cliché sont ensuite comparés à des tables renseignant les angles entre plans cristallographiques. Les lignes peuvent ainsi être indexées.

1.3.3 Détermination des paramètres cristallographiques du matériau

Une fois les lignes indexées, il existe différentes méthodes permettant de déterminer avec précision l'orientation et les paramètres cristallins. Tixier et Waché [36] ont fait un état de l'art des méthodes géométriques permettant d'analyser un cliché expérimental, développées

entre 1947 et 1969. Dingley [42] en a fait de même dix années plus tard. Toutes ces études ont été réalisées à partir de mesures sur des clichés enregistrés sur films photographiques. Les paramètres de maille de différents matériaux ont pu être obtenus avec des précisions de $\Delta a/a$ allant de 10^{-3} à 10^{-6} suivant les méthodologies, et les orientations à moins de 1° près [36, 42]. Plus récemment, des programmes de simulation des clichés ont été développés pour la détermination de ces paramètres.

1.3.3.1 Orientation cristallographique

Plusieurs méthodes ont été développées pour analyser les films photographiques [36, 42]. Trois d'entre elles seront exposées dans ce paragraphe : une basée sur un traitement graphique et deux calculatoires.

- Méthode de Peters et Ogilvie [36]

Pour cette méthode, le centre de projection doit être connu. Soit le système de référence de la projection gnomonique défini par la projection des méridiens et parallèles de la sphère (S) à partir du centre de la sphère sur le plan perpendiculaire à l'axe PS (Figure I-33). De la même façon, le système de référence de la projection stéréographique est défini par la projection à partir du point P. Soient trois points A, B, C d'une ligne de Kossel (L) d'indices (hkl). Soient A', B', C' les points du cercle de Kossel associé et A", B", C" les points de la projection stéréographique du cercle de Kossel. Les coordonnées angulaires des points A, B, C sont déterminées à partir d'une projection polaire gnomonique de la sphère de référence dont la taille prend en compte l'agrandissement lors de la reproduction du cliché expérimental nécessaire pour les mesures. Sur cette projection (Figure I-34 (a)), les parallèles correspondent à des cercles concentriques centrés sur le centre de projection et les méridiens des lignes droites passant par le centre de projection.

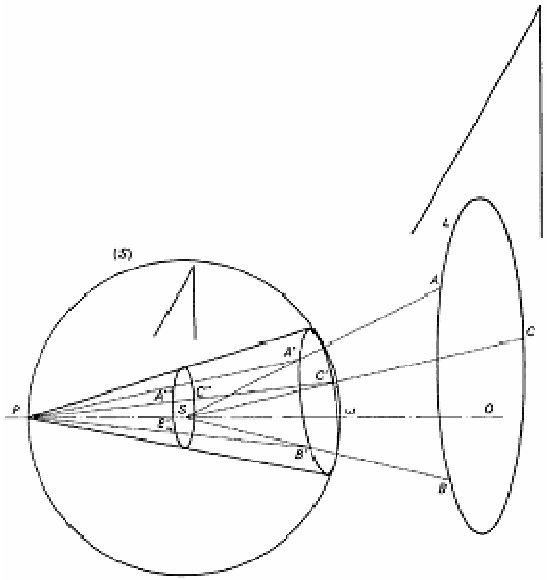
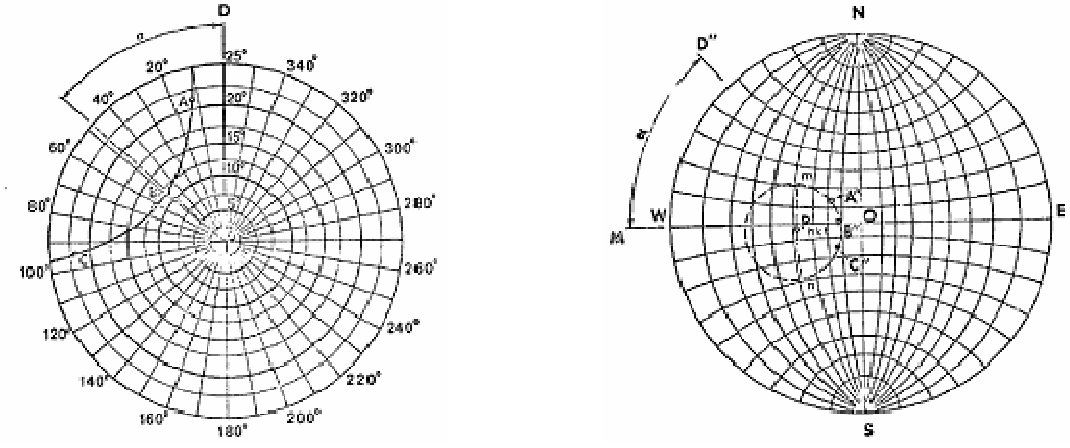


Figure I-33 : Méthode de Peters et Ogilvie - projections stéréographique et gnomonique [36]

Cette projection est superposée au cliché expérimental en faisant coïncider le centre de projection au centre de la figure. Les coordonnées des points A", B", C" sont déduites d'un diagramme de Wulff (Figure I-34 (b)). Un cercle passant par les trois points A", B", C" est ensuite construit. L'angle de Bragg correspond à l'angle entre le centre de la sphère et le méridien mn. Le pôle P_{hkl} est sur le méridien mn et est à la même distance angulaire de m et n. A partir de deux pôles, l'orientation du cristal peut être déterminée.



(a) (b)

Figure I-34 : Méthode de Peters et Ogilvie. (a) Projection polaire gnomonique, (b) Projection stéréographique à l'aide d'un diagramme de Wulff

- Méthode de Dingley [43]

Soit un point d'intersection P_1, de composantes r, s, t, de deux lignes de Kossel L_1 et L_2 d'indices de Miller (h_1, k_1, l_1) et (h_2, k_2, l_2) et d'angles de Bragg θ_1 et θ_2. En utilisant les produits scalaires et les cosinus directeurs, on peut déterminer les inconnues r, s, t (pour un cristal cubique) à partir du système d'équations suivant :

$$\frac{h_1 \cdot r + k_1 \cdot s + l_1 \cdot t}{\left(h_1^2 + k_1^2 + l_1^2\right)^{0,5}} = \sin\theta_1 = \frac{\lambda}{2a}\left(h_1^2 + k_1^2 + l_1^2\right)^{0,5} \quad \text{(I-13)}$$

$$\frac{h_2 \cdot r + k_2 \cdot s + l_2 \cdot t}{\left(h_2^2 + k_2^2 + l_2^2\right)^{0,5}} = \sin\theta_2 = \frac{\lambda}{2a}\left(h_2^2 + k_2^2 + l_2^2\right)^{0,5} \quad \text{(I-14)}$$

$$r^2 + s^2 + t^2 = 1 \quad \text{(I-15)}$$

Les composantes r', s', t' d'un deuxième point d'intersection P_2 peuvent être déterminées de la même manière. Si la direction cristallographique recherchée est décrite par les cosinus directeurs h_3, k_3, l_3 et si les angles des vecteurs passant par les points d'intersection P_1 et P_2 et d'origine le point source de la diffraction sont respectivement γ et γ', alors :

$$r \cdot h_3 + s \cdot k_3 + t \cdot l_3 = \cos\gamma \quad \text{(I-16)}$$

$$r' \cdot h_3 + s' \cdot k_3 + t' \cdot l_3 = \cos\gamma' \quad \text{(I-17)}$$

$$h_3^2 + k_3^2 + l_3^2 = 1 \quad \text{(I-18)}$$

Les angles γ et γ' peuvent être déterminés à partir des mesures des coordonnées des points d'intersection P_1 et P_2 par rapport au centre de projection. Ainsi, les inconnues h_3, k_3, l_3 peuvent être déduites et les indices de Miller correspondants calculés.

Dingley [42] a validé cette méthode sur des clichés provenant d'un échantillon de cuivre possédant des macles désorientées de 60° par rapport à l'axe <111>. Il a obtenu une précision de l'ordre de 0,4°.

Pour localiser le centre de projection, Dingley [42] s'est basé par exemple sur un design de caméra précis. Une autre méthode a été de positionner trois billes en acier entre l'échantillon

et le film photographique. Les billes, considérées comme des sphères parfaites, bloquent les rayons X et des ombres elliptiques apparaissent après le développement du film (Figure I-35). En mesurant les coordonnées des points décrivant les ellipses, il détermine leurs équations. A partir de ces dernières, le centre de projection peut être déterminé avec une précision de 1/3000 [42].

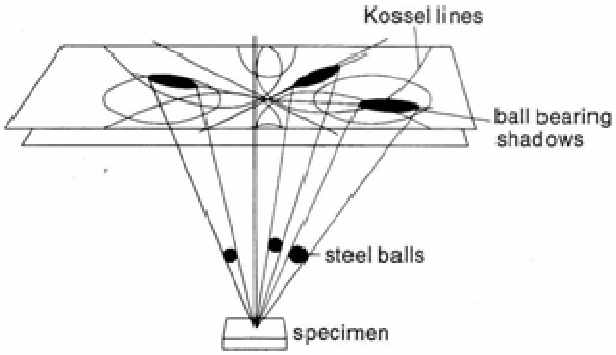


Figure I-35 : Schéma de principe de la technique développée par Dingley [42]

- Méthode de Pitsch [36]

Quand le centre de projection est inconnu, ses coordonnées et l'orientation du cristal peuvent être déterminées par une méthode développée par Pitsch. Les étapes sont les suivantes :

1) recherche de deux traces de plans miroirs sur le cliché, T étant un point d'intersection entre un axe de rotation du cristal et le plan du cliché (Figure I-36) ;
2) sur chaque trace, deux points d'intersection des deux lignes de Kossel sont localisés (points P_1 à P_4) ;
3) les cosinus directeurs des vecteurs $\overrightarrow{SP_i}$ sont calculés, S étant le point source ;
4) les angles entres les vecteurs $\overrightarrow{SP_i}$ et le vecteur $\overrightarrow{ST}$ sont déterminés puis les angles entre $\overrightarrow{ST}$ et $\overrightarrow{P_1P_2}$ et entre $\overrightarrow{ST}$ et $\overrightarrow{P_3P_4}$;
5) la direction orthogonale au film photographique est finalement donnée par le produit des vecteurs unitaires de $\overrightarrow{P_1P_2}$ et $\overrightarrow{P_3P_4}$.

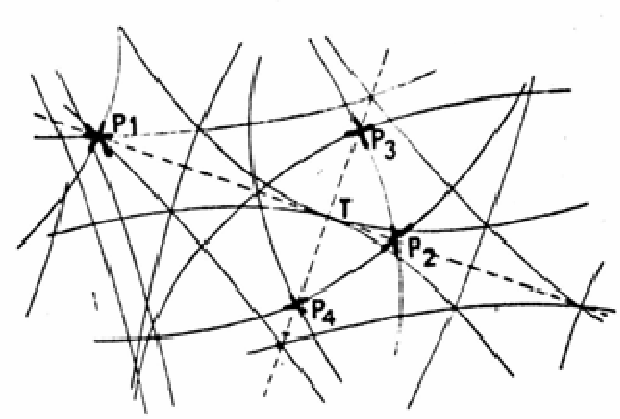


Figure I-36 : Méthode de Pitsch – Définition des points P_i [36]

Bauch et al. [55] ont déterminé la désorientation intergranulaire d'un bicristal de cuivre par une méthode similaire. Pour cela, les deux clichés ont été enregistrés sur des films photographiques puis numérisés. Pour évaluer la différence angulaire de part et d'autre du joint de grains, ils ont comparé la position des quatre points d'intersections des réflexions (220), ($2\bar{2}0$), (202) et ($20\bar{2}$). Un angle de désorientation de 37,55° a été déterminé à 0,15° près (Figure I-37).

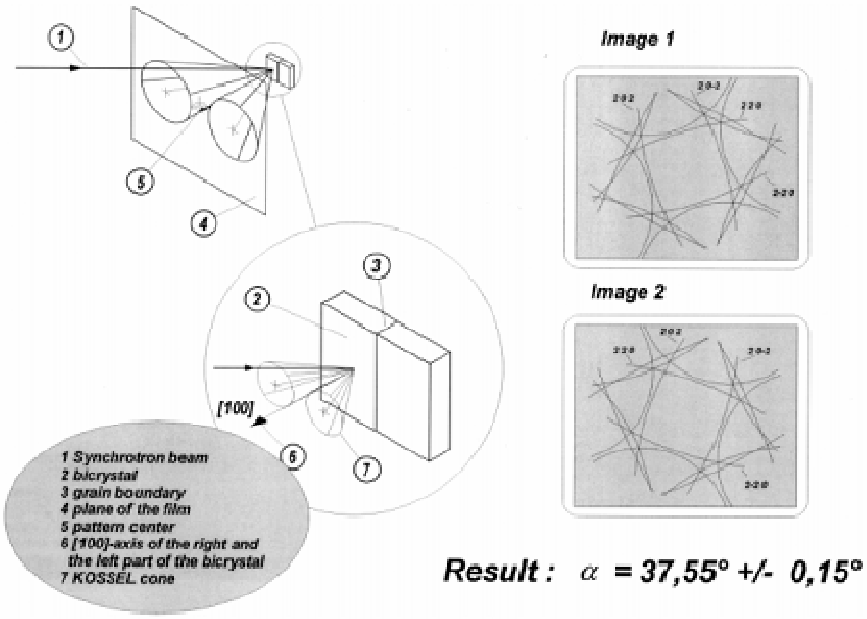


Figure I-37 : Analyse de la désorientation au niveau du joint de grain d'un bicristal de cuivre par diffraction Kossel, avec un rayonnement synchrotron [55]

1.3.3.2 Paramètres de maille

Les positions des lignes de Kossel sont sensibles à l'énergie des particules diffractées et aux paramètres cristallins de l'échantillon. Il suffit donc de connaître la longueur d'onde pour les déterminer. Le matériau excité émet des rayons X avec sa propre longueur d'onde λ. La précision $\Delta\lambda/\lambda$, estimée à 10^{-6}, conduit à une précision dans la détermination du paramètre du maille ($\Delta a/a$) inférieure à 10^{-5} [37, 55]. Cette application est sans nul doute celle qui a été le plus exploitée par les chercheurs. Dans les années 70, les mesures des paramètres de maille à partir des films photographiques donnaient plutôt une précision de 1/25 000 à 1/50 000 [42].

Quand on examine les clichés Kossel expérimentaux, on remarque qu'il existe des intersections entre les lignes qui sont liées à la structure cristallographique du matériau. Une grande partie des méthodes de détermination des paramètres cristallins est basée sur des mesures particulières au niveau de ces intersections.
Des intersections triples peuvent se produire pour une valeur spécifique du rapport entre le paramètre de maille et la longueur d'onde. Ces dernières intersections sont qualifiées d'accidentelles [43]. Dans ce cas, le paramètre de maille peut être déterminé sans connaître le centre de projection ni la distance caméra - échantillon.

Soit h_i k_i l_i les indices de Miller des lignes i se coupant en un point d'intersection accidentel et u,v,w les cosinus directeurs de ce point. On a la relation :

$$\frac{h_i u + k_i v + l_i w}{\left(h_i^2 + k_i^2 + l_i^2\right)^{0,5}} = \cos\left(\frac{\pi}{2} - \theta_i\right) = \sin\left(\theta_i\right) \qquad \text{(I-19)}$$

Pour un cristal cubique, le paramètre de maille a est déduit des relations :

$$a = \frac{\lambda}{2}\frac{\left(h_i^2 + k_i^2 + l_i^2\right)}{\left(h_i u + k_i v + l_i w\right)} \qquad \text{(I-20)}$$

$$u^2 + v^2 + w^2 = 1 \qquad \text{(I-21)}$$

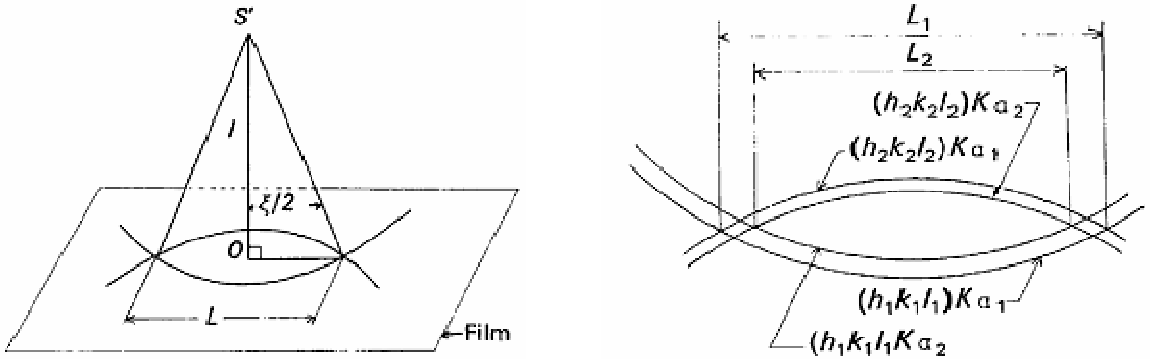
Un désavantage de cette méthode est qu'il faut avoir la chance de repérer un point triple pour pouvoir résoudre l'équation. La précision est théoriquement la même que la précision dans la détermination de la longueur d'onde (de l'ordre de 10^{-6}), mais en pratique, elle est limitée car

les lignes ont une certaine épaisseur. Lonsdale a utilisé cette méthode en 1947 pour déterminer le paramètre de maille d'un cristal de diamant et a estimé la précision à 0,5 10^{-4} Å [58].

Une autre méthode a été développée par Heise [64]. Soient deux lignes de Kossel se coupant dans une configuration en lentille. (Figure I-38 (a)). Si le centre de projection O se situe au centre de la lentille, on a la relation :

$$L = 2l \cdot \tan\frac{\xi}{2} \qquad \text{(I-22)}$$

avec l, la distance entre le point source S' et le film photographique, L la longueur de la lentille et ξ l'angle d'ouverture de la lentille par rapport à S'.



(a) (b)

Figure I-38 : Méthode de Heise [64]

Pour cette méthode, le doublet $K_{\alpha1}$ - $K_{\alpha2}$ doit être résolu (Figure I-38 (b)). On a ainsi :

$$\frac{L_1}{L_2} = \frac{\tan \xi_1/2}{\tan \xi_2/2} \qquad \text{(I-23)}$$

Les valeurs des angles ξ sont déterminées à partir des longueurs d'onde des rayonnements $K_{\alpha1}$ et $K_{\alpha2}$ ainsi que des indices de Miller h, k, l des lignes de Kossel concernées. La valeur du paramètre de maille est ensuite déduite.

Pour obtenir les paramètres cristallins sans connaître le centre de projection, d'autres méthodes basées sur des expositions multiples ont été développées. On peut citer celle mise

au point par Shrier et al. en 1966 [65], qui consiste à placer un grillage entre l'échantillon et le film photographique et à réaliser une double exposition en déplaçant le film d'une valeur donnée. Des coupures dans les courbes de Kossel sont observées à cause du grillage. Les coordonnées de ces coupures sont utilisées dans le calcul des distances interréticulaires. Koishi et Gillies [66], dans les années 70, ont déterminé les paramètres cristallins du talc à l'aide d'analyses en pseudo-Kossel (rayonnement du cuivre) en utilisant cette méthode (Figure I-39). Ce matériau, de structure triclinique, est composé principalement de SiO_2 et de MgO. La diffraction de poudre classique ne leur permettait pas de résoudre les réflexions de faible intensité et les chevauchements de pics ; de plus étudier un monocristal était difficile à mettre en oeuvre à cause de la délicate usinabilité du matériau.

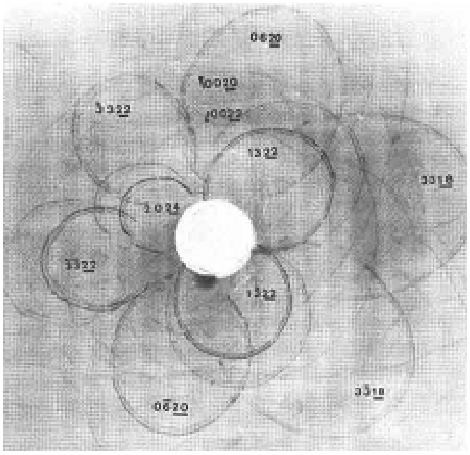


Figure I-39 : Cliché pseudo-Kossel (K_α du cuivre) obtenu en double exposition sur un monocristal de talc [66]

Zhang [47] a déterminé le paramètre de maille d'un monocristal de silicium en utilisant une autre technique. Il a enregistré des clichés pseudo-Kossel en double exposition (deux distances différentes entre le film photographique et l'échantillon) combinée avec une cible munie de deux éléments (Cu et Ni).

D'autres méthodes nécessitant de connaître le point source et le centre de projection ont été développées. L'approche est en fait de déterminer un angle entre des directions cristallographiques connues [42]. Soit A et B deux points d'intersection de lignes de Kossel d'indices de Miller connus. L'angle de vue ω du segment [AB] par rapport au point source S est défini par :

$$\cos\omega = \frac{r_A \cdot r_B \cdot \cos(r_A, r_B) + R^2}{\left((r_A{}^2 + z^2)(r_B{}^2 + z^2)\right)^{0,5}} \quad \text{(I-24)}$$

avec r_A, r_B les distances entre le centre de projection et les points A, B respectivement et R la distance échantillon - caméra. Les cosinus directeurs des vecteurs $\overrightarrow{SA}$ et $\overrightarrow{SB}$ peuvent être déterminés à partir de la formule des produits scalaires. Le paramètre de maille peut ensuite être déduit.

Tixier et Waché ont développé une méthode générale utilisable pour tous les clichés [36]. Dans un premier temps, toutes les directions définies par les intersections de deux lignes de Kossel sont calculées. Ces directions dépendant du paramètre de maille, les cosinus directeurs sont calculés pour une valeur estimée du paramètre de maille a_0 et une seconde valeur égale à a_0+1%. Ceci permet de repérer les intersections les plus sensibles à une variation du paramètre de maille. Celles qui sont les moins sensibles sont utilisées pour la détermination de l'orientation en utilisant la méthode de Pitsch, à partir de la valeur estimée du paramètre de maille a_0. Puis, un calcul du paramètre de maille est réalisé à partir de cette orientation avec deux intersections sensibles jusqu'à obtenir a_1. Un nouveau calcul d'orientation est effectué à partir de a_1, puis un nouveau calcul du paramètre de maille. Cette procédure itérative se poursuit jusqu'à conduire à une détermination de l'orientation et du paramètre de maille optimale.

Langer et al. [67] ont déterminé le paramètre de maille d'un monocristal de fer pur en enregistrant plusieurs clichés à l'aide d'une caméra CCD et en suivant une méthodologie basée sur la détermination des distances entre certains points d'intersection. Pour simplifier les calculs, ils ont aligné le pôle [011] exactement au centre de la caméra. Concrètement, ils ont mesuré deux segments sur les clichés : un segment reliant les points notés 3 (Figure I-40) et un reliant les points 5. Puis, ils ont intégré ces résultats dans le calcul du paramètre de maille a, d'après la formule :

$$\operatorname{arccot}\left(\frac{x_1}{x_2}\frac{\sqrt{2}}{\sqrt{1-\left(2\lambda^2/a^2\right)}}\frac{\lambda}{a}\right) = \frac{\pi}{3} - \arcsin\left(\sqrt{\frac{3}{2}}\frac{\lambda}{a}\right) \quad \text{(I-25)}$$

avec x_1 et x_2 les distances entre les points d'intersections triples et quintuples respectivement et λ la longueur d'onde du fer ($K_{\alpha 1}$).

Ils ont trouvé un paramètre égal à 0,2864 nm ± 0,0005 nm. La Figure I-40 simule une variation du paramètre de maille Δa = 0,001 nm.

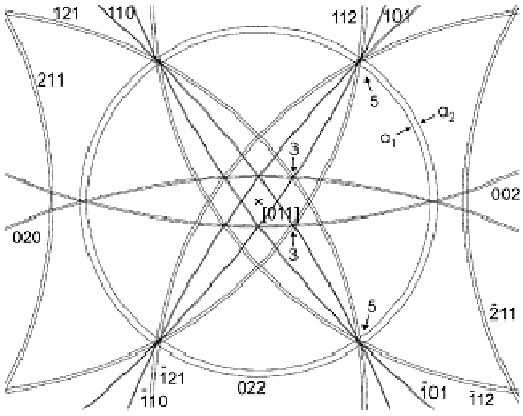


Figure I-40 : Simulation d'une variation de paramètre de maille $\Delta a = a_2 - a_1 = 0{,}001$ nm sur le cliché Kossel d'un monocristal de fer [67]

Les programmes récents qui ont été développés pour l'indexation permettent de prendre en compte dans la simulation les paramètres cristallographiques du matériau. On peut citer par exemple les travaux de Bauch et al. [55]. Ils ont étudié l'influence de la quadraticité sur la position (et ainsi l'intersection) des lignes de Kossel pour des échantillons de FeAl (Figure I-41). Ils se sont basés sur l'analyse des intersections de lignes de Kossel, celles-ci dépendant du paramètre de maille, de la longueur d'onde et aussi de la symétrie du cristal. Ils ont estimé que des déviations par rapport à la symétrie cubique c/a = 1,002 étaient décelables, sur les clichés simulés.

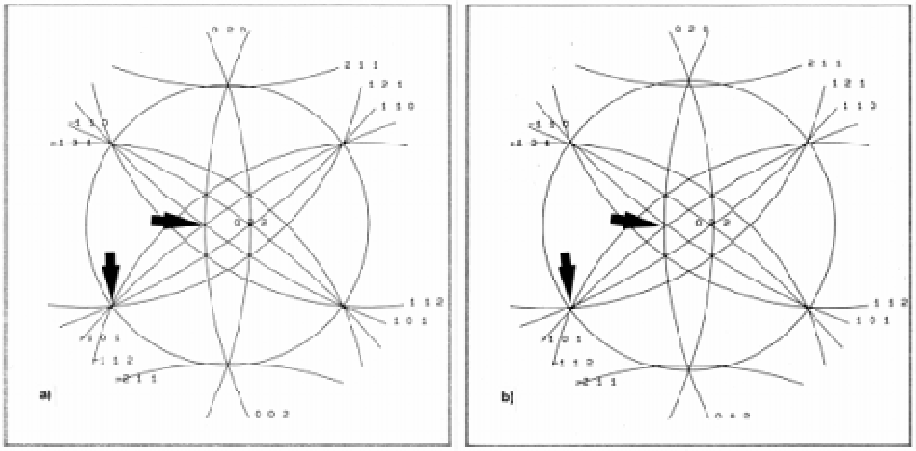


Figure I-41 : Simulation des lignes de Kossel d'un FeAl a) maille cubique b) maille quadratique avec Δc= 0,004 nm [55]

Mendelssohn et Milledge [68] ont quantifié la variation du paramètre de maille en fonction de la température pour des alliages de LiF, en comparant les clichés expérimentaux avec des clichés simulés par un programme. Une augmentation linéaire du paramètre de maille en fonction de l'élévation de température a été vérifiée. Les coefficients d'expansion thermique ont pu ainsi être déduits.

1.3.4 Estimation des défauts internes

Comme pour les techniques de diffraction classiques, la largeur des lignes de Kossel donne une information sur la quantité des défauts internes, sur l'écrouissage du matériau. Cette application a été très peu exploitée du fait de la faible intensité des lignes de Kossel. On peut citer les travaux d'Erben et al. [69], qui ont analysé les élargissements des lignes de Kossel aux alentours d'une fissure sur un échantillon de GaP. Les largeurs à mi-hauteur (FWHM) et les intensités intégrales (aires sous les pics) ont été comparées pour deux réflexions {111}. Les valeurs de ces deux paramètres sont divisées par deux quand on s'éloigne de la fissure (de 10 à 100 µm).

1.3.5 Mesure des déformations du réseau

Malgré l'ancienneté de cette technique, elle reste très peu exploitée pour la mesure des déformations locales, essentiellement à cause de la difficulté que pose le traitement numérique des images associée à une faible intensité des lignes de Kossel. Les premiers travaux aboutissant à des mesures de déformations semblent être ceux de Dingley [35], repris ensuite par Cunningham et Ashbee [70] (cf 1.3.5.1). A partir des années 2000, à notre connaissance, les analyses de déformations par diffraction Kossel n'ont été menées que par des chercheurs basés à Dresde (cf 1.3.5.2) et amorcées par des personnes de notre laboratoire (cf 1.3.5.3).

1.3.5.1 Travaux de Dingley puis de Cunningham et Ashbee

Dingley a obtenu des clichés Kossel en réflexion sur un polycristal de fer ayant subi un recuit [35]. Le centre de projection et la distance caméra - échantillon ont été définis en utilisant la méthode des ombrages du film photographique avec trois roulements à billes. Les distances interréticulaires de six plans réflecteurs ont été déterminées à partir des mesures des cosinus directeurs de trois points par ligne de Kossel, et un tenseur de déformation élastique a pu ainsi être déduit (Figure I-42).

Table 3

Lattice spacing measurements for annealed polycrystalline iron specimen

lattice reflection	lattice spacing	standard deviation
202	1.0088	.00096
$12\bar{1}$	1.1512	.00036
211	1.1562	.001
220	1.0120	.00016
$11\bar{2}$	1.1529	.0015
$20\bar{2}$	1.0088	.00032

Strain tensor for annealed polycrystalline iron computed from Table 3

$$\begin{matrix} \epsilon_{11} & \epsilon_{12} & \epsilon_{13} \\ \epsilon_{12} & \epsilon_{22} & \epsilon_{23} \\ \epsilon_{13} & \epsilon_{23} & \epsilon_{33} \end{matrix} = \begin{matrix} 1.5316 & 3.2274 & 0.0079 \\ 3.2274 & -5.0403 & -0.4843 \\ 0.0079 & -0.4843 & -2.4370 \end{matrix}$$

Figure I-42 : Distances interréticulaires et tenseur de déformation obtenus par Dingley pour un grain d'un polycristal de fer recuit [35]

Cunningham et Ashbee [70] ont réalisé des clichés de diffraction Kossel lors d'essais de déformations *in situ* sur des échantillons en alliage à mémoire de forme CuAlNi. Le matériau non contraint est à température ambiante purement austénitique (structure $D0_3$). Sous l'effet d'une contrainte, après le domaine d'élasticité de l'austénite, le matériau se transforme en martensite (structure 9R). Le montage conçu spécialement à cet effet permet, à l'intérieur du MEB, de déformer un disque monocristallin de forme initiale plane vers une forme sphérique. La déformation est interrompue à intervalles donnés de manière à enregistrer des clichés de Kossel (sur des films photographiques). A partir de ces derniers, le changement de cristallographie du matériau au cours de la déformation a pu être observé et les déformations du réseau ont été déterminées à partir du calcul des distances interréticulaires de six plans (hkl) indépendants, avec l'aide d'un programme développé par Dingley. Les incertitudes n'ont donc pas pu être estimées.

1.3.5.2 Travaux de l'Université de Technologie de Dresde

Des travaux ont été publiés dans les années 2000 par l'équipe d'Ullrich, à Dresde en Allemagne. Leur méthode consiste à déterminer les distances interréticulaires d_{hkl} de chaque plan cristallin à partir de la position des lignes de Kossel par rapport au centre de projection gnomonique. Une résolution en déformation de 10^{-5} à 10^{-6} est estimée [56, 71, 72]. Les contraintes sont calculées à partir des déformations en utilisant les constantes d'élasticité du cristal.

La Figure I-43 représente deux cônes de Kossel, correspondant à la diffraction des plans (h_1 k_1 l_1) et (h_2 k_2 l_2), projetés sur un écran, et permet de visualiser le centre de la projection gnomonique de coordonnées (x_K,y_K,z_K), les angles α_i, β_i et θ_i, les distances R (entre la surface de l'échantillon et l'écran) et r_i (entre le centre de projection et la courbe de Kossel n°i).

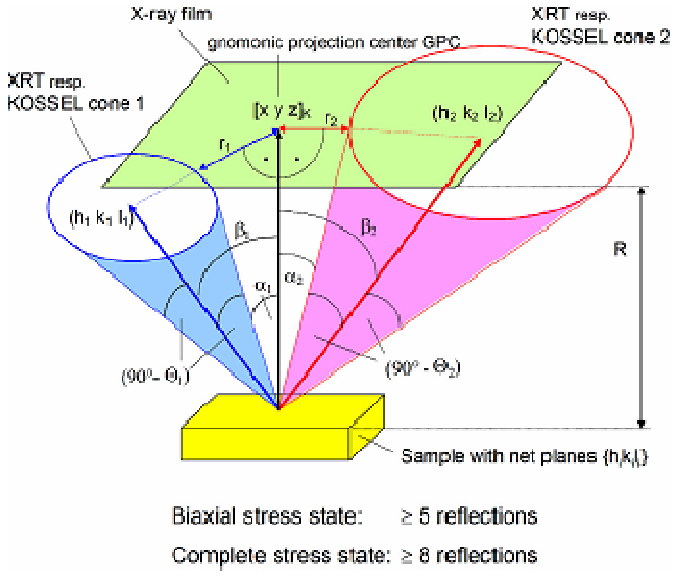


Figure I-43 : Principe de localisation des cônes de Kossel par rapport au centre de la projection gnomonique [72]

La Figure I-44 présente les étapes de la procédure utilisée pour l'obtention du tenseur de contraintes. Les paramètres d'entrée du logiciel connus ou mesurés sont la longueur d'onde du rayonnement, le paramètre de maille sans contrainte, les constantes d'élasticité du cristal et les mesures des distances R et r_i. Le programme utilise une procédure itérative pour la détermination des coordonnées du centre de projection. Elles sont supposées connues au début du calcul et seront réajustées au cours du calcul en se basant sur une minimisation de

l'incertitude finale des contraintes. Les distances r_i sont mesurées à partir du cliché expérimental en réalisant des analyses de profil des lignes.

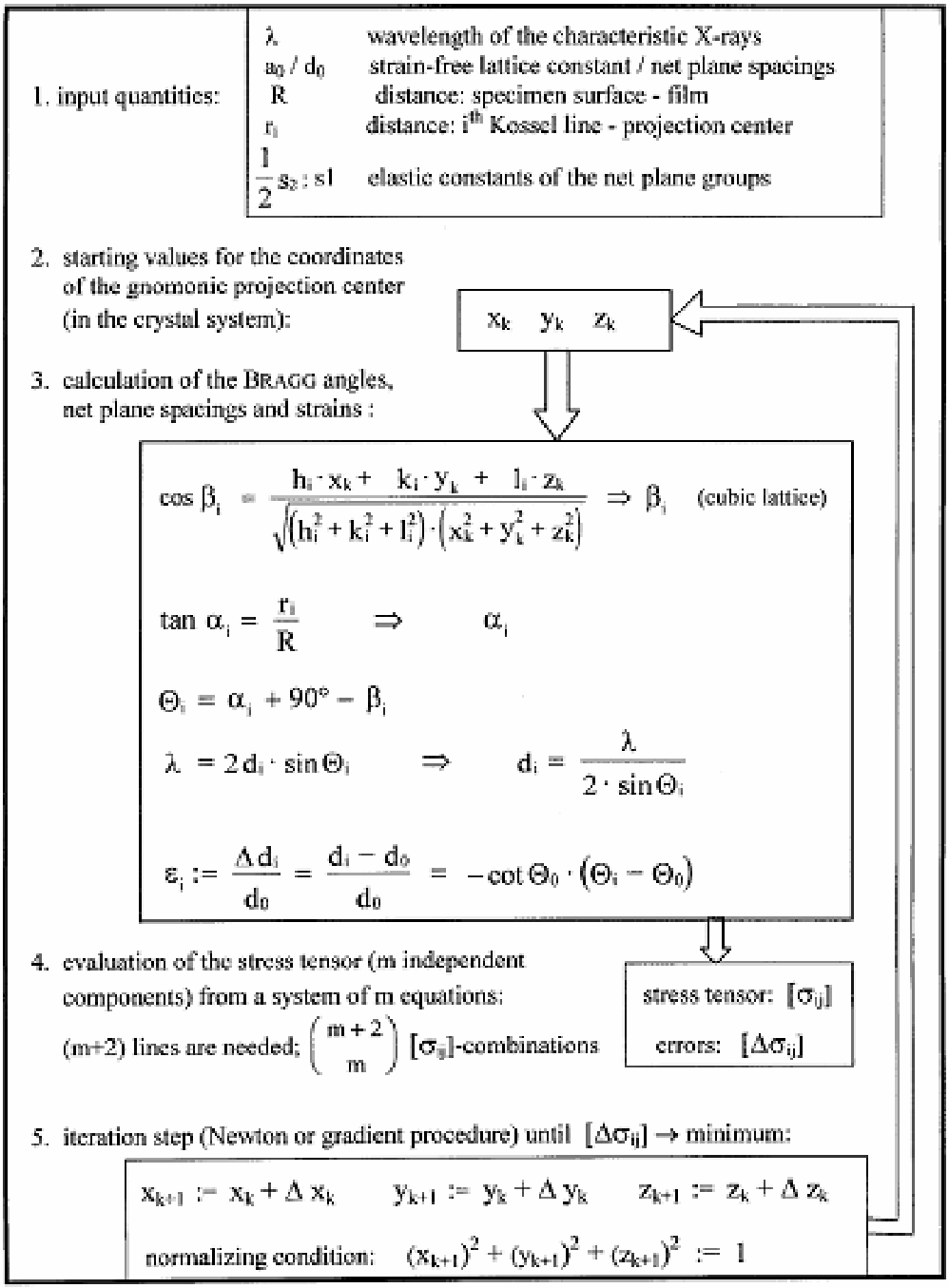


Figure I-44 : Diagramme représentant la procédure utilisée pour l'analyse des contraintes [71]

La Figure I-44 présente les formules utilisées pour le calcul des angles de Bragg θ_i à partir des coordonnées du centre de projection (x_K,y_K,z_K), de R et r_i. Les distances interréticulaires d_i sont déterminées à partir de la loi de Bragg. Les déformations élastiques ε_i sont ensuite

définies comme une variation de la distance interréticulaire, Δd_i, par rapport à la distance interréticulaire à contrainte nulle d_0. Le tenseur des contraintes est obtenu à partir de la loi de Hooke. Pour obtenir l'état de contraintes biaxial, cinq réflexions au minimum sont nécessaires. Pour obtenir l'état de contraintes triaxial, huit réflexions au minimum sont nécessaires [71].

Cette méthode a été utilisée pour déterminer le tenseur biaxial des contraintes au sein d'un grain d'un multicristal de $CuMn_4$ sollicité auparavant en fatigue (Figure I-45), à partir d'un faisceau de rayonnement synchrotron d'environ 50 µm de diamètre [37, 55, 71, 72]. Ils ont utilisé l'hypothèse de faible pénétration des rayons X dans la matière pour négliger les termes σ_{13}, σ_{23} et σ_{33}. Ils ont comparé avec les résultats obtenus en diffraction monocristalline conventionnelle au synchrotron et ont conclu à un excellent accord [72]. Par contre aucun essai de validation n'a été effectué, à notre connaissance, sur un matériau subissant un chargement mécanique *in situ*.

$$\left\{\begin{pmatrix} -18 & -13 & 0 \\ -13 & -25 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \pm \begin{pmatrix} 8 & 2 & - \\ 2 & 9 & - \\ - & - & - \end{pmatrix}\right\} \text{MPa}$$

Figure I-45 : Tenseur biaxial des contraintes d'un cristal de $CuMn_4$ déterminé par diffraction Kossel

Un deuxième algorithme a été développé en 2004 par Bauch et al. [72]. Il est applicable à tous les systèmes cristallins. Le tenseur des contraintes peut être obtenu à partir d'au moins trois réflexions. La procédure complète est représentée sur la Figure I-46.

Tout d'abord, les coordonnées d'un certain nombre de points par réflexion (au minimum trois), nommés p_i, ainsi que les coordonnées du centre de projection gnomonique sont déterminées à partir du cliché expérimental (Figure I-47). Il faut noter que le cliché choisi en exemple a été obtenu par une technique différente de la microdiffraction Kossel. Cette technique, nommée par les auteurs "X-Ray Rotation-Tilt-Method", est utilisée dans un goniomètre de diffraction et aboutit à des clichés ayant un excellent rapport intensité/bruit (de l'ordre de 98 %) ; mais la taille de spot est supérieure à 100 µm et les temps d'exposition sont de l'ordre de plusieurs heures voire plusieurs jours [73, 74].

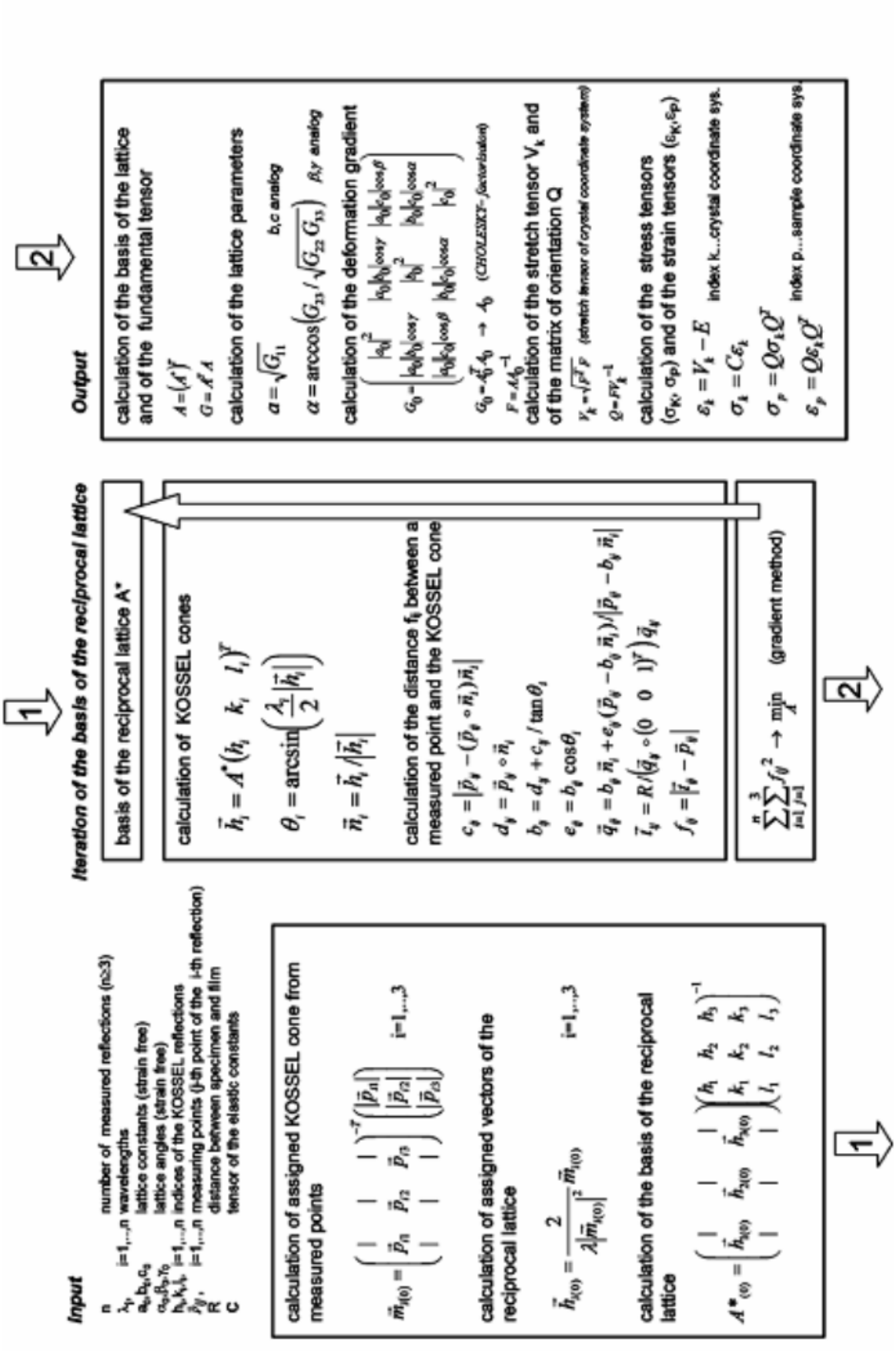


Figure I-46 : Diagramme présentant l'algorithme développé par Bauch et al. [72] pour la détermination des contraintes à partir des clichés Kossel

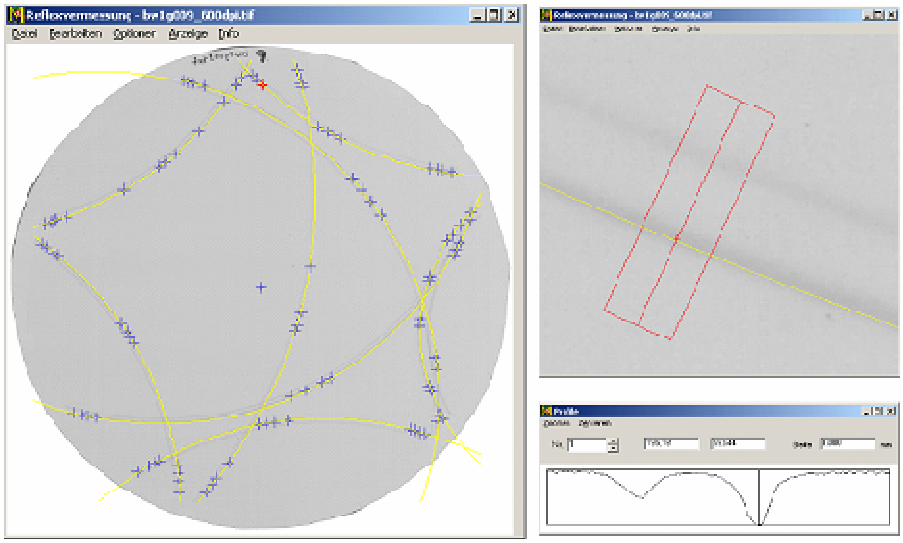


Figure I-47 : Copie d'écran du logiciel "Reflection measurement" incluant les points de mesures (croix), les réflexions simulées passant par ces points et un profil de ligne (à droite) permettant de positionner les points [72]

A partir des coordonnées des points p_i et du centre de projection, le sommet du cône correspondant à la réflexion considérée est déterminé, en supposant la distance caméra - échantillon connue. Pour caractériser un cône, trois paramètres doivent être déterminés (un paramètre pour l'angle au sommet et deux pour définir la direction de l'axe). Pour cela, ils ont introduit la notion de « vecteur cône » (Figure I-48). C'est un vecteur parallèle à l'axe du cône et de longueur égale à $1/\cos\left(\frac{\pi}{2}-\theta\right)$ avec $\left(\frac{\pi}{2}-\theta\right)$ le demi-angle au sommet du cône [72].

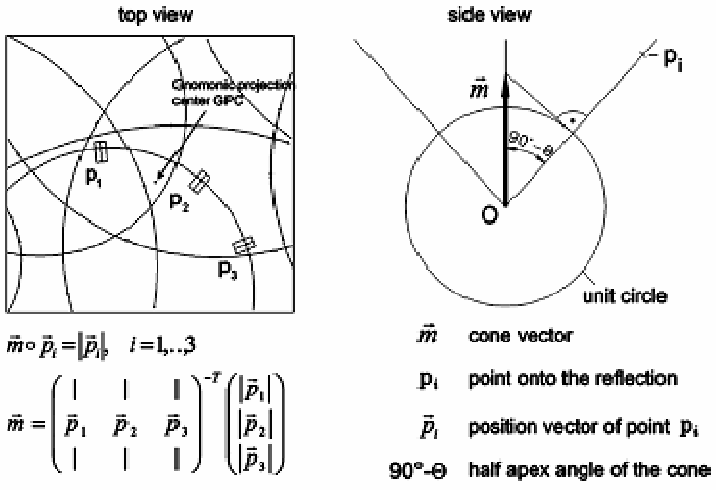


Figure I-48 : Schéma présentant la notion de « vecteur cône » [72]

A partir des vecteurs cônes, ils calculent ensuite les vecteurs du réseau réciproque, puis une matrice A* contenant les paramètres de maille et l'orientation du cristal. Enfin, à partir des mesures de distances f_{ij} entre les points p_{ij} (état déformé) et les réflexions Kossel simulées correspondantes (état non déformé), ils déterminent le tenseur de déformation dans la base du cristal (Figure I-46).

Récemment, Böhling et al. [56, 75] ont déterminé les états de contraintes dans des composants en $FeSi_3$ par microdiffraction Kossel, en utilisant cette procédure. Ils ont étudié la variation des niveaux de contrainte en se rapprochant d'une zone affectée par un échauffement local par laser. Pour cela, des cartographies en contraintes résiduelles ont été réalisées dans des grains de tailles millimétriques, avec des pas de 50 µm dans une direction et 120 µm dans la direction perpendiculaire (Figure I-49).

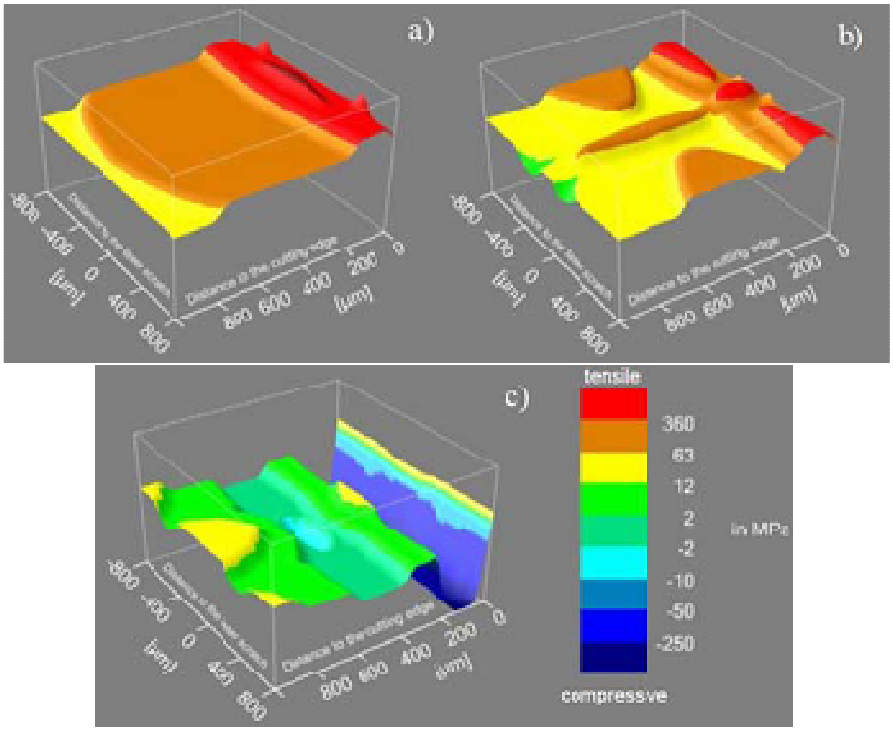


Figure I-49 : Cartographie de contraintes résiduelles en surface d'une tôle découpée laser, à proximité d'un défaut. Etat biaxial : a) σ_x, b) σ_y, c) τ_{xy} [75]

Ils ont choisi de négliger les termes σ_{13}, σ_{23} et σ_{33}. On remarque que le niveau de contraintes résiduelles augmente en s'approchant de la zone affectée par le laser. La Figure I-50 présente un exemple de cliché Kossel obtenu et une simulation associée. Cette étude représente la toute première cartographie en contraintes réalisée à partir de la microdiffraction Kossel.

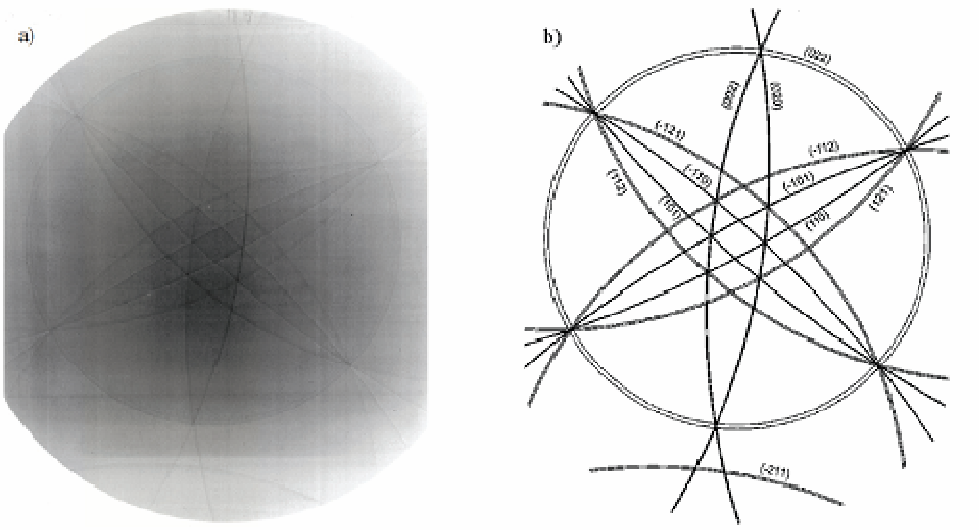
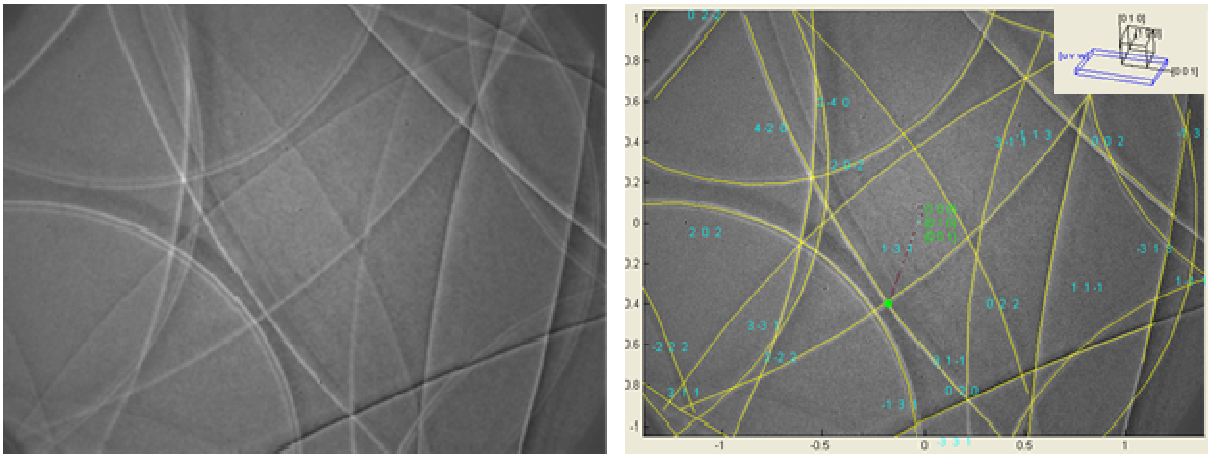


Figure I-50 : a) Cliché Kossel obtenu sur un composant en $FeSi_3$, b) la simulation associée [56]

1.3.5.3 Etat actuel à Metz

Après avoir débuté l'étude de cette technique par l'enregistrement de clichés de diffraction Kossel sur des films photographiques, le laboratoire a fait l'acquisition d'une caméra CCD en 2003. Ses caractéristiques seront détaillées dans le chapitre 2. Ainsi, des clichés numériques ont pu être obtenus sur différents matériaux comme des aciers ou des alliages à base cuivre [76]. Cela a permis d'estimer les temps d'acquisition nécessaires à l'observation des lignes de Kossel (de l'ordre de 10 minutes pour un seul cliché), de percevoir les limitations du système actuel et de réfléchir à son amélioration.

Pour l'analyse des clichés, un programme a été développé sur Matlab. Il permet de simuler les clichés de diffraction en prenant en compte la distance entre l'échantillon et la caméra, la longueur d'onde des rayons X et la structure cristalline du matériau [76, 77]. La méthode consiste à superposer manuellement les clichés simulés et expérimentaux et aboutir ainsi à l'orientation du cristal et à l'indexation des lignes de Kossel (Figure I-51).



(a) (b)

Figure I-51 : (a) Cliché Kossel obtenu sur un monocristal de cuivre, (b) Superposition du cliché expérimental et de la simulation associée [77]

Chaque ligne de Kossel étant clairement identifiée par les indices de Miller du plan diffractant associé, une étude a été menée pour identifier quelles lignes se déplaçaient le plus, et de combien de pixels, quand une contrainte était imposée au matériau. L'analyse a été effectuée sur un alliage à mémoire de forme de type CuAlBe soumis à un chargement mécanique *in situ* dans le MEB [76,77]. La Figure I-52 présente une superposition des clichés expérimentaux obtenus sans chargement mécanique et avec l'application d'une contrainte d'environ 125 MPa. Un déplacement important des lignes est visible, surtout pour les lignes de forts indices de Miller (plusieurs dizaines de pixels), mais soulignons le fait que l'orientation du réseau cristallin peut évoluer au cours du chargement et induire un déplacement des lignes. Il est donc nécessaire de disposer d'un programme d'analyse des clichés prenant en compte à la fois l'orientation cristallographique du réseau (déplacement collectif des lignes) et les déformations de celui-ci (déplacements individuels des lignes).

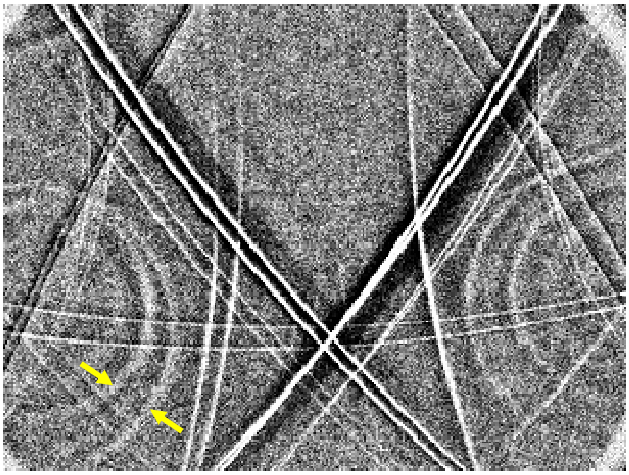


Figure I-52 : Déplacement des lignes de Kossel lors de l'application d'une contrainte de 125 MPa sur un alliage de CuAlBe [77]

1.4 Bilan

Cette étude bibliographique a permis de montrer que la technique de microdiffraction Kossel, bien que connue et maîtrisée depuis plusieurs dizaines d'années, a principalement été utilisée pour la détermination du paramètre de maille mais très peu pour les champs de déformations / contraintes. A notre connaissance, les seules analyses réalisées à ce jour ont concerné des monocristaux ou des polycristaux à grains millimétriques.

Pourtant, le développement des détecteurs numériques a permis de simplifier le post-traitement des données. Le travail fastidieux qui consistait à mesurer manuellement des distances entre les points d'intersections des lignes de Kossel sur les films photographiques est désormais révolu.

Cette technique a commencé à être développée au laboratoire en 2003. Nos travaux visent à poursuivre son développement dans le but d'obtenir des résultats de champs de déformations / contraintes à des échelles microniques, c'est-à-dire des échelles qui n'ont jamais été atteintes.

Chapitre 2 : Méthodologie pour l’acquisition des diagrammes de Kossel

Dans ce chapitre, nous présentons la méthodologie utilisée pour l'acquisition des clichés de microdiffraction Kossel. Dans cet objectif, de nombreux paramètres ont été optimisés comme les spécificités de la caméra CCD intégrée au microscope électronique à balayage, le positionnement de l'échantillon par rapport au faisceau et les paramètres d'acquisition lors de la collection des diagrammes. Enfin, la résolution spatiale de la technique est discutée.

2.1 Montage expérimental permettant d'acquérir des clichés de diffraction Kossel

L'outil indispensable pour étudier des échantillons cristallins par la technique de microdiffraction Kossel est le Microscope Electronique à Balayage (MEB). En effet, le faisceau d'électrons focalisé à la surface du matériau permet de générer localement des cônes de Kossel tout en visualisant la microstructure. Les états de déformation peuvent ainsi être déterminés dans des zones d'intérêt telles que des grains ou des phases particulières, des composants de la microélectronique, à proximité d'un joint de grains ou d'une fissure…. Les cônes de Kossel réémis par le matériau sont interceptés par une caméra CCD. Les caractéristiques de cette dernière doivent donc être finement choisies avant son adaptation mécanique et électronique au sein du MEB. Un des principaux avantages de cette technique est qu'une fois la zone sélectionnée par l'opérateur, les clichés Kossel sont enregistrés numériquement sans déplacement ni de l'échantillon ni du détecteur.

2.1.1 Utilisation d'un microscope électronique à balayage

La microscopie électronique à balayage repose sur l'utilisation d'un faisceau d'électrons focalisés qui balaie la surface d'un échantillon. Lors de l'interaction électrons - matière, de nombreuses particules sont émises et permettent d'obtenir des images de la surface ou des informations chimiques : les électrons secondaires révèlent la topographie de surface, les électrons rétrodiffusés contiennent des informations sur la composition et l'orientation, les rayons X émis sont collectés pour des analyses chimiques ou utilisés pour la microdiffraction Kossel.

Au cours de ces travaux de thèse, un microscope électronique JEOL-5800LV (Figure II-1) a été utilisé. A l'intérieur du canon, les électrons sont produits par effet thermoélectronique à partir d'un filament de tungstène porté à haute température, puis sont accélérés par la différence de potentiel créé entre le Wehnelt et une anode. Le filament de tungstène (en forme d'épingle à cheveux afin de localiser l'émission par effet de pointe pour obtenir une source plus ponctuelle et plus brillante) peut être remplacé par une pointe taillée dans un monocristal de LaB_6 qui possède un meilleur rendement thermoélectronique. Dans les instruments les plus récents, les électrons sont émis par effet de champ (MEB-FEG) : on utilise une pointe métallique très effilée, dont l'extrémité ne comporte que quelques atomes. Le champ électrique local, extrêmement intense car lié à l'inverse du rayon de courbure, est suffisant pour extraire les électrons avec un fort rendement (brillance) à partir d'une surface très faible (ponctualité de la source), permettant un gain considérable sur les performances de l'instrument.

Dans la colonne électronique, deux lentilles électromagnétiques (ou condenseurs) permettent de réduire la taille de la source appelée 'cross-over', et une troisième permet de focaliser la sonde sur la cible.

Les rayons X réémis par le matériau peuvent être collectés par un spectromètre à dispersion d'énergie (EDS) pour réaliser des analyses de composition chimique.

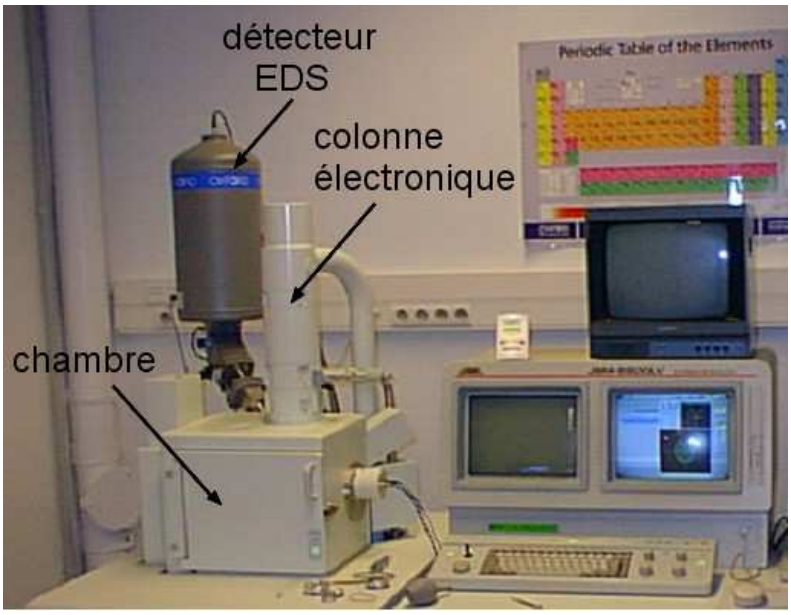


Figure II-1 : Microscope JEOL-5800LV

2.1.2 Utilisation d'une caméra CCD

2.1.2.1 Fonctionnement d'un capteur CCD

La détection par CCD (Charge-Coupled Device ou dispositif par transfert de charge) est la technologie la plus compétitive à l'heure actuelle. Elle est également utilisée pour l'enregistrement des clichés EBSD ou de diffraction Laue.

Un capteur CCD assure la conversion d'un signal lumineux en un signal électrique. Il est composé d'un certain nombre de pixels (ou photosites) disposés de manière matricielle suivant des lignes et des colonnes. Chaque pixel de la matrice correspond à un élément semi-conducteur en sandwich dans un condensateur électrique. Quand un photon incident apporte à un électron du matériau semi-conducteur l'énergie nécessaire pour franchir un seuil énergétique, des paires électron - trou sont créées et les électrons sont stockés dans un puits de potentiel maintenu au niveau du photosite. Le nombre d'électrons collectés est proportionnel à la quantité de rayonnement reçue. A la fin de l'exposition, les charges sont transférées de photosite en photosite jusqu'au registre horizontal, puis transformées en tension. Ce signal sera enfin numérisé à l'extérieur du CCD [78]. Ces capteurs ont été très largement développés pour les applications grand public d'imagerie, les équipements optroniques de défense et l'astronomie.

2.1.2.2 Critères de choix d'une caméra CCD

Différents critères conditionnent le choix d'une caméra CCD pour des applications d'imagerie par rayons X dans un MEB :

- Installation dans un MEB

Compte tenu de l'encombrement des caméras, la technologie actuellement développée est la suivante : un système de fibres optiques contenu dans un tube permet de transmettre les informations détectées par un écran situé à l'intérieur de la chambre vers le capteur CCD situé à l'extérieur. Un système de pilotage doit permettre à l'écran de translater horizontalement à l'intérieur de la chambre pour se rapprocher de l'échantillon lors des essais et se retirer totalement quand le microscope est utilisé dans d'autres circonstances. Considérant la masse

de la caméra et de la platine de translation, le montage doit pouvoir être étanche au vide imposé dans la chambre au cours des déplacements.
Il est intéressant de pouvoir s'approcher au maximum de l'échantillon à analyser, afin d'intercepter un maximum d'angle solide. La taille des écrans est de l'ordre de 40 mm. Le champ utile de la zone photosensible doit être le plus vaste possible pour une taille d'écran donnée.

- Temps d'intégration

Compte tenu du faible rapport signal sur bruit inhérent à la technique, il est nécessaire de pouvoir faire plusieurs expositions pour l'acquisition d'un cliché, chacune durant de plusieurs secondes à plusieurs minutes. Ainsi, la vitesse d'acquisition et de transfert des données n'est pour l'instant pas un élément primordial, contrairement aux analyses EBSD où des centaines de clichés peuvent être obtenus en une seconde.

- Résolution

La résolution spatiale de la caméra est définie par le nombre de pixels du capteur. Les capteurs CCD du marché ont généralement une résolution de l'ordre de 1 000 x 1 000, soit 1 mégapixel.

- Dynamique

La quantité de lumière reçue pour chaque pixel est transformée en une valeur numérique discrète par un convertisseur analogique/digital. La dynamique du convertisseur correspond à sa plage de travail et c'est généralement une puissance de deux. Les dynamiques d'acquisition courantes des caméras sont de 8 à 12 bits, c'est-à-dire qu'elles génèrent des valeurs numériques discrètes sur une gamme de 2^8=256 niveaux de gris à 2^{12}= 4 096 niveaux de gris.

- Refroidissement

Les temps d'exposition étant relativement longs, supérieurs à la seconde en général, il est important de disposer d'une caméra refroidie par effet Peltier afin de limiter le bruit thermique.

Une caméra appelée 'Gemstar', de chez Photonic Science Ltd intégrable au MEB, avait été acquise en 2003 pour enregistrer numériquement des clichés de diffraction Kossel. Par rapport aux caméras CCD actuelles utilisées pour des acquisitions EBSD, ses performances sont

excellentes. Par contre, pour des analyses en microdiffraction Kossel, des améliorations pouvaient être apportées. Un financement de l'Agence Nationale de la Recherche (ANR-PNANO-07-029), de la région Lorraine et du pôle de compétitivité Materalia nous a permis l'achat d'une nouvelle caméra. Certaines caractéristiques-clefs permettant d'améliorer les acquisitions ont été mises en avant dans le cahier des charges. Elles ne seront pas abordées dans ce manuscrit. La Figure II-2 présente des photos de ces deux caméras.

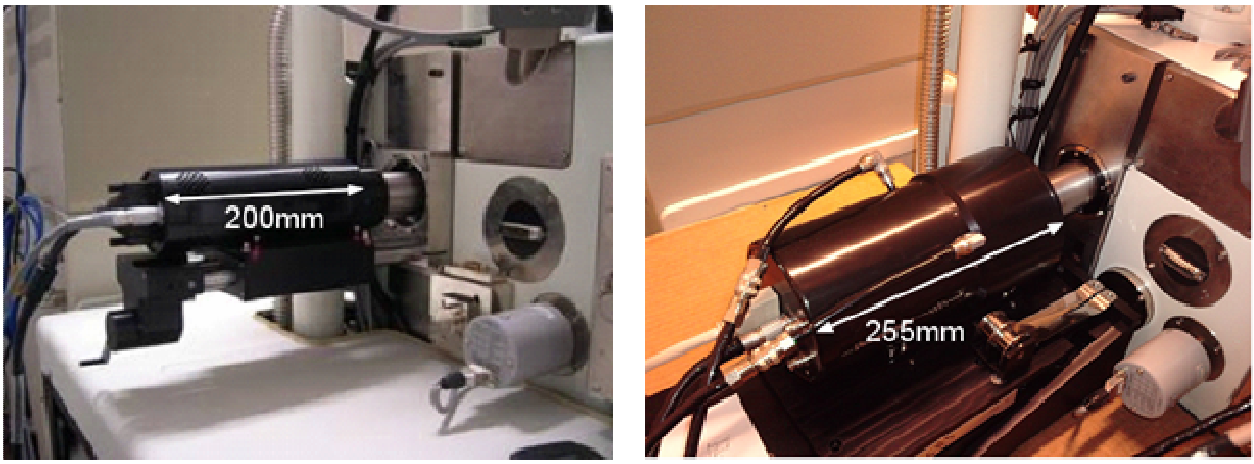


Figure II-2 : Vue des caméras 'Gemstar' et 'VHR' depuis l'arrière du MEB

2.1.2.3 Evolutions possibles des caméras

Des caméras permettant de sélectionner une gamme d'énergie commencent à être développées, mais la résolution n'est pas encore suffisante (512x512 pixels de 55 à 130 micromètres) et leur coût est pour le moment assez prohibitif (supérieur à 100 000 euros).

Une autre technologie consiste à réaliser une détection directe (sans passer par un dépôt en phosphore et des fibres optiques). On pourrait ainsi placer une caméra entièrement dans la chambre du MEB. Pour l'instant la dynamique de comptage est insuffisante (inférieure à 8 bits). L'autre difficulté est la mise sous vide d'un tel détecteur dans un espace réduit.

2.2 Procédure de collection des clichés Kossel

2.2.1 Positionnement de l'échantillon

Pour obtenir des diagrammes EBSD se détachant nettement du fond continu, il est nécessaire d'incliner l'échantillon à 70°. On favorise ainsi une source d'électrons monocinétique isotrope, s'échappant d'une faible profondeur [80]. Par contre, en diffraction Kossel, les rayons X sont émis par le matériau de manière isotrope : des clichés peuvent donc être enregistrés quels que soient le tilt et la distance de travail WD (Figure II-3). La distance de travail correspond à la distance entre la lentille objectif et la surface du matériau d'étude. Plus la distance de travail est courte, meilleure est la résolution spatiale et inversement plus elle est grande meilleure est la profondeur de champ, pour l'imagerie en électrons secondaires. En faisant varier ces deux paramètres, les lignes interceptées par la caméra seront tout simplement différentes (Figure II-4), car la caméra 'verra' deux parties distinctes de la demi sphère de réémission des rayons X. Des analyses multi clichés (différentes inclinaisons de l'échantillon par exemple) peuvent être envisagées dans le cas d'un trop faible nombre de lignes détectées en une seule acquisition.

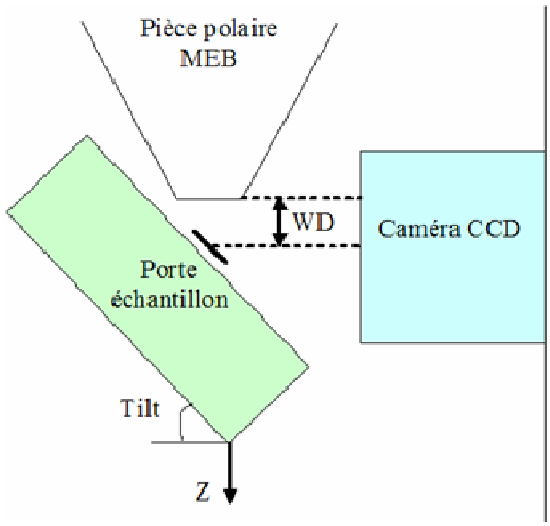


Figure II-3 : Représentation schématique du positionnement de l'échantillon par rapport à la caméra CCD à l'intérieur de la chambre du MEB (WD : distance de travail)

Le centre de la caméra CCD est situé à une distance Z=18 mm de la pièce polaire (Figure II-3). Pour les faibles tilts, il est donc important de ne pas masquer tout ou une partie de la caméra CCD afin de visualiser l'ensemble du cliché acquis. Une distance de travail supérieure à 30 mm doit par exemple être choisie pour un tilt nul. Les essais ont le plus souvent été réalisés en inclinant l'échantillon de 30 à 50° permettant de travailler à une distance de travail de l'ordre de 15 à 20 mm. En effet, le contraste des clichés est meilleur pour les tilts intermédiaires du fait de l'éclairage plus uniforme de la caméra. Ce point sera détaillé au chapitre suivant. Un tilt supérieur à 50° n'est pas conseillé, même si on obtient des clichés, car la résolution spatiale à la surface de l'échantillon est moins bonne.

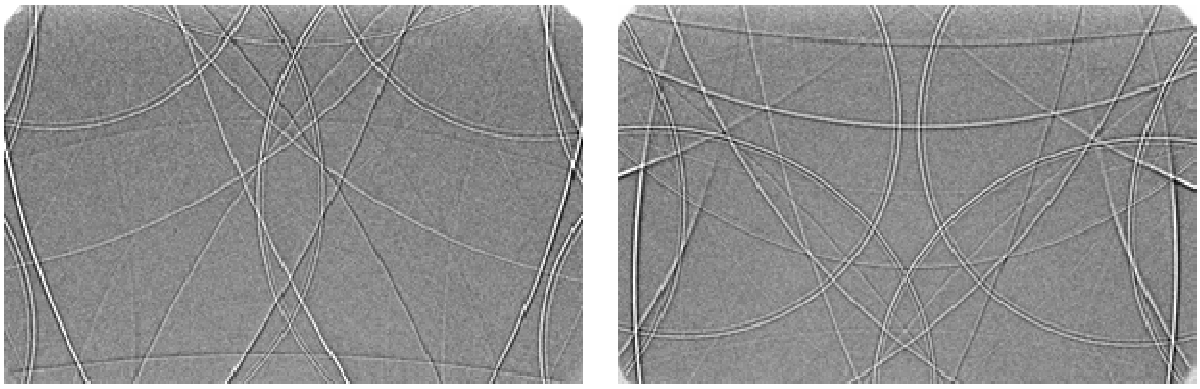


Figure II-4 : Clichés Kossel obtenus pour deux positionnements différents (tilt et Z) de l'échantillon sur le porte-échantillon du MEB

Plusieurs campagnes d'essais ont également été réalisées avec une micromachine de traction *in situ* équipée d'un capteur de force de 5 kN et d'un capteur de déplacement permettant de réaliser des sollicitations en traction uniaxiale sur des éprouvettes plates, et ainsi, de suivre *in situ* le niveau de contraintes intragranulaires et intergranulaires lors de différents chargements (Figure II-5). Cette micromachine peut être intégrée dans la chambre du MEB. Du fait de son encombrement, il est préférable de remplacer le porte-échantillon traditionnel en laiton par une pièce d'adaptation spécialement élaborée, de maximiser l'espacement entre la pièce polaire et l'échantillon et d'incliner la machine à 40° pour éviter de masquer la caméra par les vis sans fin de la micromachine. La distance de travail dépend ensuite de l'épaisseur de l'éprouvette testée.

La caméra est munie d'un banc de translation motorisé qui permet d'approcher l'écran de l'échantillon et de le retirer quand le microscope est utilisé pour d'autres applications.

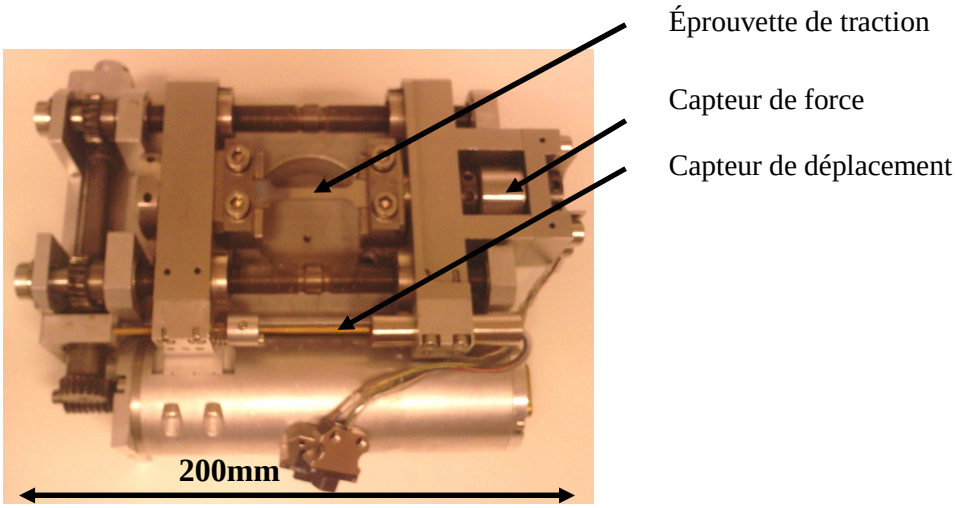


Figure II-5 : Micromachine de sollicitation en traction uniaxiale pouvant être intégrée au MEB (fabricant : Kammrath et Weiss)

2.2.2 Choix de la distance caméra - échantillon

D'après Kossel [32] puis Böhling [56], si la distance r entre la caméra et l'échantillon croît, l'intensité du signal décroît en 1/r et l'intensité du bruit en $1/r^2$. La microdiffraction Kossel a la particularité de présenter un rapport signal sur bruit très faible (de l'ordre de 2 % [37]). Pour optimiser le rapport signal sur bruit, il faudrait donc travailler à des distances caméra - échantillon élevées.

Cependant, certaines limitations vont alors apparaître :

- ✓ tout d'abord, plus on va éloigner la caméra, plus les temps d'acquisition vont augmenter ;
- ✓ d'autre part, on va également modifier dans ce cas l'angle solide et donc limiter progressivement le nombre de lignes de Kossel par cliché.

Une étude complète a par conséquent été effectuée afin d'estimer le lien entre le temps d'exposition, l'avancée de la caméra, le nombre de lignes par clichés et la qualité de ces derniers. Pour cela, une série de clichés a été collectée sur un monocristal de cuivre, en faisant varier la distance caméra - échantillon (Figure II-6).

On remarque visuellement que la qualité des clichés ne dépend pas de la distance, contrairement au postulat de Kossel [32] et Böhling [56]. Quand on éloigne la caméra, les lignes de Kossel sont décrites par un nombre plus important de pixels (meilleure résolution spectrale) mais on intercepte moins de lignes. On a également remarqué que le temps d'exposition diminuait linéairement avec la réduction de la distance caméra - échantillon.

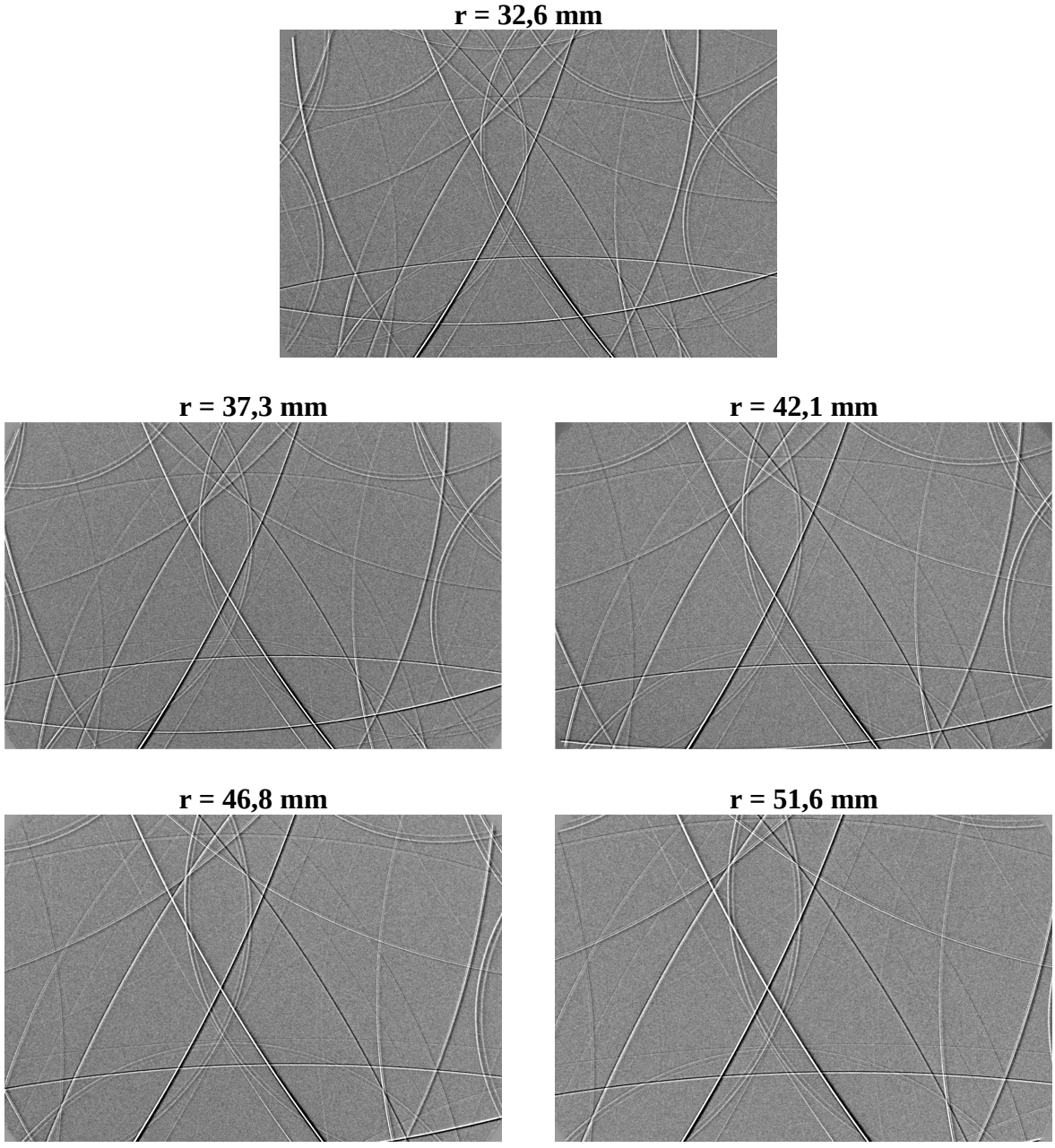


Figure II-6 : Effet de l'avancée de la caméra sur la qualité des clichés Kossel d'un monocristal de cuivre (r : distance caméra - échantillon)

2.2.3 Paramètres d'acquisition de la caméra CCD

La caméra 'VHR' est pilotée par un logiciel appelé 'PSL Software'. Le but a été d'optimiser les paramètres d'acquisition afin de conduire à des clichés de bonne qualité tout en limitant les temps d'exposition. Ce logiciel permet de choisir le temps d'exposition et des options apportant des corrections à l'image. Cette partie ne sera pas développée dans ce manuscrit.

2.3 Résolution spatiale de la technique

Dans ce paragraphe, la résolution spatiale de la technique est abordée. C'est une donnée importante qui est directement reliée à la taille du volume d'émission des rayons X caractéristiques générés par le matériau. Elle peut être déterminée par des simulations de trajectoires électroniques et par des formulations empiriques, connaissant les caractéristiques du faisceau d'électrons incident ainsi que de l'élément cible.

La Figure II-7 présente les profondeurs caractéristiques d'émission des particules générées lors de l'interaction entre un faisceau d'électrons d'énergie E_0 et la surface d'un matériau. On remarque que les rayons X, contrairement aux électrons, proviennent d'un grand volume de l'ordre de un à plusieurs μm^3 [82].

Trois zones sont représentées :

- l'émission X caractéristique pour une profondeur z_u dite de pénétration utile : les électrons ont suffisamment d'énergie pour ioniser des électrons des niveaux de cœur et ainsi libérer un rayonnement X caractéristique ;
- l'émission X de fond continu ou 'bremsstrahlung' pour une profondeur z_M dite de complète pénétration ;
- l'émission X de fluorescence : les rayons X générés sont suffisamment énergétiques pour ioniser les niveaux de cœur d'un autre élément.

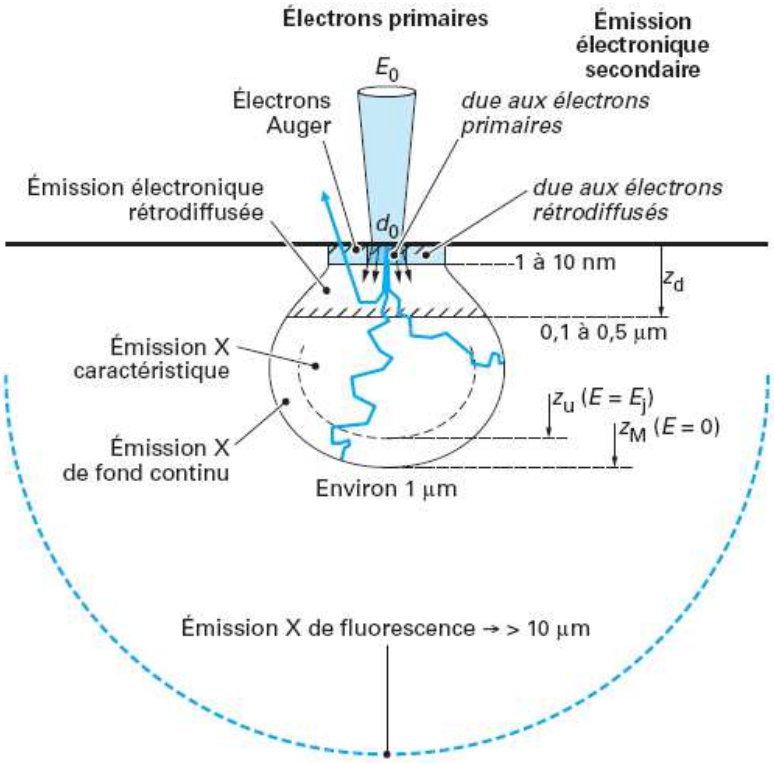


Figure II-7 : Profondeurs caractéristiques d'émission des particules lors de l'interaction électrons/matière. E_0 : énergie du faisceau d'électrons incident, d_0 : diamètre de la sonde électronique, E_j : énergie d'ionisation (ou énergie de liaison) du niveau électronique j, z_u : profondeur de pénétration utile, z_d : profondeur de complète diffusion, z_M : profondeur de complète pénétration [82]

2.3.1 Résolution en profondeur

La profondeur z_u peut être considérée comme la profondeur maximale d'émission de rayons X permettant de générer des clichés de diffraction Kossel. Elle est donnée par le modèle empirique d'Anderson-Hasler [81] :

$$z_u = \frac{0,064}{\rho}(E_0^{1,68} - E_j^{1,68}) \qquad \text{(II-6)}$$

ρ étant la masse volumique de l'élément considéré (en $g.cm^{-3}$), les énergies étant en keV.

La résolution en profondeur théorique a été calculée pour différents matériaux dans le cas d'un faisceau électronique incident d'énergies 20 et 30 keV (Tableau II-1).

Elément	ρ **(g.cm^{-3})**	E_K **(keV)**	z_u **(µm)**	
			E_0 **= 20 keV**	E_0 **= 30 keV**
Fe	7,87	7,112	1,03	2,25
Ni	8,90	8,333	0,85	1,93
Cu	8,96	8,979	0,81	1,88
Ge	5,32	11,103	1,16	2,96

Tableau II-1 : Résolutions en profondeur calculées pour le fer, le nickel, le cuivre et le germanium pour deux énergies incidentes

On remarque que, dans le cas d'un faisceau d'énergie 20 keV, la profondeur z_u est de l'ordre du micromètre pour ces différents matériaux. Dans le cas d'un faisceau d'énergie 30 keV, la profondeur z_u est multipliée par environ 2,5 et peut atteindre 3 µm pour le germanium.

2.3.2 Résolution latérale

La résolution spatiale latérale R_{xy} est donnée par la formule suivante [83] :

$$R_{xy} = \sqrt{4(z_u - z_d)^2 + {d_0}^2} \qquad \text{(II-7)}$$

avec :

$$z_d = 0{,}5 \cdot z_M \cdot \exp\left(-\frac{Z^{1,25}}{140}\right), \text{ Z étant le numéro atomique} \qquad \text{(II-8)}$$

$$z_M = \frac{0{,}064}{\rho} {E_0}^{1,68} \qquad \text{(II-9)}$$

$${d_0}^2 = \frac{4 \cdot i_0}{\beta \cdot \pi^2 \cdot {\alpha_f}^2} \qquad \text{(II-10)}$$

Hormis pour les forts courants de sonde utilisés notamment en microanalyse X ou en diffraction Kossel, le terme d_0 est négligeable par rapport au terme relatif à la diffusion

électronique. Il dépend du courant de sonde i_0, de la brillance du faisceau d'électrons β et de α_f, qui est l'angle de convergence du faisceau au point d'impact. La brillance est proportionnelle à la tension d'accélération et varie très fortement selon la nature du canon (de l'ordre de 10^5 A.sr^{-1}.cm^{-2} pour un filament de tungstène à plus de 10^9 A.sr^{-1}.cm^{-2} pour une pointe FEG).

Il est ainsi possible de tracer l'évolution théorique du diamètre de la sonde électronique en fonction du courant de sonde, pour un type de canon donné, comme le montre la Figure II-8. On estime un diamètre de sonde d'environ 50 nm à 1 nA, 100 nm à 10 nA, 200 nm à 100 nA et 500 nm à 1 µA, pour un microscope électronique à filament de tungstène avec une tension d'accélération de 30 kV.

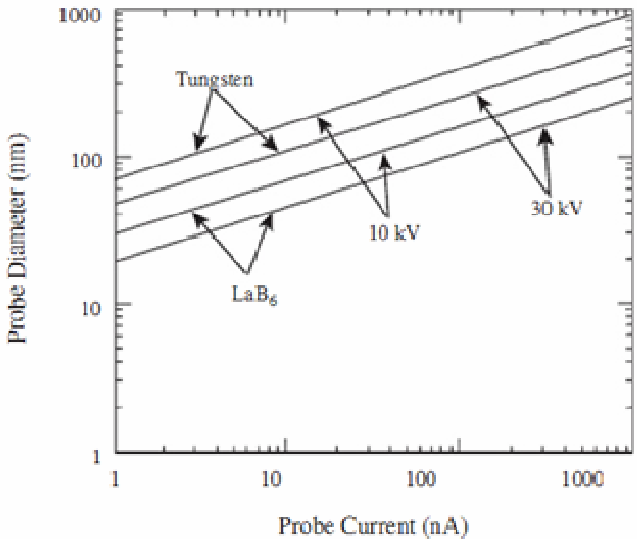


Figure II-8 : Evolution du diamètre de la sonde électronique en fonction du courant de sonde pour des MEBs à filament W et LaB_6 [83]

La résolution latérale R_{xy} théorique a été calculée, et reportée dans le Tableau II-2, dans le cas d'une sonde électronique d'énergie E_0=30 keV et de courant i_0=1 µA (diamètre de sonde de 0,5 µm).

Elément	ρ (g.cm^{-3})	E_K (keV)	R_{xy} (μm)
Fe	7,87	7,112	2,92
Ni	8,90	8,333	2,53
Cu	8,96	8,979	2,47
Ge	5,32	11,103	3,83

Tableau II-2 : Résolutions latérales calculées pour le fer, le nickel, le cuivre et le germanium pour une sonde électronique d'énergie 30 keV et un courant de 1 µA

On remarque que la résolution latérale, dans le cas d'une sonde d'énergie 30 keV, est comprise entre 2,5 et 4 µm pour ces différents matériaux malgré la focalisation d'une sonde électronique de taille inférieure au micromètre.

Une campagne d'essais expérimentaux a été réalisée afin d'estimer l'évolution de la taille de sonde en fonction du courant de sonde, pour de forts courants. L'idée consistait à balayer le faisceau d'électrons sur des composants de la microélectronique fournis par STMicroelectronics Rousset, et plus précisément des lignes de cuivre déposées par le procédé 'damascene' [84], et de suivre point par point l'intensité du rayonnement X réémis par le cuivre à l'aide de la spectrométrie à dispersion d'énergie. Ces lignes ont des largeurs de l'ordre du micromètre et leurs frontières sont très bien définies (Figure II-9). L'épaisseur des dépôts de cuivre est de l'ordre de 700 nm, ce qui est inférieur à la résolution en profondeur de réémission des rayons X (Tableau II-1) : les rayons X détectés proviennent donc de l'épaisseur complète. Les zones autour de ces lignes sont en dioxyde de silicium. Le silicium ayant un numéro atomique plus faible, le phénomène de fluorescence secondaire du cuivre provoqué par le rayonnement X du silicium est impossible.

Un profil perpendiculaire à quatre lignes de cuivre régulièrement espacées a été réalisé. L'évolution de l'intensité des rayons X émis par l'élément cuivre a été tracée le long du profil, en faisant varier le courant absorbé d'une valeur inférieure au nanoampère jusqu'à environ 400 nA, pour une tension de 30 kV. Pour un courant absorbé de 400 nA à une distance de travail de 20 mm, le temps mort approchait les 100 % avec le détecteur en position éloignée au maximum. Une résolution ultrafine a été choisie, c'est-à-dire 512 points de mesure le long de la ligne. Cela équivaut à un pas d'environ 25 nm. La Figure II-10 présente les résultats des différents profils (c'est-à-dire les intensités de réémission des rayons X du cuivre le long de la ligne verticale repérée Figure II-9).

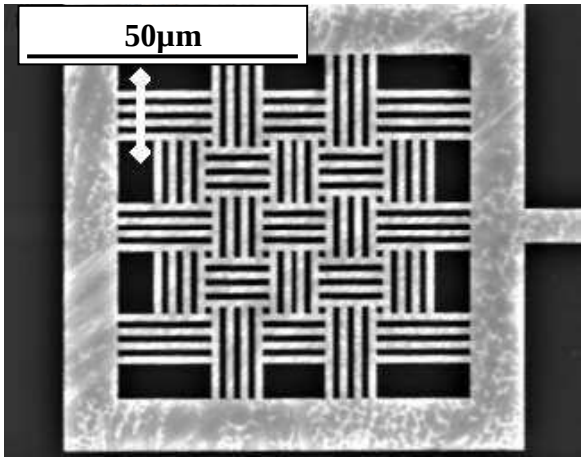


Figure II-9 : Image MEB d'une partie d'un composant de la microélectronique (lignes de cuivre déposées par le procédé damascene). Profil d'analyse EDS repéré par le trait vertical

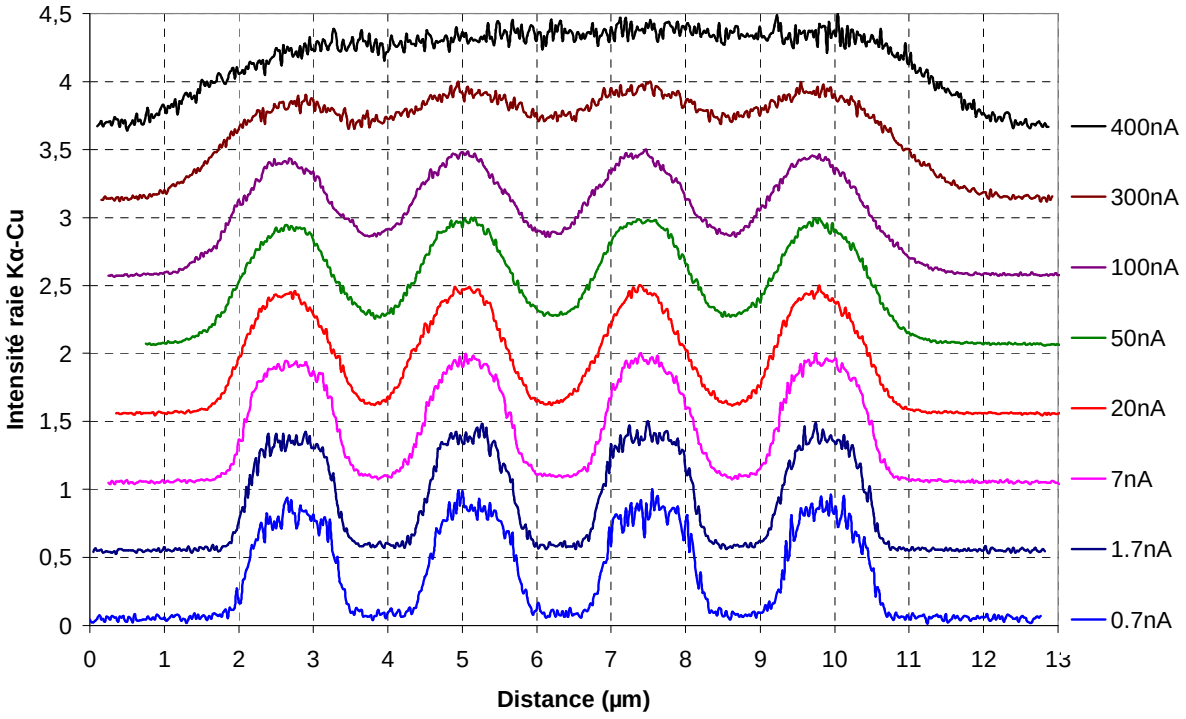


Figure II-10: Intensité de la raie K_α du cuivre, mesurée par EDS, le long de la ligne de profil considérée pour différents courants absorbés

Pour un courant absorbé de 0,7 nA, soit un courant de sonde de l'ordre de 1 nA, on remarque que le motif vu par l'émission X est le suivant : la largeur de lignes est de 1,65 µm et l'espacement, de 0,75 µm. Pour un courant absorbé de 20 nA, du cuivre commence à être détecté entre les lignes. Le spot doit donc avoir une taille supérieure à 0,75 µm. Pour un courant absorbé de 400 nA, on ne distingue plus les lignes de cuivre. La taille de spot doit avoisiner 2,5 µm.

Il faut noter que ces essais ont été réalisés avec une inclinaison nulle. La taille du spot électronique à la surface devrait augmenter en fonction du tilt. Ceci a pu être vérifié en comparant les temps d'exposition en fonction de l'inclinaison de l'échantillon, à tension d'accélération et courant de sonde constants (Figure II-11). Les temps d'exposition ont été choisis en fixant tous les autres paramètres constants et en utilisant la procédure explicitée au paragraphe 2.2.4. On observe une diminution du temps de pose nécessaire à l'acquisition d'un cliché de Kossel quand on augmente l'inclinaison de l'échantillon car le volume participant à la diffraction augmente. Par exemple, le temps de pose diminue d'environ 40 % si le tilt passe de 0° à 60°.

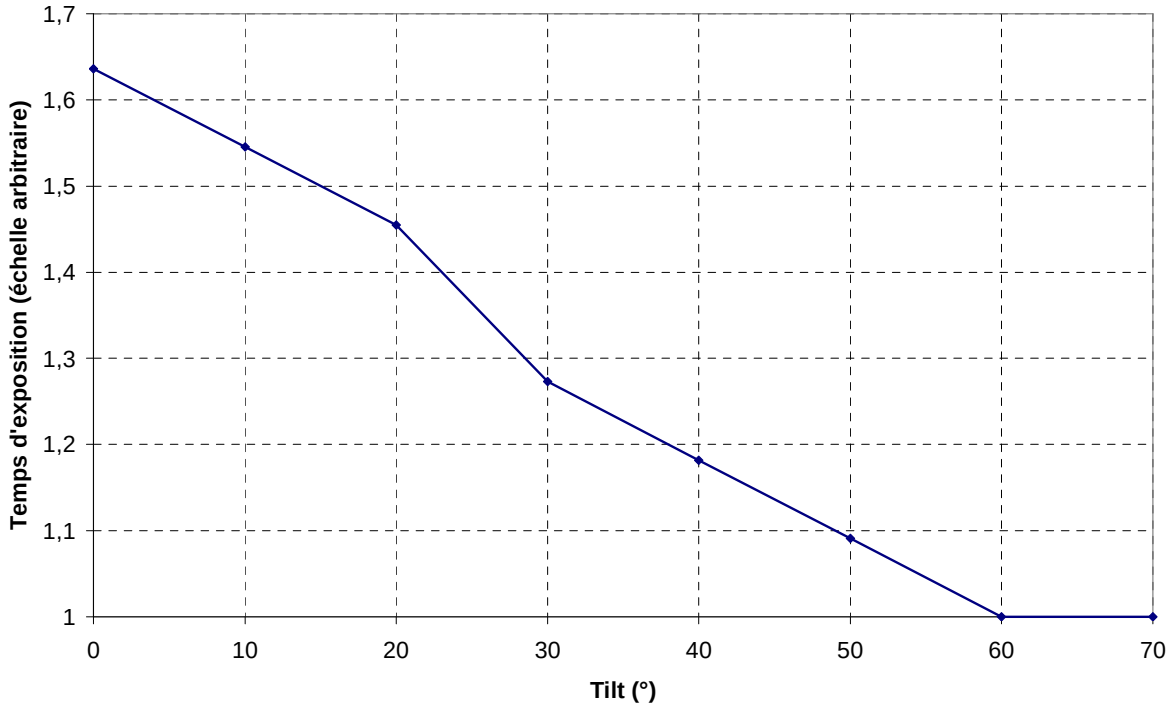


Figure II-11 : Influence du tilt sur le temps d'exposition nécessaire à l'acquisition d'un cliché Kossel

2.3.3 Simulations de Monte-Carlo des trajectoires électroniques

La méthode de Monte-Carlo est une méthode que l'on retrouve dans de nombreux domaines (physique nucléaire, magnétisme, métallurgie, biologie, finances). Elle permet de résoudre des problèmes complexes en utilisant des processus aléatoires. Elle est utilisée notamment pour simuler les trajectoires des électrons connaissant la composition du matériau, la tension d'accélération ainsi que l'angle d'incidence du faisceau. En choisissant un niveau électronique (K, L ou M), on peut simuler la trajectoire des rayons X générés au sein du matériau et en déduire la profondeur de laquelle ils sont susceptibles de s'échapper.
Plusieurs logiciels commerciaux sont disponibles sur le marché. Nous avons utilisé 'Electron Flight Simulator – Version 3.1-E', basé sur les travaux de David C. Joy [85].

Pour comparer avec les résolutions calculées précédemment, des simulations ont été effectuées en prenant en compte 32000 trajectoires électroniques pour une tension d'accélération de 30 kV et un tilt de l'échantillon de 40° (valeur typique utilisée durant les essais de microdiffraction Kossel). Quatre éléments ont été choisis : le fer, le nickel, le cuivre et le germanium. Les trajectoires électroniques apparaissent en bleu et celles des rayons X (niveau électronique K) s'échappant du matériau en rouge (Figure II-12).

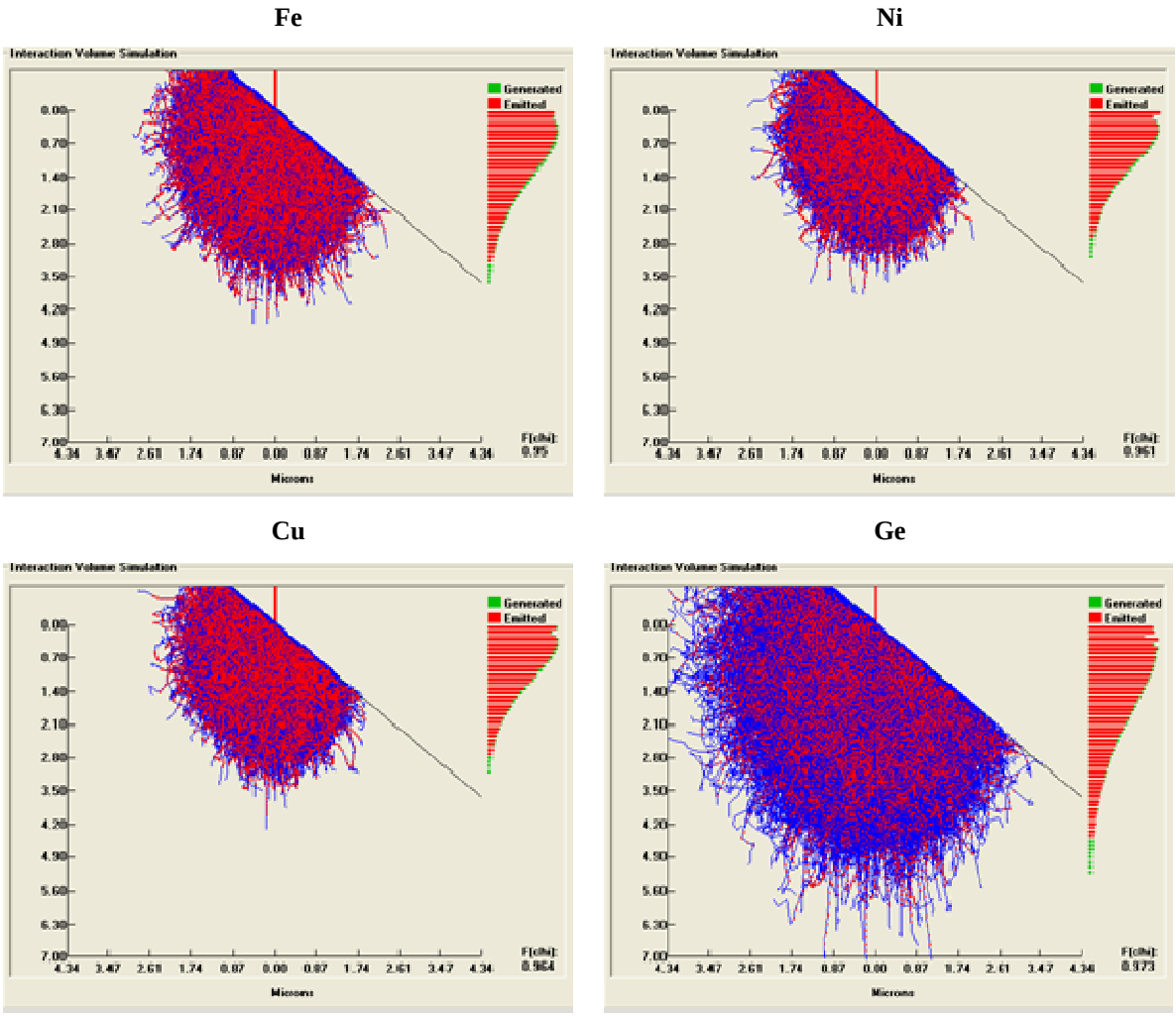


Figure II-12 : Simulations de Monte-Carlo des trajectoires électroniques (en bleu) et des rayons X émis par la matière (en rouge) pour 4 matériaux massifs - Tension d'accélération : 30 kV, Tilt : 40°

L'intensité du rayonnement X émis par le matériau peut être déterminée en fonction de la profondeur sous la surface (Figure II-13). L'échelle des ordonnées est une échelle arbitraire qui dépend du nombre de trajectoires électroniques simulée. Il est important de noter que les simulations de Monte-Carlo ne prennent pas en compte le courant de sonde. En effet, le diamètre de la sonde électronique est choisi négligeable par rapport à la diffusion électronique.

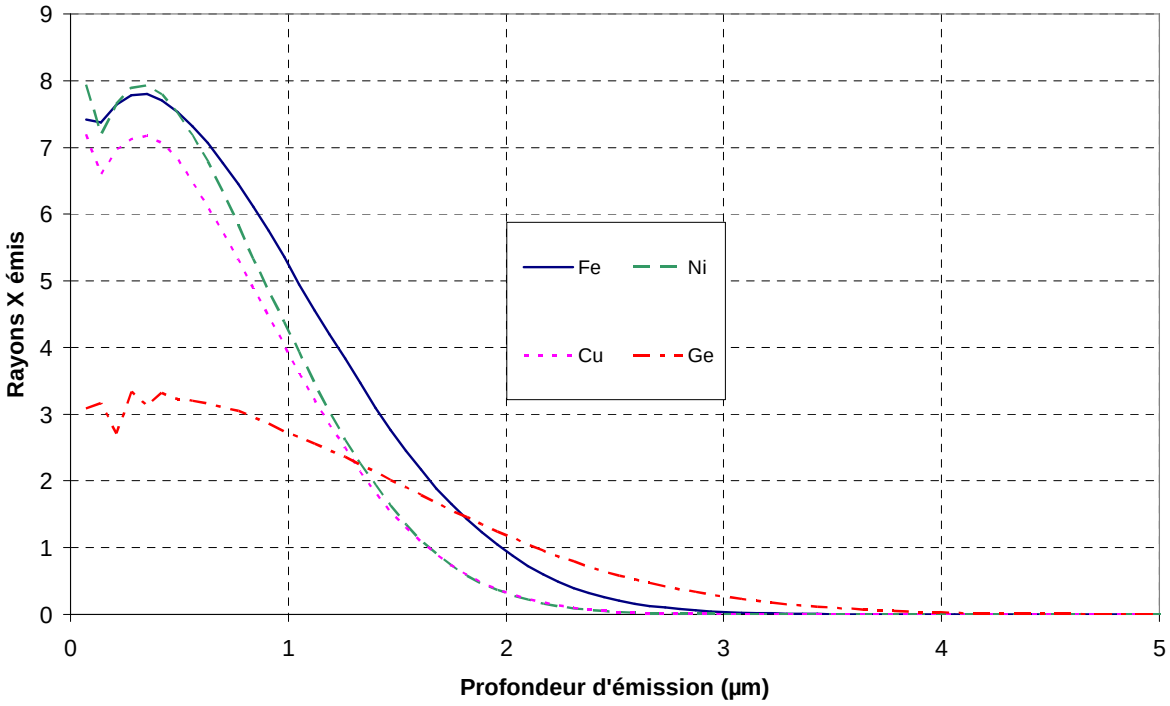


Figure II-13 : Profondeur d'émission des rayons X générés par la matière pour différents matériaux

A partir des simulations de Monte Carlo réalisées, on peut noter que les rayons X générés au sein de la matière peuvent s'échapper d'une profondeur d'environ 3 µm sous la surface pour des éléments comme le fer, le cuivre, le nickel et d'environ 4 µm pour le germanium. La résolution latérale, quant à elle, peut être estimée à environ 2 µm pour le cuivre et le nickel, 2,5 µm pour le fer et 3,5 µm pour le germanium.

La résolution spatiale a donc été estimée à partir de lois empiriques et de simulations de trajectoires électroniques.

Un bon accord a été trouvé entre les deux méthodes pour la détermination de la résolution en profondeur. On a par exemple pour le fer et le cuivre massifs des résolutions en profondeur de 2 à 3 µm pour une tension d'accélération de 30 kV.

En ce qui concerne la résolution latérale, les valeurs calculées au Tableau II-2 sont supérieures d'environ 0,5 µm aux valeurs déterminées par les simulations de Monte-Carlo. Ceci peut venir du fait que le paramètre 'taille de sonde' soit négligé dans les simulations.

2.3.4 Contamination de l'échantillon

Du fait des courants de sonde et des temps d'exposition utilisés, on observe une contamination de l'échantillon assez marquée, c'est-à-dire qu'une fine couche (quelques nanomètres) de matière organique étrangère au matériau se dépose à la surface de celui-ci au point d'impact du faisceau électronique. Cette couche n'a pas d'impact sur l'intensité des lignes de Kossel obtenues, car les énergies des électrons incidents et des rayons X générés sont suffisantes pour traverser cette couche sans aucune absorption. Suite à des discussions avec des spécialistes du domaine (notamment des membres du GN-MEBA), il n'existerait pas de relation entre la taille de la zone contaminée et la taille du spot électronique.

2.4 Influence des paramètres matériaux

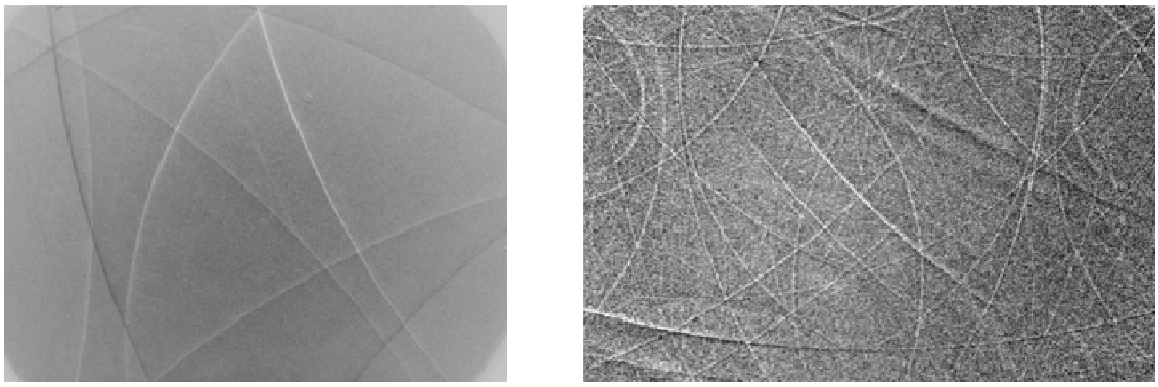
La technique de microdiffraction Kossel a été éprouvée sur une large gamme de matériaux. Dans ce paragraphe, nous traiterons de l'influence du numéro atomique, de la cristallographie, de la taille de grains et de l'état de surface du matériau sur la qualité des clichés.

2.4.1 Influence du numéro atomique

Dans le chapitre 1, nous avons évoqué le fait qu'il s'avérait impossible d'analyser des échantillons ayant un trop faible numéro atomique, car la longueur d'onde émise était supérieure à l'ordre de grandeur de la distance interatomique. Le premier élément dans l'ordre de la classification périodique avec lequel nous avons obtenu des clichés de diffraction Kossel est le titane (Z=22) (Figure II-14 (a)), mais théoriquement, on pourrait commencer au calcium. Pour des éléments plus légers tels que l'aluminium ou le silicium, seule la technique de pseudo-Kossel peut être utilisée [38].

Une autre condition doit être remplie : il faut que l'énergie incidente du faisceau d'électrons soit 2,5 à 3 fois supérieure à l'énergie d'ionisation de la raie considérée. Ainsi, pour les éléments compris entre le titane et le germanium (Z=32), la longueur d'onde intervenant dans la formation de lignes de Kossel est celle émise par les niveaux électroniques K. Pour les

éléments plus lourds tels que le tungstène (Z=74), dont un cliché est visible sur la Figure II-14 (b), la longueur d'onde du niveau L est prise en compte. Cela implique bien évidemment une plus grande difficulté dans l'acquisition du cliché à cause de l'intensité plus faible de l'émission de rayons X relatifs au rayonnement du niveau L.



(a) (b)

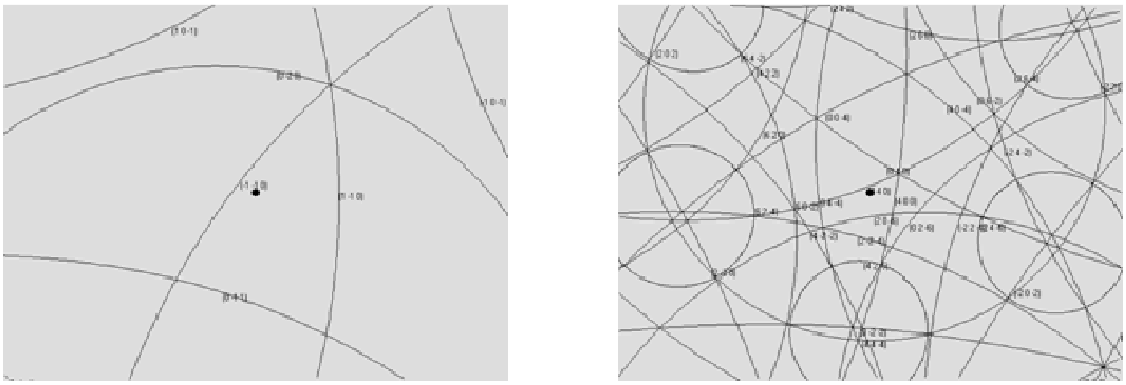
Figure II-14 : Exemples de clichés Kossel obtenus sur un échantillon base titane (a) et un monocristal de tungstène (b)

2.4.2 Influence de la cristallographie

Pour l'instant, pour des raisons évidentes de simplicité dans le développement de la technique de microdiffraction Kossel, nous n'avons étudié que des structures cubiques : cubique centré (ex : acier IF), cubique à faces centrées (ex : cuivre), cubique diamant (ex : germanium), cubique à faces centrées de type DO_3 (ex : phase austénitique de l'alliage CuAlBe).

Connaissant la structure cristallographique, le numéro atomique de l'élément émettant le rayonnement X ainsi que le paramètre de maille approché du matériau analysé, il est possible de déterminer les plans diffractants d'une phase.

Par exemple, le titane ordonné en structure cubique centré possède un paramètre de maille d'environ 3,3 Å. La longueur d'onde du rayonnement $K_{\alpha 1}$ étant environ de 2,75 Å, seules les réflexions des plans {110} et {200} seront présentes. Par contre, la phase austénitique de l'alliage CuAlBe ayant un paramètre de maille élevé (de l'ordre de 5,81 Å) et une structure très compacte, il sera possible d'enregistrer des réflexions jusqu'aux plans {642} (Figure II-15).



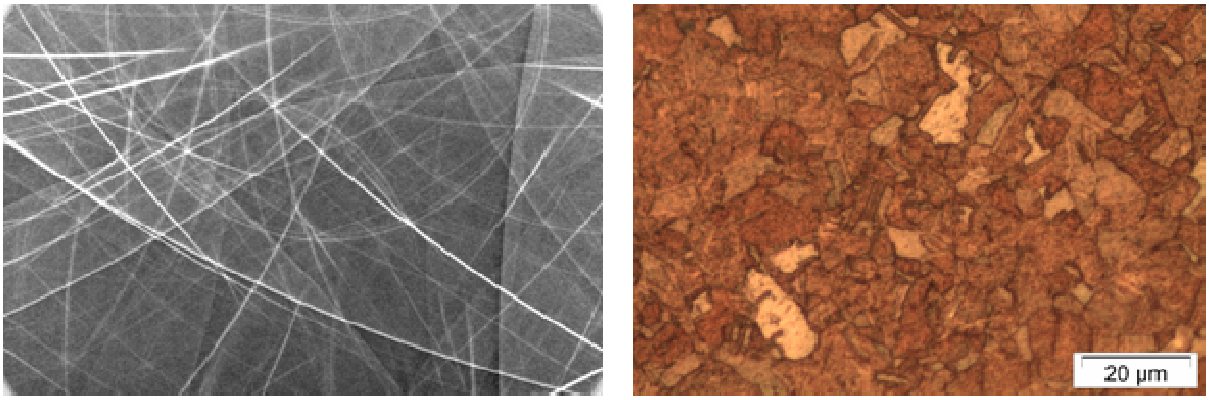
(a) (b)

Figure II-15 : Clichés Kossel simulés (logiciel KSLStrain) pour une caméra CCD de résolution 696x520 pixels, une taille de pixel de 48 µm et située à 35 mm de l'échantillon
a) Cristal CC de titane b) Cristal DO_3 de l'alliage CuAlBe

2.4.3 Influence de la taille de grains

D'après les résolutions spatiales estimées au paragraphe 2.3, la taille minimale du domaine cohérent de diffraction doit être d'environ 5 µm. Il sera ainsi difficile d'obtenir des clichés de diffraction exploitables pour une taille de grains inférieure à cette valeur, plusieurs domaines diffractant simultanément.
Un exemple de cliché de diffraction Kossel obtenu en pointant le faisceau à la surface d'un échantillon polycristallin de cuivre pur est donné Figure II-16 (a). La taille moyenne des grains est de quelques micromètres et la structure présente un grand nombre de macles (Figure II-16 (b)). On remarque un nombre anormalement élevé de réflexions et certaines d'entre elles sont interrompues. Cela s'explique par la participation de plusieurs domaines diffractants à la formation de ce cliché.

Pour des échantillons de type films minces, c'est-à-dire présentant une épaisseur de l'ordre du micromètre voire inférieure, les temps d'exposition seront supérieurs du fait du volume plus petit participant à l'émission de cônes de Kossel. De plus, dans certains cas, on verra s'ajouter au cliché Kossel du film un cliché pseudo-Kossel du substrat situé en dessous et excité par le rayonnement X du film. Un exemple sera détaillé au chapitre 5.



(a) (b)

Figure II-16 : (a) Cliché Kossel d'un échantillon polycristallin de cuivre - (b) Microstructure associée

2.4.4 Influence de l'état de surface

Du fait de la profondeur d'émission des rayons X qui est de l'ordre de 2 à 3 µm à 30 kV, la préparation de surface ne conditionne pas forcément l'obtention de clichés de diffraction Kossel, contrairement aux acquisitions EBSD. Il est évidemment nécessaire de travailler sur un état de surface soigné, souvent au moins poli miroir, mais il est possible d'acquérir des clichés sur des échantillons non polis électrolytiquement.

Une analyse comparative a été effectuée sur deux matériaux différents. Des clichés Kossel ont été enregistrés sur un monocristal base nickel poli à l'alumine (200 Å) avant et après un polissage électrolytique en utilisant le réactif A2, sous une tension de 22 V, pendant 10 secondes et sur un échantillon de CuAlBe poli à la pâte diamantée (1 µm) avant et après un polissage électrolytique en utilisant le réactif D31, sous une tension de 12 V, pendant 5 secondes. Dans les deux cas et pour les deux matériaux, on remarque que le contraste des lignes de Kossel est similaire (Figure II-17).

Par contre, il est difficile d'obtenir des clichés exploitables sur des matériaux dont la surface est très écrouie et très rugueuse. Un monocristal base nickel ayant subi un grenaillage, provenant d'une campagne d'essais croisés par DRX au sein du Groupement Français d'Analyse des Contraintes, a été étudié. Aucune ligne de diffraction Kossel n'a pu être observée. L'écrouissage très important généré par l'opération de grenaillage provoque un tel élargissement des lignes que leurs intensités se retrouvent noyées dans le bruit de fond. De

plus, l'opération de grenaillage apportant une rugosité importante à la surface de l'échantillon, l'acquisition de clichés Kossel est rendue plus complexe. En effet, il devient difficile de focaliser le faisceau sur une zone d'intérêt de manière précise et une collection idéale du bruit de fond s'avère délicate à cause des ombrages différents à la surface.

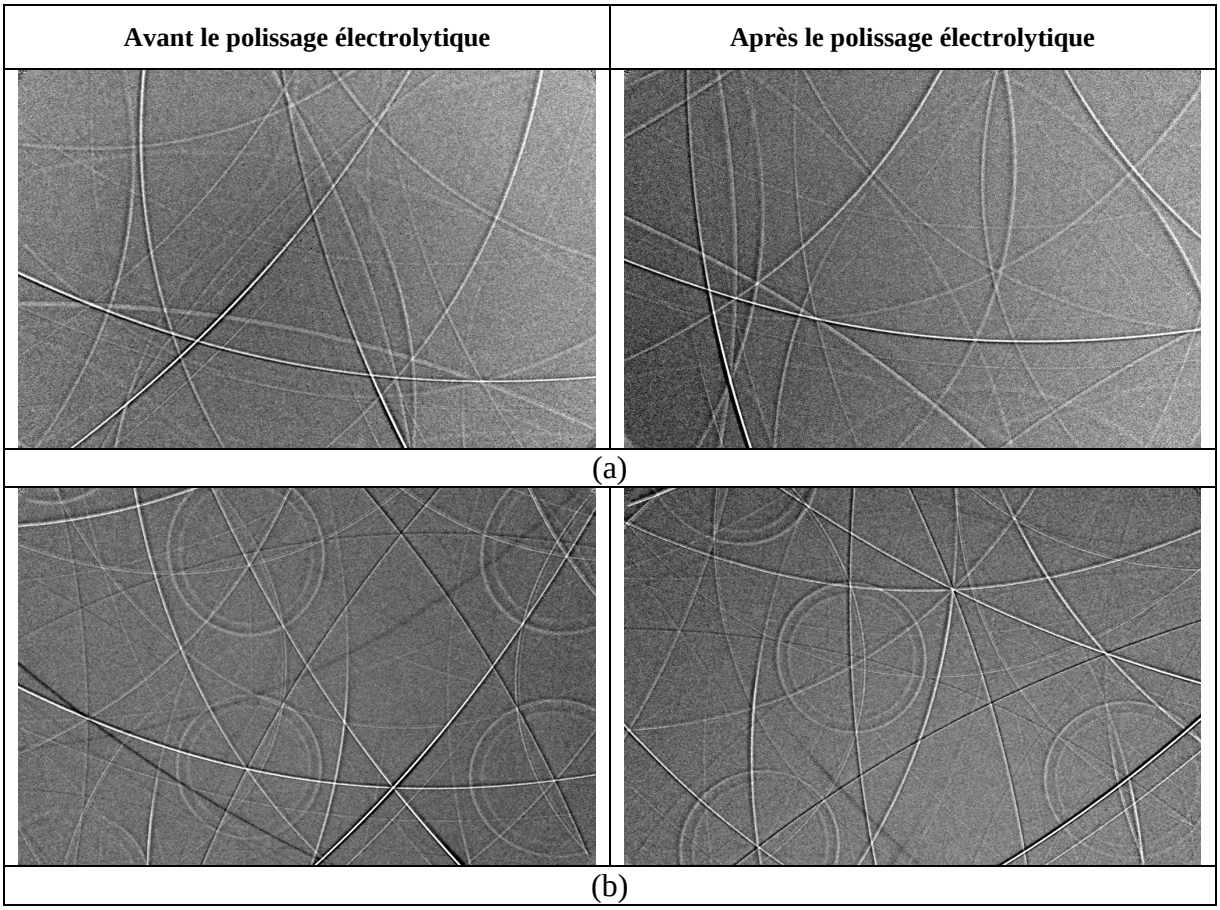


Figure II-17 : Influence du polissage électrolytique sur la qualité des clichés Kossel d'un monocristal de nickel (a) et d'un échantillon de CuAlBe (b)

Chapitre 3 : Méthodologie permettant d'obtenir les états de déformation à partir des clichés de Kossel expérimentaux

Une fois les clichés de Kossel enregistrés numériquement, un logiciel dénommé KSLStrain [86] permet de les analyser et d'en déduire les tenseurs des déformations. Ce logiciel a été développé par Adam Morawiec, Professeur à l'Institute of Metallurgy and Materials Science de Cracovie. Des échanges réguliers et fructueux, par le biais notamment d'invitations réciproques à Metz et à Cracovie, ont permis de l'enrichir et de l'améliorer continuellement. Le principe de fonctionnement du logiciel est présenté dans ce chapitre. Il comprend également une étude de l'influence de la puissance incidente du faisceau d'électrons sur la détermination du tenseur des déformations.

3.1 Principe d'utilisation du logiciel KSLStrain pour la détermination absolue du tenseur complet des déformations

Une copie d'écran du logiciel est présentée Figure III-1. Le cliché expérimental et le cliché simulé (en jaune) correspondant à la solution trouvée ont été superposés. Le cliché simulé a été indexé, c'est-à-dire qu'à chaque ligne de Kossel a été associée la valeur (hkl) correspondant au plan cristallographique diffractant. Le point jaune au centre de l'image correspond au centre de projection (pattern center), c'est-à-dire à la position de la projection du point d'impact du faisceau électronique sur l'écran de la caméra, perpendiculairement à la surface de l'échantillon.

Les étapes de traitement d'un cliché expérimental sont les suivantes et sont détaillées dans ce chapitre :

- chargement de l'image au format bitmap ;
- renseignement des paramètres sur le matériau d'étude et la géométrie du montage ;
- positionnement manuel des lignes de Kossel ;
- indexation du cliché en affinant les paramètres ;
- détermination du tenseur des déformations.

Un module a été récemment ajouté : il permet de comparer de manière automatique deux clichés et d'en déduire le tenseur des déformations relatif. Il fait l'objet du paragraphe 3.2.

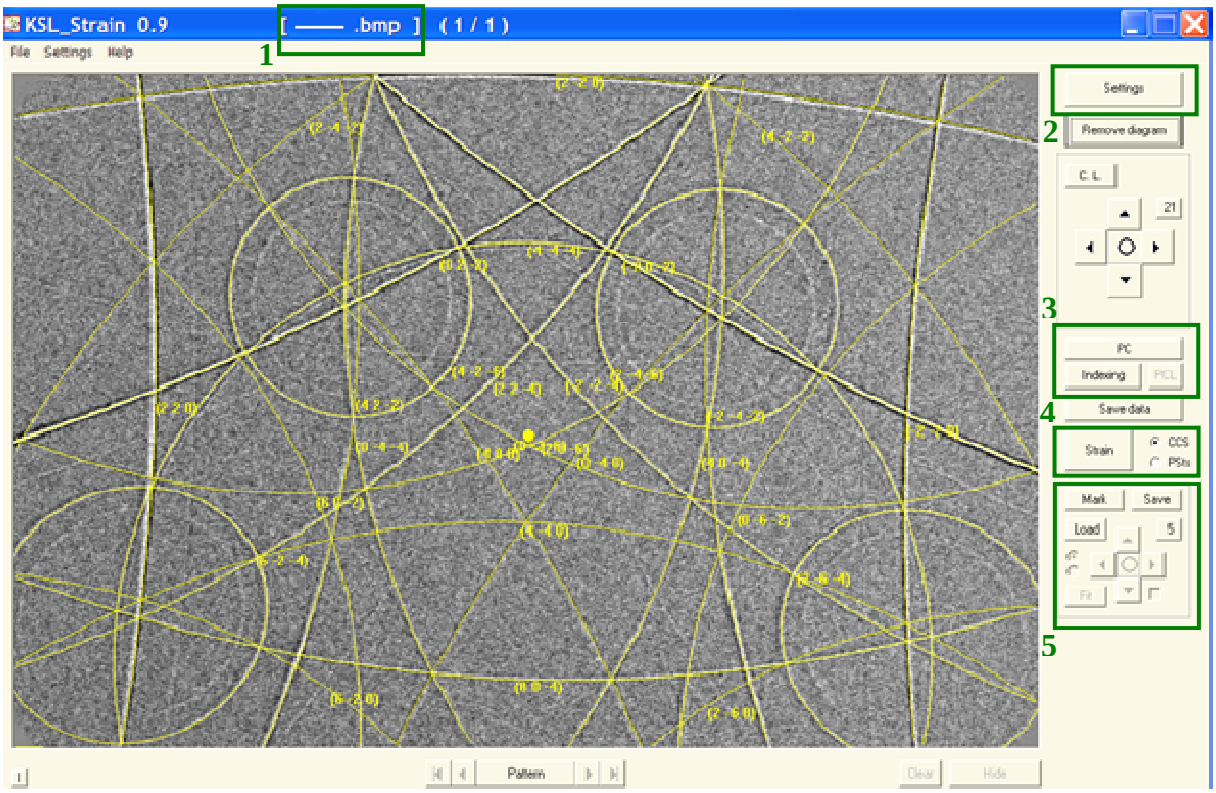


Figure III-1 : Copie d'écran du logiciel KSLStrain. 1 : nom du fichier expérimental analysé. 2 : paramètres à renseigner sur le matériau. 3 : détermination du centre de projection et indexation des lignes. 4 : détermination du tenseur des déformations. 5 : module permettant les analyses relatives.

3.1.1 Paramètres d'entrée du logiciel

Différents paramètres doivent être renseignés pour l'analyse d'un cliché expérimental. Ils concernent le matériau ainsi que son positionnement par rapport au faisceau et à la caméra. Ils peuvent être classés en deux catégories : les constantes et les paramètres qui seront optimisés lors du calcul.

En ce qui concerne les constantes, il est nécessaire de connaître :

- la longueur d'onde des rayons X ayant été diffractés par le réseau cristallin ;
- la structure cristalline du matériau ;
- le tilt de l'échantillon dans le MEB ;
- la taille des pixels de l'image finale (en mm).

Il est possible d'analyser des clichés de diffraction quel que soit le groupe de Laue du cristal considéré mais dans cette étude nous avons étudié essentiellement des structures cubiques.

Les paramètres qui seront optimisés lors du calcul sont :

- la distance caméra - échantillon ;
- les coordonnées du centre de projection ;
- les paramètres de maille du matériau déformé.

3.1.2 Positionnement manuel des lignes de Kossel

Le logiciel KSLStrain est un programme semi-automatique, c'est-à-dire que l'opérateur doit indiquer manuellement les positions des réflexions de Kossel sur les clichés. Ce travail doit être effectué avec soin et prend environ 15 minutes par cliché. Ensuite, une méthode d'affinement permet d'obtenir directement l'orientation cristallographique et le tenseur complet des déformations.

3.1.2.1 Principe

Pour positionner les lignes, l'opérateur définit plusieurs points le long de la réflexion considérée, le logiciel construit une réflexion théorique passant au plus près de ces points et enregistre la localisation des points. L'opérateur reproduit ce travail pour chaque réflexion supplémentaire. Pour que le logiciel converge vers une solution, il est nécessaire de positionner au minimum trois lignes de Kossel. Augmenter le nombre de lignes marquées permet d'améliorer la précision.

Pour définir une ligne théorique, trois points au minimum doivent être positionnés. Nous conseillons d'en placer au moins cinq. A chaque placement de point, un profil d'intensité perpendiculaire à la ligne théorique s'affiche et permet à l'opérateur d'affiner le positionnement au dixième de pixel près. Par exemple, on remarque sur la Figure III-2 que cinq réflexions différentes ont été sélectionnées par l'opérateur. Chaque réflexion théorique (ligne rouge) a été tracée à partir des points rouges positionnés par l'opérateur. Il y en a environ huit à dix par réflexion. Le profil d'intensité est donné perpendiculairement à la ligne

théorique : celui du point cerclé est affiché dans la fenêtre en bas à droite Figure III-2, l'espacement entre deux segments correspondant à un pixel. Deux profils sont tracés simultanément car un profil moyenné, prenant en compte dix pixels de part et d'autre du point sélectionné le long de la ligne théorique, apparaît également.

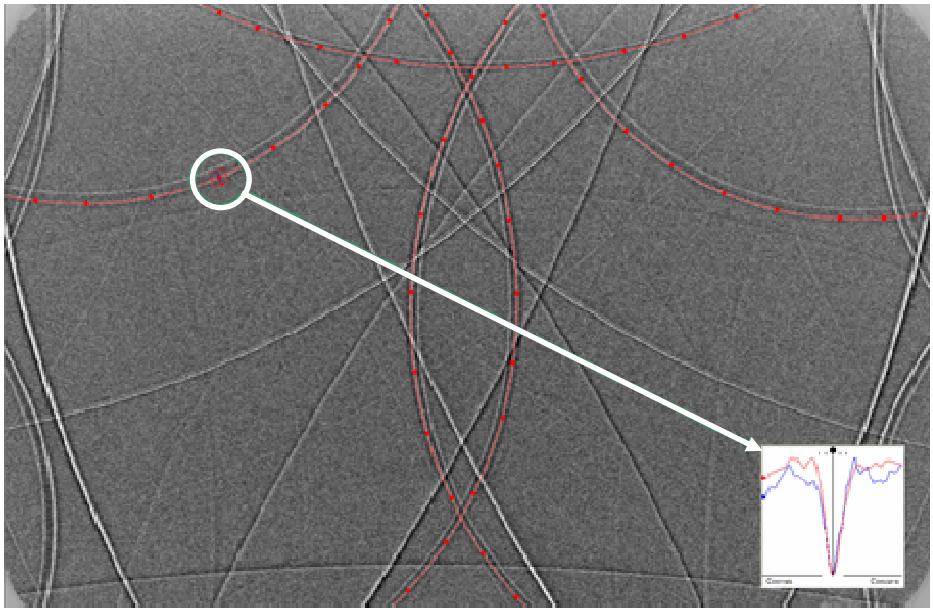


Figure III-2 : Logiciel KSLStrain - positionnement manuel des réflexions Kossel à partir des profils d'intensité sur un cliché expérimental

Un module ajouté récemment permet d'afficher les distances, en dixième de pixels, entre les points placés par l'opérateur et la ligne théorique tracée à partir des ces points (Figure III-3). De plus, l'écart maximal par ligne est affiché en surbrillance. Un point aberrant sera ainsi tout de suite détecté. Ce module fournit une aide précieuse qui permet de 'valider' cette étape manuelle de positionnement. Si les écarts sont faibles (par exemple au maximum 0,2 pixels pour les lignes visibles Figure III-3), la ligne peut être conservée. Si des valeurs supérieures à 0,5 pixels apparaissent, il sera nécessaire de réajuster le positionnement des points en commençant par les écarts les plus élevés, voire de supprimer totalement la réflexion considérée. Il est obligatoire que la position du centre de projection ait été ajustée avant de pouvoir tenir compte de ces valeurs.

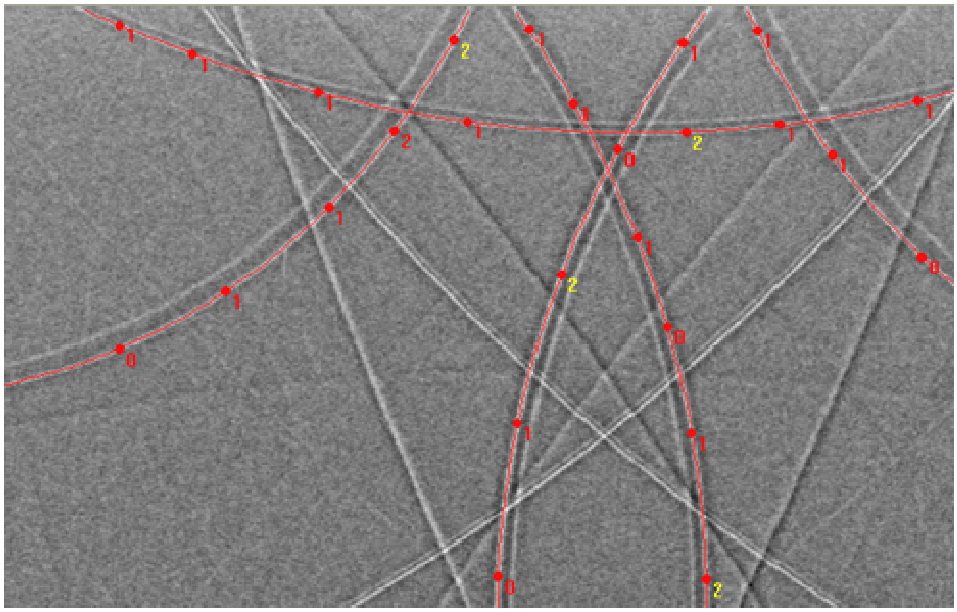
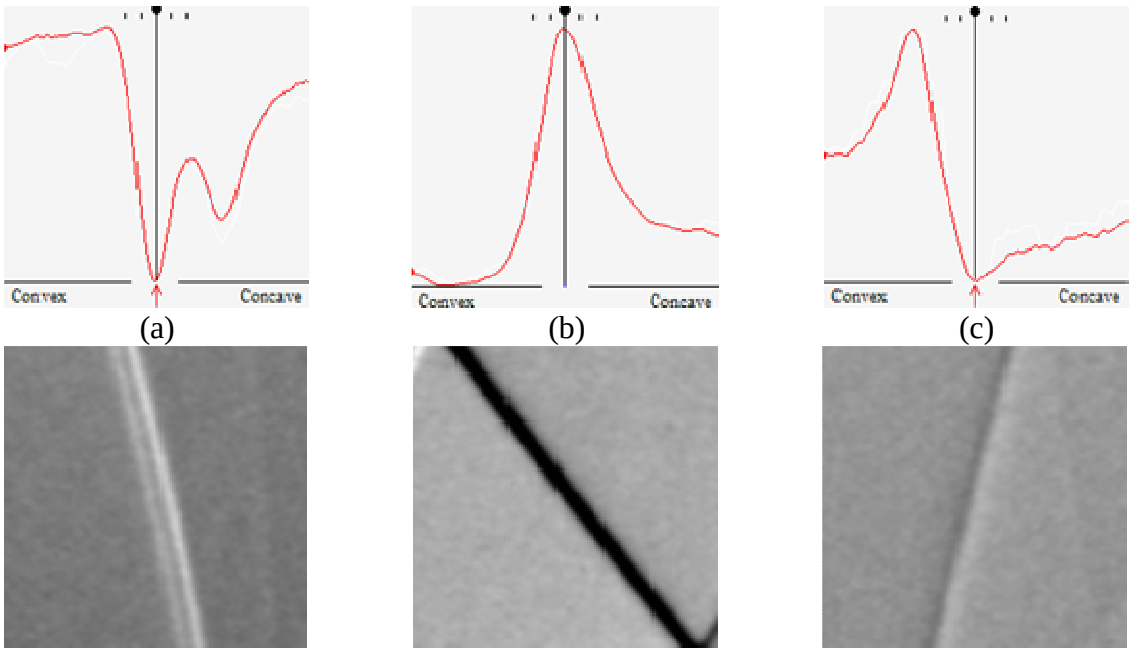


Figure III-3 : Logiciel KSLStrain. Affichage des écarts de positionnement des points par rapport à la ligne théorique sur une partie d'un cliché : l'écart maximal par ligne est affiché en surbrillance

3.1.2.2 Types de profils - Dynamique de la diffraction des rayons X

Les lignes de Kossel présentent plusieurs types de profils d'intensité. En effet, on peut obtenir des réflexions ayant des intensités supérieures au bruit de fond (claires), des réflexions d'intensités inférieures (sombres) et des réflexions composées d'une partie claire et d'une partie sombre (Figure III-4). Le cas le plus fréquent est un doublet de lignes claires (cas (a)).

La radiation K_α se compose de deux radiations distinctes $K_{\alpha1}$ et $K_{\alpha2}$. Plus les indices hkl de la réflexion considérée seront élevés et plus l'on sera susceptible de distinguer les deux rayonnements, sachant que la longueur d'onde intégrée au logiciel correspond au rayonnement $K_{\alpha1}$. D'après la loi de Bragg, sachant que la longueur d'onde du rayonnement $K_{\alpha1}$ est inférieure à celle du rayonnement $K_{\alpha2}$, le rayon de courbure de la conique correspondant à $K_{\alpha1}$ doit être inférieur au rayon de courbure de la conique correspondant à $K_{\alpha2}$. Ceci est cohérent avec le doublet visible Figure III-4 (a), qui présente un pic d'intensité supérieur du côté convexe.



(a) (b) (c)

Figure III-4 : Exemples de profils d'intensité de lignes de Kossel
(a) ligne claire avec doublet, (b) ligne sombre, (c) ligne claire et sombre avec les portions de diagrammes associées (largeur 78 pixels)

Les profils d'intensité des lignes de Kossel s'expliquent par la théorie dynamique de la diffraction des rayons X. Il en existe différentes versions : Ewald [87], Darwin [88] et Laue [89]. Elle a été développée pour prendre en compte les phénomènes d'absorption et de diffractions multiples. En effet, la théorie cinématique (ou géométrique) de la diffraction suppose que le faisceau diffracté n'a aucune interaction avec le faisceau incident et qu'il n'est diffracté qu'une seule fois.

La théorie dynamique de la diffraction des rayons X de Laue a été utilisée par différents auteurs pour prédire l'intensité des lignes de Kossel dans des cas particuliers [90 - 92]. Mais c'est une théorie complexe, qui ne peut pas être traitée de manière analytique et qui demanderait beaucoup d'effort pour être intégrée à un logiciel d'analyse des clichés Kossel. Aussi, nous ne l'avons pas abordée dans le cadre de cette thèse.

3.1.2.3 Influence de l'angle d'incidence des électrons sur les profils de lignes

Afin de déterminer l'influence de l'angle d'incidence des électrons sur le profil des lignes de Kossel, des clichés ont été collectés sur un monocristal de cuivre en faisant varier le tilt de 0° à 70° (Figure III-5).

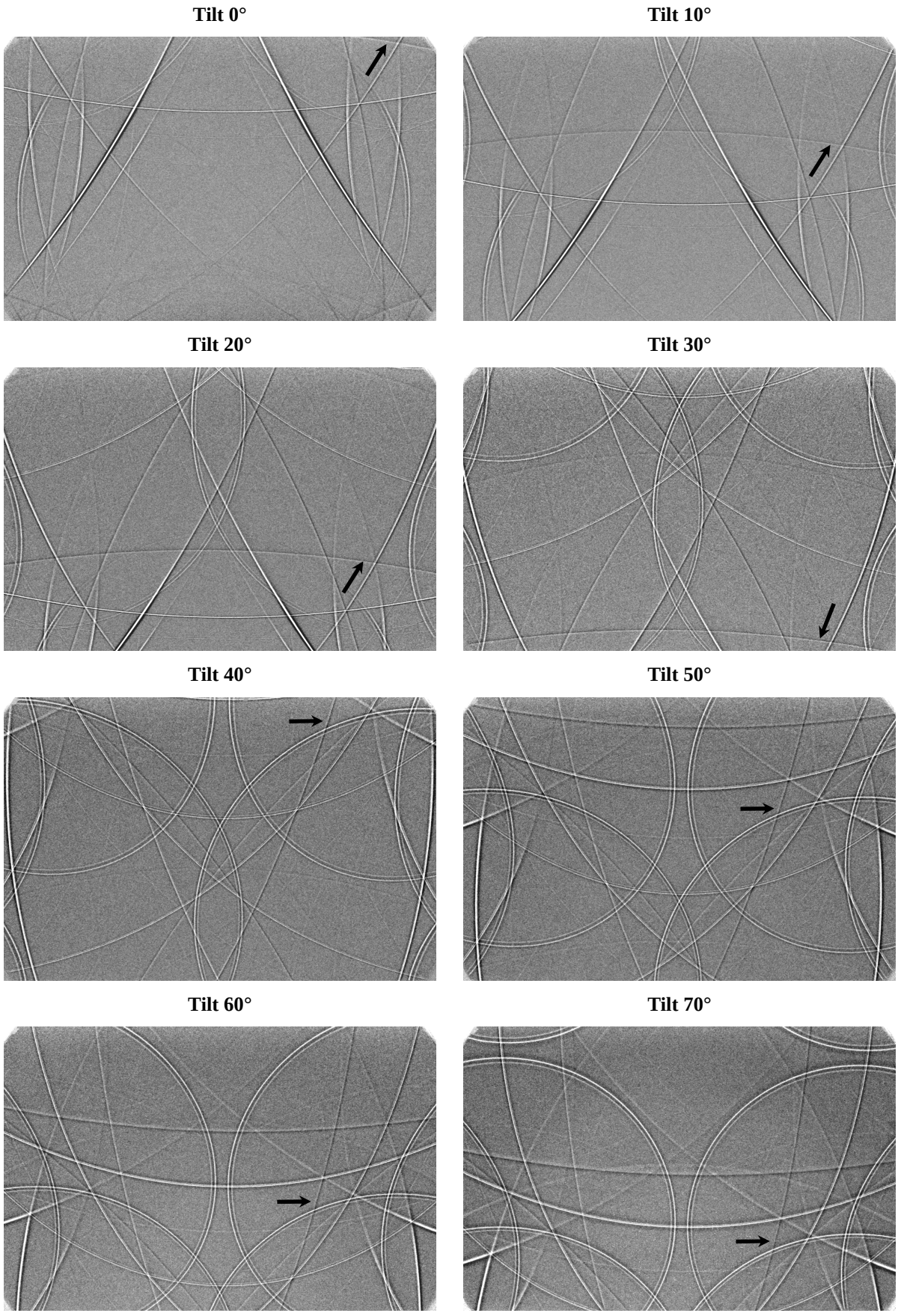


Figure III-5 : Effet du tilt sur la qualité des clichés Kossel d'un monocristal de cuivre. Flèches : choix de deux réflexions de la famille de plans {111}

On remarque que les lignes interceptées ne sont pas les mêmes en fonction de l'inclinaison de l'échantillon : ceci est lié au fait que la géométrie de la projection dépend directement du tilt. On observe simplement un décalage vertical du cliché. Le contraste des clichés est légèrement meilleur pour les tilts intermédiaires (entre 30 et 50°) du fait de l'éclairage plus uniforme de la caméra : cela a pu être vérifié pour d'autres matériaux.

Les effets dynamiques de la diffraction des rayons X sont bien présents. Certaines lignes sont très visibles, d'autres très peu intenses ; certaines ont une bordure sombre très marquée, des variations d'intensité le long d'une réflexion donnée apparaissent. Néanmoins, pour une réflexion donnée, les effets dynamiques semblent indépendants de l'inclinaison de l'échantillon par rapport au faisceau. Pour corroborer ce point, des réflexions Kossel appartenant à la famille de plans {111} ont été choisies et les profils d'intensité ont été tracés perpendiculairement aux lignes et reportés sur la Figure III-6. Les zones où le profil d'intensité a été tracé sont notifiées par des flèches sur la Figure III-5. Deux lignes différentes ont été suivies car il était impossible de suivre la même ligne pour tous les tilts. On remarque que les profils d'intensité sont de type clair/sombre et l'allure de ces profils est similaire quel que soit le tilt considéré.

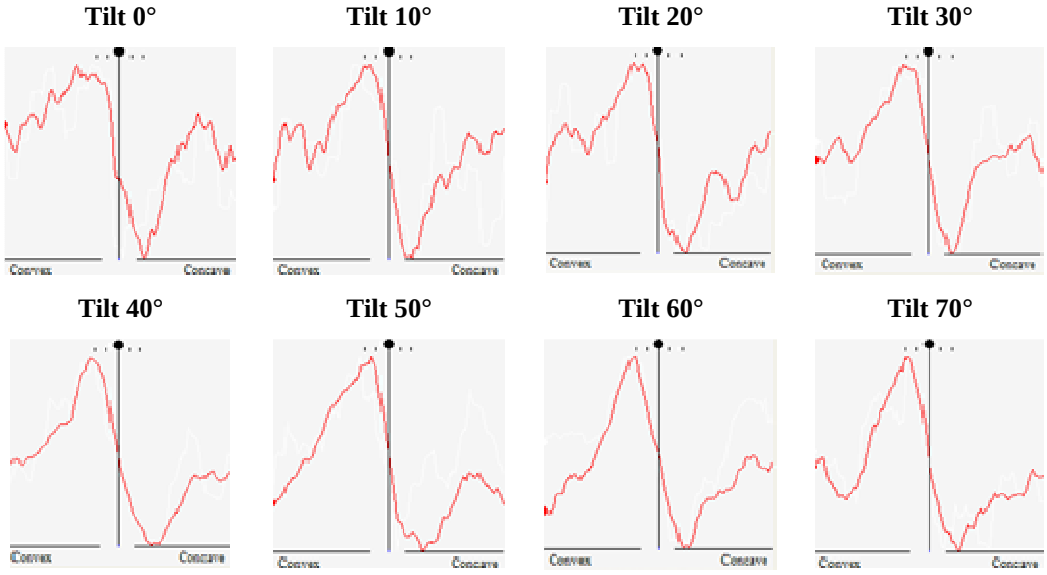


Figure III-6 : Profils d'intensité pour deux réflexions {111}, à différents tilts

L'angle d'incidence des électrons ne semble pas influencer la nature des profils d'intensité des lignes de Kossel. Elle semble plutôt dépendre de la réflexion {hkl} considérée, et donc de l'angle entre la normale au plan diffractant et la normale à la surface de l'échantillon.

3.1.2.4 Bilan sur le positionnement manuel des lignes

La difficulté réside dans le positionnement exact des points servant au tracé de la ligne théorique. Ces points doivent être positionnés exactement à l'angle de Bragg du plan (hkl) considéré. Pour cela, il faut savoir quelle est la position de cet angle par rapport au maximum d'intensité.

Comme il est difficile de prendre en compte les effets dynamiques lors du positionnement manuel des points, la procédure suivante a été appliquée :

- dans le cas des lignes claires (Figure III-4 (a)), les points sont placés au maximum d'intensité du profil de la ligne, côté convexe, correspondant au rayonnement $K_{\alpha 1}$;
- dans le cas, peu fréquent, des lignes totalement sombres le choix a été fait de ne pas les utiliser ;
- dans le cas des lignes claires/sombres, il a été décidé de positionner les points au point d'inflexion du profil de ligne, c'est-à-dire ni au maximum ni au minimum d'intensité mais au centre. Ce positionnement a été vérifié à l'aide de l'analyse présentée ci-après.

Un cliché a été acquis sur un monocristal de cuivre pour une distance caméra - échantillon élevée (de l'ordre de 52 mm) de façon à augmenter l'épaisseur des lignes de Kossel (plus de pixels par ligne) et ainsi de les visualiser plus précisément.
Seules les lignes présentant des profils où l'on distingue clairement les maxima d'intensité des rayonnements $K_{\alpha 1}$ et $K_{\alpha 2}$ ont été utilisées (Figure III-7). Les profils d'intensité des lignes claires/sombres (repérées par les flèches sur la Figure III-7) sont représentés Figure III-8 pour deux distances caméra - échantillon différentes : la distance minimale d'environ 32,5 mm et la distance fixée pour cette analyse. On remarque que la partie claire se compose d'un doublet et que l'épaulement observé se situe à peu près à mi-distance du minimum et du maximum d'intensité. Pour des distances caméra - échantillon inférieures, on n'observe pas cet épaulement.

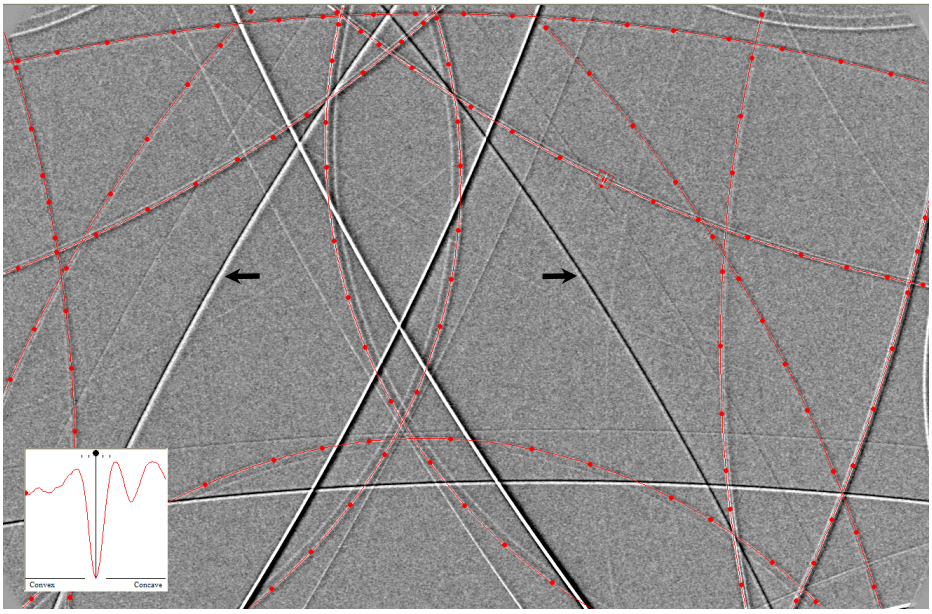
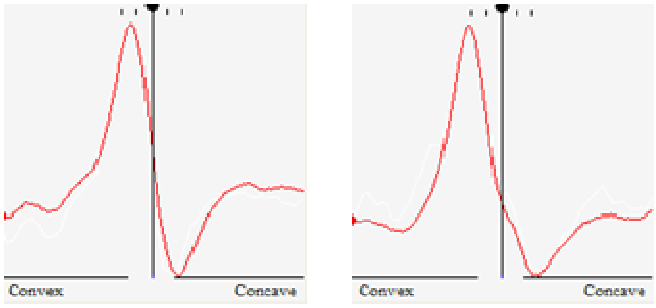


Figure III-7 : Positionnement manuel des points aux maxima d'intensités côté convexe, comme représenté dans l'encadré en bas à gauche - les flèches indiquent 2 lignes claires/sombres dont les profils d'intensité sont présentés Figure III-8



(a) (b)

Figure III-8 : Comparaison du profil d'intensité d'une ligne dite claire/sombre pour deux distances caméra - échantillon : 32,5 mm (a) et 51,6 mm (b)

Le cliché a ensuite été simulé à partir des lignes dites claires. Le logiciel simulant l'ensemble des lignes de Kossel, on peut observer la localisation des lignes non positionnées par l'opérateur. Une zone présentant une ligne claire/sombre a été agrandie (Figure III-9). On remarque que la ligne est positionnée entre le maximum et le minimum d'intensité, conformément à notre choix.

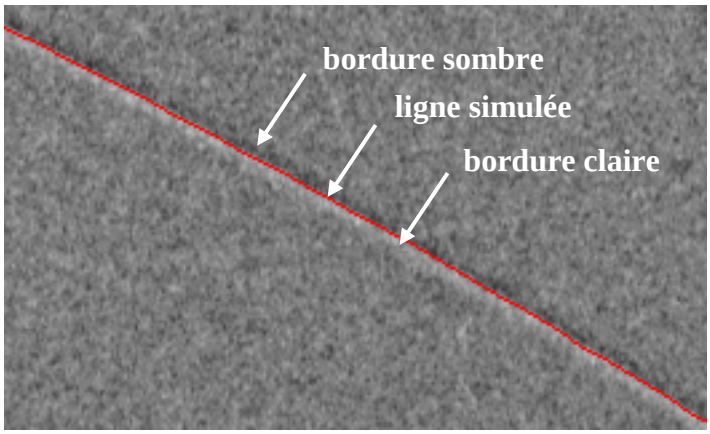


Figure III-9 : Agrandissement d'une zone présentant une ligne claire/sombre (plan diffractant $00\bar{2}$) d'un cliché expérimental accompagné du cliché simulé associé (en rouge)

3.1.3 Indexation des lignes et détermination de l'orientation cristallographique

A partir de la position des lignes placées manuellement par l'opérateur, l'orientation du cristal est calculée et les lignes de Kossel sont indexées. Les angles d'Euler sont déterminés dans le repère du microscope (Figure III-10) à l'aide d'une routine appelée KiKoCh [93].

Le repère (Oxyz) du microscope est défini comme suit :

- ✓ l'axe (Ox) correspond à l'axe de rotation de la platine porte - échantillon ;
- ✓ l'axe (Oy) est lié à la position en hauteur de l'échantillon par rapport à la caméra et dirigé de l'échantillon vers la pièce polaire ;
- ✓ l'axe (Oz) est perpendiculaire à la caméra et dirigé de la caméra vers l'échantillon.

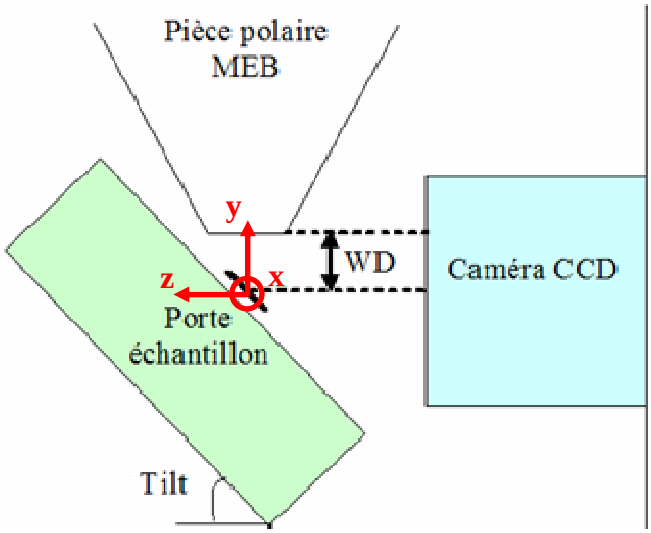


Figure III-10 : Définition du repère « microscope » (Oxyz) du logiciel KSLStrain

Connaissant le triplet d'angles d'Euler, selon la notation de Bunge (ϕ_1, Φ, ϕ_2), il est possible de déterminer la matrice d'orientation dans le repère du microscope [80]. Cette matrice, notée g_{ij}, est définie par :

$$g_{ij} = \begin{pmatrix} \cos\phi_1 \cos\phi_2 - \sin\phi_1 \sin\phi_2 \cos\Phi & \sin\phi_1 \cos\phi_2 + \cos\phi_1 \sin\phi_2 \cos\Phi & \sin\phi_2 \sin\Phi \\ -\cos\phi_1 \sin\phi_2 - \sin\phi_1 \cos\phi_2 \cos\Phi & -\sin\phi_1 \sin\phi_2 + \cos\phi_1 \cos\phi_2 \cos\Phi & \cos\phi_2 \sin\Phi \\ \sin\phi_1 \sin\Phi & -\cos\phi_1 \sin\Phi & \cos\Phi \end{pmatrix}$$

Il est nécessaire d'effectuer un changement de repère pour obtenir la matrice d'orientation dans le repère de l'échantillon, soit une rotation de (-90°+tilt) suivant (0x) et de 180° suivant (0y). La première colonne de la matrice d'orientation dans le repère de l'échantillon définit la direction du cristal parallèle à (Ox), notée UVW, et la troisième colonne le plan parallèle à la surface de l'échantillon, noté HKL. Par la suite, c'est ce repère qui sera utilisé.

Des analyses EBSD sur un monocristal de cuivre et sur trois grains d'un acier ferritique ont été réalisées afin de valider la détermination de l'orientation cristallographique obtenue par microdiffraction Kossel (Figure III-11). Les angles d'Euler déterminés par les deux techniques sont reportés Tableau III-1. On vérifie que les orientations sont équivalentes. Des désorientations de l'ordre de 3,5° ont été calculées. Ces désorientations peuvent s'expliquer par le positionnement de l'échantillon (alignement par rapport à (Ox) et précision dans la mesure du tilt) ainsi qu'au choix du point de mesure (désorientations intragranulaires).

		Microdiffraction Kossel	EBSD	Désorientation maximale
Germanium		211,6° / 126° / 45,6°	34° / 53° / 45,4°	3,3°
Acier	Grain 1	175,3° / 96° / 3,2°	122° / 3° / 53°	4,3°
	Grain 2	210,8° / 167,7° / 16,3°	21° / 15° / 83°	3,5°
	Grain 3	212,9° / 171,6° / 15,1°	24° / 11,5° / 83,5°	3,5°

Tableau III-1 : Angles d'Euler (ϕ_1, Φ, ϕ_2) obtenus par microdiffraction Kossel et par EBSD sur un monocristal de germanium et un polycristal d'acier ferritique

3.1.4 Détermination du tenseur de déformations

Pour déterminer les déformations, il est nécessaire de connaître très précisément la distance caméra - échantillon et les coordonnées du centre de projection. Contrairement à la longueur d'onde du matériau qui est connue de manière très précise (à 10^{-6} près), ces deux paramètres sont difficiles à mesurer. Ainsi, une première étape consiste à affiner leurs valeurs, initialement renseignées par l'opérateur, pour un paramètre de maille donné.

Une fois que l'on connaît l'orientation cristallographique, la distance caméra - échantillon et le centre de projection, on peut procéder à l'affinement des paramètres cristallins et ainsi accéder aux déformations du réseau cristallin. Le logiciel utilise l'approche KLEBS (K-Line Equation Based Scheme), développée initialement pour l'analyse des clichés CBED [18]. Elle repose sur la comparaison du cliché expérimental (positionné par l'opérateur) avec son équivalent simulé. La procédure se base sur l'équation algébrique des coniques de Kossel :

$$2\,\vec{g}\cdot\vec{k} = \vec{g}\cdot\vec{g} \qquad \text{(III-1)}$$

où $\vec{g}$ est le vecteur du réseau réciproque correspondant à la ligne considérée, $\vec{k}$ est le vecteur d'onde du faisceau réfléchi satisfaisant $\vec{k}\cdot\vec{k} = \frac{1}{\lambda^2}$, et λ est la longueur d'onde de la radiation.

L'approche KLEBS consiste à déterminer, à partir de tous les points positionnés par l'opérateur, les paramètres cristallins qui vont minimiser la fonction ψ suivante :

$$\psi = \sum_i \sum_j \left(2\,\overrightarrow{k^{i,j}}\cdot\overrightarrow{g^i} - \overrightarrow{g^i}\cdot\overrightarrow{g^i}\right)^2 , \qquad \text{(III-2)}$$

i représentant la ligne de Kossel considérée et j le point positionné par l'opérateur

A cette étape, les paramètres déterminés précédemment (angles d'Euler, distance caméra - échantillon et centre de projection) sont également affinés [86]. Il y a donc affinement de douze paramètres simultanément (trois pour l'orientation, trois pour la géométrie et six pour la déformation de la maille). On peut choisir de ne pas affiner les coordonnées du centre de projection, la distance caméra - échantillon et certaines composantes du tenseur de déformations (dans la base du cristal), par exemple dans l'hypothèse d'un état de déformations planes, en décochant les cases conçues à cet effet (Figure III-11).

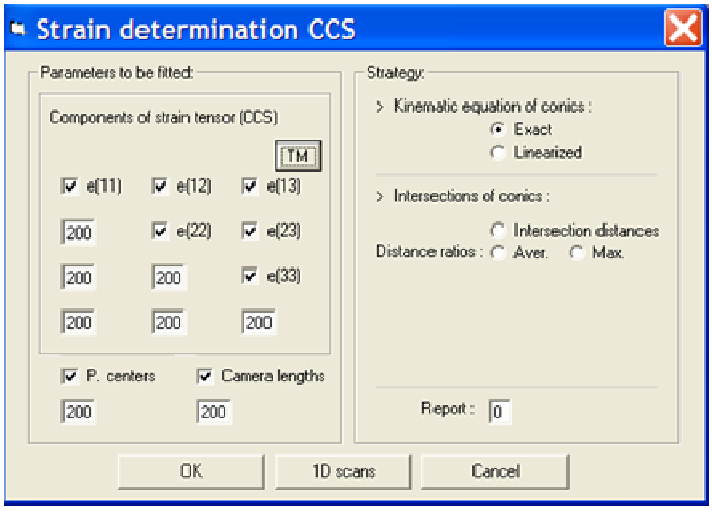
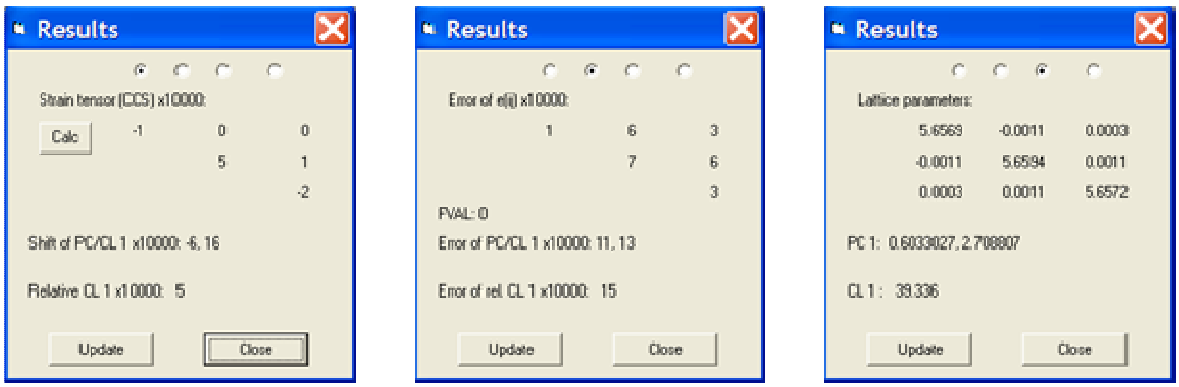


Figure III-11 : Logiciel KSLStrain - module de détermination de l'état de déformation

Une procédure permet de déterminer un paramètre de maille équivalent à un matériau en le supposant parfaitement cubique. Pour cela, le logiciel calcule les composantes du tenseur des déformations (dans la base du cristal) de manière à conserver une maille cubique.

Quelle que soit l'hypothèse de travail, les résultats sont présentés sous la forme de trois fenêtres (Figure III-12). La fenêtre (a) donne les composantes du tenseur de déformations (en 10^{-4}) dans la base du cristal ainsi que les réajustements des paramètres géométriques. La fenêtre (b) présente les incertitudes issues du calcul de minimisation pour chaque paramètre. La fenêtre (c) indique les paramètres cristallins du matériau (en Å), les coordonnées du centre de projection par rapport au centre de la caméra, noté PC1 (en mm) et la distance caméra - échantillon, notée CL1 (en mm).



(a) (b) (c)

Figure III-12 : Fenêtres présentant les résultats du calcul - (a) : composantes du tenseur des déformations, (b) : incertitudes, (c) : paramètres cristallins, centre de projection et distance caméra - échantillon

3.1.5 Estimation de la précision en déformation de la technique

Les résultats dépendent de différents paramètres comme la nature et la qualité du cliché, le nombre de lignes sélectionnées par l'opérateur, le nombre de composantes du tenseur de déformations à affiner ou le rapport entre la distance caméra - échantillon et la taille de l'écran de la caméra [86].

Comme évoqué dans le paragraphe précédent, le logiciel indique une erreur associée au calcul de minimisation pour les six composantes du tenseur de déformations ainsi que pour les trois paramètres relatifs à la géométrie de l'analyse (Figure III-12 (b)). Ces erreurs sont obtenues à partir d'un calcul mathématique. Pour chaque paramètre à affiner, une fonction est calculée entre deux bornes définies par l'opérateur (par exemple, de -200 à +200, en 10^{-4}). La solution correspond au minimum de cette fonction et l'erreur correspond à l'inclinaison de la courbure à proximité du minimum. D'après Adam Morawiec, les erreurs déterminées à partir de cette procédure ne doivent pas être exploitées. En effet ces fonctions sont le plus souvent non quadratiques et ainsi les erreurs calculées n'ont pas véritablement de sens. Je les ai relevées néanmoins pour information.

L'influence du nombre de lignes sélectionnées par l'opérateur a été étudiée à partir de clichés simulés. Puis des analyses sur clichés expérimentaux ont permis de tester la répétabilité de la mesure, l'influence de l'opérateur et le nombre de réflexions.

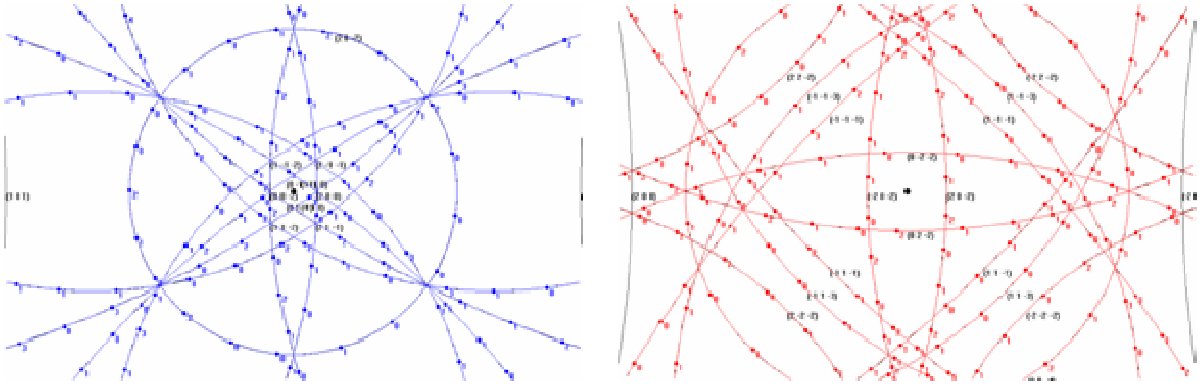
3.1.5.1 A partir de clichés simulés

Des clichés théoriques ont été simulés à partir du logiciel KSLStrain puis analysés de manière classique par l'opérateur (positionnement manuel des points puis affinement des paramètres par minimisation). Connaissant avec précision la solution du problème (dont les paramètres cristallins de la maille déformée), une comparaison des résultats obtenus avec la solution exacte a permis d'estimer la précision de la procédure.
Ce travail a été effectué pour deux types de cristaux (cubique centré (CC) et cubique à faces centrées (CFC)) en analysant des clichés théoriques simulés par le logiciel, avec les paramètres suivants :

- une orientation cristallographique choisie de manière aléatoire ;
- la distance caméra - échantillon minimale que l'on puisse atteindre pour l'instant avec la caméra 'VHR', soit 32,5 mm ;
- un centre de projection positionné au centre de l'image ;
- une maille parfaitement cubique avec des paramètres de maille fixés à 2,866 Å et 3,595 Å pour les symétries CC et CFC respectivement, correspondant à des valeurs de paramètres de maille typiques d'un acier ferritique (CC) et d'un alliage base nickel (CFC).

Les points décrivant les lignes théoriques ont été positionnés manuellement (Figure III-13). Malgré l'utilisation d'un cliché supposé idéal, on observe des écarts de positionnement des points par rapport aux lignes théoriques compris entre 0 et 0,3 pixels. En effet, les clichés analysés ont des lignes de largeur 1 pixel et la précision dans le positionnement des points est de 0,1 pixel.

Pour la symétrie CC, 11 lignes ont pu être positionnées au maximum : quatre pour les familles de plans {110} et {211}, deux pour la famille {200} et une pour la famille {220}.
Pour la symétrie CFC, 19 lignes ont pu être positionnées au maximum : quatre pour les familles de plans {111}, {220}, {311} et {222}, deux pour la famille {200} et une pour la famille {400}.



(a) (b)

Figure III-13 : Positionnement manuel des réflexions pour les cristaux CC (a) et CFC (b) à partir de clichés théoriques simulés par le logiciel en vue d'estimer la précision de la procédure

Les six composantes du tenseur de déformations, les trois angles d'Euler ainsi que les trois paramètres liés à la géométrie du montage ont été affinés par le logiciel. Les clichés ont été simulés pour un matériau dans un état non déformé : les composantes du tenseur des déformations doivent donc être nulles. Quand un faible nombre de lignes a été considéré, le choix s'est porté sur les lignes d'indices hkl élevés. En effet, ces dernières ont une plus grande sensibilité à la déformation pour une résolution donnée de la caméra. On a remarqué qu'à partir de sept lignes pour l'acier de structure CC, et neuf lignes pour l'alliage base nickel de structure CFC, la résolution dans la détermination des six composantes du tenseur des déformations était de l'ordre de 2.10^{-4}. En augmentant le nombre de lignes sélectionnées, celle-ci tend vers une valeur inférieure à 1.10^{-4}.

3.1.5.2 A partir de clichés expérimentaux

Différentes mesures ont été réalisés sur un même échantillon afin d'estimer la répétabilité de la technique. Plus précisément, dix clichés Kossel ont été enregistrés dans une zone de 300 μm^2 en focalisant le faisceau d'électrons à la surface d'un monocristal de cuivre en dix points différents. Cet échantillon a subi un polissage mécanique à la pâte diamantée jusqu'à une granulométrie d'un micromètre, puis un polissage électrolytique : les états de déformations sont supposés être homogènes dans la zone analysée.

Pour chaque cliché, les dix mêmes lignes ont été utilisées pour la détermination du tenseur complet des déformations. Les valeurs moyennes et les écarts-types ont été calculés à partir

des dix mesures, pour chaque composante du tenseur des déformations, dans la base de l'échantillon. On obtient :

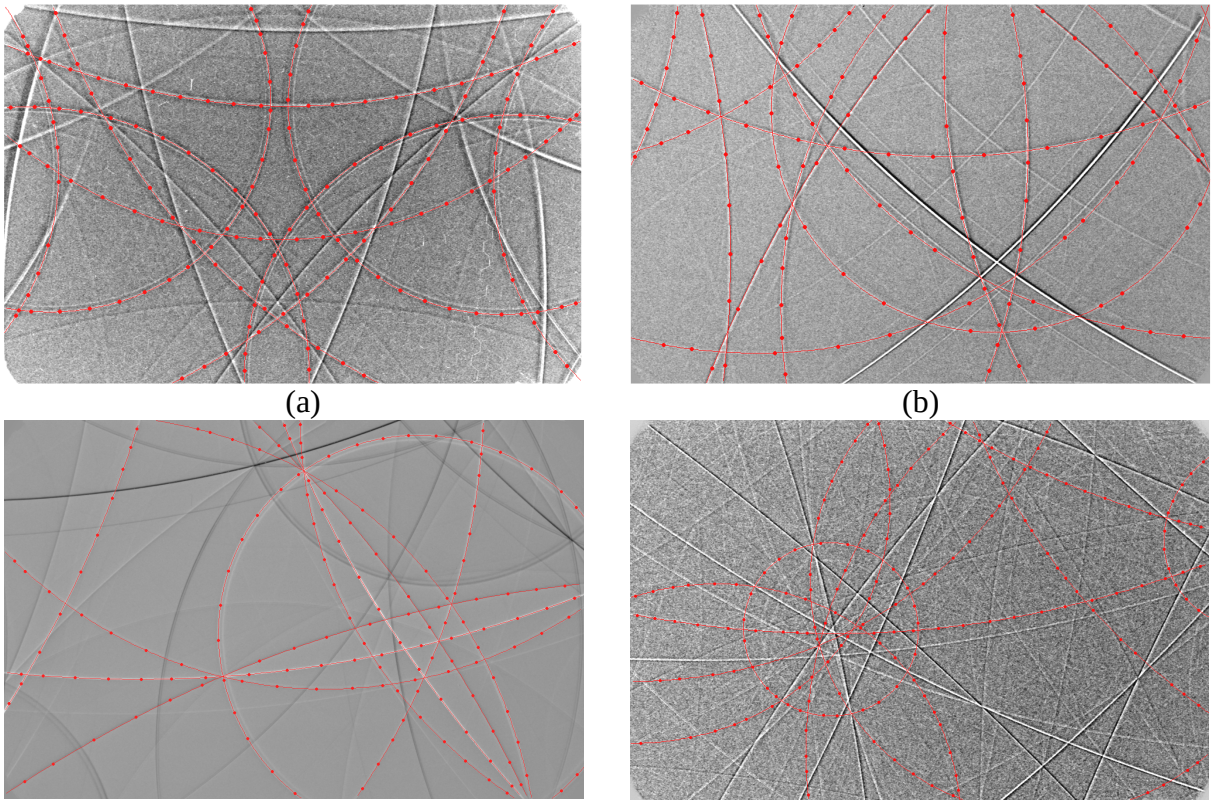
$$\begin{pmatrix} 0,5 & 0,4 & -0,2 \\ & 2,2 & -2,3 \\ & & 1,1 \end{pmatrix} \pm \begin{pmatrix} 1,5 & 0,4 & 0,6 \\ & 0,4 & 0,3 \\ & & 0,4 \end{pmatrix} \cdot 10^{-4}$$

On remarque que les écarts entre les différentes mesures sont de l'ordre de 5.10^{-5}, mis à part pour la composante ε_{11} où l'on trouve une valeur supérieure, égale à $1,5.10^{-4}$. Cette valeur plus élevée correspond à la direction choisie pour le polissage mécanique. Ce dernier a peut-être créé des hétérogénéités plus marquées dans cette direction particulière, qui n'ont pas été totalement annihilées par le polissage électrolytique.

Afin d'estimer la reproductibilité de la mesure, les dix clichés obtenus sur le monocristal de cuivre ont été analysés par un deuxième opérateur. Les mêmes lignes que celles choisies par le premier opérateur ont été sélectionnées. Les écarts observés, entre les deux opérateurs, pour toutes les composantes du tenseur des déformations des dix mesures (soit 60 valeurs comparées) sont toujours inférieurs à 5.10^{-5}.

De la même manière que pour les clichés théoriques, l'influence du nombre de lignes sélectionnées par l'opérateur a été étudiée. L'analyse a été réalisée sur quatre échantillons différents : des monocristaux de cuivre et de base nickel ayant une structure CFC, un fer-silicium de structure CC et un monocristal de germanium de structure cubique diamant. La procédure consistait à positionner un nombre élevé de lignes pour déterminer le tenseur des déformations, puis à supprimer les lignes une à une, dans l'ordre croissant des indices hkl, afin de suivre l'évolution des six composantes du tenseur des déformations.

Les quatre clichés expérimentaux accompagnés des lignes marquées par l'opérateur avant l'étape de suppression sont représentés sur la Figure III-14. Nous avons choisi 10 coniques pour le cuivre, le fer-silicium et le germanium. Ce nombre nous a paru suffisant pour le cuivre et le germanium qui présentent des lignes d'indices hkl élevés. Pour fer-silicium, il a été difficile d'en placer plus. En ce qui concerne l'alliage base nickel, un nombre minimal de 9 lignes est préconisé d'après les analyses à partir de clichés théoriques. Ainsi, 13 lignes ont été marquées afin de converger vers une solution fiable.



(a) (b)

(c) (d)

Figure III-14 : Clichés Kossel expérimentaux utilisés pour l'analyse de l'influence du nombre de lignes marquées par l'opérateur pour le cuivre (a), le nickel (b), le fer-silicium (c) et le germanium (d) - 10 lignes ont été positionnées pour le cuivre, le fer-silicium et le germanium, 13 lignes pour l'alliage base nickel

On a vérifié que plus le nombre de lignes augmentait, plus les écarts diminuaient. En supposant que le tenseur de déformations associé au nombre de lignes repérées par l'opérateur Figure III-14 soit la solution exacte du problème, on peut conclure quant à un nombre de lignes minimal à positionner par matériau, en privilégiant les lignes d'indices élevés, pour atteindre une précision inférieure à 2.10^{-4} :

- six lignes pour le cuivre ;
- neuf lignes pour l'alliage base nickel ;
- huit lignes pour le fer-silicium ;
- sept lignes pour le germanium.

Ainsi, cette étude nous amène à préconiser l'utilisation de sept à huit lignes de Kossel au minimum pour l'analyse d'un matériau de symétrie cubique, avec une distance caméra - échantillon de l'ordre de 32 mm. Les lignes ayant des indices hkl élevés et un contraste suffisamment marqué devront être choisies en priorité.

3.2 Module permettant la détermination relative du tenseur complet des déformations

Un module permettant de comparer de manière automatisée deux clichés entre eux et d'en déduire l'état de déformations relatif a été ajouté au logiciel. Les clichés doivent être similaires, c'est-à-dire provenant d'un même grain, avec une désorientation cristallographique faible et un profil d'intensité des coniques comparable. Cela peut s'appliquer à des analyses de déformations relatives intragranulaires (plusieurs clichés dans un même grain) ou au suivi de l'évolution de l'état de déformation d'un grain lors d'un chargement thermomécanique extérieur.
Ce module permet :

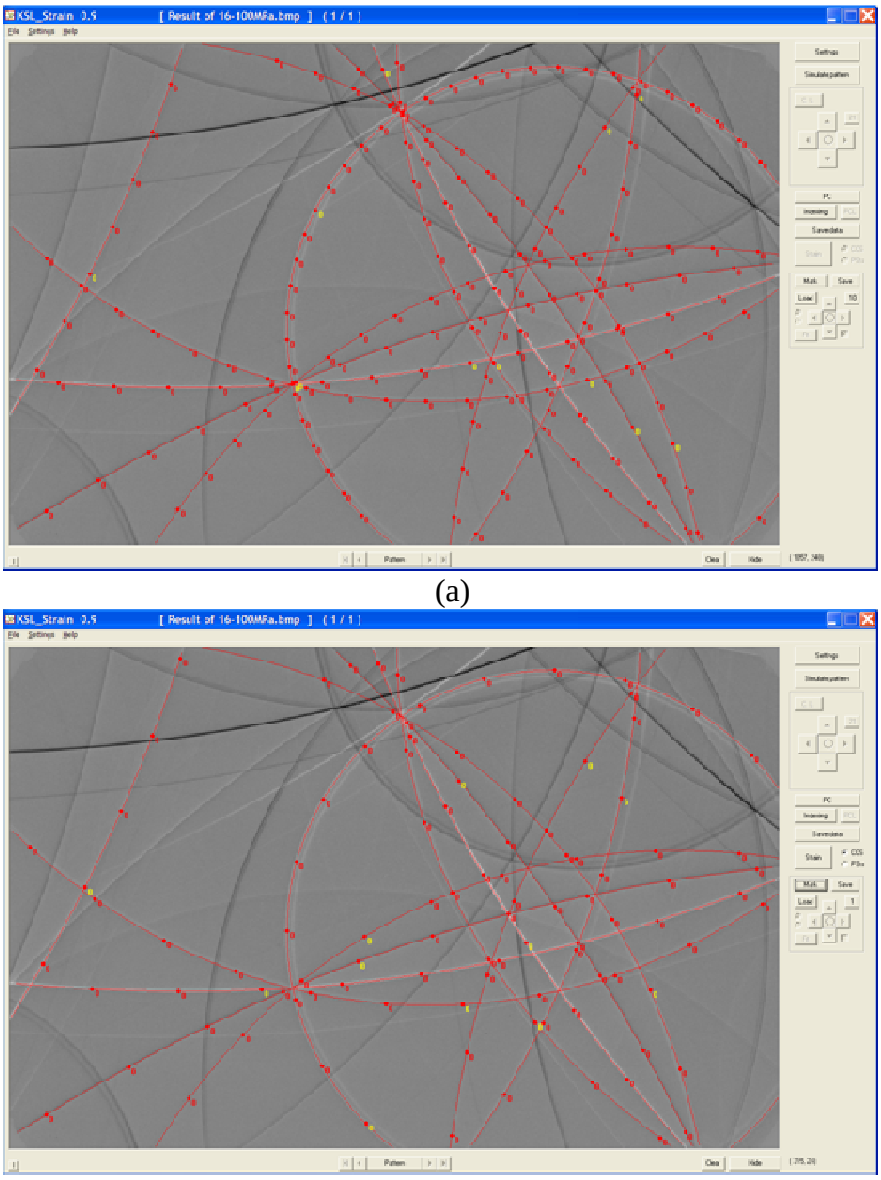
- de s'affranchir des problèmes de positionnement manuel des lignes liés à la dynamique de la diffraction, car le profil complet est utilisé ;
- d'automatiser le traitement des clichés et ainsi de réduire la durée du post-traitement et d'améliorer la reproductibilité.

Les étapes à suivre pour la détermination relative de l'état de déformations entre deux clichés sont détaillées dans ce paragraphe, en s'appuyant sur un exemple, un acier au silicium de structure cubique centrée, composé de grains millimétriques. Deux clichés ont été choisis pour réaliser la comparaison. Ils ont été obtenus dans un même grain chargé à une valeur de contrainte inférieure à la limite d'élasticité dans deux zones espacées d'environ 40 µm. Une étude complète de l'état de déformations de ce matériau sous traction uniaxiale sera développée au chapitre 5.

Tout d'abord, le cliché servant de référence est traité conformément à la procédure classique. Les points sont positionnés manuellement, en utilisant le même critère de positionnement des points pour une ligne donnée (le maximum ou le minimum d'intensité, le point d'inflexion), et un cliché simulé est créé après affinement de tous les paramètres.

Ensuite, une procédure permet de positionner de manière automatique les points sur toutes les lignes de Kossel (même celles qui n'ont pas été utilisées pour l'affinement des paramètres), avec un espacement régulier défini par l'opérateur, puis de sauvegarder l'ensemble des profils de lignes (de largeur 20 pixels) pour tous les points. La Figure III-15 présente deux exemples

de marquage avec des densités de points différentes. On vérifie que les écarts de positionnement des points par rapport aux lignes théoriques sont tous égaux à zéro. Dans la suite de l'étude, la densité de marquage la plus grande a été utilisée.



(a)

(b)

Figure III-15 : Marquage automatique des points sur les lignes avec une densité de points choisie par l'opérateur - densité élevée (a) - densité faible (b)

Le cliché à comparer ainsi que le fichier contenant l'ensemble des profils sont ensuite chargés. Si un décalage important entre les clichés apparaît (dû à une désorientation cristallographique ou à un mouvement de l'échantillon par exemple), un ajustement grossier peut être effectué à la main. En effet, pour que la procédure d'affinement automatique

fonctionne au premier essai, nous avons remarqué qu'il fallait que les profils à comparer ne soient pas distants de plus de quatre pixels des profils de référence. Suivant les cas, quand la distance est supérieure à quatre pixels, la superposition des profils peut réussir après deux itérations ou diverger suite à la première.

La procédure se base sur les coefficients de corrélation déterminés entre les deux profils à comparer et positionne les points aux maxima de ces coefficients de corrélation. Les lignes de Kossel théoriques sont ainsi tracées. La Figure III-16 présente six exemples de corrélations où les profils des deux diagrammes se superposent correctement. Les points associés sont localisés sur la Figure III-17.

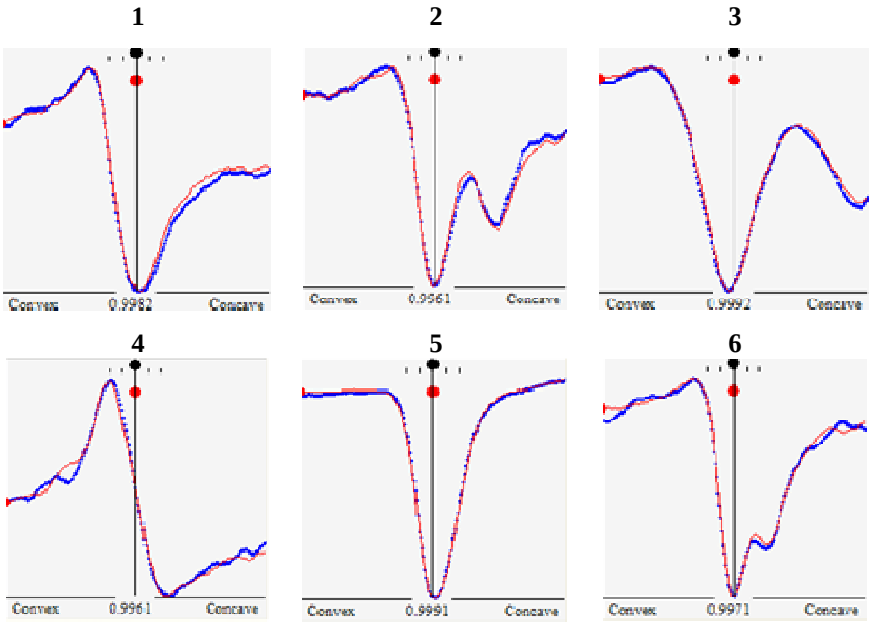


Figure III-16 : Exemples de corrélations où les 2 profils se superposent correctement (en bleu le profil de référence) - le coefficient de corrélation, compris entre 0 et 1, est spécifié en bas de l'image

Pour détecter les artefacts, on peut visualiser directement les profils un à un ou s'aider de la mesure des écarts de positionnement des points par rapport aux lignes théoriques. Nous avons aussi accès à l'écart maximal de tous les points du cliché (Figure III-17). Les artefacts peuvent être des points (voire des lignes complètes) qui présentent des profils de ligne manquant de contraste ou influencés par les lignes voisines. Ces artefacts peuvent être réajustés manuellement, voire supprimés.

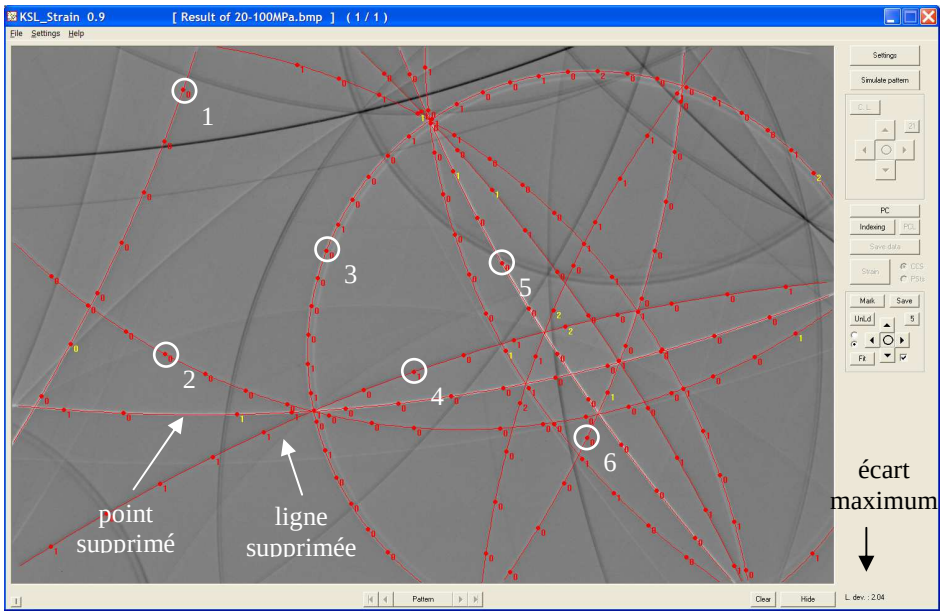


Figure III-17 : Résultat de la corrélation, après suppression de quelques points, d'une ligne complète - localisation des 6 points ayant servi d'exemples pour la Figure III-16

Une fois ces étapes réalisées, un cliché est simulé en prenant en compte les déviations des différents paramètres par rapport au cliché de référence (Figure III-18).

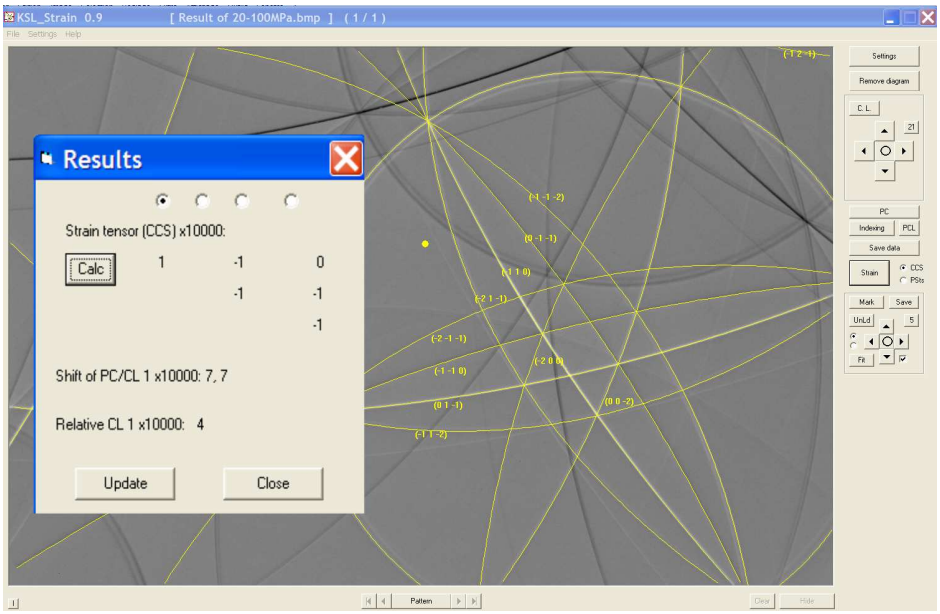


Figure III-18 : Simulation du cliché et obtention des différents paramètres relatifs (tenseur de déformations, distance caméra - échantillon, centre de projection)

Dans le petit encadré « Results », nous avons accès au tenseur de déformations relatives obtenues dans le repère du cristal, ainsi qu'aux variations des coordonnées du centre de projection (PC) et de la distance caméra - échantillon (CL). On remarque que les valeurs obtenues sont assez faibles, ce qui est cohérent avec le fait que l'on ait analysé deux zones d'un même grain pour un même chargement mécanique. On observe par exemple un réajustement de la distance caméra - échantillon de 0,4 µm.

3.3 Influence de la puissance incidente du faisceau d'électrons sur la détermination du tenseur des déformations

Quand on focalise un faisceau d'électrons à la surface d'un matériau, de nombreuses interactions élastiques et inélastiques se produisent. Au cours de la diffusion inélastique, la plupart de l'énergie créée est dissipée sous forme de chaleur au sein du matériau. En microscopie électronique à balayage, quand un échantillon conducteur massif est analysé, l'échauffement du matériau est très faible en mode spot (inférieur à 0,1 K) et encore plus faible en mode balayage [94]. Par contre, les matériaux ayant une mauvaise conductivité thermique et les films minces sont plus sensibles aux problèmes d'échauffement [95].
En microdiffraction Kossel, de forts courants de sonde sont utilisés. Des essais ont donc été effectués afin d'estimer l'élévation de température au sein du matériau lors des acquisitions.

Deux approches sont utilisées pour estimer l'élévation de température d'un matériau irradié par un faisceau d'électrons. La première consiste à augmenter l'énergie du faisceau électronique jusqu'à la fusion du matériau. Celle-ci ne fonctionne évidemment que pour les matériaux à bas point de fusion [96]. La deuxième méthode consiste à utiliser un thermocouple ayant une résolution spatiale inférieure au micromètre. Des thermocouples déposés sous forme de film mince à la surface de l'échantillon répondent au cahier des charges, mais la mise en œuvre est difficile [97].

Une troisième méthode permettant de mesurer précisément l'élévation de température locale a été développée et est présentée dans ce paragraphe. Elle consiste à utiliser la microdiffraction Kossel pour déterminer de manière précise les variations de paramètres de maille d'un matériau quand il est bombardé par des faisceaux électroniques de puissance différente. Des

analyses similaires ont été effectuées par Harris [98] en 1974, pour déterminer les paramètres cristallins d'un acier en prenant en compte la possible élévation de température lors de l'acquisition des clichés.

3.3.1 Présentation de l'approche

Notre méthode pour estimer l'élévation de température au sein du matériau lors des acquisitions a consisté à enregistrer des clichés de diffraction Kossel pour différentes puissances incidentes du faisceau d'électrons.

La puissance du faisceau d'électrons W est définie par :

$$W = E_0 \times I_0 \qquad \text{(III-4)}$$

avec E_0, la tension d'accélération, et I_0, le courant de sonde.

Pour chaque puissance, le paramètre de maille du matériau a été déterminé à partir du logiciel KSLStrain. Connaissant le coefficient d'expansion thermique du matériau, l'élévation de température a été déduite de la dilatation de la maille. Les temps d'acquisition des clichés de Kossel varient, selon la puissance du faisceau électronique, de quelques dizaines de secondes à quelques minutes. Nous supposerons que les échauffements locaux au point d'impact du faisceau électronique atteignent une valeur stabilisée dans un temps très inférieur aux temps d'expositions, puisque la température n'évolue plus durant l'acquisition.

Deux matériaux ont été choisis pour ces expériences avec des conductivités thermiques très distinctes donc des sensibilités à l'échauffement différentes :

- un monocristal de germanium provenant d'un wafer, fourni par le CEA (Commissariat à l'Energie Atomique, Grenoble) ;
- un monocristal de cuivre ayant subi un polissage électrolytique.

Ils sont supposés être libres de contrainte : la détermination du paramètre de maille ne doit donc pas être affectée par un état de déformation quelconque.

Les différents clichés Kossel ont été acquis en focalisant le faisceau d'électrons toujours à la même position, choisie de manière arbitraire, à la surface du matériau. Ceci permet d'éviter

des fluctuations du paramètre de maille qui pourraient provenir des variations locales de composition chimique ou de préparation de surface.

Pour chaque matériau, deux séries de clichés ont été enregistrées afin de vérifier la fiabilité de l'approche :

- pour le germanium, l'évolution du paramètre de maille a été suivie en faisant varier la puissance du faisceau d'électrons dans le sens croissant pour deux échantillons ;
- pour le cuivre, l'évolution du paramètre de maille a été suivie en faisant varier la puissance du faisceau d'électrons dans les sens croissant et décroissant sur un échantillon.

La Figure III-19 présente l'allure des clichés expérimentaux et simulés par KSLStrain pour ces deux matériaux. Ces derniers ont été obtenus à partir d'un nombre donné de coniques repérées manuellement sur les clichés expérimentaux et permettent d'obtenir les paramètres cristallins des matériaux.

Pour le positionnement manuel des lignes, les coniques correspondant aux familles de plans ayant les indices hkl les plus élevés et présentant un contraste suffisant pour le positionnement à l'aide du profil de ligne ont été privilégiées. Pour comparer entre eux les différents clichés, les mêmes réflexions, munies du même nombre de points les décrivant, ont été prises en compte.

Pour le cuivre, 14 réflexions ont été prises en compte pour la détermination du paramètre de maille :

- deux réflexions de la famille de plans {222}, angle $2\theta \approx 95{,}1°$;
- une réflexion de la famille de plans {400}, angle $2\theta \approx 116{,}9°$;
- sept réflexions de la famille de plans {331}, angle $2\theta \approx 136{,}5°$;
- quatre réflexions de la famille de plans {420}, angle $2\theta \approx 144{,}7°$.

De la même manière, pour le germanium, 10 réflexions ont été prises en compte :

- deux réflexions de la famille de plans {331}, angle $2\theta \approx 57{,}8°$
- une réflexion de la famille de plans {422}, angle $2\theta \approx 65{,}8°$;
- une réflexion de la famille de plans {660}, angle $2\theta \approx 140{,}3°$;
- quatre réflexions de la famille de plans {822}, angle $2\theta \approx 140{,}3°$;
- deux réflexions de la famille de plans {840}, angle $2\theta \approx 164{,}9°$.

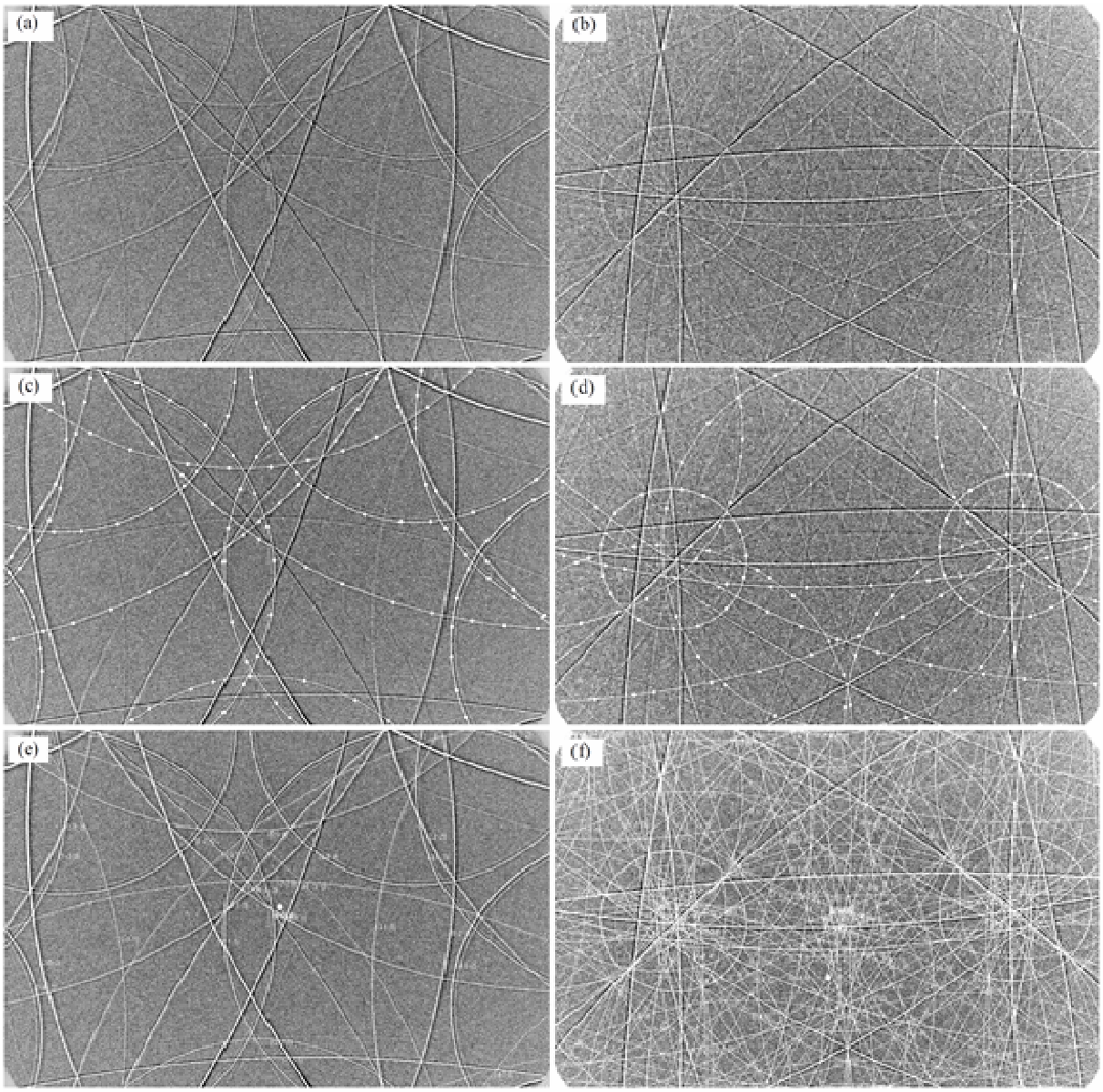


Figure III-19 : Exemples de clichés Kossel expérimentaux pour le cuivre (a) et le germanium (b) – Repérage manuel des coniques sur les clichés pour le cuivre (c) et le germanium (d) – Clichés Kossel simulés après affinement des différents paramètres pour le cuivre (e) et le germanium (f)

3.3.2 Echauffement local du matériau soumis au faisceau électronique

L'augmentation de température locale, $\Delta\vartheta$, d'un matériau massif soumis à un faisceau d'électrons de puissance W est gouvernée par la formule de Castaing [33] :

$$\Delta\vartheta = \frac{W}{2\pi Jc}\left(\frac{1}{r} - \frac{1}{R}\right) \qquad \text{(III-5)}$$

avec J le coefficient de conversion (4,18 $J.cal^{-1}$), c la conductivité thermique de l'échantillon ($cal.s^{-1}.K^{-1}.cm^{-1}$), R la dimension de l'échantillon (cm) et r la dimension de la zone interagissant avec le faisceau d'électrons (cm). Comme R est typiquement de l'ordre du centimètre et r de l'ordre du micromètre, le terme $\frac{1}{R}$ peut être négligé. On obtient, dans le système international :

$$\Delta\vartheta = \frac{W}{2\pi Cr} \qquad \text{(III-6)}$$

avec C la conductivité thermique du matériau ($W.m^{-1}.K^{-1}$).

Soit a_{true} le paramètre de maille du matériau sans échauffement et a_{meas} le paramètre de maille du matériau soumis au faisceau électronique. On a :

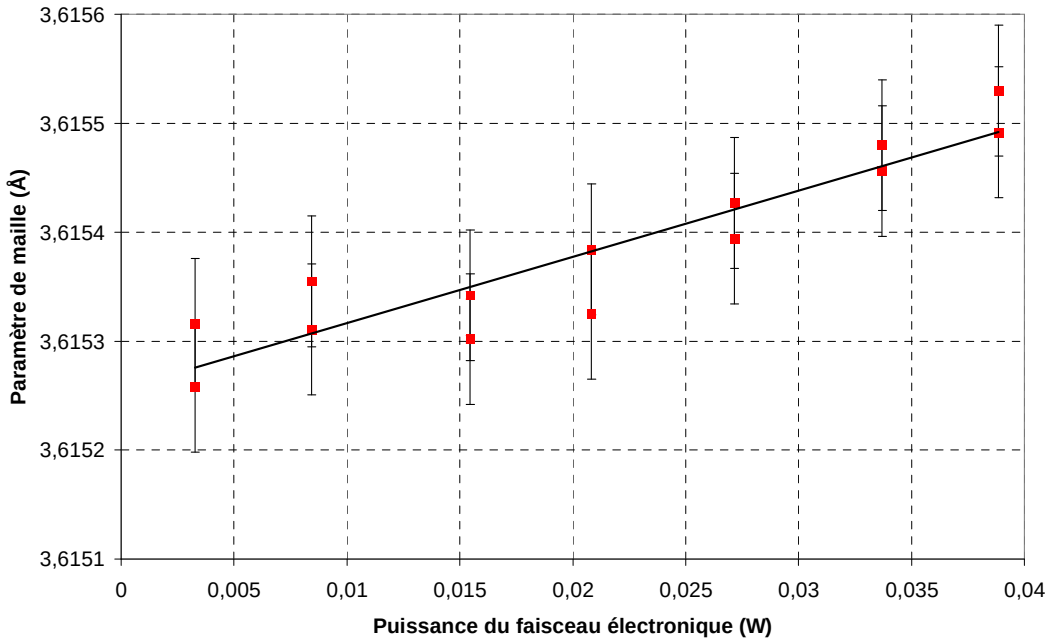
$$a_{meas} = a_{true}(1 + \alpha \cdot \Delta\vartheta) \qquad \text{(III-7)}$$

avec α le coefficient linéaire d'expansion thermique du matériau (K^{-1}).

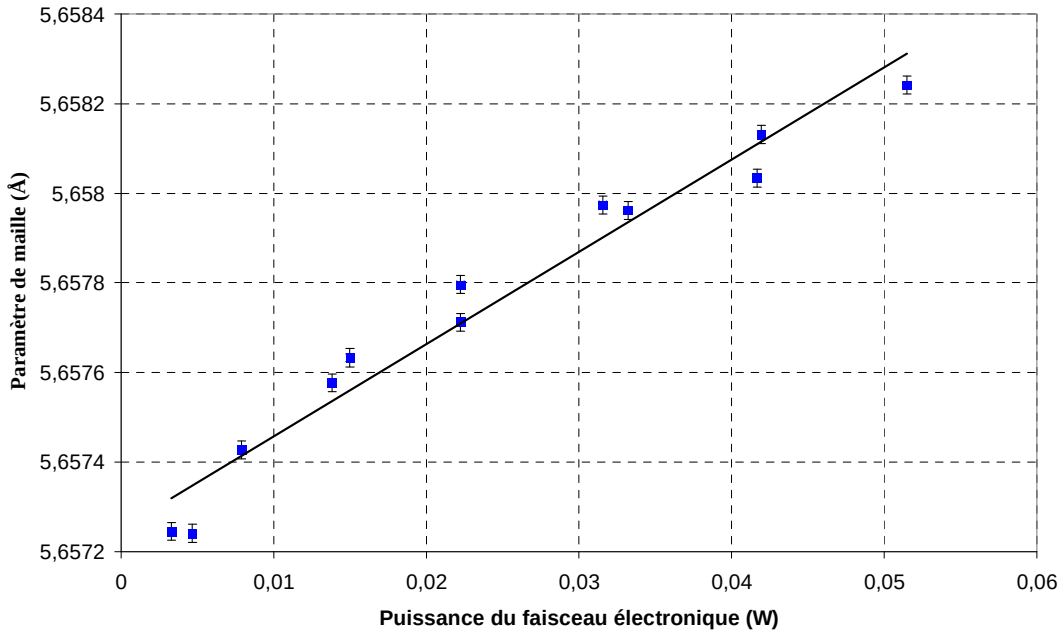
Une relation linéaire entre a_{meas} et W peut donc s'écrire :

$$a_{meas} = a_{true}\left(1 + \frac{\alpha W}{2\pi Cr}\right) \qquad \text{(III-8)}$$

Ainsi, pour chaque matériau, les paramètres de maille déterminés à partir des clichés Kossel ont été tracés en fonction de la puissance du faisceau d'électrons appliquée au matériau lors de l'acquisition (Figure III-20).



(a)



(b)

Figure III-20 : Evolution du paramètre de maille déterminé par microdiffraction Kossel en fonction de la puissance incidente du faisceau électronique pour les monocristaux de cuivre (a) et de germanium (b)

Les incertitudes dans la détermination des paramètres de maille sont reportées Figure III-20. Elles sont indicatives, estimées à partir du logiciel KSLStrain. Elles sont de 6.10^{-5} pour le cuivre et de 2.10^{-5} pour le germanium.

La précision est meilleure dans le cas du germanium, à cause de différents facteurs :

- la longueur d'onde plus faible et la cristallographie cubique diamant conduisent à l'apparition de cercles complets sur les clichés, très sensibles aux déformations du réseau cristallin ;
- la pureté du matériau conduit à des lignes très étroites, positionnées avec plus de précision ;
- la faible conductivité thermique conduit à des variations plus importantes du paramètre de maille.

On remarque que le paramètre de maille évolue linéairement avec la puissance incidente du faisceau électronique. Les équations des régressions linéaires, représentées sur la Figure III-20, sont exprimées en Angströms, la puissance étant en Watt :

$$a_{meas}(Cu) = 3{,}61526\left(\pm 3.10^{-5}\right) + 0{,}00608\left(\pm 0{,}00133\right)\cdot W \qquad \text{(III-9)}$$

$$a_{meas}(Ge) = 5{,}65725\left(\pm 1.10^{-5}\right) + 0{,}02057\left(\pm 0{,}00038\right)\cdot W \qquad \text{(III-10)}$$

Pour le germanium, quatre zones supplémentaires ont été analysées pour une puissance de 0,0315 W. Ces zones micrométriques ont été choisies à environ 50 µm de la zone principale dans les quatre directions opposées. Un écart-type de 2.10^{-5} a été obtenu à partir des résultats de paramètres de maille (Tableau III-2). Ceci est en accord avec l'incertitude calculée par le logiciel.

Mesure	Paramètre de maile (Å)
1 (zone principale)	5.65797
2	5,65798
3	5,65802
4	5,65799
5	5,65797

Tableau III-2 : Paramètres de maille obtenus sur un monocristal de germanium, pour une puissance donnée, à partir de l'analyse des clichés Kossel provenant de la zone principale et de quatre zones supplémentaires espacées de 50 µm

A partir des équations (III-9) et (III-10) et en prenant comme coefficients d'expansion thermique $16{,}5.10^{-6}$ K^{-1} pour le cuivre et 6.10^{-6} K^{-1} pour le germanium [99], l'échauffement local des matériaux, en Kelvin, peut être calculé par les formules suivantes :

$$\Delta\vartheta(\mathrm{Cu}) = 102\,(\pm 22)\cdot \mathrm{W} \qquad \text{(III-11)}$$

$$\Delta\vartheta(\mathrm{Ge}) = 606\,(\pm 11)\cdot \mathrm{W} \qquad \text{(III-12)}$$

L'échauffement local $\Delta\vartheta$ peut être considéré comme l'augmentation moyenne de température au sein du volume dans lequel ont été générés les rayons X diffractés par le matériau. L'échauffement maximal, $\Delta\vartheta_m$, atteint au point d'impact peut être calculé, dans le cas d'un échantillon massif, d'après l'équation suivante [33] :

$$\Delta\vartheta_m = 1{,}5\cdot\Delta\vartheta \qquad \text{(III-13)}$$

Des valeurs d'échauffements locaux ont été déterminées à partir des équations (III-11) et (III-12) pour trois différentes puissances du faisceau électronique et sont représentées Tableau III-3.

Puissance du faisceau d'électrons (W)		0,003	0,015	0,03
Cu	$\Delta\vartheta$ (K)	0,3	1,5	3
	$\Delta\vartheta_m$ (K)	0,45	2,3	4,5
Ge	$\Delta\vartheta$ (K)	1,8	9	18
	$\Delta\vartheta_m$ (K)	2,7	13,5	27

Tableau III-3 : Elévations de température locales en fonction de la puissance du faisceau électronique.

$\Delta\vartheta$: échauffement local. $\Delta\vartheta_m$: échauffement maximal

Ces résultats montrent que les élévations de température demeurent assez faibles pour des échantillons massifs conducteurs, même si de fortes puissances sont appliquées.

A partir de l'équation (III-6), il est possible de remonter à la dimension r représentant le rayon de la demi-sphère d'où ont été générés les clichés de Kossel. En utilisant des valeurs de conductivité thermique respectivement de 400 et 60 $W.m^{-1}.K^{-1}$ pour le cuivre et le germanium [99], on obtient :

- ✓ $r_{Cu} = 3{,}9 \pm 0{,}9$ µm ;
- ✓ $r_{Ge} = 4{,}4 \pm 0{,}1$ µm.

Ces résultats sont en accord avec les conclusions de la partie 2.3.3, traitant de la résolution spatiale de la technique à partir des simulations de Monte-Carlo.

3.3.3 Conséquence sur le tenseur complet des déformations

En appliquant une puissance élevé, égale à 0,03 W, nous avons remarqué que la maille du cuivre et du germanium se dilatait d'environ 5.10^{-5} et $1{,}1.10^{-4}$ respectivement.

Un calcul simple peut être effectué afin d'estimer les dilatations pour deux autres matériaux étudiés aux chapitres suivants : le fer et le nickel. En prenant comme coefficient d'expansion thermique $11{,}8.10^{-6}$ K^{-1} pour le fer et $13{,}4.10^{-6}$ K^{-1} pour le nickel, comme valeur de conductivité thermique respectivement 80 et 91 $W.m^{-1}.K^{-1}$ pour le fer et le nickel [99] et en choisissant une dimension r représentant le rayon de la demi-sphère d'où ont été générés les clichés de Kossel analogue au cuivre, on obtient une dilatation de la maille de l'ordre de $1{,}8.10^{-4}$ pour les deux matériaux. Cette valeur est inférieure à la résolution estimée de la technique, mais ne peut pas être négligée.

Dans le cas idéal où l'échauffement conduirait à une simple dilatation uniforme de la maille dans les trois directions, l'état de contraintes que l'on souhaite déterminer ne serait pas modifié. Il suffirait seulement d'ajuster le paramètre de maille du matériau non contraint. Ainsi, les tenseurs complets de déformations ont été comparés pour les différentes puissances de faisceau en utilisant le module de post-traitement relatif.

Cette étude a été réalisée seulement sur le cuivre. En effet, le module de traitement relatif des clichés ne peut positionner, pour l'instant, que 32 coniques de manière automatique et dans l'ordre croissant des indices hkl. Cela ne pose pas de problèmes pour la plupart des matériaux. Mais, pour le germanium, qui présente beaucoup de plans diffractants, les lignes de Kossel d'indices hkl élevés très sensibles à l'état de déformation (tels les deux petits cercles appartenant à la famille de plans {840}) ne peuvent pas être utilisées pour le calcul (Figure III-21). Pour le cuivre, 17 lignes ont été prises en compte pour la corrélation (Figure III-22).

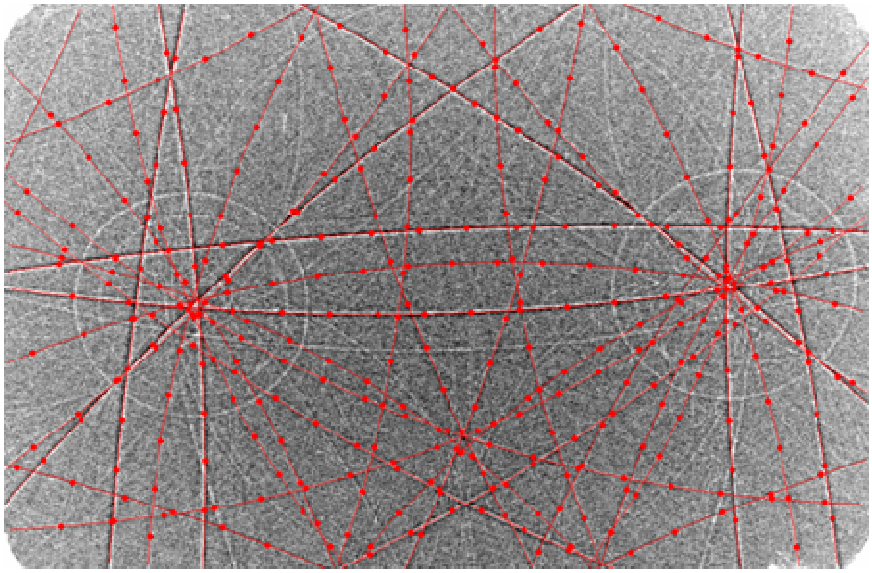


Figure III-21 : Marquage automatique des 32 premières lignes de Kossel pour un cliché obtenu sur un monocristal de germanium - les lignes d'indices élevés sont manquantes

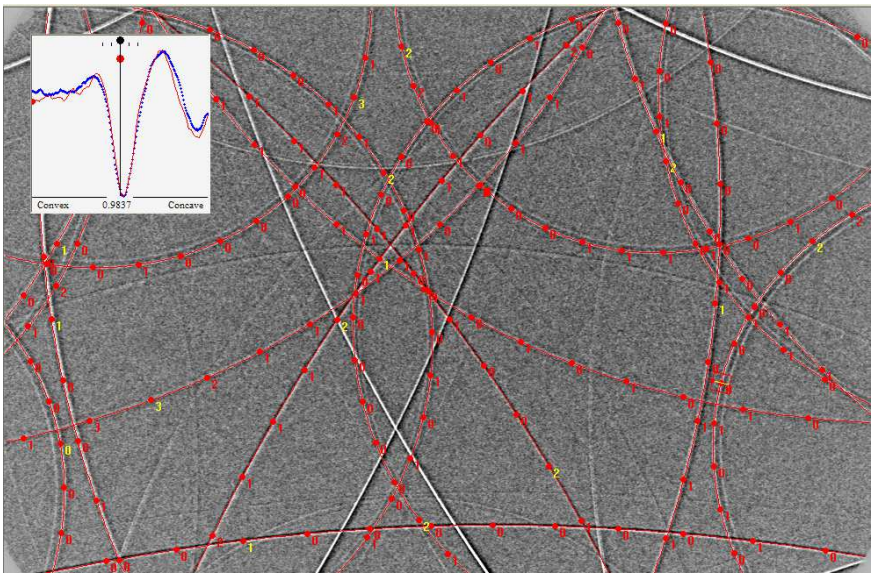


Figure III-22 : Analyse de déformation relative pour le cuivre - exemple d'un résultat de corrélation des 2 clichés à comparer

Deux séries de clichés ont été enregistrées dans les sens croissant et décroissant de la puissance du faisceau électronique. Pour chaque série de mesures, le cliché correspondant au courant de sonde le plus faible a servi de référence. Ainsi, l'état relatif de déformation sera nul pour la puissance de faisceau la plus faible, notée P_0. Pour les six autres puissances, la moyenne des deux mesures (croissant et décroissant) a été prise en compte. Les états de déformations relatifs ont été déterminés dans la base du cristal (Tableau III-4).

Puissance du faisceau		$\Delta\varepsilon_{11}$ ($x10^{-4}$)	$\Delta\varepsilon_{22}$ ($x10^{-4}$)	$\Delta\varepsilon_{33}$ ($x10^{-4}$)	$\Delta\varepsilon_{12}$ ($x10^{-4}$)	$\Delta\varepsilon_{13}$ ($x10^{-4}$)	$\Delta\varepsilon_{23}$ ($x10^{-4}$)
Dénomination	Valeur (W)						
P_0 (référence)	0,0033	0	0	0	0	0	0
P_1	0,0084	-0,2	0,1	0,1	-0,1	0,2	0
P_2	0,0154	0,2	0,1	-0,1	-0,3	0,1	0,1
P_3	0,0208	0,3	0,2	0,1	-0,1	-0,1	0
P_4	0,0271	0,5	0,5	0,4	0,1	-0,2	-0,2
P_5	0,0337	1	0,7	0,6	0,2	-0,4	-0,3
P_6	0,0388	1,2	0,8	0,5	0,4	-0,4	-0,4

Tableau III-4 : Etats de déformation relatifs dans la base du cristal, déterminés par le logiciel KSLStrain, en utilisant comme référence le cliché obtenu à la puissance P_0

On remarque que les composantes normales du tenseur de déformations dans la base du cristal évoluent légèrement à la hausse quand on augmente la puissance du faisceau électronique. Elles atteignent des valeurs de l'ordre de 5.10^{-5} pour une puissance de 0,03W. Ce constat est cohérent avec la dilatation de la maille causée par l'élévation de la température au sein du matériau. En prenant comme référence le paramètre de maille obtenu à la puissance P_0, la dilatation de la maille $\frac{\Delta a}{a}$ a été calculée à partir des résultats de paramètres de maille déterminés au paragraphe 3.3.2. Ces résultats ont été comparés aux composantes normales du tenseur des déformations relatives (Figure III-23). On remarque que les ordres de grandeur sont similaires jusqu'à la puissance P_4. Pour P_5 et P_6, l'écart atteint 5.10^{-5} avec une des trois composantes. Les composantes de cisaillement du tenseur de déformations ont aussi tendance à s'écarter des valeurs de référence en accompagnant l'évolution des composantes normales. Les valeurs relatives atteintes sont de l'ordre de 2.10^{-5} pour pour une puissance de 0,03W. Elles restent donc négligeables.

Cette étude a permis de vérifier que l'échauffement conduit de manière prépondérante à une augmentation des composantes normales du tenseur des déformations dans la base du cristal qui, si elles sont uniformes dans les trois directions du cristal, n'influenceront pas l'état de contraintes que l'on souhaite estimer. Les composantes de cisaillement, qui ont une influence directe sur l'état de contraintes, semblent moins affectées par l'élévation de température.
Il est tout de même conseillé de travailler à des puissances de sonde les plus faibles possibles et inférieures à 0,03W. De plus, lors d'études comparatives, il est préférable de maintenir une puissance de faisceau constante.

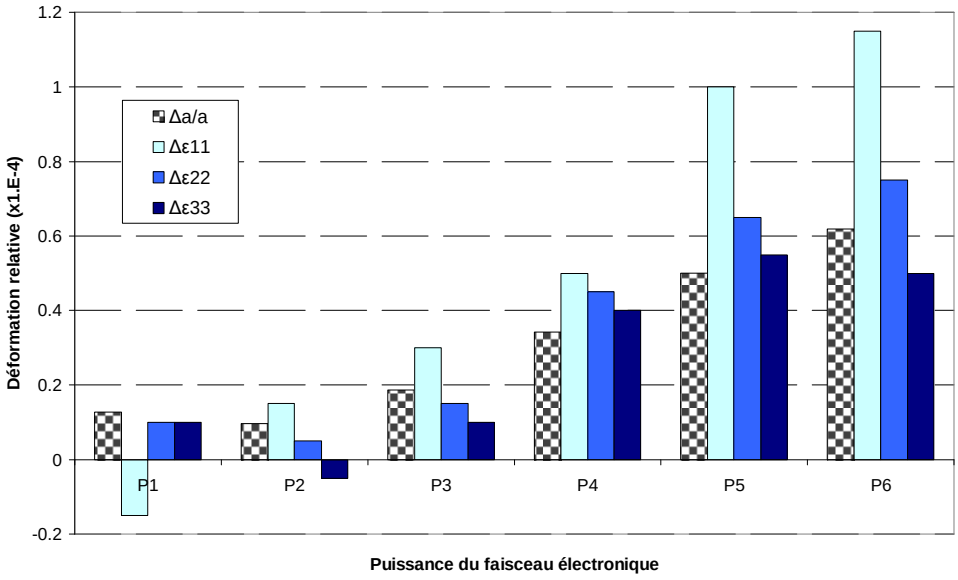


Figure III-23 : Comparaison de l'évolution des composantes normales du tenseur des déformations et de la dilatation de la maille

3.4 Bilan

Dans ce chapitre, nous avons présenté la méthodologie permettant d'obtenir les états de déformation absolus et relatifs à l'aide d'un logiciel de post-traitement développé en collaboration avec Adam Morawiec. Pour cela, l'opérateur doit repérer les coniques manuellement en se basant sur les profils d'intensité. Cette phase est délicate car les profils d'intensité sont variés et sont influencés par la dynamique de la diffraction des rayons X. Une estimation du nombre minimal de coniques à positionner a été effectuée pour différents matériaux : une résolution de 2.10^{-4} dans la détermination des six composantes du tenseur des déformations dans la configuration actuelle peut raisonnablement être atteinte. Nous avons aussi réalisé une étude afin de mesurer l'élévation de température du matériau lors de la focalisation d'un faisceau électronique très énergétique. Pour des matériaux massifs, l'élévation de température et les conséquences sur la détermination des déformations demeurent assez faibles.

Chapitre 4 : Validation de la détermination des contraintes par analyses comparatives sur monocristaux

Pour valider l'analyse de contraintes par microdiffraction Kossel, le choix s'est porté sur l'étude de monocristaux sollicités mécaniquement *in situ*. La contrainte déterminée peut ainsi être comparée à la contrainte imposée, et d'autres techniques de diffraction peuvent être utilisées comme outils de comparaison. Dans ce chapitre, nous présenterons tout d'abord le principe de détermination de l'état de contraintes intergranulaires à partir des techniques de diffraction des rayons X et neutronique. Ensuite, des états de contraintes déterminés à partir des clichés de Kossel collectés sur des monocristaux supposés sans contraintes sont exposés. Enfin, les résultats sur des monocristaux sous sollicitation mécanique, à partir d'une excitation électronique (laboratoire) et d'une excitation synchrotron (grands instruments), sont exposés et comparés aux données obtenues par diffraction des rayons X et par diffraction neutronique.

4.1 Méthodologie pour l'analyse de contraintes monocristalline par diffraction

4.1.1 Présentation de la méthode

L'analyse diffractométrique permet de déterminer l'état de déformation d'un matériau cristallin en utilisant les distances interréticulaires comme jauges internes de déformations [1]. Les variations des distances interréticulaires se traduisent par des déplacements des pics de diffraction (Figure IV-1), mesurables avec des détecteurs appropriés.

La résolution spatiale de l'analyse diffractométrique est directement liée à la taille du faisceau incident impactant l'échantillon. Elle est de l'ordre du millimètre dans les installations de diffraction des rayons X de laboratoire.
Ainsi, deux types d'analyse des contraintes sur échantillons massifs sont possibles suivant la taille de grains du matériau :

- une analyse macroscopique (ordre I) sur échantillons polycristallins à grains fins et orientés aléatoirement ;
- une analyse monocristalline (ordre II) sur monocristaux ou échantillons polycristallins dont la taille des grains est supérieure à 300 µm (multicristaux).

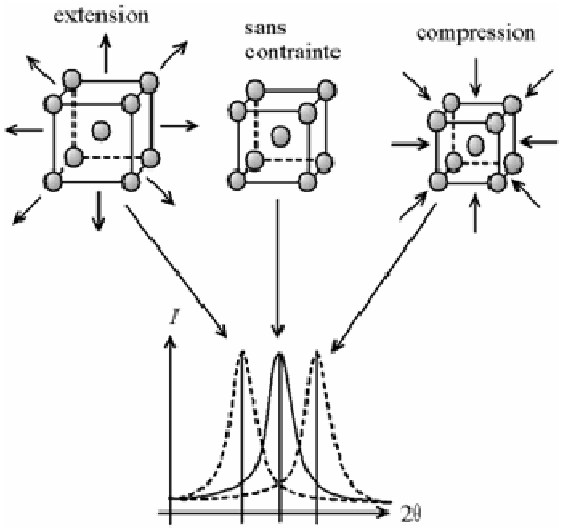


Figure IV-1 : Principe général des mesures de déformations par diffractométrie - déplacement du pic de diffraction entre un état déformé et un état non déformé

Les premiers travaux concernant l'analyse monocristalline viennent d'Ortner en 1983 [100] et de Pathiraj et Koster en 1984 [101]. Cette méthode fut ensuite utilisée, par exemple, par Gergaud [102] et Eberl [103] sur des multicristaux en silicium et en nickel.

La première étape consiste à déterminer l'orientation cristallographique (hkl) [uvw] du grain considéré, à partir des valeurs angulaires des maxima d'intensité d'une figure de pôles. Il est préférable de choisir une famille de plans diffractants de faible multiplicité et d'intensité de diffraction maximale. La connaissance de l'orientation cristallographique du cristal permet ensuite de déduire la position de n'importe quel plan (hkl) de ce grain.

La seconde étape consiste à déterminer les distances interréticulaires à partir de la position des pics de diffraction, d'au moins six plans (hkl) indépendants. Il est conseillé de choisir des plans d'indices élevés (angle de Bragg élevé) pour accroître la précision dans la mesure, d'après la loi reliant l'angle de Bragg et la sensibilité à la déformation :

$$\varepsilon = -\cot\theta_0 \cdot \Delta\theta \qquad \text{(IV-1)}$$

Par exemple, dans le cas de l'analyse d'un monocristal de cuivre, on privilégiera l'acquisition d'une figure de pôles {111} pour orienter le cristal. Puis on utilisera, dans le cas d'un rayonnement incident de longueur d'onde 1,54 Å, les plans des familles {331} et {420} pour l'analyse de contraintes (Figure IV-2).

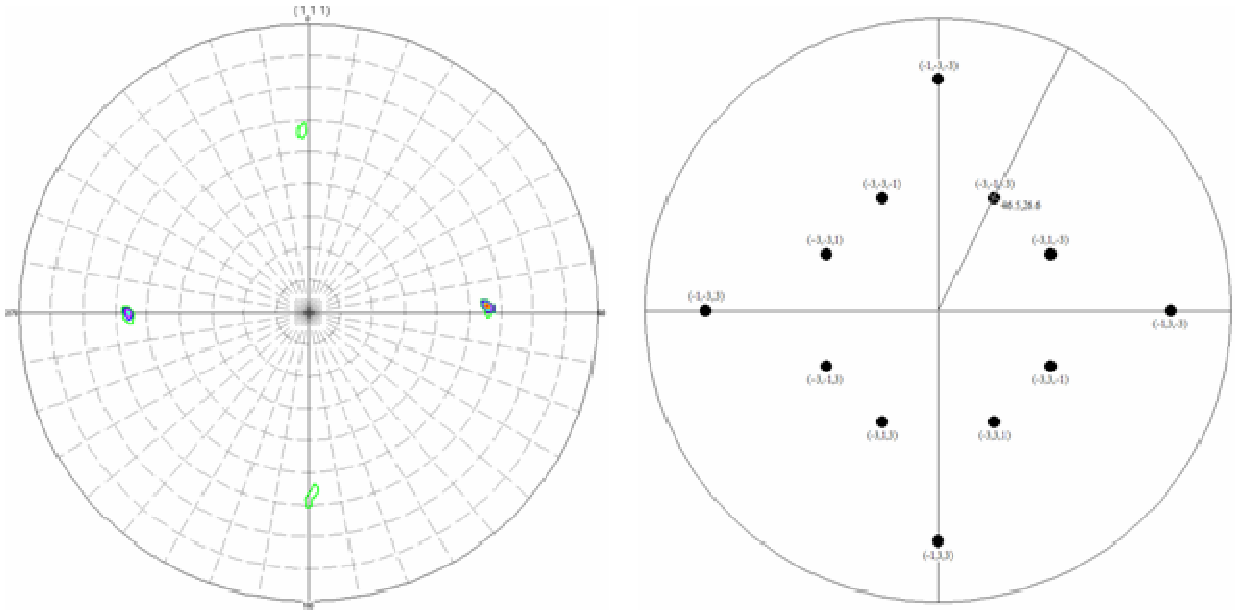


Figure IV-2 : (a) Exemple d'une figure de pôles {111} expérimentale, utilisée pour orienter un monocristal de cuivre - (b) Figure de pôles {331} déduite de l'orientation, simulée avec le logiciel 'Carine v3.1'

Un tenseur, nommé tenseur métrique [104, 105], représentant les paramètres du cristal déformé, est calculé par régression multilinéaire à partir des différentes valeurs de distances interréticulaires expérimentales.

Pour un cristal cubique de paramètre de maille a, le tenseur complet des déformations $\underline{\underline{\varepsilon}}$ est ensuite être déterminé à partir du tenseur métrique $\underline{\underline{g}}$, d'après la relation suivante :

$$\underline{\underline{g}} = a^2 \, (2\underline{\underline{\varepsilon}} + \underline{\underline{\delta}}) \qquad \text{(IV-2)}$$

avec δ le symbole de Kronecker.

Pour déterminer le tenseur des contraintes $\underline{\underline{\sigma}}$, on utilise la loi de Hooke :

$$\underline{\underline{\sigma}} = \underline{\underline{C}}\,\underline{\underline{\varepsilon}} \qquad \text{(IV-3)}$$

avec $\underline{\underline{C}}$ le tenseur de rigidité du cristal.

Si le matériau étudié a une structure cubique, les constantes d'élasticité (matrice symétrique) sont définies par seulement trois paramètres indépendants C_{11}, C_{12} et C_{44} :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{11} \\ \sigma_{22} \\ \sigma_{33} \\ \sigma_{32} \\ \sigma_{13} \\ \sigma_{12} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ & & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ & & & C_{44} & 0 & 0 \\ & & & & C_{44} & 0 \\ & & & & & C_{44} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_{11} \\ \varepsilon_{22} \\ \varepsilon_{33} \\ 2\varepsilon_{32} \\ 2\varepsilon_{13} \\ 2\varepsilon_{12} \end{pmatrix}$$

Les incertitudes en contraintes, pour chaque composante du tenseur, sont déterminées à partir des écarts entre les distances interréticulaires mesurées et les distances interréticulaires recalculées après résolution du système multilinéaire.

Une des difficultés de ce type d'analyse est la connaissance de l'état de référence, c'est-à-dire du paramètre de maille du matériau non contraint. Le mesurer expérimentalement est délicat car tout traitement de relaxation des contraintes est susceptible d'entraîner une modification physicochimique du matériau. Sachant que la diffraction des rayons X ne concerne qu'une fine couche en surface, à cause de la faible pénétration des rayons X dans la matière, il est raisonnable de supposer que la contrainte dans la direction perpendiculaire à la surface libre de l'échantillon est nulle ($\sigma_{33} = 0$). Cette hypothèse permet la détermination directe du paramètre de maille non contraint d'un cristal cubique.

4.1.2 Diffraction des rayons X

Pour effectuer les analyses, nous avons utilisé un diffractomètre de laboratoire de type « Seifert XRD 3003 PTS » (Figure IV-3), équipé des éléments suivants :

- un tube à rayons X muni d'une cible en cuivre (en mode ponctuel), suivi d'un collimateur de diamètre 1 mm ;
- un goniomètre équipé de quatre rotations (ω, 2θ, φ, ψ) permettant d'orienter le cristal pour une réflexion choisie ;
- un monochromateur arrière permettant de filtrer les photons n'ayant pas la longueur d'onde du rayonnement incident ;
- des fentes de Sollers permettant de limiter la divergence axiale des faisceaux diffractés ;
- un détecteur ponctuel à scintillation.

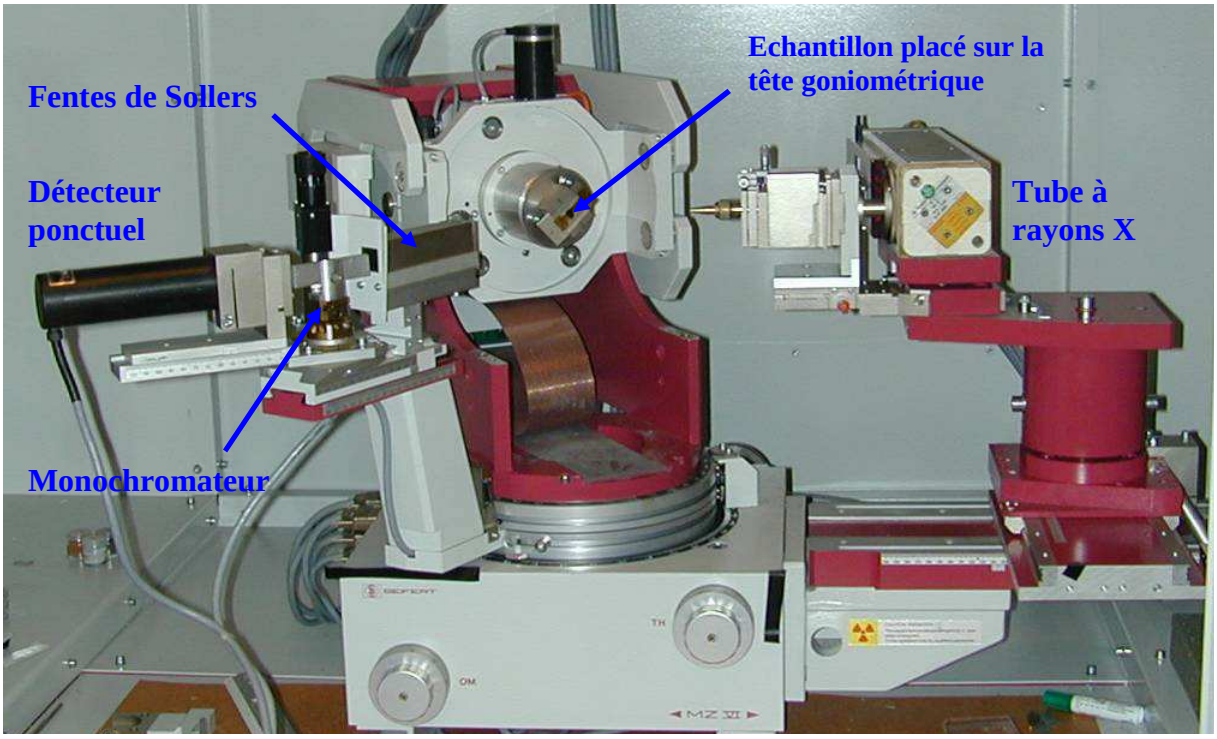


Figure IV-3 : Diffractomètre 4 cercles « Seifert XRD 3003 PTS »

4.1.3 Diffraction des neutrons

Le neutron est une particule élémentaire qui a été découverte en 1932 par James Chadwick. Deux réactions sont utilisées en pratique pour produire des neutrons : la fission et la spallation [106, 107]. La fission est la réaction qui se produit dans un réacteur (et dans une bombe atomique). Un neutron thermique frappe un noyau de ^{235}U. Ce noyau devient très excité et se scinde en plusieurs fragments avec émission d'un nombre variable de neutrons : entre deux et cinq. La spallation consiste à frapper une cible composée d'atomes lourds (U, W, Hg…) avec des protons de haute énergie. Ces noyaux lourds éjectent alors un certain nombre de particules dont une vingtaine de neutrons.

Deux laboratoires français sont spécialisés dans l'analyse de la matière condensée (physique, chimie, biologie, matériaux) à l'aide des neutrons : l'Institut Laue Langevin (ILL) à Grenoble et le Laboratoire Léon Brillouin (LLB) au CEA de Saclay. Les neutrons sont produits par fission au sein de réacteurs type piscine [108].

La longueur d'onde moyenne $\langle\lambda\rangle$ des neutrons, quand ils sont en équilibre thermique avec un milieu à la température T, est donnée par :

$$\langle\lambda\rangle = \frac{h}{\sqrt{3mkT}} \qquad \text{(IV-4)}$$

avec h la constante de Planck, m la masse du neutron et k la constante de Boltzmann.

Avec des neutrons thermalisés par un modérateur à 300 K, la longueur d'onde moyenne des neutrons est du même ordre de grandeur que les distances interatomiques dans la matière condensée. Ils sont donc tout à fait adaptés pour être diffractés par la matière [108].

Contrairement aux rayons X, les neutrons sondent l'intérieur des échantillons, sur un volume de l'ordre du mm^3 au cm^3. En effet, le neutron possède une charge électrique nulle. De ce fait, il peut pénétrer la matière sans se faire arrêter par une barrière coulombienne. Concrètement, l'atténuation d'un faisceau incident d'intensité I_0 due à l'absorption par les noyaux des atomes est donnée par la loi :

$$I = I_0 \cdot e^{-\mu \cdot t} \qquad \text{(IV-5)}$$

avec I l'intensité du faisceau à la sortie d'une plaque d'épaisseur t, μ étant le coefficient d'absorption linéaire. Alors que pour les rayons X, μ est de l'ordre de 100 à 1000 cm^{-1}, la matière est beaucoup plus transparente pour les neutrons car, pour la plupart des matériaux, μ est compris entre 0,01 et 1 cm^{-1} [106].

Des analyses de contraintes ont été réalisées au LLB (Laboratoire Léon Brillouin) sur le site du CEA de Saclay. Plus précisément nous avons travaillé sur la ligne 6T1 (Figure IV-4) équipée d'un goniomètre quatre cercles et spécialisée dans la détermination des textures cristallographiques à partir des neutrons thermiques [109]. Le goniomètre étant dédié aux analyses de textures cristallographiques, il n'est pas adapté pour les analyses de contraintes internes. Par conséquent, seules des analyses relatives ont pu être effectuées en comparant les résultats avant et après sollicitation.

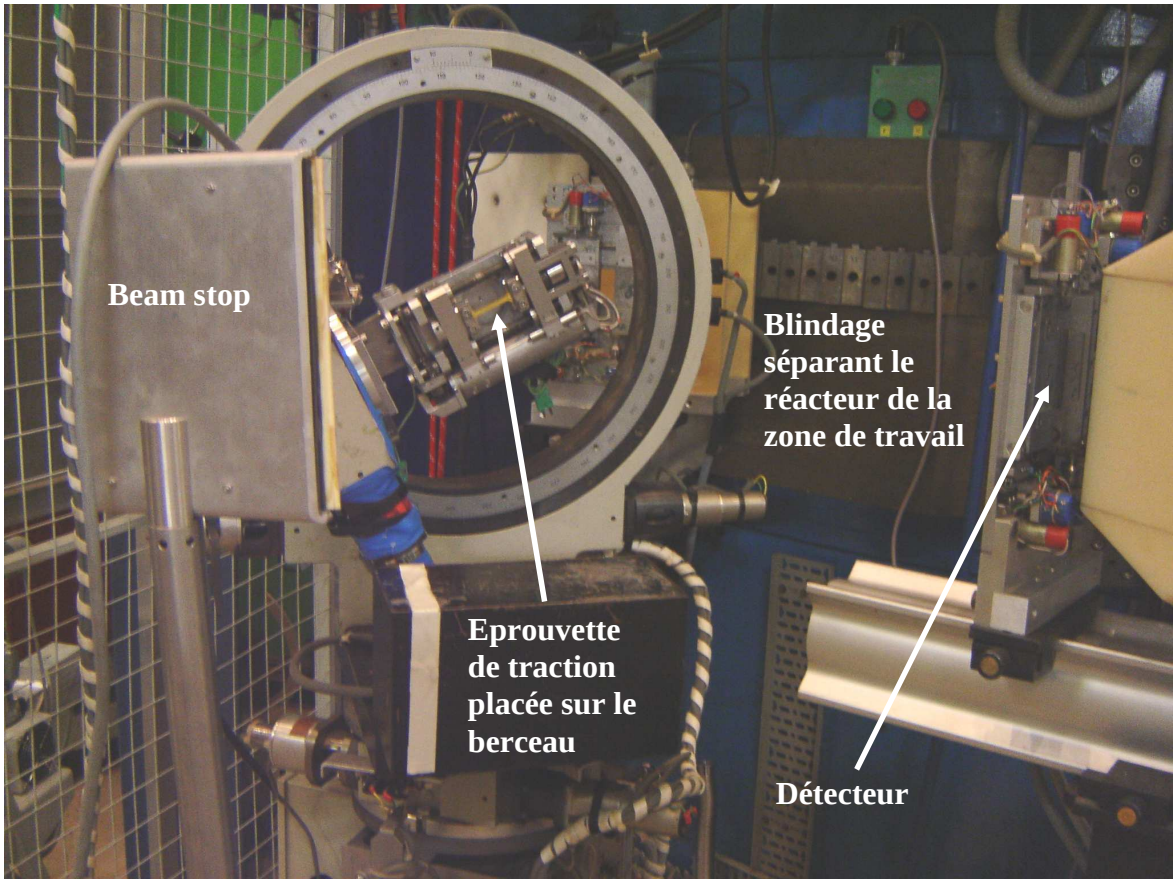


Figure IV-4 : Ligne 6T1 (LLB) - montage utilisé pour les analyses de contraintes *in situ*

La procédure est analogue à celle utilisée pour les analyses par diffraction des rayons X. Avec un faisceau large, on recherche les pôles accessibles en réflexion ou en transmission et on

optimise leurs coordonnées. En effet, la micromachine de traction est susceptible de masquer totalement ou en partie le faisceau incident ou le faisceau diffracté. Puis, avec un faisceau fin, on effectue des balayages en 2θ autour des pôles diffractants. Le détecteur ne peut pas accéder à des angles 2θ supérieurs à 80°. Cette limitation est importante quant à la précision de la technique.
Pour le calcul des tenseurs relatifs en contraintes, un programme développé par Vincent Klosek a été utilisé [110]. Pour cela, la déformation relative associée à chaque plan (hkl) étudié ainsi que l'erreur standard de cette déformation sont calculées par l'opérateur et renseignées dans le programme.

La déformation relative est calculée à partir des déplacements angulaires des angles de diffraction suivant la formule :

$$\varepsilon = \frac{\sin\theta_{0,hkl}}{\sin\theta_{hkl}} - 1 \qquad \text{(IV-6)}$$

avec $\theta_{0,hkl}$, l'angle de Bragg du plan (hkl) à l'état initial et θ_{hkl}, l'angle de Bragg à l'état chargé.

L'erreur standard associée à cette déformation relative est calculée à partir de la formule suivante :

$$\Delta\varepsilon = \frac{\Delta\theta_{0,hkl} + \Delta\theta_{hkl}}{2\tan\theta_{0,hkl}} \qquad \text{(IV-7)}$$

avec $\Delta\theta_{0,hkl}$, l'incertitude associée à la détermination de l'angle de Bragg pour l'état initial et $\Delta\theta_{hkl}$, l'incertitude associée à la détermination de l'angle de Bragg pour l'état chargé. Ces incertitudes expérimentales sont déduites du traitement des pics de diffraction par le logiciel Winplotr.

De la même manière que pour la diffraction des rayons X, les composantes du tenseur des déformations, dans la base du cristal, sont déterminées par la résolution d'un système multilinéaire. Connaissant l'orientation cristallographique et les constantes d'élasticité du matériau, le tenseur des contraintes relatives, dans le repère de l'échantillon, est déduit. Les incertitudes en contraintes sont définies à partir des erreurs standard associées aux calculs des déformations.

4.2 Obtention des contraintes à partir des déformations par microdiffraction Kossel

Une fois le cliché de Kossel analysé, le logiciel KSLStrain donne accès au tenseur des déformations dans la base du cristal, $\underline{\underline{\varepsilon}}^{C}$, ainsi qu'à la matrice d'orientation dans le repère de l'échantillon, déterminée à partir des angles d'Euler et du tilt de l'échantillon, que l'on notera P. La détermination des tenseurs de déformations et contraintes dans le repère de l'échantillon n'est pas encore intégrée au logiciel.

Le tenseur de déformations dans la base de l'échantillon, $\underline{\underline{\varepsilon}}^{S}$, se calcule par la relation de changement de base suivante :

$$\underline{\underline{\varepsilon}}^{S} = P^{-1}\,\underline{\underline{\varepsilon}}^{C}\,P \qquad \text{(IV-8)}$$

Ensuite, de la même manière que pour les analyses monocristallines par diffraction des rayons X, le tenseur de contraintes est déduit via la loi de Hooke :

$$\underline{\underline{\sigma}} = \underline{\underline{\underline{C}}}\,\underline{\underline{\varepsilon}} \qquad \text{(IV-9)}$$

Les calculs de contraintes effectuées en microdiffraction Kossel ont été réalisés en utilisant les composantes du tenseur des rigidités, reportées dans le Tableau IV-1.

Matériau	C_{11} **(GPa)**	C_{12} **(GPa)**	C_{44} **(GPa)**
Acier ferritique [111]	231,4	134,7	116,4
Cuivre [111]	167	120,9	74,6
Germanium [111]	128,5	48,3	66,8
Superalliage AM1 (cf 4.4.2)	247	161	127
Alliage CuAlBe [112]	141,6	127,4	94,2

Tableau IV-1 : Constantes d'élasticité utilisées pour quelques matériaux

Pour les analyses absolues par microdiffraction Kossel, il est nécessaire d'avoir une référence pour la détermination finale du tenseur des contraintes.

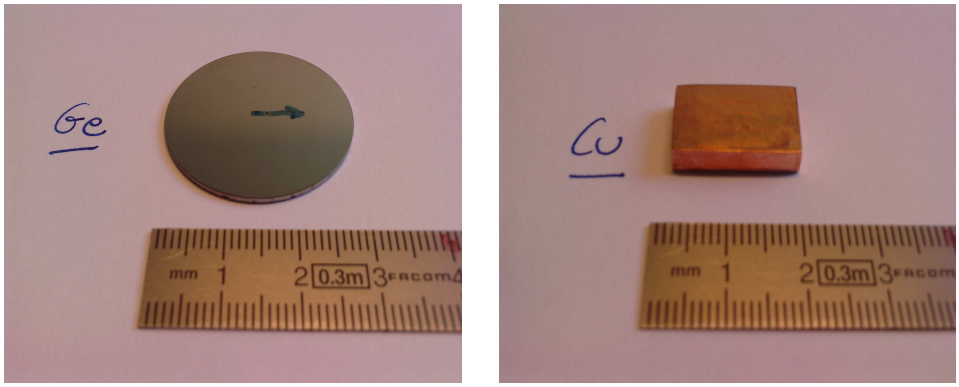
Pour cela, la même hypothèse que pour l'analyse monocristalline par diffraction des rayons X est utilisée, c'est-à-dire que la contrainte dans la direction perpendiculaire à la surface libre de l'échantillon σ_{33} est égale à 0.

Le logiciel permet également d'affiner les six composantes de déformation dans la base du cristal de façon à obtenir un état de contraintes planes dans la base de l'échantillon. Pour cela, il est nécessaire de renseigner la valeur du tilt (pour le changement de repère) et de connaître le paramètre de maille non contraint. On obtient ainsi un tenseur de contraintes biaxial, dans la base de l'échantillon.

La technique d'analyse des contraintes par microdiffraction Kossel étant en cours de développement, des expériences de validation ont été réalisées. Pour cela, nous avons étudié notamment des monocristaux, d'abord libres de contrainte, puis sous chargement mécanique : nous avons comparé les valeurs de contrainte obtenues avec la contrainte macroscopique appliquée et les résultats issus des analyses monocristallines par diffraction.

4.3 Analyses de contraintes sur des monocristaux supposés libres de contraintes

Des monocristaux de germanium et de cuivre (Figure IV-5) ont été choisis pour réaliser les premiers essais à cause de leur facilité d'obtention et de leurs propriétés cristallographiques favorables pour l'émission d'un grand nombre de cônes de Kossel. Leur format permet une manipulation aisée que ce soit dans la chambre du MEB ou sur le goniomètre de diffraction.



(a) (b)

Figure IV-5 : Monocristaux de germanium (a) et de cuivre (b) utilisés pour la comparaison DRX - Kossel

Le monocristal de germanium a été fourni par la société Crystran. Il n'a subi aucun traitement

thermomécanique après son acquisition.

Le monocristal de cuivre a été fabriqué par le laboratoire TECSEN situé à Marseille. Après son obtention, il a subi un polissage mécanique à la pâte diamantée jusqu'à une taille de particules égale à 1 µm, puis un polissage électrolytique dans une solution composée de :

- ✓ 250 ml d'acide orthophosphorique
- ✓ 250 ml d'éthanol
- ✓ 5 g d'urée
- ✓ 50 ml d'alcool isopropylène.
- ✓ 500 ml d'eau

avec l'application d'une tension de 12 V pendant 5 secondes et une densité de courant de l'ordre de 1 $A.cm^{-2}$.

Ces échantillons sont supposés être libres de contraintes. Ils ont été analysés par microdiffraction Kossel ainsi que par diffraction des rayons X.

4.3.1 Monocristal de germanium

L'échantillon a été positionné sur la platine porte-échantillon de telle sorte que les repères des analyses par DRX et par microdiffraction Kossel coïncident. Un seul pointé a été réalisé dans une zone à proximité du centre de l'échantillon.

Le cliché expérimental a été analysé avec le logiciel KSLStrain. Un nombre élevé de lignes de Kossel, 16, a été choisi de façon à maximiser la précision dans la détermination de la contrainte (Figure IV-6). Seules les lignes présentant une longueur suffisante, un contraste assez marqué et un profil de lignes type clair permettant de visualiser le doublet $K_{\alpha 1}$ - $K_{\alpha 2}$ ont été prises en compte. Les lignes présentant une bordure sombre n'ont pas été utilisées.

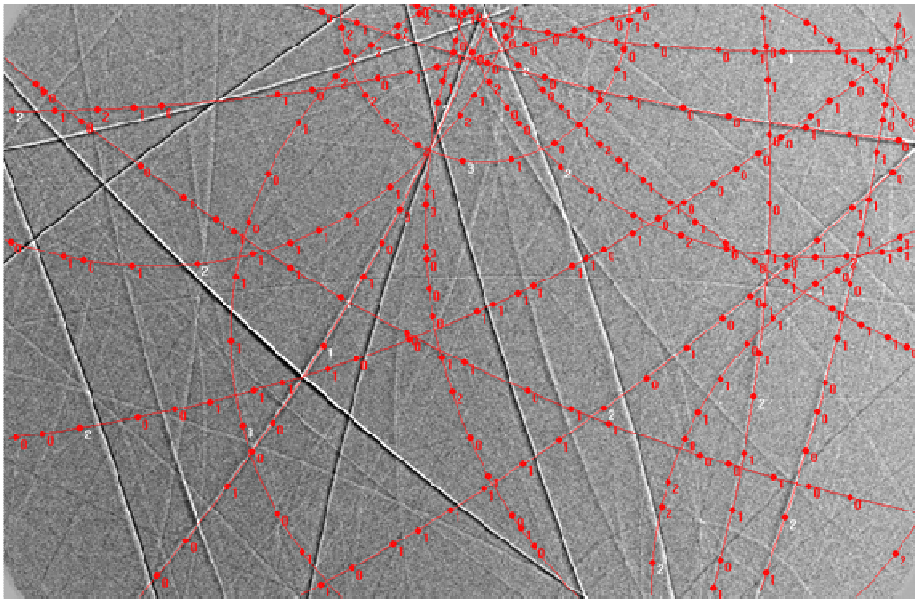


Figure IV-6 : Cliché expérimental obtenu pour le monocristal de germanium avec superposition des 16 lignes positionnées par l'opérateur

Les états de contraintes, dans la base de l'échantillon, ont été déterminés pour deux hypothèses différentes :

(a) en fixant la condition $\sigma_{33}=0$, on obtient :

$$\begin{pmatrix} -21 & 0 & -5 \\ & -11 & 3 \\ & & 0 \end{pmatrix}$$

(b) en utilisant une hypothèse de contraintes planes et en prenant comme paramètre de maille du matériau non contraint la valeur suivante : $a_0 \sim 5{,}6582$ Å. Cette valeur a été déterminée à partir du même cliché en supposant la maille parfaitement cubique. Dans ce cas, on obtient le résultat suivant :

$$\begin{pmatrix} -13 & 1 & 0 \\ & -3 & 0 \\ & & 0 \end{pmatrix}$$

Les incertitudes associées à ces résultats seront évoquées au paragraphe 4.3.3.

Dans les deux cas, on trouve des valeurs similaires à 10 MPa près : σ_{11} est en légère compression et les autre composantes sont proches de 0 MPa. Ces résultats de contraintes

résiduelles en surface sont cohérents avec le fait que ce matériau soit un monocristal supposé non contraint. Des analyses comparatives par DRX ont été effectuées pour corroborer ces résultats.

Après avoir positionné l'échantillon, une figure de pôles de la famille de plans {220} a permis d'orienter le cristal et de localiser les pôles des autres plans cristallins. L'analyse de contraintes a été réalisée à partir de la mesure des distances interréticulaires de six plans de la famille {551} et douze plans de la famille {711}. La Figure IV-7 présente un comparatif des 18 acquisitions permettant de trouver l'angle de Bragg 2θ associé.

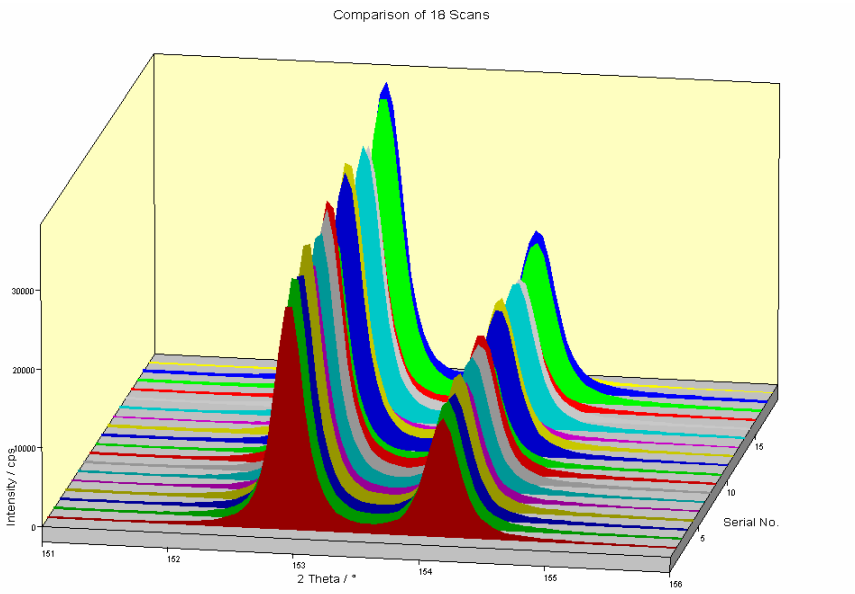


Figure IV-7 : Superposition des 18 acquisitions pour la détermination des angles de Bragg 2θ associés aux 18 plans interréticulaires choisis pour le calcul de l'état de contraintes du monocristal de germanium par analyse DRX

En prenant comme hypothèse que la contrainte normale à la surface de l'échantillon est nulle et en utilisant les constantes d'élasticité du Tableau IV-1, le tenseur de contraintes suivant, dans la base de l'échantillon, a été déterminé :

$$\begin{pmatrix} -20 & -6 & 2 \\ & -20 & 3 \\ & & 0 \end{pmatrix} \pm \begin{pmatrix} 4 & 1 & 1 \\ & 4 & 1 \\ & & 3 \end{pmatrix}$$

On trouve des composantes normales en légère compression et des composantes de cisaillement proches de 0 MPa. Les incertitudes associées à ces résultats sont très faibles car la finesse et l'intensité des pics de diffraction conduit à une très bonne précision dans leur position. Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus par microdiffraction Kossel en fixant $\sigma_{33}=0$.

4.3.2 Monocristal de cuivre

De la même manière, un cliché de microdiffraction Kossel a été enregistré pour le monocristal de cuivre (Figure IV-8) et les états de contraintes, dans la base de l'échantillon, ont été déterminés par les deux méthodes (a) et (b) (Tableau IV-2). Les incertitudes associées à ces résultats seront évoquées au paragraphe 4.3.3.

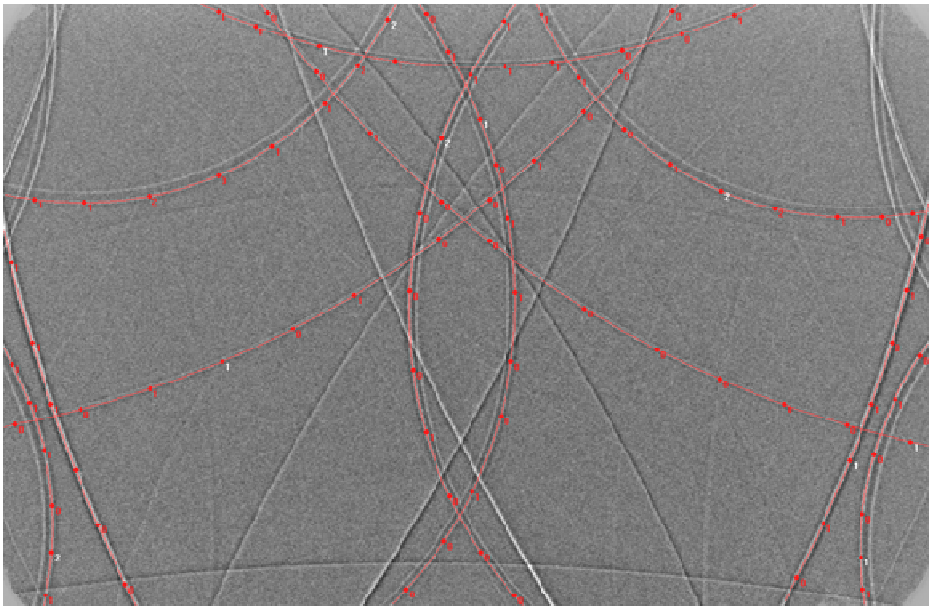


Figure IV-8 : Cliché expérimental obtenu pour le monocristal de cuivre avec superposition des 11 lignes positionnées par l'opérateur

Cas (a)	Cas (b)
$\begin{pmatrix} -17 & -1 & 6 \\ & 11 & 15 \\ & & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} -9 & -1 & 0 \\ & 9 & 0 \\ & & 0 \end{pmatrix}$

Tableau IV-2 : Tenseurs de contraintes absolues (MPa) obtenus par microdiffraction Kossel pour le monocristal de cuivre. Hypothèses : σ_{33}=0 (a), état de contraintes biaxial, a_0 ~ 3,6155 Å (b)

Dans les deux cas, on trouve des valeurs similaires à 15 MPa près : σ_{11} est en légère compression, σ_{22} en légère traction et les valeurs de cisaillement sont faibles. Des analyses comparatives par DRX ont été effectuées pour corroborer ces résultats.

De la même manière que pour le monocristal de germanium, après l'acquisition d'une figure de pôles {111}, l'analyse de contraintes par DRX a été réalisée à partir de la mesure des distances interréticulaires de douze plans de la famille {331} et huit plans de la famille {420}.

Le tenseur de contraintes obtenu dans la base de l'échantillon est le suivant :

$$\begin{pmatrix} -32 & 4 & -7 \\ & -22 & -5 \\ & & 0 \end{pmatrix} \pm \begin{pmatrix} 11 & 2 & 3 \\ & 9 & 3 \\ & & 9 \end{pmatrix}$$

On remarque que les composantes normales σ_{11} et σ_{22} sont négatives et les composantes de cisaillement proches de 0 MPa. Les écarts entre les deux techniques peuvent atteindre 30 MPa.

4.3.3 Estimation des incertitudes des mesures par microdiffraction Kossel

Les incertitudes dans la détermination des contraintes par microdiffraction Kossel sont difficiles à estimer. Le nombre élevé de lignes de Kossel disponibles pour l'analyse du germanium et du cuivre (supérieur au nombre de lignes préconisé au paragraphe 3.1.5.2) et les écarts assez faibles de positionnement des points par rapport aux lignes théoriques (visibles Figure IV-6 et Figure IV-8) doivent conduire à une résolution en déformation élevée.

Nous avons évoqué au paragraphe 3.1.4 que le logiciel fournissait les incertitudes en déformations dans la base du cristal à partir du résultat de la minimisation. En utilisant les constantes d'élasticité du matériau, il est possible d'estimer les incertitudes en contraintes associées. Ces dernières seront définies également dans la base du cristal. Dans le cas où une hypothèse de contraintes planes est choisie, les incertitudes en contraintes sont fournies directement dans la base de l'échantillon. Les incertitudes associées à l'analyse de contraintes des monocristaux de germanium et de cuivre sont présentées Tableau IV-3.

	Germanium		**Cuivre**	
	Composantes normales	Composantes de cisaillement	Composantes normales	Composantes de cisaillement
Cas (a), base du cristal	30 MPa	15 MPa	65 MPa	45 MPa
Cas (b), base de l'échantillon	15 MPa	5 MPa	30 MPa	10 MPa

Tableau IV-3 : Incertitudes en contraintes déterminées par le logiciel pour les analyses du germanium et du cuivre, pour les cas (a) et (b)

On remarque que la précision est meilleure dans le cas du germanium. Cela s'explique par la faible longueur d'onde et la cristallographie diamant qui conduisent à un plus grand nombre de réflexions sur le cliché.

Les incertitudes diminuent d'un facteur deux à trois dans le cas où une hypothèse de contraintes planes est choisie. En effet, cette hypothèse consiste à imposer trois composantes du tenseur de contraintes à 0. Dans le cas où cette hypothèse est justifiée, les trois autres composantes seront déterminées avec plus de précision.

Pour le cuivre, dans le cas (a), les incertitudes sont assez élevées. Elles correspondent à une résolution en déformation de 3.10^{-4} dans la base du cristal. Ces valeurs sont trois fois supérieures à celles estimées à partir de dix mesures effectuées sur un même échantillon de cuivre (cf 3.1.5.2). Ainsi, les incertitudes du Tableau IV-3 semblent surestimer les erreurs.

4.3.4 Bilan de la comparaison

Pour le germanium, on remarque un très bon accord entre les résultats obtenus par DRX et ceux obtenus par microdiffraction Kossel. Les différences entre les composantes du tenseur de contraintes sont inférieures à 10 MPa. Pour le cuivre, on obtient par DRX un état de compression de l'ordre de 20 à 30 MPa pour les composantes normales. Par microdiffraction Kossel, on obtient un tenseur de contraintes cohérent avec les valeurs que l'on pourrait attendre d'un monocristal non sollicité mécaniquement, mais on observe des écarts avec la DRX plus importants que dans le cas du germanium.

Ces écarts peuvent s'expliquer par le fait que les deux techniques sont différentes en terme de résolution latérale et en profondeur. Latéralement, il y a un rapport 100 à 1000 (le diamètre du faisceau de rayons X est de taille millimétrique). En profondeur, il y a environ un rapport 5. En effet, la pénétration des rayons X (énergie de 8 keV) dans le cuivre et le germanium est d'environ 21 µm et 27 µm respectivement. Par microdiffraction Kossel, nous avons vu que l'émission des rayons X provenait d'une profondeur sous la surface inférieure à 5 µm.

Il faut noter que le monocristal de cuivre est sans doute moins homogène (en surface et dans l'épaisseur) que le monocristal de germanium. En effet, le germanium est composé de liaisons covalentes conduisant à une mobilité des dislocations plus faible que dans le cas des liaisons métalliques. De plus, contrairement au monocristal de cuivre, il n'a subi ni polissage mécanique manuel ni polissage électrolytique suite à son acquisition et son état de surface est parfaitement plan.

4.4 Analyses de contraintes de monocristaux sous chargement uniaxial

Les analyses sur des monocristaux supposés libres de contraintes ont permis de montrer que les analyses de contraintes absolues par microdiffraction Kossel conduisaient à des résultats cohérents par rapport à ceux obtenus en DRX. Les contraintes déterminées étant dans une gamme plutôt faible, proche de 0 MPa, il faut maintenant vérifier que l'on garde la même cohérence pour des valeurs de contraintes beaucoup plus élevées.

Nous avons étudié des superalliages monocristallins base nickel soumis à un chargement mécanique extérieur, par le biais de la micromachine de traction uniaxiale présentée précédemment à la Figure II-5. Un essai de traction sur monocristal permet d'obtenir un état de contrainte homogène dans l'ensemble de la partie utile de l'éprouvette et les contraintes locales estimées peuvent être directement comparées à la contrainte appliquée. Le choix d'un superalliage base nickel permet d'atteinde des contraintes locales importantes (plusieurs centaines de MPa).

Malgré les différences dans les tailles des volumes sondés (Tableau IV-4), les résultats de microdiffraction Kossel ont été comparés à deux techniques de diffraction : la diffraction des neutrons et la diffraction des rayons X de laboratoire. De plus, un autre jeu de données a été obtenu en enregistrant des clichés de microdiffraction Kossel par l'intermédiaire d'un rayonnement synchrotron. Pour toutes ces techniques, les contraintes ont été estimées au cours du chargement mécanique, la micromachine de traction uniaxiale pouvant être intégrée au sein de tous ces dispositifs de mesure.

Technique	Résolution spatiale	Résolution en profondeur
Microdiffraction Kossel	5 µm	3 µm
Diffraction des rayons X	~ mm	20 µm
Diffraction des neutrons	~ cm	épaisseur traversée

Tableau IV-4 : Ordres de grandeur des résolutions des différentes techniques utilisées, pour du nickel

4.4.1 Descriptif des échantillons

Un superalliage base nickel, breveté sous le nom d'AM1, a été choisi du fait de sa haute limite d'élasticité. Des échantillons cylindriques monocristallins ont été fournis par l'ONERA (Office National d'Etudes et de Recherches Aérospatiales). Deux orientations différentes ont été préparées : les barreaux dénommés 1Z et 3X ont un axe de croissance orienté respectivement à 11° et 2° d'une direction <001>. La composition de cet alliage est reportée Tableau IV-5 [113].

Elément	Ni	Cr	Co	Mo	W	Al	Ti	Ta
% massique	Base	8	5	2	8	5	1,5	6

Tableau IV-5 : Composition chimique de l'AM1

Cet alliage est un monocristal constituant les aubes de turbines de moteurs d'avions. Il a la particularité d'être biphasé : une matrice austénitique γ renforcée par la précipitation, sous forme de cubes, d'une phase intermétallique γ' cohérente [114]. Cette phase durcissante de type $((Ni, Co, Cr)_3 (Al, Ti, Ta))$ confère au matériau une dureté élevée (de l'ordre de 440 HV). On remarque que la taille des précipités cubiques est inférieure au micromètre (Figure IV-9) : les clichés de microdiffraction Kossel proviendront donc d'un volume contenant un ensemble de zones γ et γ'. Il ne sera pas possible d'obtenir les contraintes d'un précipité individuel.

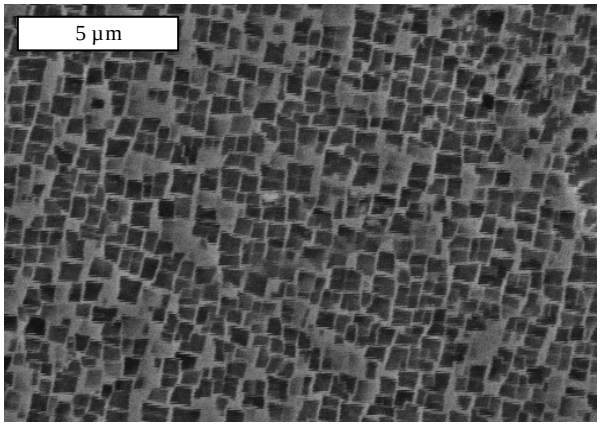


Figure IV-9 : Microstructure de l'AM1-3X obtenue au MEB

Des éprouvettes plates d'épaisseur 1 mm ont été usinées à partir des barreaux cylindriques, permettant de les solliciter via la micromachine de traction (Figure IV-10). Un essai de traction uniaxiale (interrompu à 5 % de déformation), réalisé sans extensomètre, permet de montrer que le comportement du matériau est du type élastique parfaitement plastique, sans aucun durcissement apparent (Figure IV-11).

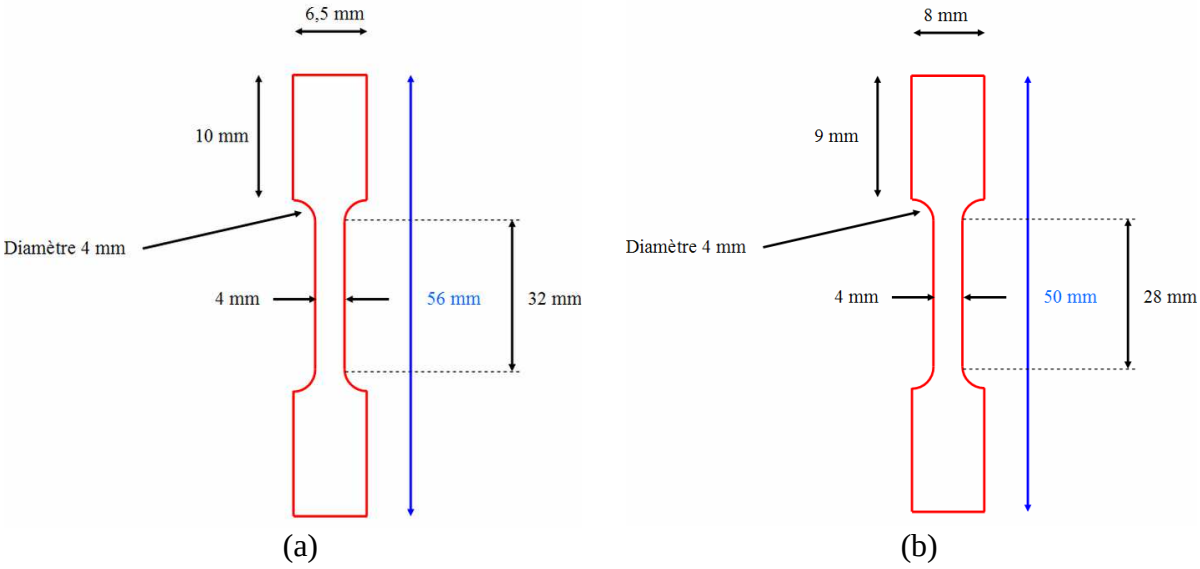


Figure IV-10 : Géométrie des éprouvettes de traction pour l'AM1-3X (a) et l'AM1-1Z (b)

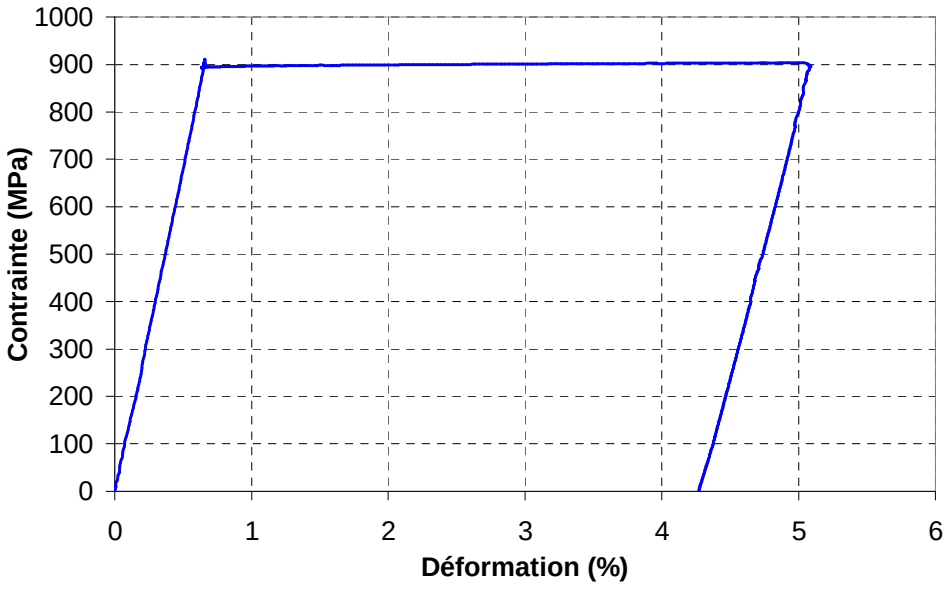


Figure IV-11 : Essai de traction uniaxiale sur un monocristal d'AM1-3X

On remarque en outre que la limite d'élasticité est élevée, de l'ordre de 900 MPa. La détermination de la déformation appliquée à l'éprouvette se faisant par l'intermédiaire de la

mesure du déplacement de la traverse par un capteur inductif de déplacement linéaire LVDT (Linear Variable Differential Transformer), il est normal que la pente du domaine élastique ne soit pas en accord avec le module d'Young du matériau.

Les surfaces des éprouvettes ont été préparées de la manière suivante : un polissage mécanique à la pâte diamantée jusqu'à une taille de particules égale à 1 µm, puis un polissage électrolytique dans une solution composée de :

- ✓ 200 ml d'acide perchlorique
- ✓ 100 ml de butylglycol
- ✓ 700 ml d'éthanol

avec l'application d'une tension de 22 V pendant 10 secondes et une densité de courant de l'ordre de 1 $A.cm^{-2}$.

4.4.2 Constantes d'élasticité

La phase γ est composée principalement de nickel, de structure CFC. Les éléments Cr, Co et Mo se répartissent préférentiellement dans cette phase et agissent comme éléments durcissants en solution solide. Les éléments Ti et Ta renforcent les précipités γ', de structure $L1_2$, en se substituant à l'aluminium dans Ni_3Al.

Pour le passage des déformations aux contraintes, il est nécessaire de connaître les constantes d'élasticité de ce matériau. Il faut noter que les constantes sont différentes pour les deux phases et dépendent de la température [115]. A température ambiante, on trouve les données suivantes pour le nickel pur et Ni_3Al (Tableau IV-6) :

Matériau	C_{11} **(GPa)**	C_{12} **(GPa)**	C_{44} **(GPa)**	**Référence**
Ni	248	155	124	[111]
Ni_3Al	224	148	125	[116]

Tableau IV-6 : Composantes du tenseur de rigidité, pour le nickel et Ni_3Al

Pour l'AM1, des valeurs sont disponibles dans la littérature (Tableau IV-7), mais sont le plus souvent associées à des températures élevées (fonctionnement des aubes).

Température	C_{11} (GPa)	C_{12} (GPa)	C_{44} (GPa)	Référence
650°C	244	170	104	[117]
950°C	196	137	95	[118]
1050°C	185	131	91	[118]

Tableau IV-7 : Composantes du tenseur de rigidité, pour l'AM1, à différentes températures

On trouve des données à température ambiante correspondant à des superalliages monocristallins base nickel de composition chimique proche de l'AM1 (Tableau IV-8).

Matériau	C_{11} (GPa)	C_{12} (GPa)	C_{44} (GPa)	Référence
CMSX-3	242	153	128	[119]
PWA 1480	250	163	129	[120]

Tableau IV-8 : Composantes du tenseur de rigidité, pour deux matériaux proches de l'AM1 en composition chimique

Nous avons pris les constantes d'élasticité calculées à partir d'une loi en température déterminée par Gaubert [118] sur chaque composante du tenseur de souplesse. Celles-ci sont reportées dans le Tableau IV-9.

Matériau	C_{11} (GPa)	C_{12} (GPa)	C_{44} (GPa)
AM1	247	161	127

Tableau IV-9 : composantes du tenseur de rigidité, pour l'AM1, calculées à partir d'une loi déterminée par Gaubert [118], à 21°C

On remarque que ces valeurs sont cohérentes avec les données du Tableau IV-8 et sont proches des données du nickel pur.

4.4.3 Analyses par microdiffraction Kossel

4.4.3.1 Au MEB

Le monocristal AM1-1Z a été choisi car son orientation permettait d'obtenir un plus grand nombre de lignes de Kossel d'indices hkl élevés sur le cliché. Deux campagnes d'essais (pour

deux éprouvettes différentes) ont été réalisées. La première a permis des analyses de contraintes absolues en faisant l'hypothèse d'un état de contraintes planes. La deuxième, utilisant la procédure d'analyse de contraintes relatives (présentée au paragraphe 3.2), plus précise et indépendante de la nature des profils de lignes, a conduit à l'obtention des six composantes du tenseur des contraintes.

L'analyse des contraintes absolues a été effectuée sur une éprouvette sollicitée à environ 400 et 680 MPa. Pour chaque chargement ainsi que pour l'état initial, trois clichés de diffraction ont été enregistrés dans trois zones distantes de plusieurs centaines de micromètres. Un cliché Kossel obtenu pour un chargement de 400 MPa est visible Figure IV-12, ainsi que la simulation associée.

Pour l'analyse relative, de nouveaux clichés ont été enregistrés en considérant des chargements plus faibles (280 et 370 MPa) pour améliorer le traitement. En effet, on remarque qu'à partir d'un chargement de 400 MPa, il devient difficile d'ajuster manuellement les lignes théoriques du cliché de référence sur les lignes expérimentales du cliché à l'état chargé, à quatre pixels près (Figure IV-13). De plus, les lignes de Kossel deviennent plus épaisses et donc la corrélation est plus délicate.

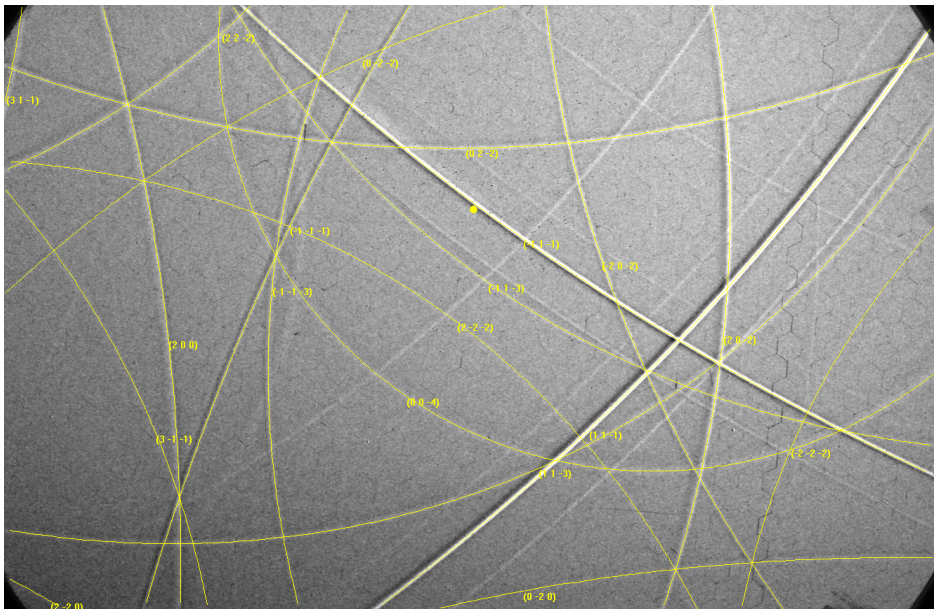
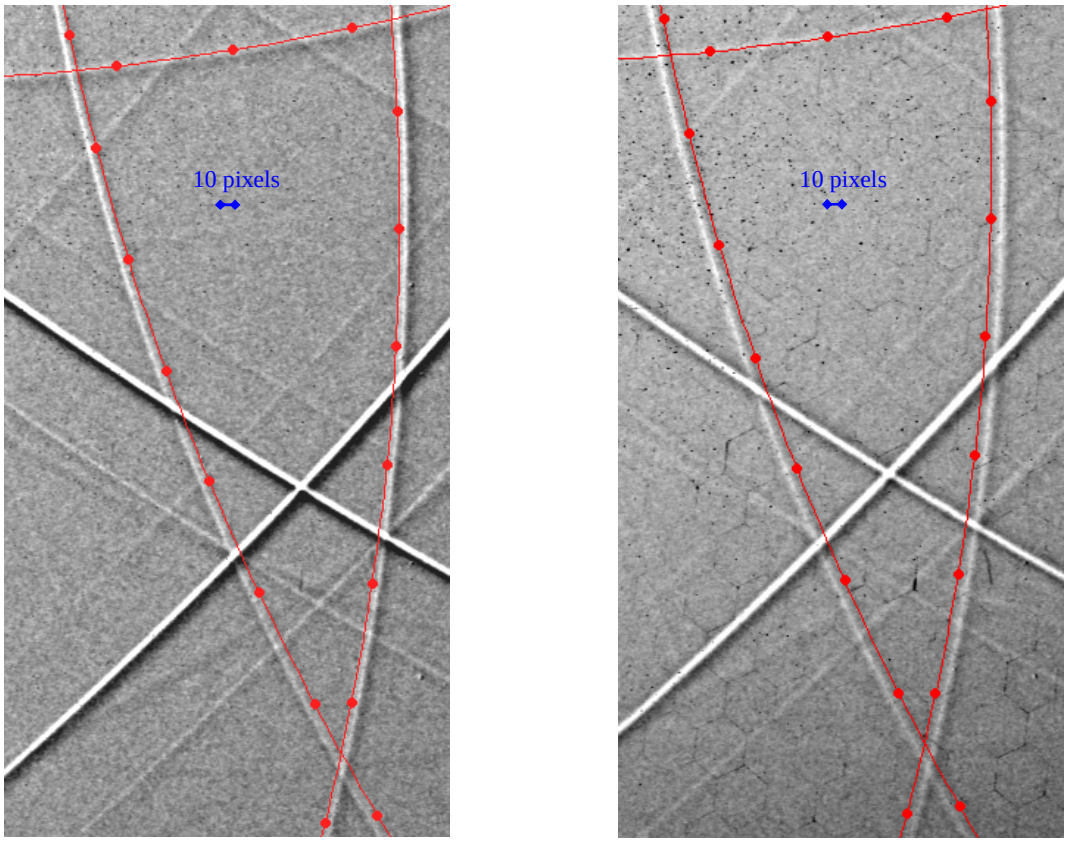


Figure IV-12 : Superposition d'un cliché expérimental (400 MPa) et du cliché simulé associé (en jaune)



(a) (b)

Figure IV-13 : Portions de clichés Kossel montrant le décalage entre les lignes de Kossel théoriques pour l'état initial (en rouge) et les lignes expérimentales d'un état chargé à 400 MPa (a) et 680 MPa (b)

Les tenseurs de contraintes absolues ont été calculés par la moyenne des trois mesures (Tableau IV-10). Ils sont définis dans la base de l'échantillon, en prenant une hypothèse de contraintes planes. Cette hypothèse a été choisie car le nombre de coniques disponibles était d'environ dix et la distance caméra - échantillon supérieure de 7 mm à la valeur utilisée pour les analyses sur clichés théoriques préconisant l'utilisation de neuf lignes minimum pour obtenir une précision de l'ordre de 2.10^{-4} sur toutes les composantes. Avec l'hypothèse de contraintes planes, l'analyse sur un cliché théorique aboutit à une résolution similaire avec la prise en compte de sept lignes seulement.

On remarque que les valeurs de contraintes obtenues par microdiffraction Kossel sont en accord avec la contrainte macroscopique appliquée. On note une dispersion importante dans les valeurs de σ_{11}. Les écarts-types $\Delta\sigma_{11}$ par chargement sont spécifiés dans le Tableau IV-11. Ces déviations peuvent donner une indication sur la résolution en contrainte que l'on peut atteindre, pour ce matériau, avec ce type de clichés. Mais ces déviations peuvent aussi

provenir des hétérogénéités de microstructure ou des hétérogénéités dues à la préparation du matériau. En effet, à l'état initial, des contraintes résiduelles de compression non négligeables étaient présentes en surface.

Etat initial	Chargement de 400 MPa	Chargement de 680 MPa
$\begin{pmatrix} -95 & 5 & 0 \\ & -15 & 0 \\ & & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 360 & -55 & 0 \\ & -45 & 0 \\ & & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 635 & -25 & 0 \\ & -35 & 0 \\ & & 0 \end{pmatrix}$

Tableau IV-10 : Tenseurs des contraintes absolues (MPa) obtenus par microdiffraction Kossel pour l'état initial et deux chargements. σ_{11} selon l'axe de traction. Hypothèse : état de contraintes planes

	Chargement de 400 MPa	Chargement de 680 MPa
Valeur n°1 (MPa)	435	700
Valeur n°2 (MPa)	340	585
Valeur n°3 (MPa)	305	615
Ecart type $\Delta\sigma_{11}$	**65**	**60**

Tableau IV-11 : Valeurs de σ_{11} pour les 3 analyses accompagnées des écarts-types, pour les 2 chargements

Pour l'analyse relative, nous avons donc choisi d'utiliser neuf coniques (Figure IV-14). En effet, si les profils de lignes entre le cliché de référence et le cliché à comparer ne sont pas similaires, les coniques associées doivent être éliminées de la procédure. Les écarts entre les points placés automatiquement et la ligne théorique tracée à partir des ces points sont très faibles. Cela montre la robustesse de l'analyse.

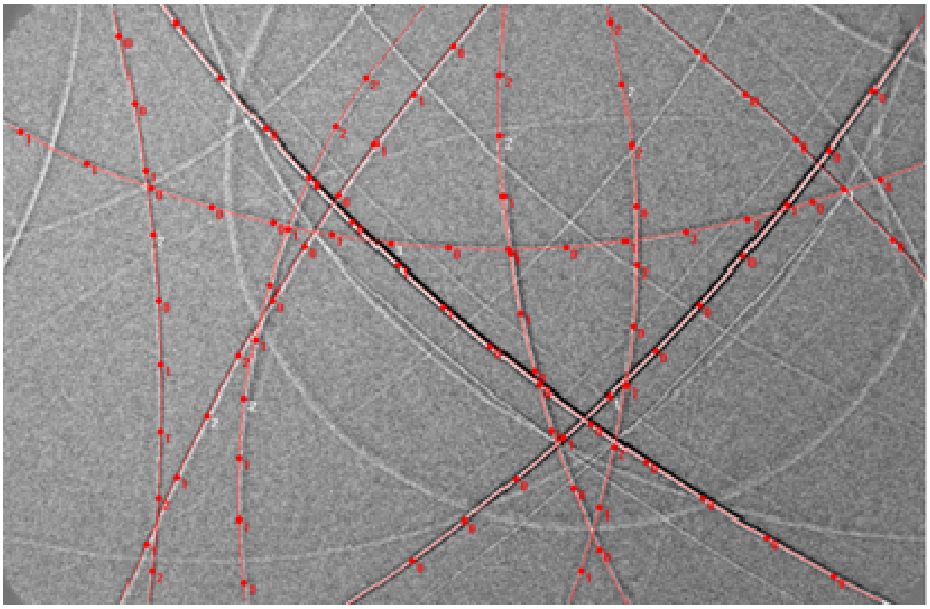


Figure IV-14 : Coniques utilisées pour l'analyse relative, avec indication des écarts après la corrélation automatique

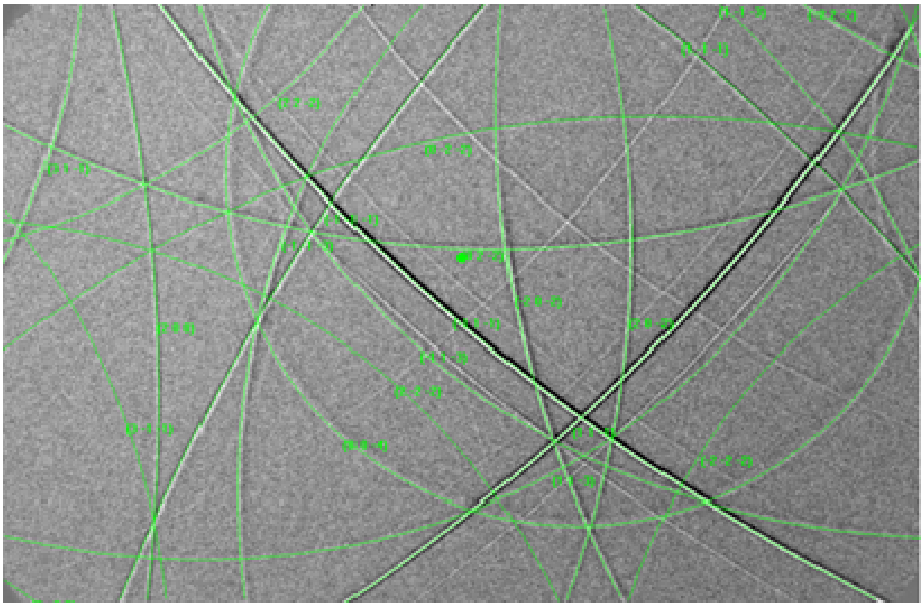


Figure IV-15 : Superposition du cliché simulé et du cliché expérimental d'une analyse relative

Sur la Figure IV-15 représentant la superposition des clichés simulés et expérimentaux pour une des mesures relatives, on remarque que certaines lignes expérimentales ne sont pas simulées. Elles correspondent soit au rayonnement K_β du nickel, soit aux rayonnements K_α du chrome et du cobalt, éléments présents à quelques pourcents dans le matériau.

Trois mesures par charge ont été effectuées et les valeurs de contraintes ont été déterminées à partir de la moyenne de ces trois mesures, les clichés initiaux servant de références. Les tenseurs de contraintes relatifs obtenus sont représentés Tableau IV-12.

Chargement de 280 MPa	**Chargement de 370 MPa**
$\begin{pmatrix} 230 & -30 & 20 \\ & -10 & -10 \\ & & 10 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 340 & -5 & 25 \\ & 35 & -10 \\ & & 30 \end{pmatrix}$

Tableau IV-12 : Tenseurs des contraintes relatives (MPa) obtenus par microdiffraction Kossel pour deux chargements. σ_{11} selon l'axe de traction

On remarque que les valeurs de contraintes obtenues par microdiffraction Kossel sont en accord avec la contrainte macroscopique appliquée. De la même manière, nous avons déterminé les écarts-types $\Delta\sigma_{11}$ par chargement. Ils sont spécifiés dans le Tableau IV-13. Ces déviations, plus faibles que dans le cas d'une mesure absolue, montrent que la résolution en contrainte que l'on peut atteindre par une mesure relative est améliorée.

	Chargement de 280 MPa	**Chargement de 370 MPa**
Valeur n°1 (MPa)	224	350
Valeur n°2 (MPa)	204	344
Valeur n°3 (MPa)	270	333
Ecart type $\Delta\sigma_{11}$	**30**	**10**

Tableau IV-13 : Valeurs de σ_{11} pour les 3 analyses accompagnées des écarts-types, pour 2 chargements

Ces séries de mesures effectuées au MEB montrent que les analyses de contraintes par microdiffraction Kossel aboutissent à des résultats prometteurs pour la technique. Les analyses relatives réalisées avec une distance caméra - échantillon plus faible et ne dépendant pas du positionnement des lignes conduisent à des résultats avec une fiabilité accrue. C'est pour cela que nous avons choisi de ne pas fixer un état de contraintes biaxial, contrairement aux analyses absolues où cette hypothèse était nécessaire. On remarque que la valeur de contrainte dans la direction de sollicitation déterminée par la technique est toujours inférieure à la contrainte appliquée par la micromachine de traction. Cela peut s'expliquer notamment

par un état de compression résiduel subsistant à la surface du matériau ou à une relaxation de force appliquée par la micromachine de sollicitation mécanique.

4.4.3.2 A partir d'un rayonnement synchrotron

La lumière synchrotron possède des caractéristiques exceptionnelles par comparaison aux sources de lumière classiques disponibles en laboratoire : son spectre d'émission s'étend de l'infrarouge aux rayons X avec une brillance exceptionnelle. Le rayonnement est stable, pulsé, et avec une forte cohérence spatiale et temporelle. L'ESRF, centre de recherche européen basé à Grenoble associant 18 pays, est la source de lumière synchrotron la plus puissante d'Europe. Chaque ligne de lumière est un véritable laboratoire réalisant des expériences dans des domaines très variés comme la chimie, la biologie, la physique, la médecine, les matériaux, les sciences de la terre ou l'environnement. Il y en a une cinquantaine et elles ont chacune leurs spécialités en fonction des optiques et des systèmes de détection dont elles disposent. Des études très variées peuvent être effectuées pour caractériser les échantillons : spectroscopie, diffraction, fluorescence, absorption, tomographie, …

Nous avons travaillé sur la ligne ID13 de l'ESRF. Elle produit des faisceaux focalisés de petite taille pour des applications de diffraction ou de diffusion aux petits angles (SAXS). Trois plateformes expérimentales permettent de couvrir une large gamme de taille de faisceau, de 0,25 à 30 µm, pour des énergies allant de 6 à 19 keV [121].

La micromachine de traction a été positionnée dans la trajectoire d'un faisceau de rayons X ayant une section carrée de 2,5x3 µm² et la caméra CCD a été placée au plus proche de l'échantillon (Figure IV-16). Nous avons choisi une énergie égale à 9,4 keV, juste au-dessus du seuil d'absorption du nickel, de façon à exacerber le phénomène de fluorescence du matériau.

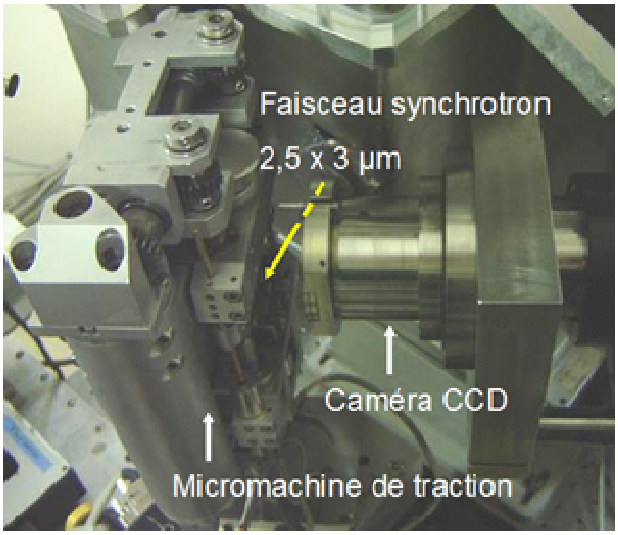


Figure IV-16 : Montage pour l'acquisition de clichés Kossel sur la ligne ID13

Les temps d'acquisition pour l'obtention de clichés Kossel par rayonnement synchrotron sont plus longs qu'au MEB d'un facteur 5. De plus, les clichés présentent une qualité moindre que lors d'une excitation électronique à cause d'un bruit thermique supplémentaire.

Une caméra, appelée « Image Star», prêtée par la société Photonics Science Ltd, a été utilisée pour ces expériences. Le matériau AM1-3X a été étudié et une éprouvette a été sollicitée pour deux états de chargement, inférieurs à la limite d'élasticité.

En plus de l'état initial, des clichés ont été enregistrés à 400 MPa et à 765 MPa (Figure IV-17). La distance caméra - échantillon était de l'ordre de 54 mm. L'analyse des orientations cristallographiques via le logiciel KSLStrain met en évidence une rotation du cristal entre l'état chargé à 400 MPa et l'état initial d'environ 1° dans le plan parallèle à la surface.

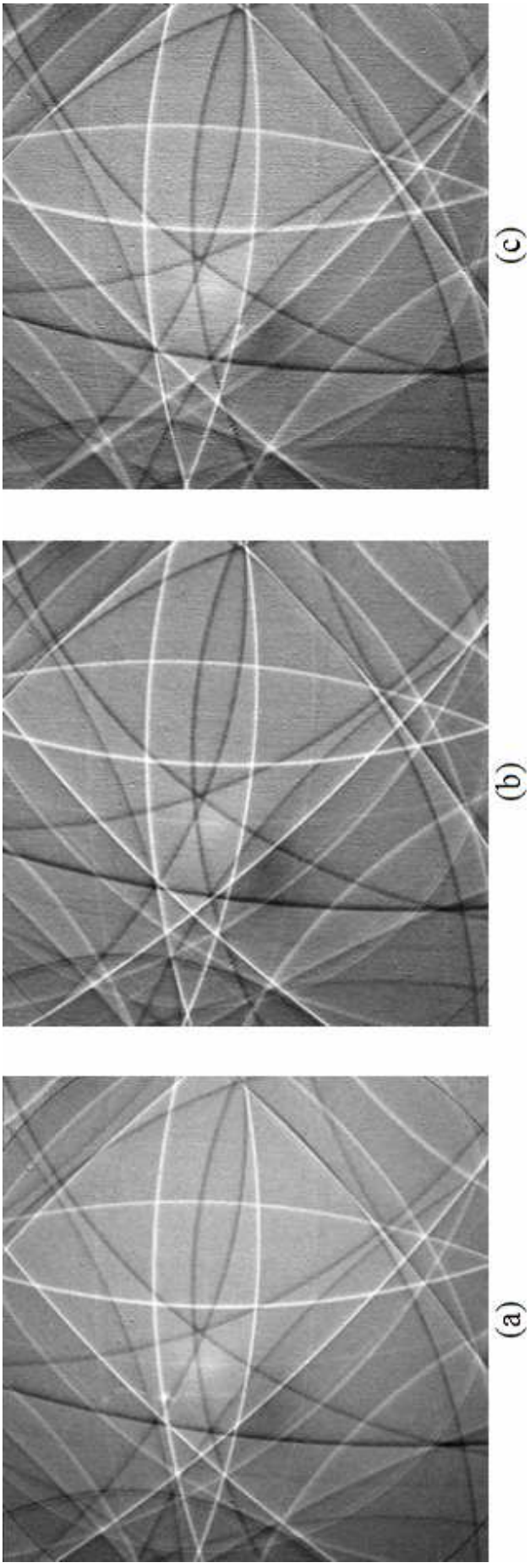


Figure IV-17 : Clichés Kossel à l'état initial (a) et pour des chargements de 400 MPa (b) et 765 MPa (c)

En prenant une hypothèse de contraintes planes et en fixant le paramètre de maille du matériau sans contraintes à partir d'une mesure à l'état initial, on obtient les tenseurs de contraintes du Tableau IV-14.

Chargement de 400 MPa	**Chargement de 765 MPa**
$\begin{pmatrix} 365 & -25 & 0 \\ & -30 & 0 \\ & & 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 620 & -10 & 0 \\ & -70 & 0 \\ & & 0 \end{pmatrix}$

Tableau IV-14 : Tenseurs des contraintes absolues (MPa) obtenus par microdiffraction Kossel au synchrotron pour deux chargements. σ_{11} selon l'axe de traction. Hypothèse : état de contraintes planes

La valeur obtenue pour le chargement à 400 MPa est en accord avec les résultats obtenus au MEB pour des chargements similaires (Tableau IV-10 et Tableau IV-12). Un écart d'environ 10 % est détecté entre la contrainte appliquée et la contrainte déterminée dans la direction de sollicitation. Par contre, à 765 MPa, la valeur de σ_{11} déterminée par diffraction Kossel s'écarte à hauteur de 20 % de la valeur appliquée.

On note un épaississement important des lignes pour ce dernier chargement et ainsi une plus grande difficulté dans leur positionnement. Ce problème était présent également dans les clichés obtenus au MEB pour des sollicitations supérieures à 400 MPa. Nous avons ainsi pu positionner manuellement onze lignes pour le chargement de 400 MPa, mais seulement sept pour le chargement de 765 MPa. La précision dans la détermination du tenseur de contraintes est ainsi meilleure pour le premier chargement.

Le tenseur de contraintes, pour le chargement de 400 MPa, a également été déterminé sans appliquer l'hypothèse de contraintes planes mais en fixant $\sigma_{33}=0$:

$$\begin{pmatrix} 390 & 0 & 85 \\ & -10 & -15 \\ & & 0 \end{pmatrix}$$

Mis à part une valeur de cisaillement, σ_{13}, un peu élevée, ce résultat est tout à fait cohérent avec la sollicitation imposée au matériau. Par contre, avec seulement sept coniques, il a été impossible de faire converger le logiciel vers un résultat réaliste pour le chargement de 765 MPa. Cela montre que la précision de la mesure est fortement dépendante du nombre de coniques utilisées.

4.4.4 Comparaison avec la diffraction des rayons X

Une éprouvette de traction uniaxiale en AM1-3X a été utilisée pour les analyses monocristallines par diffraction des rayons X. Deux points de mesures ont été effectués au centre de l'éprouvette : à l'état initial et pendant l'application d'un chargement d'environ 650 MPa sur l'échantillon.

Une figure de pôles {220} a permis d'orienter le cristal et de localiser les pôles des autres plans cristallins. Les analyses de contraintes ont été réalisées à partir de la mesure des distances interréticulaires de neuf plans de la famille {331} et sept plans de la famille {420}. La Figure IV-18 représente un balayage effectué en 2θ pour la détermination de la position exacte de l'angle de Bragg pour un pôle de la famille {331}. On remarque la présence d'un doublet associé aux rayonnements $K_{\alpha 1}$ et $K_{\alpha 2}$ du cuivre ainsi qu'un épaulement, indiqué par une flèche rouge, à gauche du pic principal. Cet épaulement n'est pas pris en compte dans la détermination de l'angle de Bragg. Il est causé par une légère différence de paramètre de maille entre les deux phases. Pour cet alliage, le « mismatch », δ, calculé par la formule (IV-11), est estimé à 0,34 %, à température ambiante [122].

$$\delta = \frac{2\left(a_{\gamma'} - a_{\gamma}\right)}{a_{\gamma'} + a_{\gamma}} \qquad \text{(IV-11)}$$

avec a_{γ} et $a_{\gamma'}$ les paramètres de maille des phases γ et γ', respectivement.

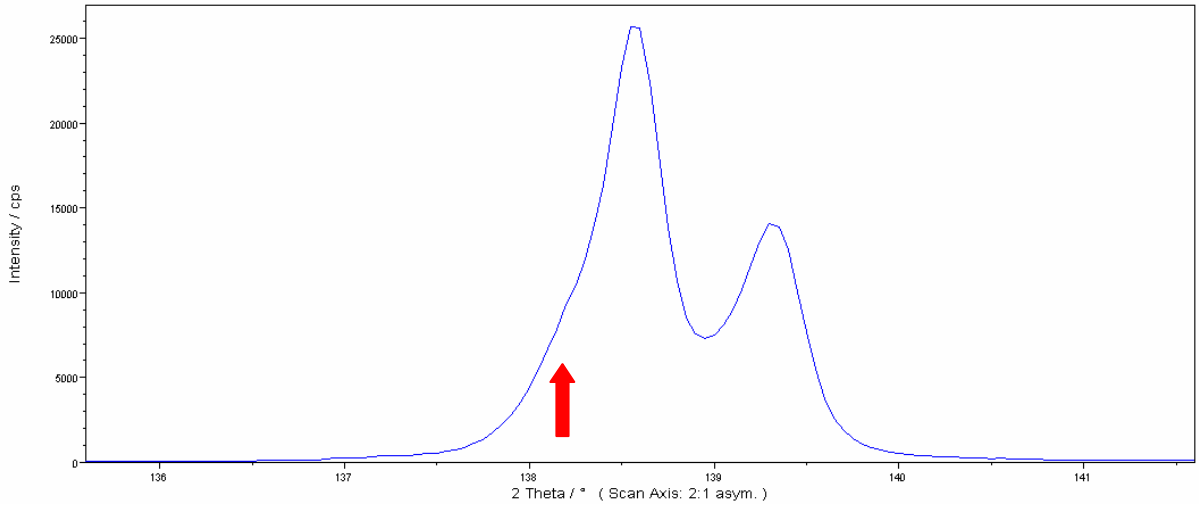


Figure IV-18 : Exemple de balayage effectué (intensité en fonction de l'angle 2θ) pour déterminer la position exacte de l'angle de Bragg pour un pôle de la famille {331}

L'hypothèse $\sigma_{33} = 0$ a été utilisée pour le calcul du tenseur des contraintes à l'état initial. La valeur du paramètre de maille trouvée à partir de cette hypothèse a servi de référence pour le calcul du tenseur des contraintes à l'état chargé. Les résultats, obtenus à partir de la procédure explicitée au paragraphe 4.1.1, sont représentés Tableau IV-15. En effectuant une différence entre l'état chargé et l'état initial, composante par composante, on obtient le tenseur du Tableau IV-16.

Etat initial	**Chargement de 650 MPa**
$\begin{pmatrix} 0 & 45 & -10 \\ & -105 & 10 \\ & & 0 \end{pmatrix} \pm \begin{pmatrix} 40 & 20 & 10 \\ & 35 & 10 \\ & & 30 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 585 & 40 & -20 \\ & -40 & 10 \\ & & 75 \end{pmatrix} \pm \begin{pmatrix} 45 & 20 & 10 \\ & 40 & 10 \\ & & 30 \end{pmatrix}$

Tableau IV-15 : Tenseurs des contraintes (MPa) obtenus par diffraction des rayons X à l'état initial et pour un chargement uniaxial de 650 MPa. Hypothèse : σ_{33}=0 à l'état initial. σ_{11} selon l'axe de traction

Tenseur relatif
$\begin{pmatrix} 585 & -5 & -10 \\ & 65 & 0 \\ & & 75 \end{pmatrix} \pm \begin{pmatrix} 45 & 20 & 10 \\ & 40 & 10 \\ & & 30 \end{pmatrix}$

Tableau IV-16 : Tenseur des contraintes (MPa) obtenu en calculant la différence entre le tenseur relatif à l'état chargé et le tenseur de l'état initial. σ_{11} selon l'axe de traction

Ce résultat de diffraction des rayons X est tout à fait cohérent avec les données de microdiffraction Kossel. En effet, on note un écart d'environ 10 % entre la contrainte appliquée et la contrainte déterminée dans la direction de sollicitation. De plus, si on compare avec les résultats du Tableau IV-12, pour le chargement de 370 MPa, on remarque que les valeurs de σ_{22} et σ_{33} sont du même ordre de grandeur entre elles et par rapport à la charge appliquée.

4.4.5 Comparaison avec la diffraction neutronique

De la même manière que pour la diffraction des rayons X, après avoir orienté le cristal, des balayages en 2θ ont été réalisés pour un maximum de plans diffractants. La longueur d'onde du rayonnement neutronique étant de 1,159 Å et le montage ne permettant pas de travailler à des angles 2θ supérieurs à 80°, seules les familles de plans {111}, {200}, {220} et {311} sont accessibles. Pour ces analyses, seulement huit plans diffractants ont été analysés car le bâti de la micromachine de traction bloquait le faisceau incident ou le faisceau diffracté pour certaines configurations géométriques.

Deux éprouvettes en AM1-3X ont été sollicitées autour de 600 MPa. Les tenseurs de contraintes (Tableau IV-17) ont été obtenus de manière relative en comparant les angles de Bragg mesurés dans l'état sollicité avec ceux de l'état initial suivant la procédure explicitée au paragraphe 4.1.3.

Chargement de 575 MPa	**Chargement de 625 MPa**
$\begin{pmatrix} 450 & 10 & -95 \\ & -35 & 50 \\ & & -65 \end{pmatrix} \pm \begin{pmatrix} 65 & 20 & 20 \\ & 70 & 20 \\ & & 55 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 575 & -110 & -75 \\ & -130 & -45 \\ & & -80 \end{pmatrix} \pm \begin{pmatrix} 70 & 20 & 20 \\ & 75 & 25 \\ & & 60 \end{pmatrix}$

Tableau IV-17 : Tenseurs des contraintes relatives (MPa) obtenus par diffraction des neutrons pour deux éprouvettes différentes sollicitées à 575 MPa et 625 MPa. σ_{11} selon l'axe de traction

Les valeurs de σ_{11} sont plutôt conformes à ce que nous avons observé en diffraction des rayons X et en microdiffraction Kossel : la contrainte σ_{11} est inférieure à la contrainte appliquée. Par contre, nous obtenons des valeurs négatives sur les autres composantes de la diagonale et des valeurs de cisaillement non négligeables.

Il est important de noter que la précision de ces résultats est inférieure à celle que nous avons

pu obtenir en diffraction des rayons X : les barres d'erreurs sur la détermination des contraintes sont environ deux fois plus élevées que celles des expériences de diffraction des rayons X. En effet, ces résultats ont été obtenus à partir de la mesure de seulement huit distances interréticulaires et pour des angles de Bragg allant de 32° à 65°.

4.4.6 Bilan

Les analyses de contraintes *in situ*, sur les échantillons en superalliage monocristallin, conduisent à des résultats prometteurs quant à la fiabilité de la technique. En effet, toutes les techniques d'analyses utilisées dans cette étude conduisent à des valeurs similaires. Nous avons remarqué que la contrainte déterminée suivant l'axe de sollicitation était toujours inférieure (de l'ordre de 10 %) à la contrainte appliquée par la micromachine de traction. Ce constat a été vérifié lors des analyses par diffraction des rayons X et par diffraction neutronique.

Ceci peut s'expliquer par la durée des essais qui est susceptible de provoquer une relaxation de la contrainte imposée par la micromachine. En diffraction des rayons X et en diffraction neutronique, une analyse complète prend plusieurs heures car il faut d'abord orienter le cristal puis faire les mesures des distances interréticulaires choisies une à une. Avec un rayonnement synchrotron, pour obtenir un cliché, il fallait environ une heure. Au MEB, un cliché est obtenu en à peu près cinq minutes, mais il faut aussi prendre en compte le temps nécessaire à la mise sous vide du microscope et le réglage du faisceau d'électrons. On atteint donc facilement la demi-heure.

Une autre explication possible est l'hétérogénéité de contraintes en surface, à l'état initial, provoquée par une préparation de surface manuelle. Les analyses de contraintes absolues à l'état initial ont conduit à des résultats hétérogènes suivant la localisation de la mesure ou l'éprouvette considérée. En effet, les deux phases cohérentes ont des caractéristiques mécaniques légèrement différentes (confirmé par les constantes d'élasticité).

Chapitre 5 : Utilisation de l’analyse de contraintes locales par microdiffraction Kossel pour la détermination des champs de contraintes intergranulaires

Suite aux analyses de validation sur monocristaux, la technique a été utilisée sur des polycristaux en diminuant progressivement la taille des grains analysés. Les essais ont tout d'abord été effectués sur des matériaux composés de grains millimétriques car ceux-ci conduisent à des clichés de très bonne qualité du fait de l'homogénéité de la zone diffractante. De la même manière que pour les monocristaux base nickel, des éprouvettes de traction ont été sollicitées *in situ*. Ainsi, par rapport aux monocristaux, l'influence de l'orientation cristallographique sur le niveau de contraintes a pu être étudiée. Ensuite, des aciers à grains micrométriques ont été choisis et analysés par la technique lors d'essais de traction *in situ*. Ces matériaux ont l'avantage d'être plus représentatifs des matériaux visés à terme par la technique car ils sont couramment utilisés dans l'industrie et les niveaux de contraintes sont plus difficiles à prédire. Enfin, des composants à grains fins issus de la microélectronique ont été étudiés.

5.1 Analyses de contraintes sur matériaux à gros grains sollicités en traction uniaxiale

5.1.1 Alliage à mémoire de forme CuAlBe

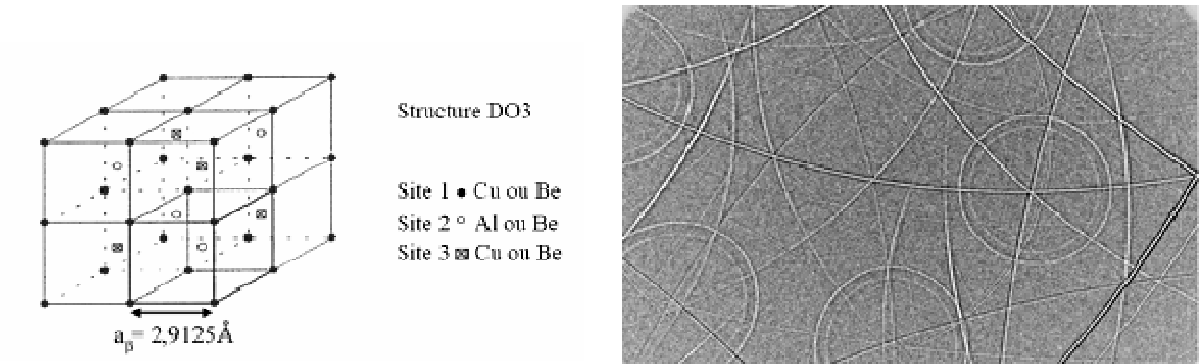
Les états de contraintes intergranulaires ont été tout d'abord déterminés par microdiffraction Kossel sur un alliage à mémoire de forme (AMF) CuAlBe à grains millimétriques, au cours d'une sollicitation en traction uniaxiale. Sa composition chimique est reportée Tableau V-1.

Elément	Cu	Al	Be
% massique	88	11,5	0,5
% atomique	74,2	22,8	3

Tableau V-1 : Composition chimique de l'alliage CuAlBe

Les alliages à mémoire de forme ont la particularité d'être sujets à une transformation martensitique qui leur confère des propriétés particulières [123].

La phase austénitique de ce matériau a l'avantage, de par sa structure DO_3, de conduire à l'apparition de cercles complets très sensibles aux déformations du réseau cristallin sur les clichés (Figure V-1). Lors de la transformation martensitique (transformation displacive sans diffusion), le réseau cristallin subit un cisaillement homogène par un mouvement coopératif des atomes, à la vitesse du son. Le réseau cristallin de la martensite formée à partir de l'austénite peut être décrit par une maille monoclinique [124]. Aucun cliché Kossel issu de la phase martensitique n'a pu être indexé. Les analyses de contraintes n'ont donc été effectuées que pour la phase austénitique.



(a) (b)

Figure V-1 : Structure cristallographique de la phase austénitique de l'alliage CuAlBe (a) [124]. Exemple de cliché Kossel d'un grain austénitique de CuAlBe (b)

Environ 20 grains ont été analysés, soit à peu près la moitié des grains visibles en surface, sachant qu'une partie des grains (les plus gros) sont traversants, l'épaisseur de l'éprouvette étant de 1,38 mm (Figure V-2). Un seul point d'analyse par grain a été réalisé, au centre du grain.

La courbe conventionnelle relative à l'essai de traction est donnée Figure V-3. L'éprouvette de traction a été sollicitée jusqu'à dépasser la contrainte de transformation du matériau. L'essai a été interrompu à trois reprises, tout en maintenant la force appliquée, pour réaliser des analyses de microdiffraction Kossel au MEB pour les 20 grains. Cet essai de traction *in situ* a été réalisé sans système d'extensométrie.

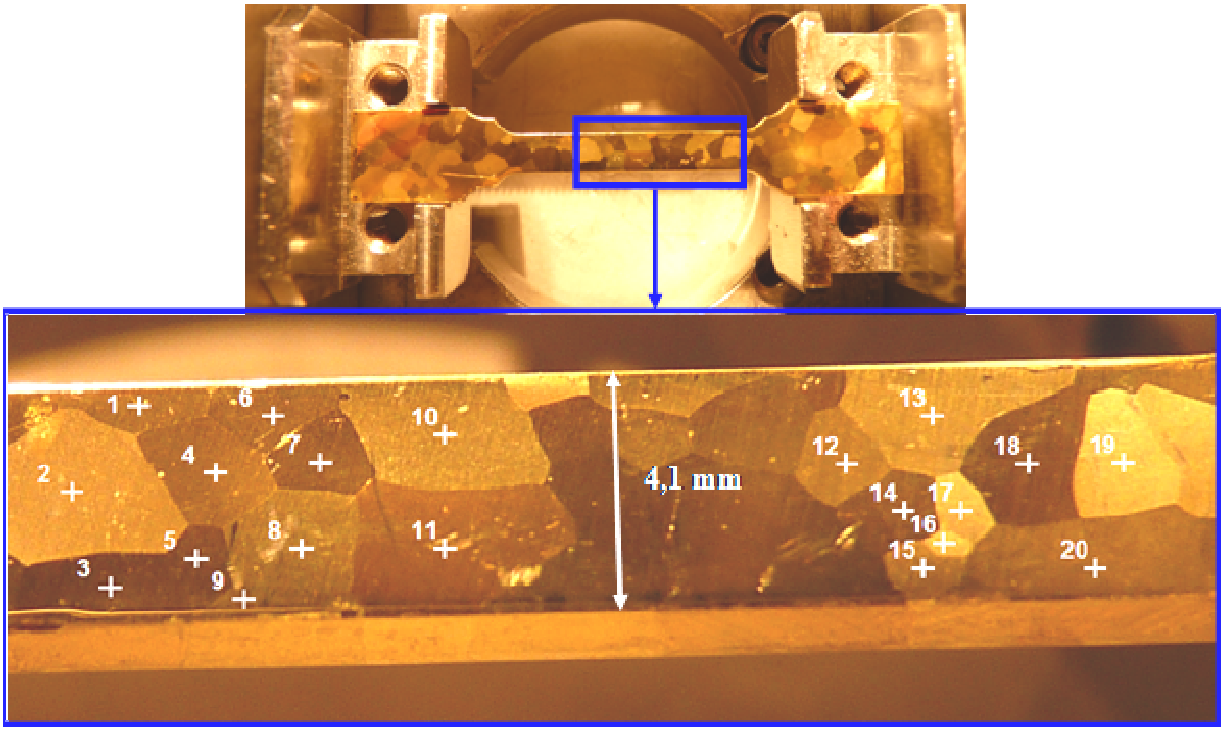


Figure V-2 : Eprouvette de traction utilisée pour l'analyse de contraintes *in situ* avec repérage des 20 grains étudiés par microdiffraction Kossel

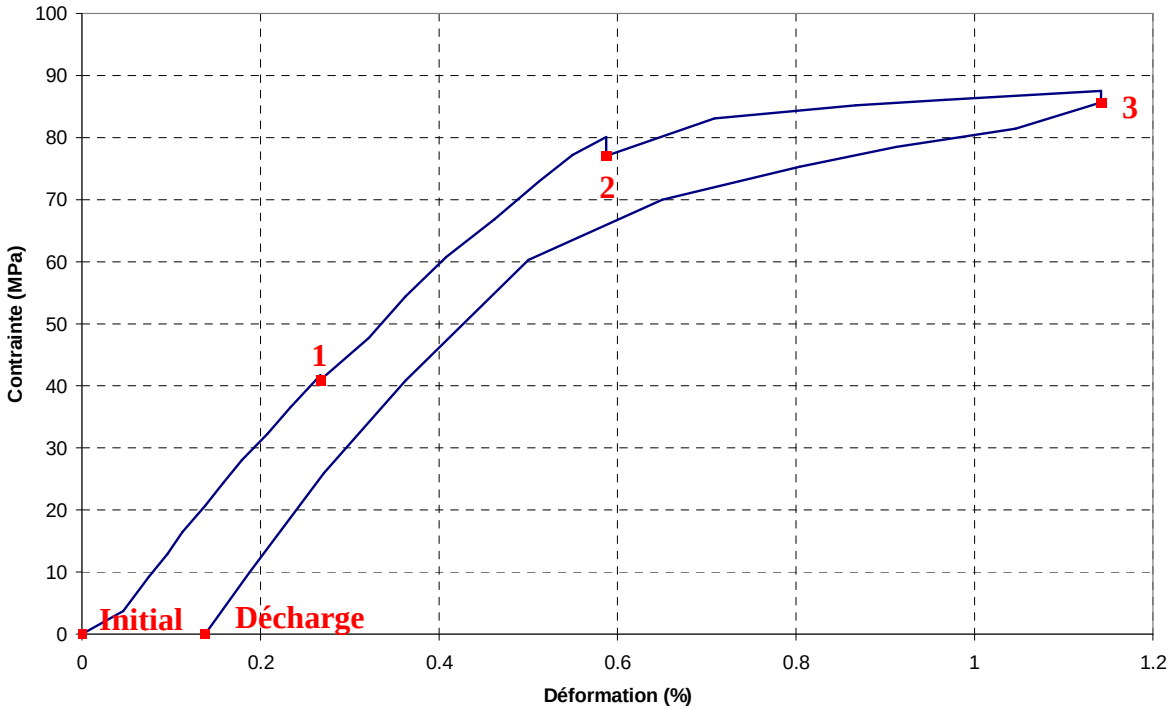


Figure V-3 : Courbe de traction conventionnelle de l'AMF CuAlBe. Les points rouges correspondent aux points d'analyses par microdiffraction Kossel : état initial, 3 chargements et décharge

Les orientations cristallographiques des 20 grains ont été déterminées à partir des clichés Kossel, ainsi que les facteurs de Schmid maximaux associés (Tableau V-2). Ces derniers ont été calculés à partir des 24 systèmes de glissement représentatifs de la transformation martensitique du CuAlBe ; les indices des plans d'habitat ont été pris égaux à (1 / 4,2 / 4,1) [124]. Ils permettent de prédire, pour un grain ayant une orientation cristallographique donnée, quels systèmes de glissement sont activés préférentiellement en fonction de la direction d'application de la sollicitation. Les grains qui ont les facteurs de Schmid maximaux les plus élevés ont une orientation dite de 'facile transformation' et seront, en théorie, les premiers à subir la transformation martensitique. Sur le triangle inverse représenté Figure V-4, on constate que les grains qui ont les facteurs de Schmid les plus élevés ont une orientation proche de [1 0 0] et le grain 12 qui a le facteur de Schmid le plus faible a une orientation proche de [1 1 1].

1	$(2\,5\,\bar{3})\,[\bar{1}\,1\,5\,1]$	0,47	11	$(\bar{4}\,11\,\bar{2})\,[\bar{6}\,\bar{2}\,1]$	0,48
2	$(\bar{4}\,4\,\bar{9})\,[\bar{1}0\,\bar{1}\,4]$	0,48	12	$(\bar{2}\,13\,\bar{7})\,[\bar{5}\,\bar{4}\,\bar{6}]$	0,23
3	$(1\,10\,0)\,[\bar{1}0\,1\,\bar{4}]$	0,48	13	$(3\,8\,\bar{4})\,[\bar{1}2\,5\,1]$	0,48
4	$(\bar{2}\,3\,\bar{2})\,[\bar{1}2\,\bar{2}\,9]$	0,40	14	$(0\,1\,0)\,[\bar{1}0\,0\,3]$	~ 0,50
5	$(1\,7\,0)\,[\bar{7}\,1\,\bar{4}]$	0,44	15	$(\bar{1}\,4\,\bar{1}0)\,[\bar{1}0\,0\,1]$	~ 0,50
6	$(3\,15\,\bar{4})\,[\bar{5}\,1\,0]$	~ 0,50	16	$(\bar{1}\,5\,\bar{1}0)\,[\bar{1}0\,0\,1]$	~ 0,50
7	$(\bar{1}\,10\,1)\,[\bar{1}0\,\bar{1}\,0]$	~ 0,50	17	$(\bar{1}\,7\,\bar{1}4)\,[\bar{7}\,1\,0]$	~ 0,50
8	$(3\,1\,\bar{7})\,[\bar{1}3\,4\,\bar{5}]$	0,43	18	$(0\,3\,\bar{1})\,[\bar{1}2\,\bar{1}\,\bar{3}]$	~ 0,50
9	$(1\,1\,\bar{4})\,[\bar{1}3\,5\,\bar{2}]$	0,47	19	$(1\,1\,\bar{3})\,[\bar{1}1\,5\,\bar{2}]$	0,46
10	$(4\,3\,\bar{1}2)\,[\bar{6}\,4\,\bar{1}]$	0,42	20	$(0\,0\,\bar{1})\,[\bar{1}0\,\bar{3}\,0]$	~ 0,50

Tableau V-2 : Orientations cristallographiques et facteurs de Schmid des 20 grains étudiés

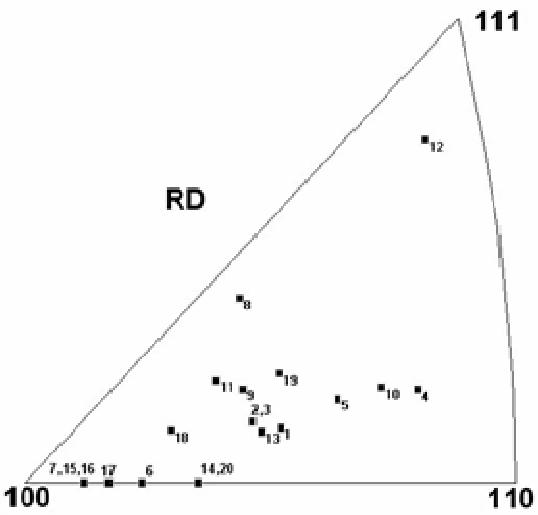


Figure V-4 : Orientation de la direction de traction des 20 grains dans le triangle stéréographique

La détermination des contraintes a été effectuée en utilisant la procédure relative, l'état initial servant de référence. Ce matériau subissant une transformation de phase, l'hypothèse '$\sigma_{33} = 0$' n'a pas été utilisée. Pour des questions de lisibilité, les résultats d'analyses de contraintes des 20 grains sont tracés sur un même graphique. Les composantes normales et de cisaillement du tenseur des contraintes dans la base de l'échantillon sont données respectivement Figure V-5 et Figure V-6 pour les chargements 1, 2 et 3. Les valeurs moyennes figurent également sur les graphiques, elles sont représentées par des traits horizontaux.

Il est important de spécifier que les déformations imposées à chaque grain sont inconnues : les états de contraintes estimés par microdiffraction Kossel sont donc représentés en utilisant comme abscisse la déformation imposée à l'ensemble de l'éprouvette. Après décharge, les six composantes ainsi que les valeurs moyennes, pour les 20 grains, sont tracées Figure V-7.

Les incertitudes en déformation dans la base du cristal issues du calcul de minimisation, déterminées par le logiciel, sont de 2.10^{-4} pour les composantes normales et de cisaillement. En utilisant la matrice de rigidité, cela équivaut à des incertitudes en contraintes de l'ordre de 80 MPa pour les composantes normales et 40 MPa pour les composantes de cisaillement, dans la base du cristal.

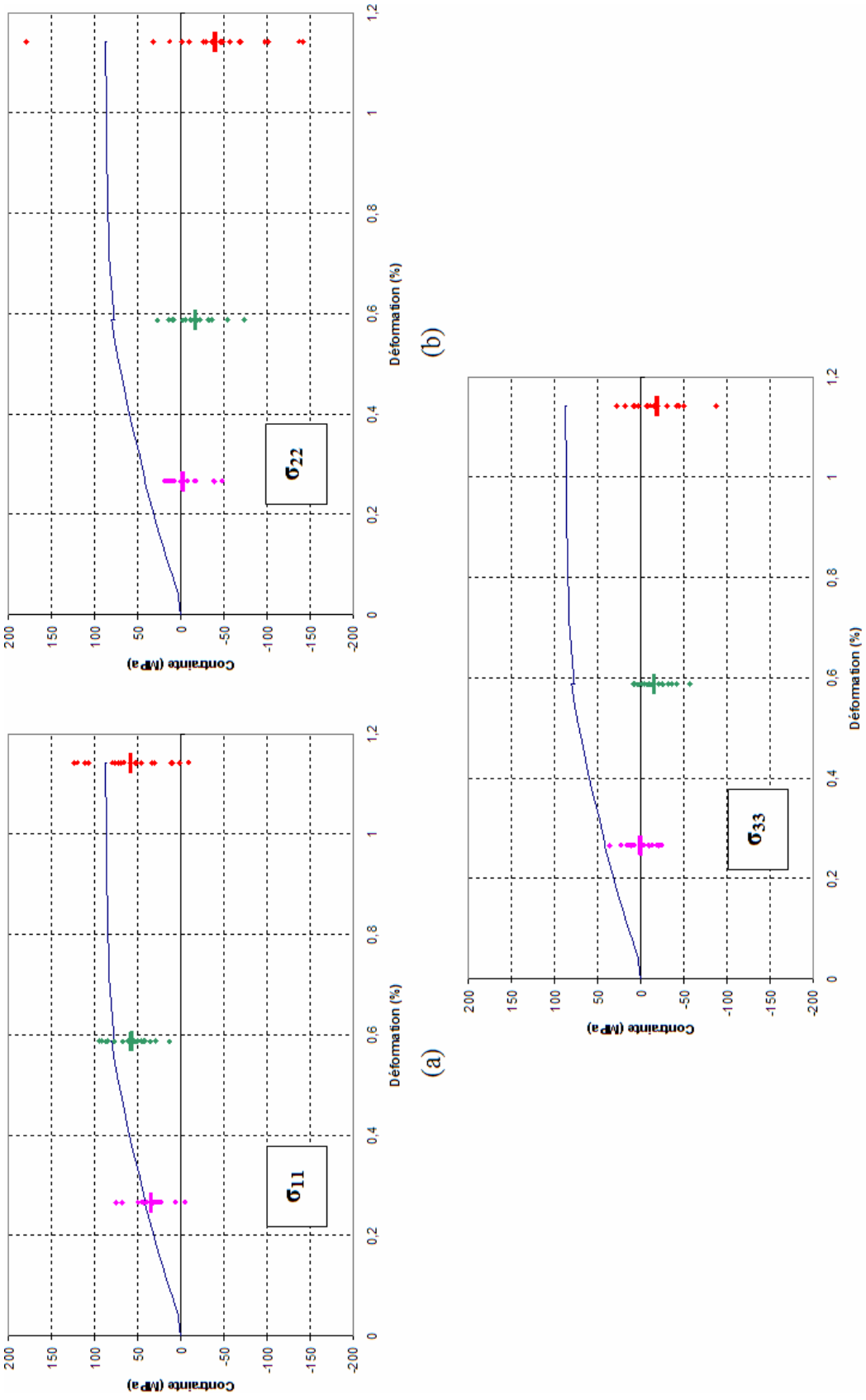


Figure V-5 : Evolution des composantes normales σ_{11} (a), σ_{22} (b) et σ_{33} (c) du tenseur des contraintes pour l'ensemble des grains analysés, ainsi que les valeurs moyennes (traits horizontaux), par rapport à la contrainte appliquée. σ_{11} dans la direction de sollicitation

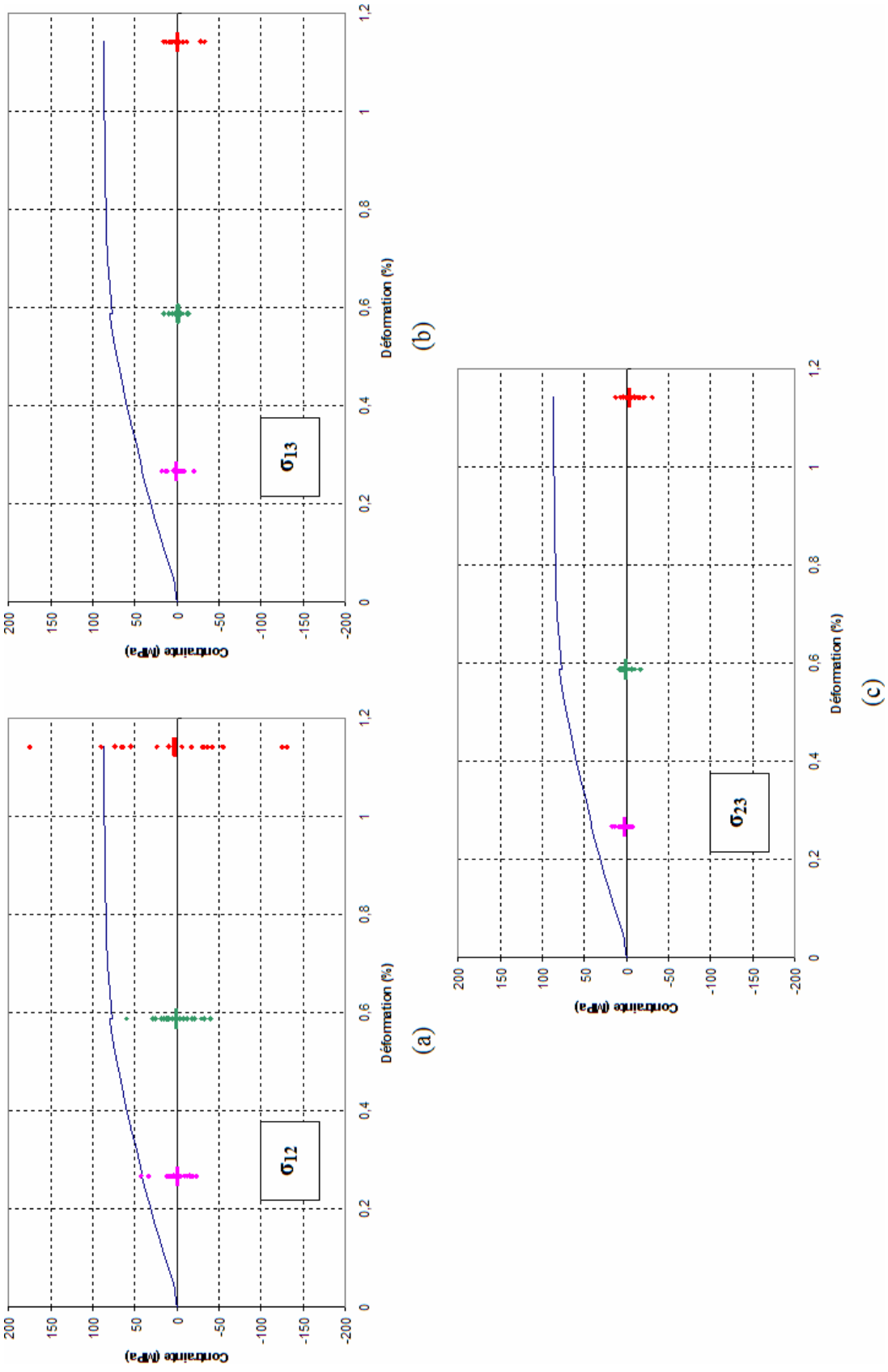


Figure V-6 : Evolution des composantes de cisaillement σ_{12} (a), σ_{13} (b) et σ_{23} (c) du tenseur des contraintes pour l'ensemble des grains analysés, ainsi que les valeurs moyennes (traits horizontaux), par rapport à la contrainte appliquée. σ_{11} dans la direction de sollicitation

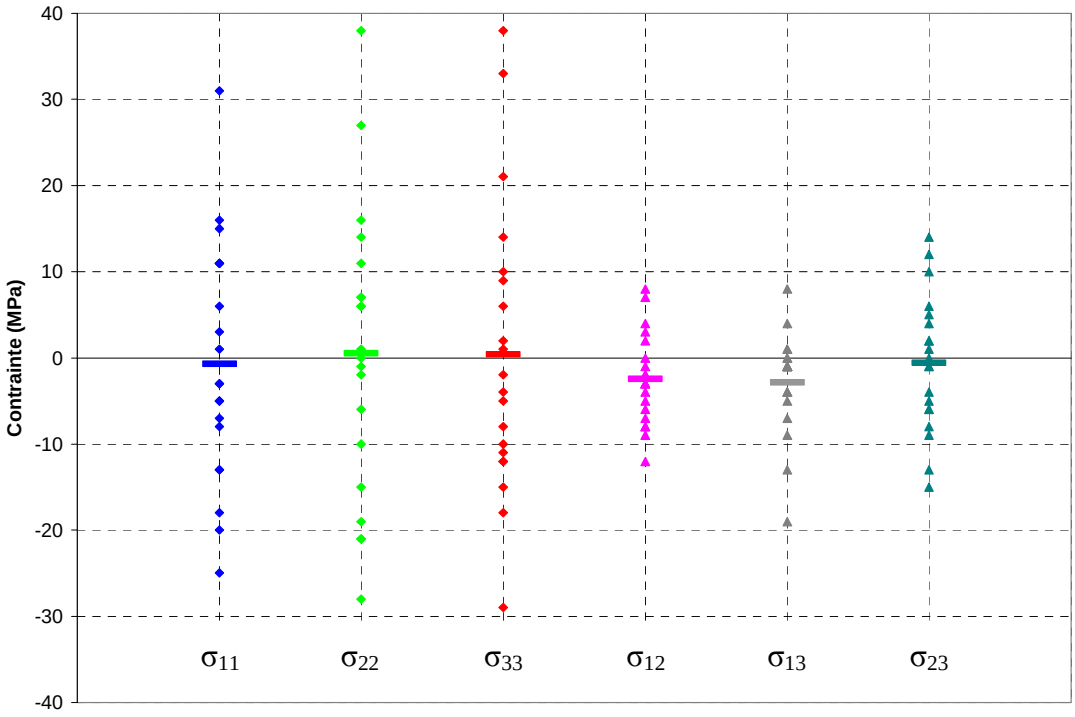


Figure V-7 : Evolution des 6 composantes du tenseur des contraintes, à la décharge, pour l'ensemble des grains analysés ainsi que les valeurs moyennes par composante (traits horizontaux). σ_{11} dans la direction de sollicitation

Par la suite, on notera $<\sigma_{ij}>$ la valeur moyennée sur les 20 grains de la composantes σ_{ij}. Au cours de la sollicitation de l'éprouvette, on constate une augmentation de $<\sigma_{11}>$ jusqu'au chargement 2, puis une stabilisation de celle-ci au dernier chargement. Au premier chargement, $<\sigma_{11}>$ est conforme à la sollicitation imposée (écart égal à 5 MPa). Pour les deuxièmes et troisièmes chargements, des écarts respectivement d'environ 20 et 30 MPa sont mesurés. Ils s'expliquent par la formation de la phase martensitique.

Au premier chargement, $<\sigma_{22}>$ et $<\sigma_{33}>$ sont proches de 0. Puis au deuxième chargement, elles diminuent et sont de l'ordre de -15 MPa. Au dernier chargement, où la fraction de martensite devient importante, $<\sigma_{33}>$ se stabilise comme $<\sigma_{11}>$ tandis que $<\sigma_{22}>$ continue à décroître.

En considérant les valeurs intergranulaires des composantes normales, nous notons des hétérogénéités importantes qui ont tendance à augmenter au cours du chargement. Au premier chargement, il n'a pas été détecté de martensite. Nous pourrions donc nous attendre à ce que toutes les composantes σ_{33} soient nulles. Or, des dispersions entre -25 et 35 MPa sont présentes et l'écart type, pour les 20 mesures, est d'environ 15 MPa.

En ce qui concerne les composantes de cisaillement, les valeurs moyennes sont proches de zéro pour tous les points de chargement. Nous remarquons, de la même manière, une augmentation des hétérogénéités au cours du chargement. Ces dernières sont plus marquées pour σ_{12}. Ceci est cohérent car il n'y a plutôt qu'un seul grain dans l'épaisseur et ainsi plus d'incompatibilités dans le plan (1,2).

A la décharge, les valeurs moyennes des six composantes sont comprises entre -5 et 5 MPa, ce qui est cohérent avec la relaxation de l'effort appliqué. Des hétérogénéités intergranulaires (de -30 à 30 MPa pour les composantes normales) sont toutefois présentes à l'issue du cycle de chargement. Ceci est en accord avec la présence de martensite résiduelle à la fin de l'analyse, qui est vérifiée sur la courbe macroscopique (Figure V-3) et confirmée par la microstructure.

Pour estimer d'où peuvent provenir ces hétérogénéités, les états de contraintes relatifs à quatre grains particuliers ont été tracés en fonction de la déformation imposée à l'éprouvette (Figure V-9). Les grains 6 et 10 ont été choisis car ils font partie des premiers grains à s'être transformés, pour une contrainte d'environ 60 MPa (inférieure à la contrainte du chargement 2). Au chargement 3, le grain 6 ne s'est transformé que dans sa partie inférieure tandis qu'au sein du grain 10, deux variantes de martensite occupant l'ensemble du grain sont visibles (Figure V-8). Le grain 13, quant à lui, a commencé à se transformer plus tard, pour une contrainte de l'ordre de 80 MPa. Au chargement 3, sa fraction de martensite est inférieure à celle des grains 6 et 10. Le grain 12 a été choisi car il a un facteur de Schmid très faible par rapport aux autres grains et on vérifie l'absence de martensite au dernier chargement.

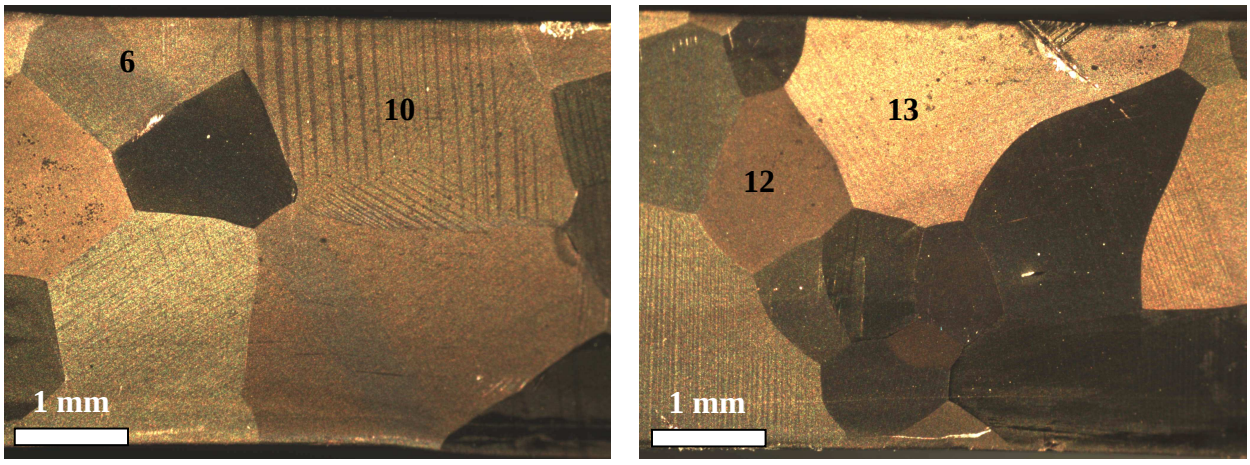


Figure V-8 : Microstructure à la binoculaire des grains 6, 10, 12 et 13 au point de chargement n°3

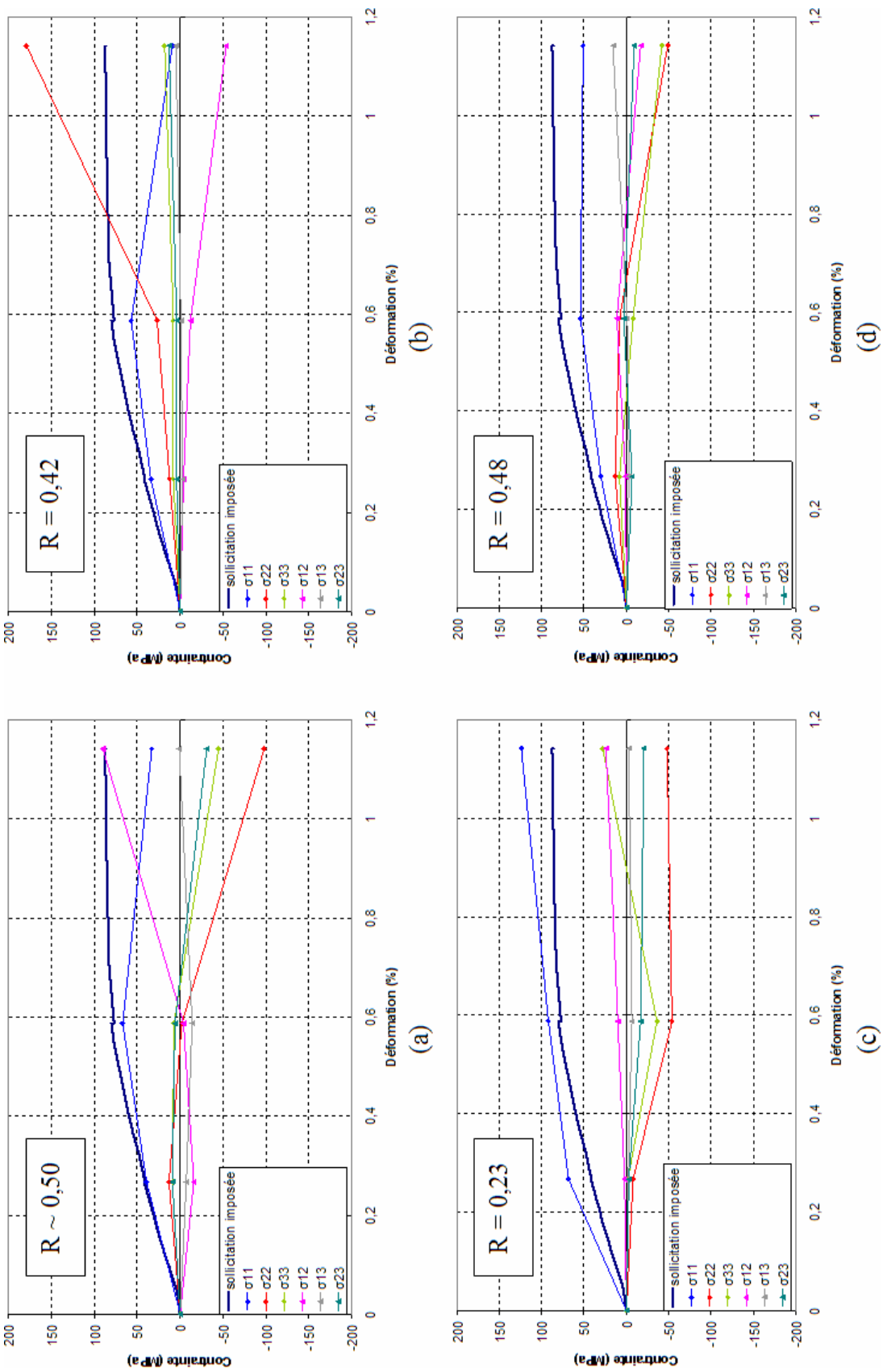


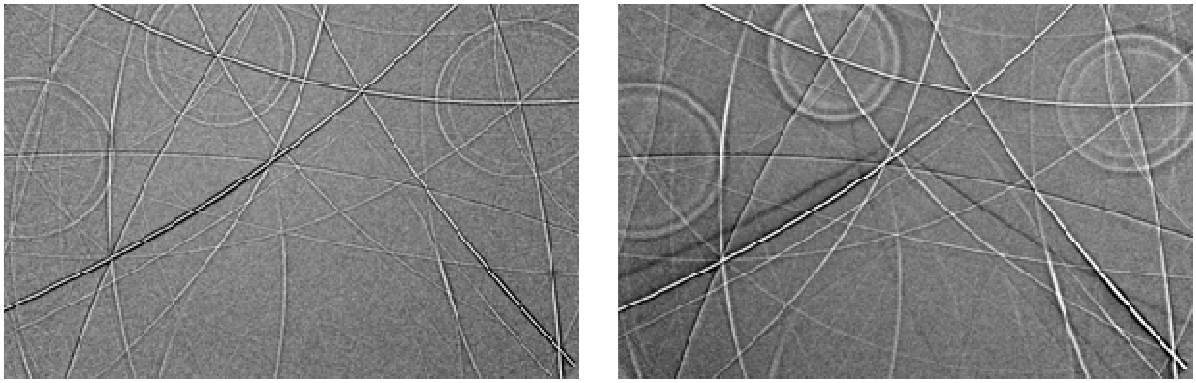
Figure V-9 : Evolution des 6 composantes du tenseur des contraintes pour les grains 6 (a), 10 (b), 12 (c) et 13 (d) par rapport à la contrainte appliquée. σ_{11} dans la direction de sollicitation. Indication du facteur de Schmid R.

i

Pour le grain 12, à facteur de Schmid faible, la contrainte σ_{11} estimée par microdiffraction Kossel est toujours supérieure à la contrainte appliquée. Pour le grain 13, qui s'est peu transformé malgré son facteur de Schmid de 0,49 (effet du voisinage qui 'bloque' la transformation [125]), nous notons une stabilisation de σ_{11} et une diminution des deux autres composantes normales entre les chargements 2 et 3.

En ce qui concerne les grains qui ont une fraction de martensite élevée au chargement 3, nous remarquons, entre les chargements 2 et 3, une diminution de σ_{11} et l'apparition de valeurs importantes pour σ_{22}. Nous notons également une valeur de σ_{12} non négligeable (90 MPa) pour le grain 6. Ceci est en accord avec les résultats précédemment obtenus par Kaouache via des analyses monocristallines par diffraction des rayons X [125].

La Figure V-10 montre l'allure des clichés Kossel obtenus pour le grain 6 à l'état initial et au chargement 3. En considérant les petits cercles relatifs aux réflexions {642}, nous repérons un mouvement et un épaississement des lignes avec la charge. Cela confirme le fait que la zone analysée soit très déformée.



(a) (b)

Figure V-10 : Clichés Kossel obtenus pour le grain 6 à l'état initial (a) et au point de chargement n°3 (b)

Pour ce chargement, un autre cliché a été enregistré dans une zone plus riche en martensite. Nous lui avons superposé la simulation associée au cliché obtenu au centre du grain (Figure V-11). Nous remarquons un décalage causé par une légère différence d'orientation cristallographique, mais également d'une hétérogénéité de contraintes intragranulaire. Ceci est remarquable en considérant la différence de diamètre pour les petits cercles relatifs aux réflexions {642}. De plus, nous voyons l'apparition de lignes supplémentaires (repérées par des flèches) qui pourraient provenir de la phase martensitique.

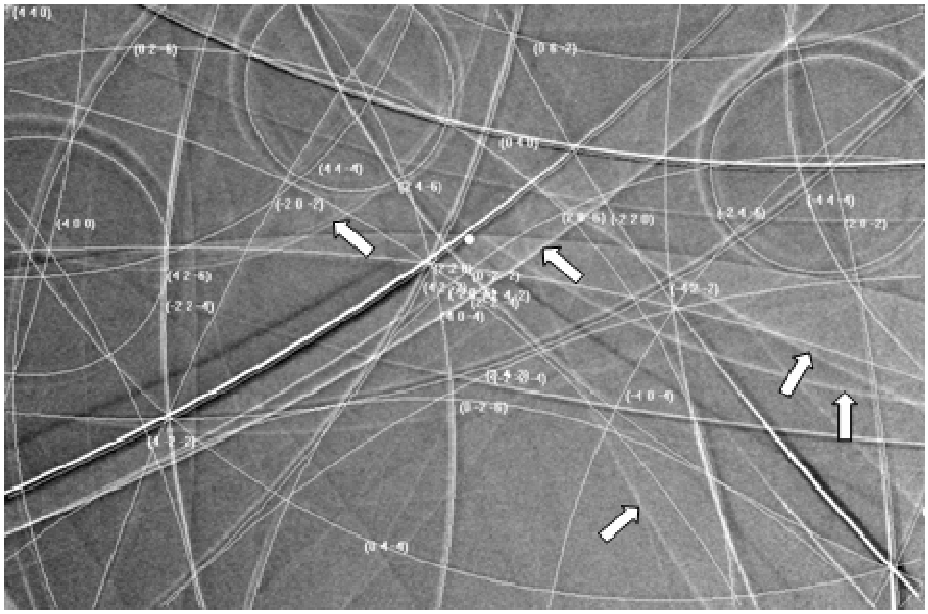


Figure V-11 : Cliché Kossel obtenu pour le grain 6 au point de chargement n°3 dans une zone plus riche en martensite et superposition de la simulation relative au cliché obtenu au centre du grain

Cette étude montre que l'état de contrainte d'un grain d'austénite dépend de son orientation cristallographique ainsi que de son état de transformation. L'apparition de la phase martensitique semble être accompagnée d'une relaxation des contraintes de l'austénite dans la direction de sollicitation et de l'apparition de contraintes de cisaillement. De plus, des hétérogénéités intragranulaires sont présentes et compliquent l'interprétation des résultats issus d'un seul point de mesure. Toutefois, des essais complémentaires sont à envisager pour confirmer ces premières observations.

5.1.2 FeSi

Une campagne d'essais a été effectuée sur un autre matériau à grains millimétriques : un fer-silicium (FeSi), fourni par Arcelor Mittal Research. Contrairement au cas précédent, ce matériau ne subit pas de transformation de phase. Il contient 1,5 % de silicium en masse dans du fer. L'épaisseur d'environ 2,7 mm ne permet pas aux grains d'être traversants. Une éprouvette de traction a été préparée pour réaliser un suivi de l'état de déformations / contraintes au cours d'un essai de traction uniaxiale. Quatre grains ont été choisis au hasard dans une même zone de la partie utile de l'éprouvette et les analyses ont été effectuées à proximité du joint de grains (Figure V-12).

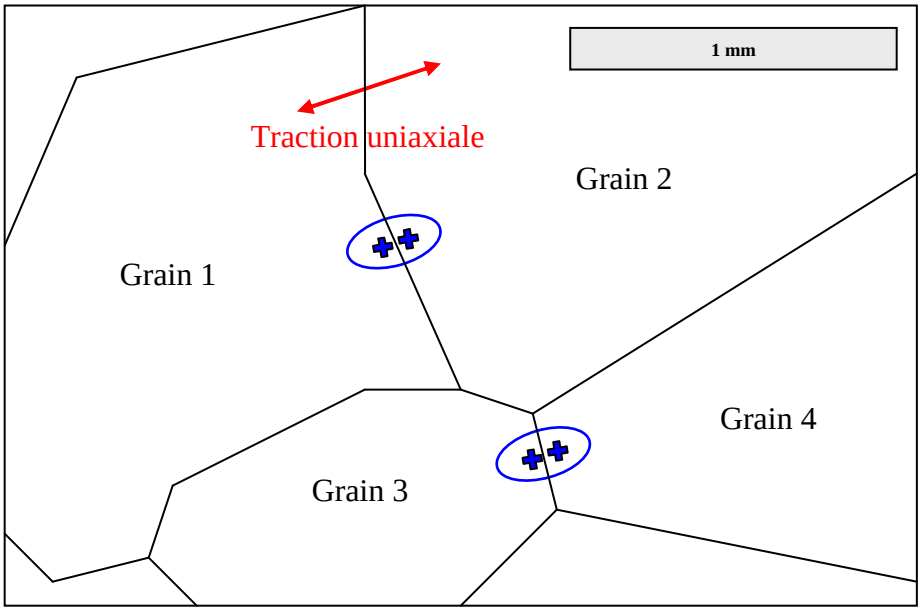


Figure V-12 : Représentation schématique de la microstructure du FeSi avec indication de la direction de sollicitation (double flèche) et des zones analysées au sein des 4 grains (croix)

Plus précisément, pour chaque grain, cinq mesures ont été effectuées en focalisant le faisceau d'électrons suivant un profil perpendiculaire au joint de grains. Le point le plus proche du joint de grains est situé à 10 µm et l'espacement entre les points est aussi de 10 µm (Figure V-13).

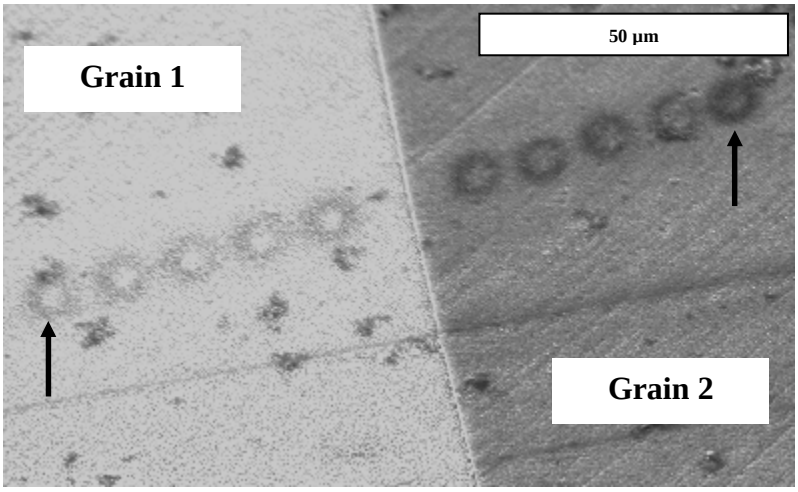


Figure V-13 : Image MEB de la microstructure du FeSi. Les 5 points de mesure par grain (espacés de 10 µm) sont visibles grâce à la contamination due à la focalisation du faisceau électronique. Les flèches indiquent les points utilisés pour l'analyse intergranulaire

L'éprouvette de traction a été sollicitée jusqu'à environ 2,5 % de déformation (mesure de la déformation réalisée sans extensomètre, à l'aide d'un capteur inductif LVDT) pour une contrainte imposée d'environ 250 MPa, la limite d'élasticité du matériau étant estimée à environ 200 MPa. L'essai a été interrompu à cinq reprises, tout en maintenant la force appliquée, pour réaliser des analyses de microdiffraction Kossel au MEB sur les quatre grains (Figure V-14). On remarque un léger relâchement de la force appliquée par la machine quand on interrompt la sollicitation pour acquérir des clichés, les valeurs correspondants aux points rouges ayant été relevées deux minutes après les arrêts. Des clichés ont aussi été enregistrés pour l'état initial et après la décharge.

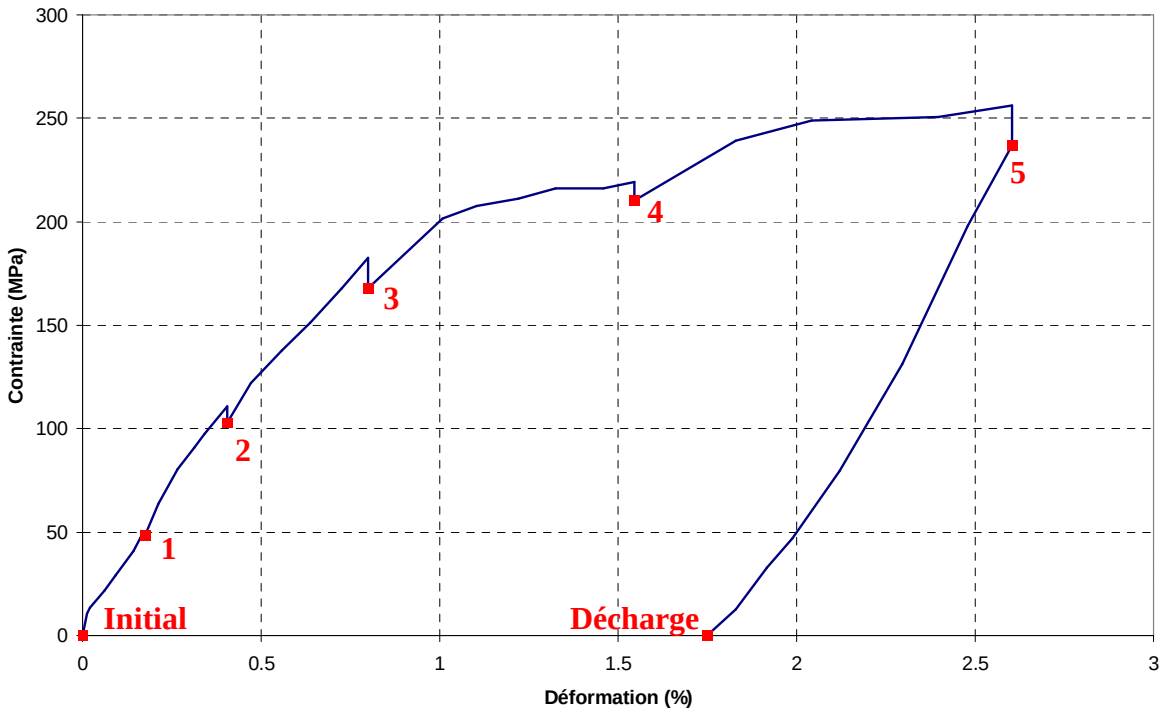


Figure V-14 : Courbe de traction conventionnelle du FeSi. Les points correspondent aux points d'analyses par microdiffraction Kossel : état initial, 5 chargements et décharge

Les orientations cristallographiques des quatre grains ont été déterminées à partir de l'analyse des clichés Kossel et sont reportées Tableau V-3. Les facteurs de Schmid maximaux ont aussi été calculés en utilisant les systèmes de glissements prépondérants de la structure cubique centrée, à savoir {110}<111>. Les trois premiers grains ont des facteurs de Schmid similaires, proches de 0,5. Le grain 4 a un facteur de Schmid légèrement inférieur aux trois autres grains.

Cela se vérifie sur le triangle inverse tracé Figure V-15 : les trois premiers grains ont des orientations proches par rapport à la direction de sollicitation.

Grain	Indices de Miller (HKL) [UVW]	Facteur de Schmid maximal {110} <111>
1	$(\bar{3}\,4\,\bar{6})\,[\bar{1}2\,3\,8]$	0,48
2	$(\bar{5}\,3\,\bar{1}1)\,[\bar{6}\,1\,3]$	0,49
3	$(\bar{8}\,7\,\bar{1}1)\,[\bar{5}\,\bar{1}\,3]$	0,49
4	$(\bar{1}\,5\,\bar{5})\,[\bar{1}0\,5\,7]$	0,43

Tableau V-3 : Orientation cristallographique et facteur de Schmid maximal des 4 grains étudiés

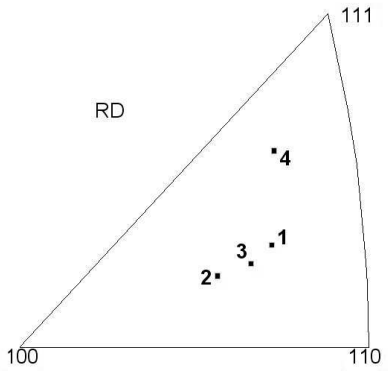


Figure V-15 : Orientation de la direction de traction des 4 grains dans le triangle stéréographique

Pour chaque grain, le point le plus éloigné du joint de grains a été choisi (Figure V-13). La détermination des contraintes a été effectuée en utilisant une hypothèse de contraintes planes qui semble justifiée pour ce matériau. La procédure relative a été utilisée pour le traitement des clichés de diffraction, l'état initial servant de référence.

Les quatre clichés Kossel obtenus pour le premier chargement, accompagnés des coniques utilisées pour l'analyse relative, sont représentés Figure V-16. Les clichés bruts des grains 1 et 2 ont été utilisés pour corriger les bruits de fond. Les composantes relatives des tenseurs (biaxiaux) de contraintes, dans la base de l'échantillon, ont été déterminées pour les quatre grains et pour les cinq états de chargement ainsi qu'après la décharge. Elles sont représentées Figure V-17, en utilisant comme abscisse la déformation imposée à l'ensemble du matériau.

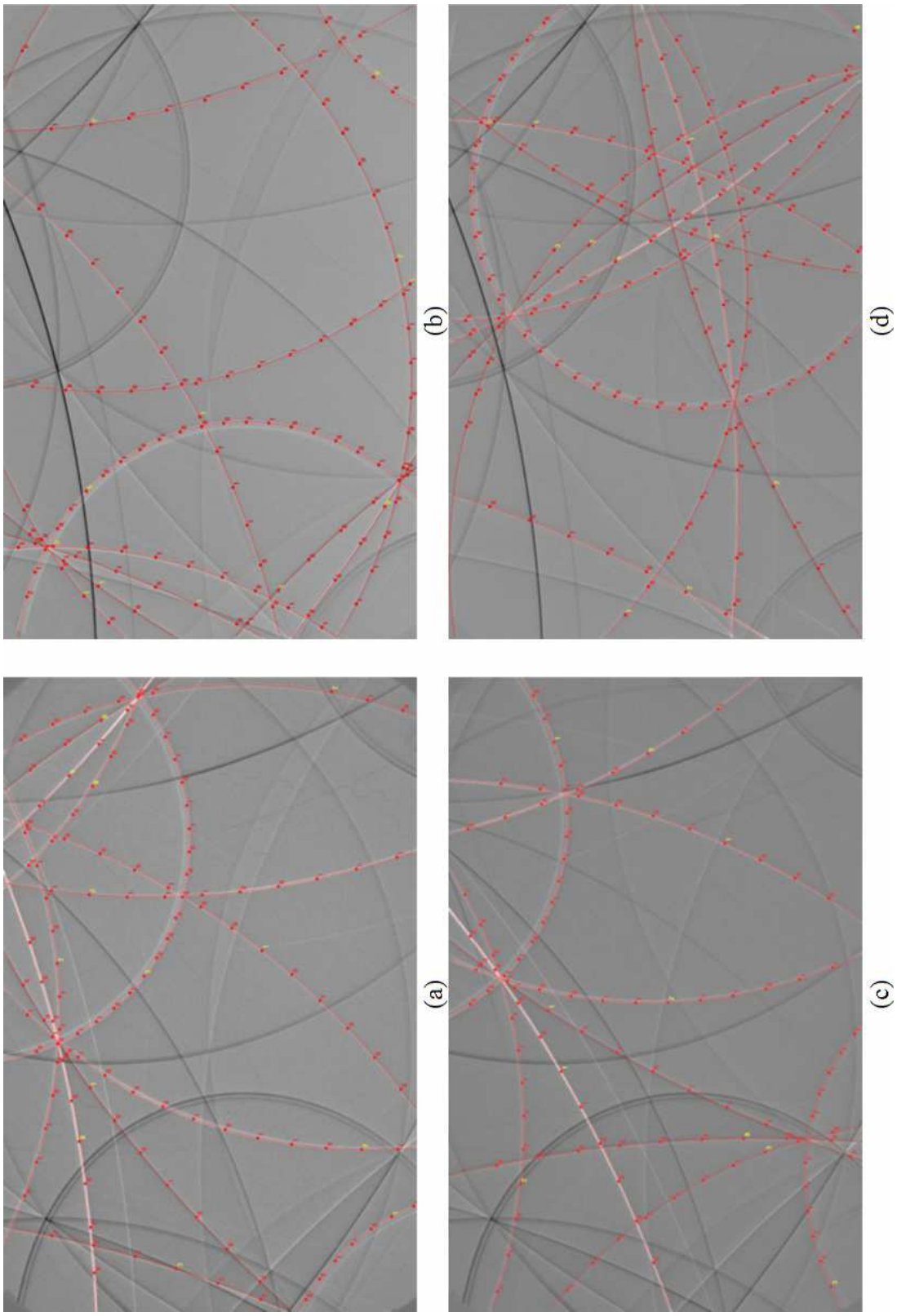


Figure V-16 : Clichés Kossel et coniques utilisées pour l'analyse relative, avec indication des écarts après la corrélation automatique pour les grains 1 (a), 2 (b), 3 (c) et 4 (d)

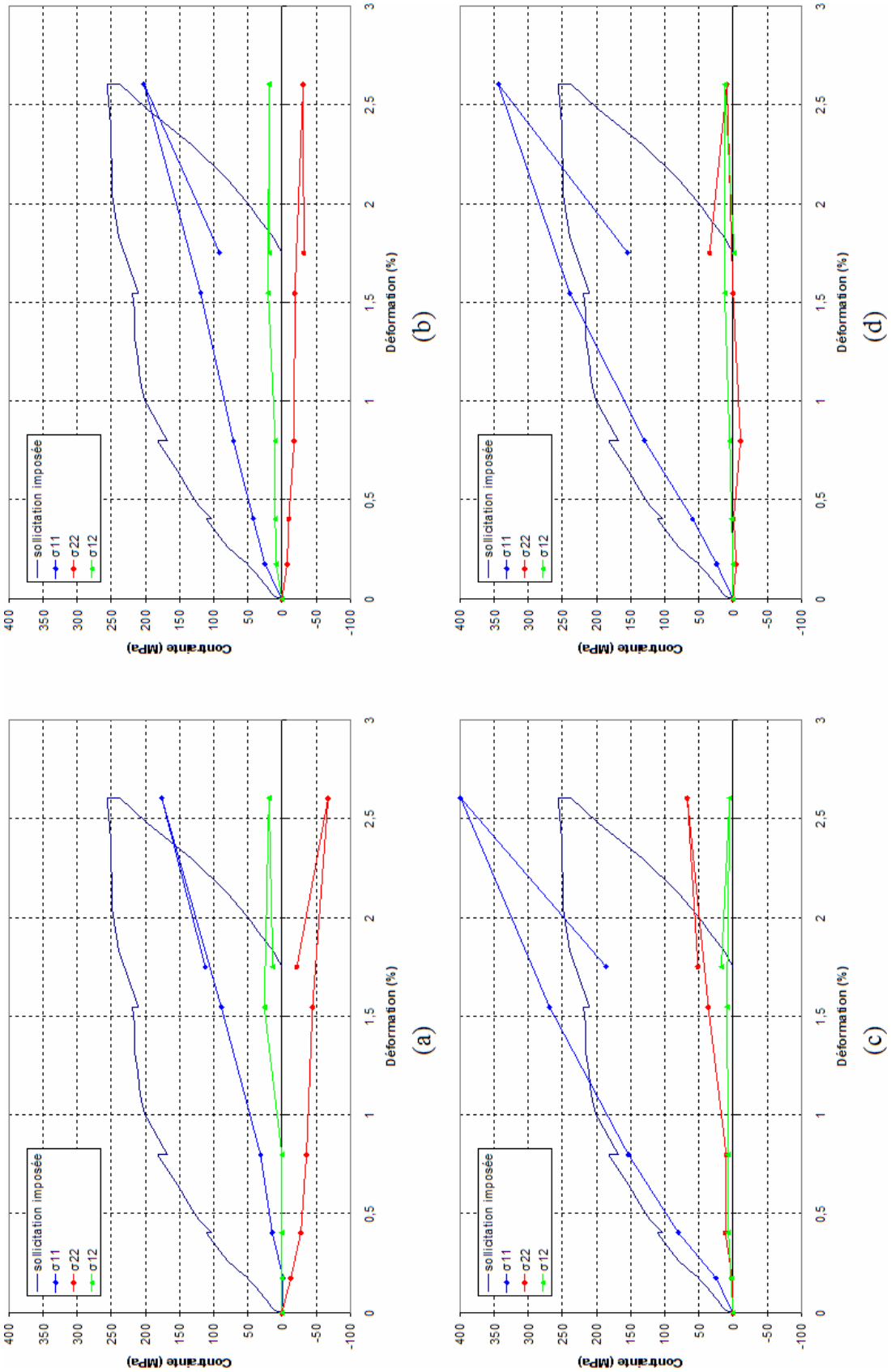


Figure V-17 : Evolution des 3 composantes du tenseur des contraintes biaxial pour les grains 1 (a), 2 (b), 3 (c) et 4 (d) par rapport à la contrainte appliquée. σ_{11} dans la direction de sollicitation

Les incertitudes en contraintes dans la base de l'échantillon issues du calcul de minimisation, déterminées par le logiciel, sont d'environ 100 MPa pour les composantes normales et 50 MPa pour la composante de cisaillement. Ces valeurs sont assez élevées alors que l'hypothèse de contraintes planes a été choisie. Une étude similaire a été réalisée sans utiliser cette hypothèse. Les résultats étaient similaires, mais les incertitudes déterminées par le logiciel étaient deux à trois fois plus élevées. Une autre approche a été menée pour estimer ces incertitudes : réaliser plusieurs points de mesures au sein de chaque grain. Les résultats sont présentés page suivante.

Les grains 1 et 2 ont un comportement proche, ce qui est cohérent car ces deux grains ont des tailles et des orientations similaires. Les valeurs de σ_{11} augmentent en fonction de la déformation imposée à l'échantillon et restent toujours inférieures au chargement appliqué. En effet, un facteur de Schmid proche de 0,5 implique une déformation assez 'facile' du cristal dans la direction de sollicitation et ainsi des contraintes inférieures aux valeurs macroscopiques. Les valeurs de σ_{22} sont négatives et diminuent au cours de la charge. La composante de cisaillement σ_{12} est négligeable par rapport aux deux autres composantes : les valeurs sont toujours inférieures à 30 MPa. Au cours de la charge, ces deux grains se sont déformés suivant l'axe de sollicitation et légèrement comprimés suivant l'axe transverse. Après décharge, des contraintes résiduelles non négligeables et similaires semblent présentes dans ces deux grains : σ_{11} diminue d'une valeur inférieure au retour élastique pour atteindre environ 100 MPa tandis que σ_{22} est d'environ -30 MPa.

Pour le grain 4, les valeurs de σ_{11} sont 1,5 à 2 fois plus élevées que celles des grains 1 et 2. Pour les deux derniers chargements, σ_{11} est supérieure à la contrainte appliquée. Tout cela est cohérent car le grain 4 a une orientation moins favorable par rapport à la direction de sollicitation (facteur de Schmid plus faible). Jusqu'au point de chargement 4, σ_{11} a un comportement linéaire, puis le grain semble plastifier. Au cours du chargement, les autres composantes sont négligeables. A la décharge, des contraintes résiduelles sont également présentes dans ce grain : σ_{11} et σ_{22} sont respectivement égales à environ 150 et 30 MPa.

L'analyse intergranulaire pour les grains 1, 2 et 4 semble plutôt cohérente si nous la confrontons aux différences d'orientation cristallographique. Nous vérifions que la contrainte σ_{11} d'un grain orienté favorablement est inférieure à la contrainte imposée. Les contraintes déterminées au sein du grain 3 sont par contre difficiles à interpréter. En effet, les valeurs de

σ_{11} sont plutôt supérieures à la contrainte appliquée malgré le fait que ce grain ait une orientation proche des grains 1 et 2 et les valeurs de σ_{22} sont positives. Ce grain a la particularité d'être a priori de taille inférieure. De plus, le point de mesure n'a pas été choisi au centre du grain mais à 50 µm du joint de grains le séparant du grain 4 (afin de réaliser des profils à travers le joint) orienté moins favorablement. Les grains voisins peuvent également avoir un effet non négligeable sur le comportement mécanique. Tous ces éléments peuvent peut-être expliquer le comportement original de ce grain. Une simulation numérique par éléments finis du comportement de ce multicristal serait sans doute utile pour analyser ces différentes hypothèses.

Quatre points supplémentaires par grain ont été analysés en s'approchant des joints de grains, afin d'estimer les hétérogénéités intragranulaires (Figure V-13). Les analyses de contraintes ont été réalisées en utilisant la procédure relative, le cliché obtenu à l'état initial servant de référence. Seules les valeurs correspondant au dernier point de chargement (sollicitation imposée d'environ 250 MPa) sont présentées Figure V-18. Nous remarquons, pour les quatre grains et pour les cinq composantes du tenseur des contraintes, des variations assez faibles. Celles-ci sont inférieures à 50 MPa, alors que les incertitudes données par le logiciel sont de 100 MPa pour les composantes normales. Il est impossible de dire si ces légères variations proviennent effectivement d'hétérogénéités intragranulaires ou des incertitudes de mesures. Cependant, ces résultats sont cohérents avec le fait que les hétérogénéités intragranulaires sont supposées être faibles au sein de grains de taille millimétrique. De plus, ils permettent de vérifier que les incertitudes dans la détermination des contraintes données par le logiciel semblent être légèrement surestimées.

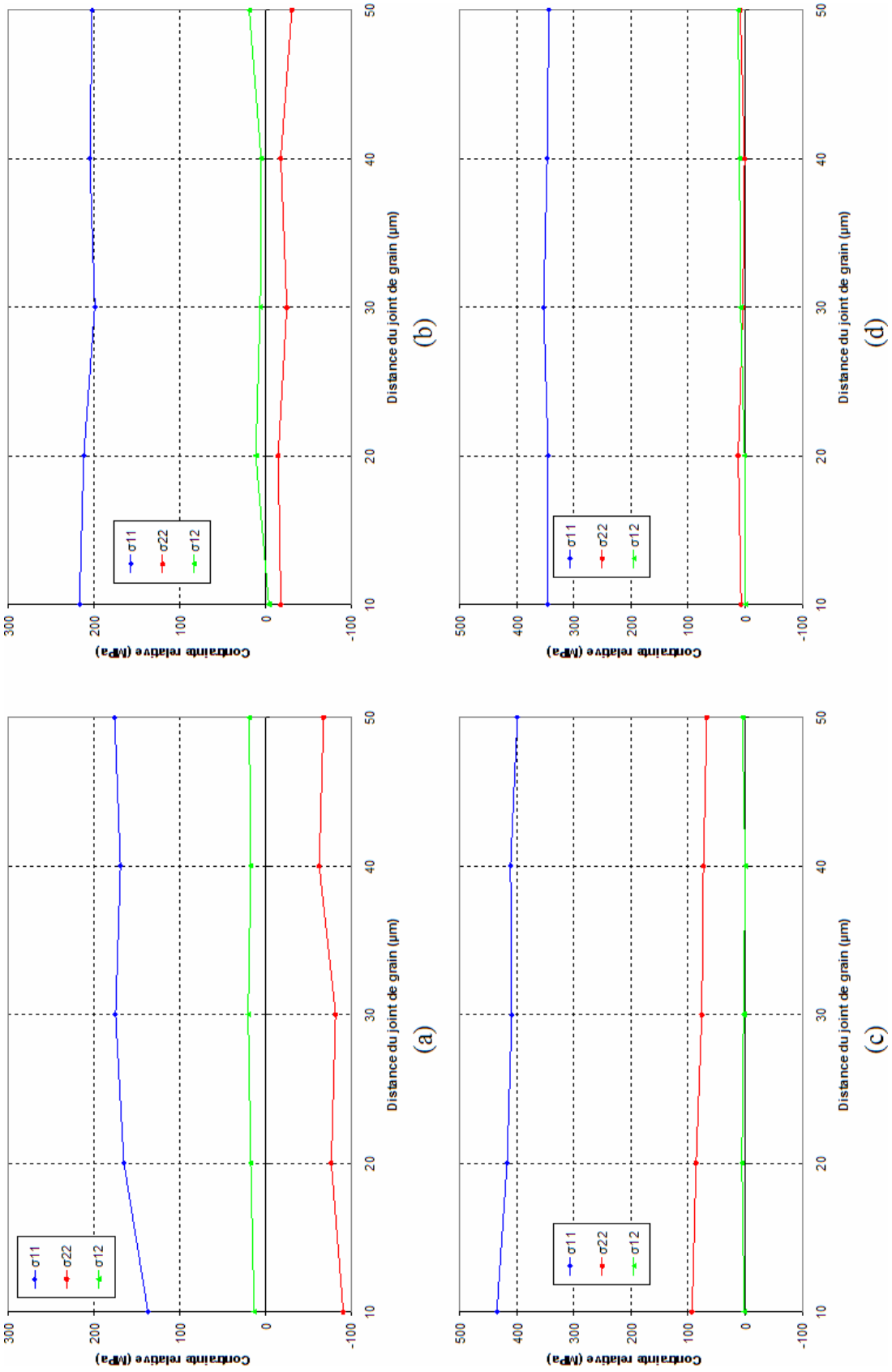


Figure V-18 : Evolution intragranulaire des 3 composantes du tenseur des contraintes biaxial pour les grains 1 (a), 2 (b), 3 (c) et 4 (d), pour une sollicitation imposée d'environ 250 MPa (chargement 5). σ_{11} dans la direction de sollicitation

5.2 Analyses de contraintes sur matériaux à grains fins sollicités en traction uniaxiale

5.2.1 Présentation de l'étude

Un matériau présentant une taille moyenne de grains plus faible a été étudié de façon à évaluer les limitations de la technique en fonction de la taille de grains. Un acier IF (Interstitial Free), composé principalement de fer (Tableau V-4) a été choisi. Il présente une microstructure ferritique avec des grains 'équiaxes' de diamètre moyen environ égal à 13 µm [126]. Ce matériau a subi un 'skin-pass'. Une texture de laminage est présente. Comme précédemment, le suivi du niveau de contraintes de plusieurs grains a été réalisé au cours d'une sollicitation en traction uniaxiale.

Elément présent	Ti	C	Mn	P	Si	Cu	Al
(x10^{-3}) % massique	81	1,6	113	74	8	6	37

Tableau V-4 : Composition chimique partielle de l'acier IF

Suite à une analyse EBSD, quatre grains ont été choisis en surface dans la partie utile de l'éprouvette de traction : deux grains de grande taille (diamètre d'environ 50 µm), mais ayant des orientations très distinctes par rapport à l'axe de sollicitation, et deux grains supplémentaires de plus petite taille (diamètre de 15 à 20 µm). Le faisceau d'électrons a été focalisé au centre des grains. Pour le grain 2, nous avons focalisé dans les parties gauche (2a) et droite (2b) du grain afin de déceler d'éventuelles hétérogénéités intragranulaires (Figure V-19).

Les orientations cristallographiques des quatre grains ont été déterminées à partir de l'analyse des clichés Kossel (Tableau V-5). Les directions <UVW> des quatre grains reportées sur un triangle inverse (Figure V-20) sont cohérentes avec les mesures EBSD (Figure V-19). Les facteurs de Schmid maximaux ont été calculés en utilisant les systèmes de glissements prépondérants de la structure cubique centrée, à savoir {110}<111>. Ils sont similaires pour les quatre grains.

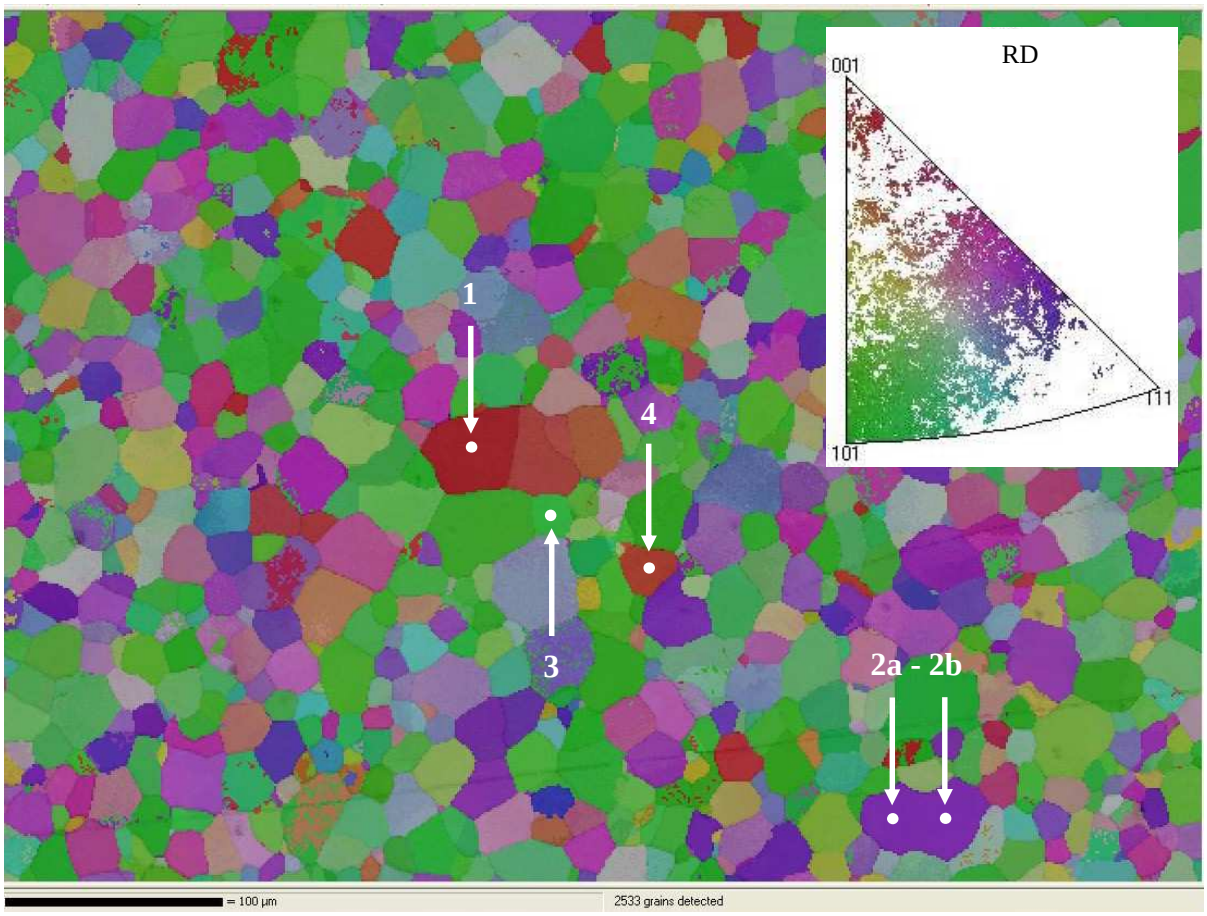


Figure V-19 : Microstructure de l'acier IF étudié, obtenue à partir d'une cartographie EBSD (image colorée d'après l'orientation par rapport à l'axe de traction et contraste de bande en surbrillance) - repérage des 5 zones analysées en microdiffraction Kossel

Grain	Indices de Miller (HKL) [UVW]	Facteur de Schmid maximal {110} <111>
1	$(1\,11\,\bar{1})\,[\bar{1}1\,1\,0]$	0,43
2	$(\bar{4}\,7\,1)\,[\bar{2}\,\bar{1}\,1]$	0,44
3	$(\bar{2}\,10\,\bar{3})\,[\bar{1}0\,1\,\bar{1}0]$	0,44
4	$(\bar{1}\,4\,\bar{1}2)\,[\bar{4}\,\bar{1}\,0]$	0,47

Tableau V-5 : Orientation cristallographique et facteur de Schmid maximal des 4 grains étudiés

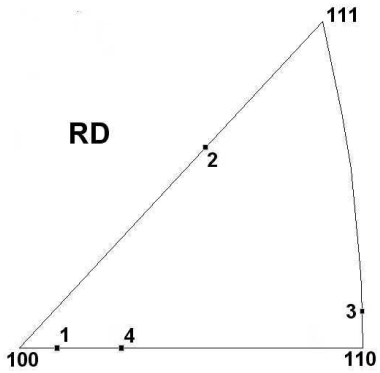


Figure V-20 : Orientation de la direction de sollicitation des 4 grains dans le triangle stéréographique

L'éprouvette de traction a été sollicitée jusqu'à environ 0,5 % de déformation (mesure de la déformation réalisée sans extensomètre, à l'aide d'un capteur inductif LVDT) pour une contrainte imposée d'environ 150 MPa (Figure V-21). L'essai a été interrompu à trois reprises, tout en maintenant la force appliquée, pour réaliser des analyses de microdiffraction Kossel au MEB. Des clichés ont aussi été enregistrés pour l'état initial et après décharge.

La détermination des contraintes a été effectuée en utilisant une hypothèse de contraintes planes. La procédure relative a été utilisée pour le traitement des clichés de diffraction, l'état initial servant de référence.

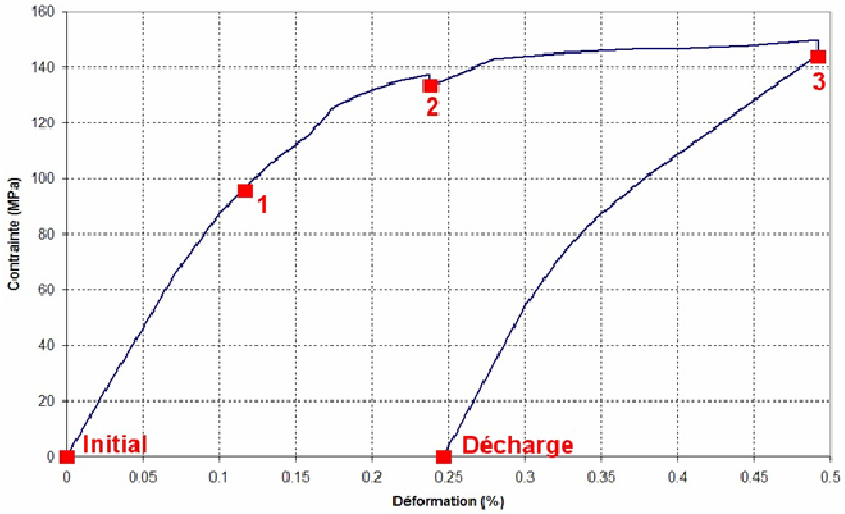


Figure V-21 : Courbe de traction conventionnelle de l'acier IF. Les points correspondent aux analyses par microdiffraction Kossel : état initial, 3 chargements et décharge

5.2.2 Allure des clichés et limitations

Par rapport aux clichés de diffraction obtenus sur le FeSi (Figure V-16), les clichés de l'acier IF sont globalement de moins bonne qualité. Pour le FeSi, toutes les réflexions étaient fines et intenses. Pour l'acier IF, nous remarquons des lignes ou des portions de lignes légèrement plus diffuses (Figure V-22). Pour deux lignes de Kossel appartenant à la même famille de plans, il peut y avoir une ligne très bien décrite et une autre très diffuse. De plus, le long d'une réflexion, il peut y avoir des variations de largeur de lignes. Ceci peut s'expliquer par la non homogénéité du volume diffractant due à des désorientations ou des hétérogénéités de contraintes intragranulaires. Ce phénomène est visible dès l'état initial et s'amplifie avec l'augmentation du chargement mécanique. A cause de l'épaississement des lignes de Kossel au cours du chargement, nous n'avons pas pu avoir accès à la déformation du réseau du grain 4 au chargement 3.

La présence d'hétérogénéités intragranulaires dans cet acier a été vérifiée par Maurice et al. [127] à partir de clichés EBSD acquis en haute résolution : un grain d'environ 20 µm ayant subi une déformation imposée d'environ 2,5 % puis un retour élastique a été analysé et les mesures par corrélation d'images (en choisissant un point de référence dans le grain) ont conduit à une désorientation maximale de 2,5° et des déformations relatives comprises entre -1.10^{-3} et 1.10^{-3}.

Nous voyons aussi la contribution des grains voisins sur le cliché, avec l'apparition de portions de lignes qui leurs sont propres (Figure V-22). Ces artefacts ont un faible impact sur le positionnement des lignes du grain considéré. Ils traduisent le fait qu'avec les conditions que nous utilisons, nous sommes susceptibles de faire diffracter les grains situés en-dessous ou les grains voisins.

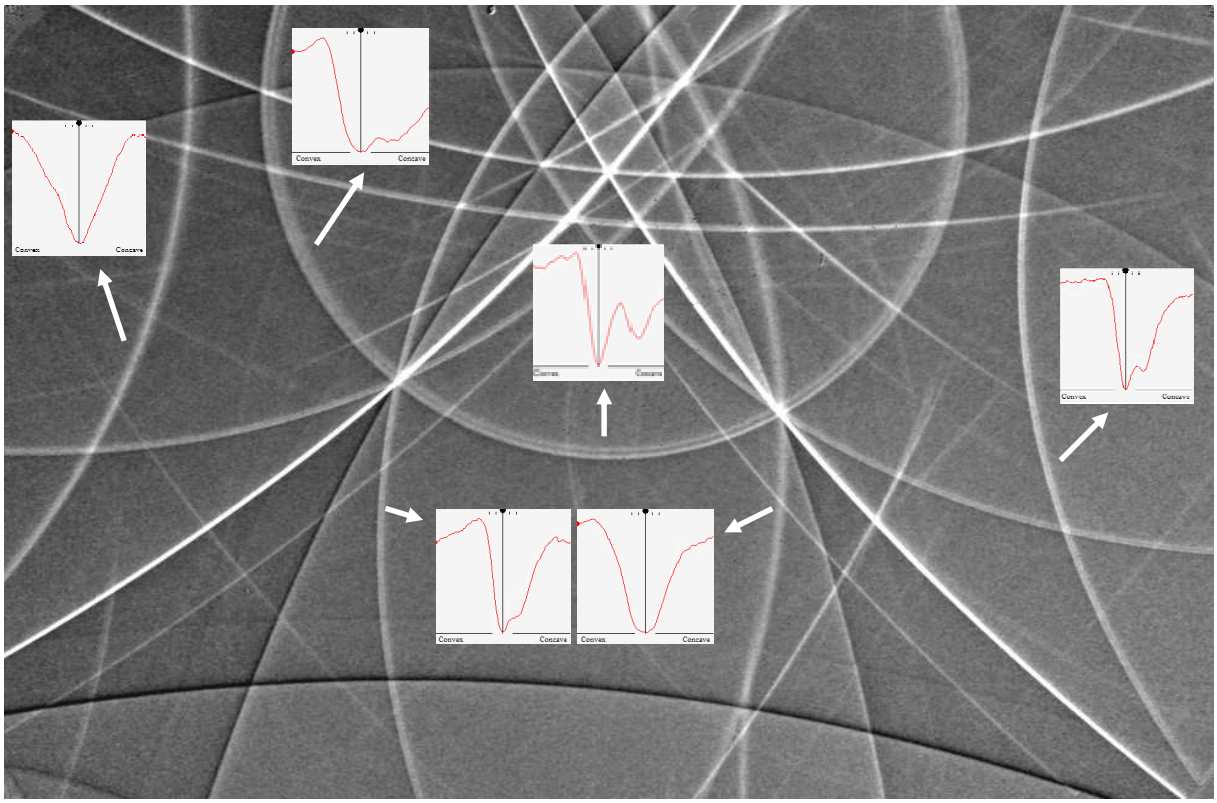


Figure V-22 : Cliché Kossel du grain 1 à l'état initial - variation des largeurs de lignes pour deux lignes d'une même famille de plans ou le long d'une réflexion - observation de quelques lignes 'parasites'

5.2.3 Résultats de l'analyse des contraintes intergranulaires

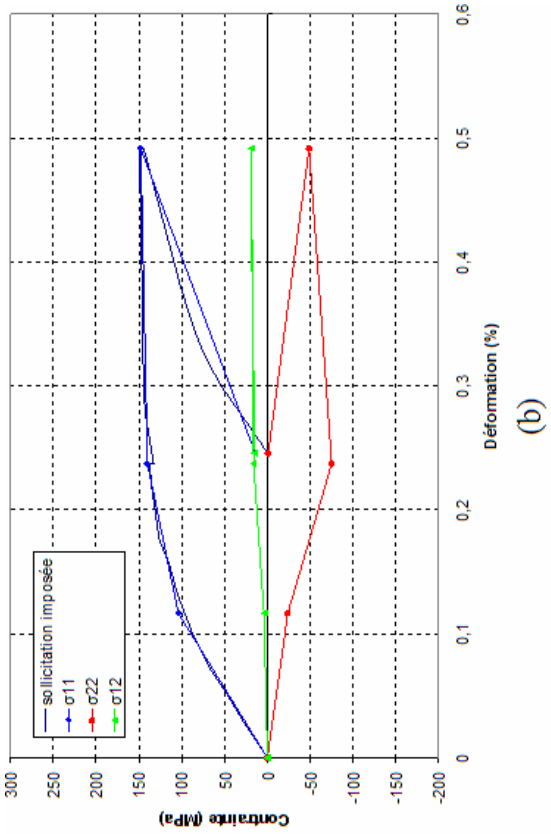
Les composantes des tenseurs (biaxiaux) de contraintes relatives, dans la base de l'échantillon, ont été déterminées pour les grains 1, 2 (a et b) et 3, au cours du chargement ainsi qu'après décharge. Elles sont représentées Figure V-23, en utilisant comme abscisse la déformation imposée à l'ensemble du matériau.

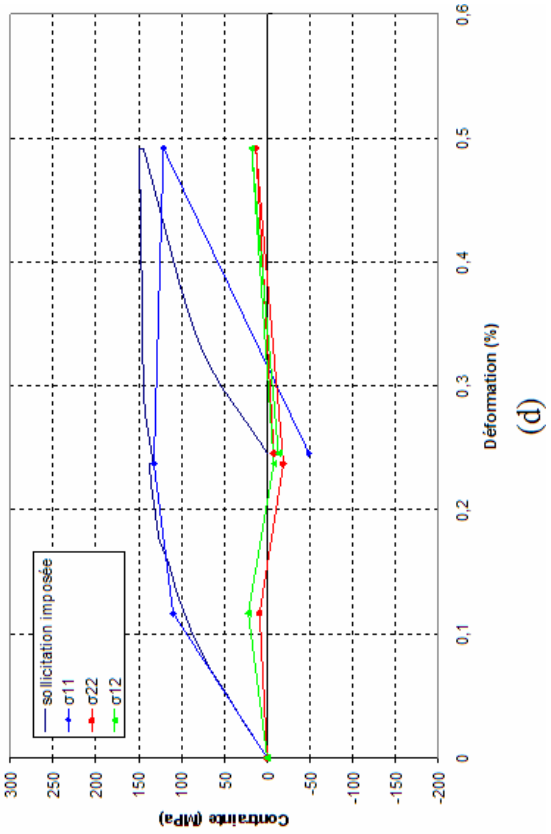
Les incertitudes en contraintes dans la base de l'échantillon issues du calcul de minimisation, déterminées par le logiciel, sont identiques à celles de l'étude sur le FeSi. Elles sont d'environ 100 MPa pour les composantes normales et 50 MPa pour la composante de cisaillement.

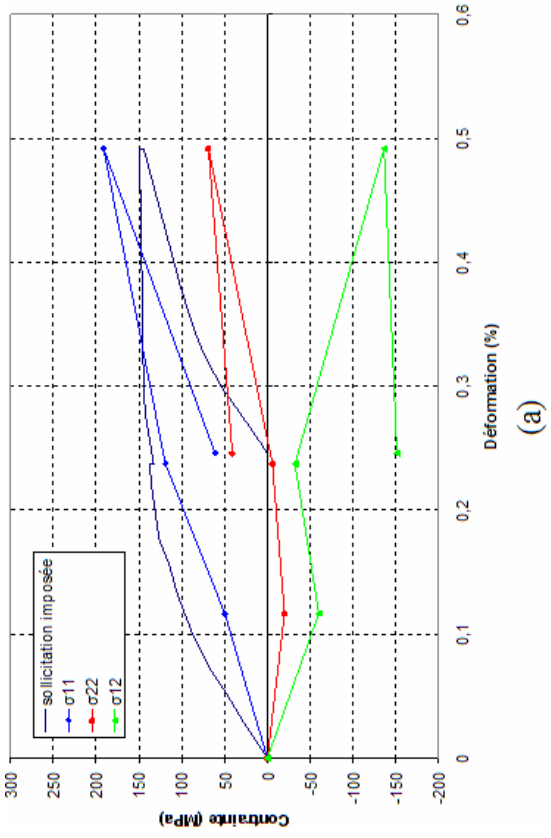
Nous remarquons tout d'abord dans la partie élastique (chargement 1) que les contraintes σ_{11} sont très proches de la contrainte macroscopique pour les grains 2a, 2b et 3. L'écart maximal est de 20 MPa. Pour le grain 1, nous avons un écart supérieur, de l'ordre de 50 MPa. Au chargement 2, les quatre mesures donnent une contrainte σ_{11} équivalente à la contrainte

macroscopique. Au chargement 3, dans la zone plastique, le grain 3 continue de suivre parfaitement la courbe imposée tandis que les autres s'en écartent. Nous remarquons à partir de ce point une différence de comportement importante entre les parties gauche et droite du grain 2 : la contrainte σ_{11} dans la partie gauche est deux fois plus importante que dans la partie droite. Un voisinage hétérogène peut expliquer ce résultat mais, en surface, nous ne distinguons pas de différences notables d'orientations et de tailles des grains situés en périphérie. Enfin, après décharge, le grain 3 continue de suivre la courbe macroscopique tandis que les grains 1 et 2 se retrouvent respectivement en traction et en compression d'environ 50 MPa.

En ce qui concerne les autres composantes du tenseur biaxial, nous observons pour le grain 3 que les valeurs de cisaillement augmentent avec le chargement mais restent inférieures à 20 MPa et les valeurs de σ_{22} sont en compression et d'environ un tiers de σ_{11}. Pour le grain 1, des valeurs de cisaillement importantes apparaissent au chargement 3 et se maintiennent après décharge. Pour le grain 2, les hétérogénités se confirment : σ_{12} et σ_{22} sont négligeables dans la partie gauche par rapport aux valeurs de la partie droite.







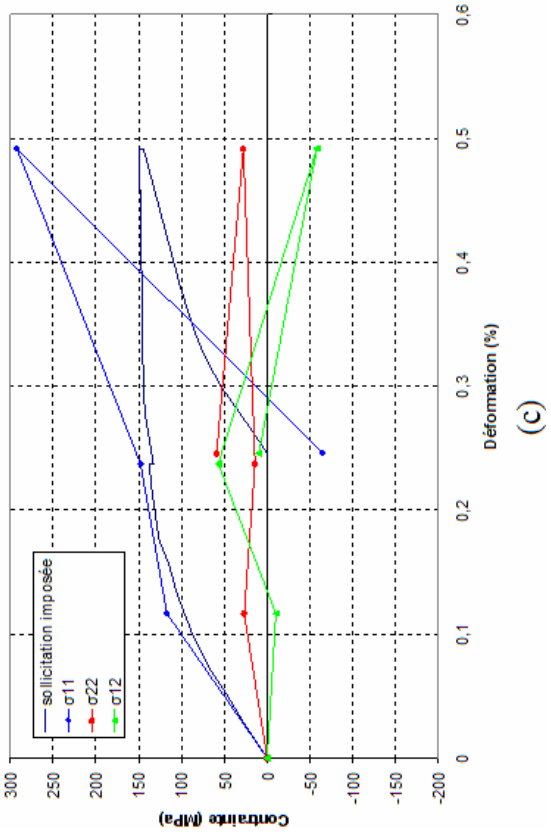


Figure V-23 : Evolution des 3 composantes du tenseur des contraintes biaxial pour les grains 1 (a), 3 (b), 2a (c) et 2b (d) par rapport à la contrainte appliquée. σ_{11} dans la direction de sollicitation

Les deux premiers points de chargement ont pu tout de même être exploités pour le grain 4, qui a une orientation très proche de celle du grain 1, mais une taille trois à quatre fois plus petite (en surface). Nous avons ainsi pu comparer la contrainte σ_{11} déterminée dans ces deux grains (Figure V-24). Cette étude montre que la contrainte σ_{11} du grain 4 est également inférieure à la valeur imposée dans la partie élastique. C'est sans doute un effet lié à l'orientation cristallographique. Pour le chargement 2, nous observons un écart important : la contrainte dans le grain le plus petit est supérieure d'un facteur 2/3. Cet effet de taille doit être confirmé par d'autres analyses.

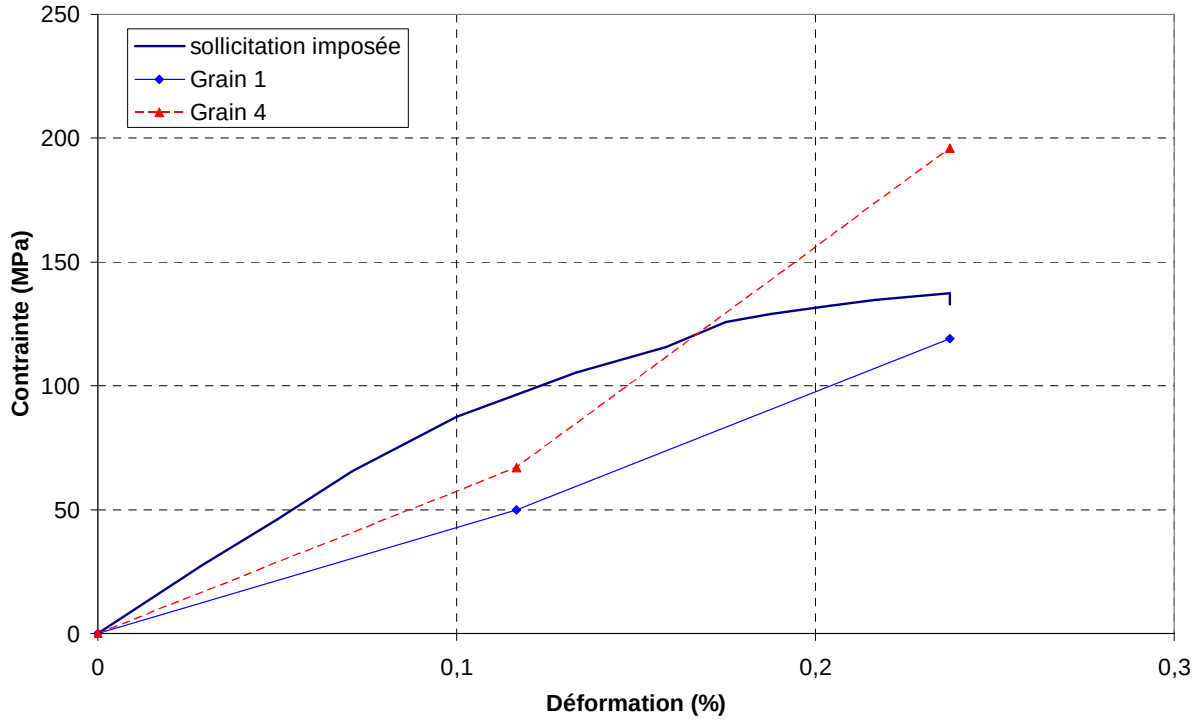


Figure V-24 : Contrainte σ_{11} (direction de sollicitation) pour les grains 1 et 4, par rapport à la contrainte appliquée

5.3 Analyses de contraintes résiduelles sur des composants de la microélectronique

En microélectronique, les circuits intégrés sont composés de différents matériaux agencés de manière précise et complexe les uns par rapport aux autres. Ces matériaux peuvent être des semi-conducteurs, utilisés pour la réalisation des composants actifs tels que les transistors, des

conducteurs ou des isolants pour les pistes de redistribution de courant (interconnexions). Les propriétés thermomécaniques de ces matériaux sont très différentes et aboutissent à de fortes hétérogénéités de contraintes lors des variations de température au sein du composant. Ces contraintes locales influent sur la robustesse de fonctionnement du composant.
Dans le cadre d'un projet financé par l'ANR (PNANO-07-029), un outil combiné EBSD - Kossel est développé en collaboration avec l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne et STMicroelectronics, visant à estimer ces déformations/contraintes locales. La microdiffraction Kossel offre la possibilité d'une détermination du tenseur des contraintes complet, grain à grain, tandis que l'EBSD permet des analyses relatives submicrométriques dans le grain.

5.3.1 Capteurs MEMS

5.3.1.1 Présentation des échantillons

Pour estimer de façon globale les contraintes mécaniques locales générées lors de certaines étapes de la production de composants microélectroniques, des capteurs MEMS (microsystèmes électromécaniques) ont été élaborés [128]. Ils sont composés de deux bras d'expansion connectés à un pointeur central, formant une croix asymétrique (Figure V-25 (a)).

La fabrication des capteurs suit le procédé « Complementary Metal Oxide Semiconductor » (CMOS) dans lequel les interconnexions de cuivre sont élaborées avec le procédé 'Damascene'. Celui-ci consiste à remplir par un métal les tranchées gravées dans un diélectrique, déposé par voie chimique en phase vapeur (CVD). Après la gravure des tranchées, une bicouche de Ta et TaN d'une épaisseur de 25 nm est déposée par voie physique en phase vapeur (PVD). Ensuite, une sous-couche de 120 nm de cuivre est déposée par PVD afin de permettre le dépôt électrochimique en phase liquide de cuivre à température ambiante. Après un recuit à 400 °C pendant 30 minutes, la surépaisseur de cuivre est enlevée au moyen d'un polissage mécano-chimique. Finalement, une couche protectrice de SiN de 30 nm d'épaisseur est déposée par CVD pour éviter d'oxyder le cuivre. L'empilement final de matériaux est présenté Figure V-25 (b).

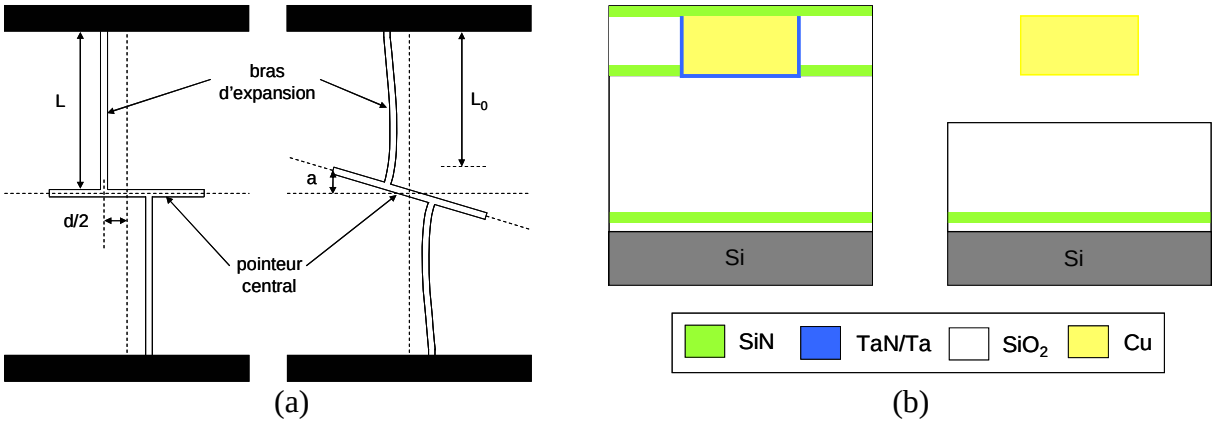
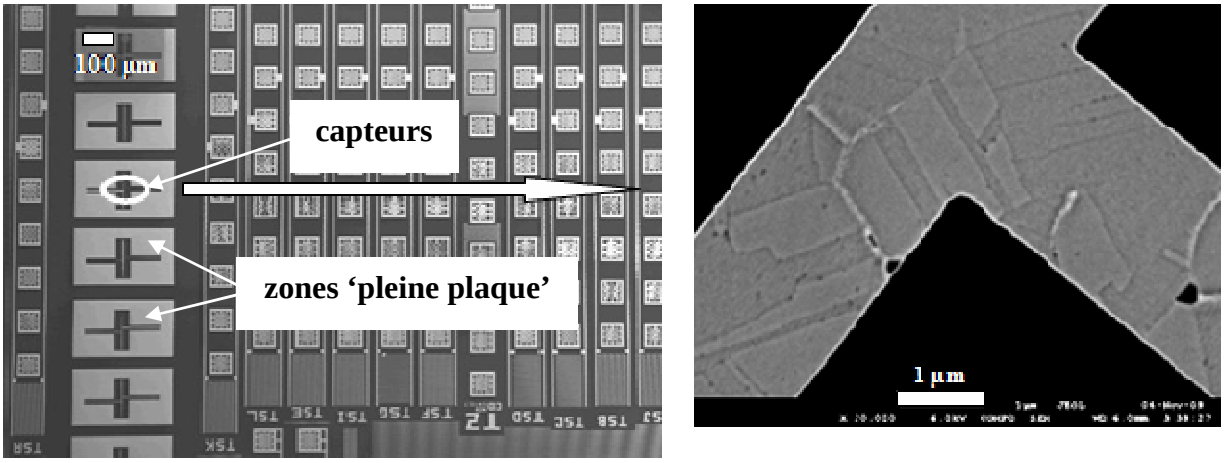


Figure V-25 : Capteur MEMS - mesure de l'état de contraintes moyen par rotation du pointeur central - vue de dessus (a) et coupe transversale (b)

Le cycle thermique lié au procédé de fabrication génère des contraintes résiduelles dans les capteurs encapsulés dans le diélectrique. Lorsqu'ils sont libérés, les deux bras d'expansion relaxent la déformation et induisent un couple de force sur le pointeur central qui tourne jusqu'à atteindre sa position d'équilibre (Figure V-25 (a)). Ainsi, pour une largeur et une longueur de bras fixées, différents espacements de bras engendrent différentes déviations du pointeur central. La déformation résiduelle initiale peut être évaluée en reproduisant les déviations expérimentales par le biais d'un modèle analytique décrivant l'état mécanique d'équilibre des structures après libération [129]. Ces capteurs fournissent la valeur moyenne dans le dépôt analysé. Pour mieux comprendre l'origine de ces contraintes, il est nécessaire de les estimer localement, grain par grain, puis à l'intérieur des grains.

Plusieurs capteurs sont présents sur un même échantillon. Ces capteurs sont entourés d'une zone rectangulaire riche en cuivre que l'on appellera 'pleine plaque' (Figure V-26). Les échantillons étudiés sont composés de capteurs ayant des bras de largeur 2 µm. L'épaisseur de cuivre est d'environ 700 nm et la couche de passivation a été ôtée par polissage ionique. La taille de grains est de l'ordre du micromètre et on note la présence de nombreux joints de macles (Figure V-26).



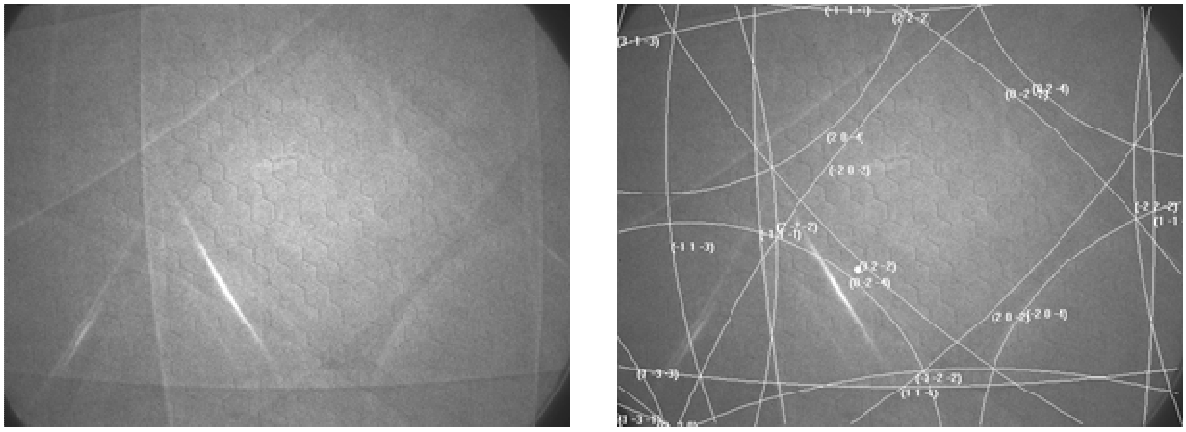
(a) (b)

Figure V-26 : Capteur MEMS - (a) microstructure au MEB - (b) agrandissement au niveau de la liaison entre le pointeur central et un bras d’expansion

5.3.1.2 Analyses au MEB

Les premières analyses ont été réalisées dans la partie ‘pleine plaque’ car la taille de grains est légèrement supérieure à celle des zones confinées. Nous avons obtenu des clichés Kossel indexables (Figure V-27), mais ceux-ci ne sont pas de qualité suffisante pour nous permettre de déterminer avec précision le tenseur de contraintes. Les lignes de Kossel sont trop diffuses et présentent un contraste trop faible pour être repérées avec précision. Il en a été de même pour les zones confinées.

En effet, une faible épaisseur de cuivre implique une poire de réémission des rayons X tronquée et ainsi un volume diffractant plus petit que dans le cas d’un échantillon massif. De plus, la microstructure fine et fortement maclée conduit à un domaine diffractant très hétérogène. Il faut donc pouvoir augmenter la brillance du faisceau générant la fluorescence X et donc la formation des cônes de Kossel, sans détériorer la résolution spatiale. Des essais à l’ESRF ont été menés dans ce but.



(a) (b)

Figure V-27 : Exemple de cliché Kossel d'une zone 'pleine plaque' (a) et la simulation associée (b)

5.3.1.3 Analyses à l'ESRF

Une campagne d'essais a été réalisée sur la ligne ID13 dans le but d'obtenir des clichés de meilleure qualité pour les capteurs MEMS. L'avantage a été la possibilité de travailler avec un faisceau de rayons X de taille inférieure à 300 nm. L'énergie des rayons X a été choisie de façon à exacerber la fluorescence du matériau. Une photo du montage est visible Figure V-28. Le faisceau nanométrique est focalisé à l'aide de miroirs K-B (Kirkpatrick-Baez) à la surface de l'échantillon. Les zones présentant les capteurs MEMS ont été repérées à l'aide d'un microscope optique, puis le positionnement fin de l'échantillon par rapport au nanofaisceau a été réalisé à l'aide de cartographies de fluorescence X. La caméra CCD 'Gemstar' a été positionnée au plus près (environ 28 mm) en évitant tout masquage de l'écran par la chambre d'ionisation. Les temps d'exposition pour l'enregistrement de clichés Kossel ont été très longs. Ils ont été multipliés par un facteur 30 environ par rapport au MEB.

Un cliché Kossel obtenu dans un grain situé à l'extrémité d'un pointeur central est donné Figure V-29. Des tâches intenses représentatives de la diffusion diffuse sont visibles sur le cliché. Elles n'interagissent que très modérément avec les réflexions Kossel. Seules les réflexions correspondant aux familles de plans de faibles indices, {111} et {200}, ont été repérées manuellement : pour les lignes présentant un profil type clair/sombre, les points ont été positionnés aux points d'inflexion des profils de lignes. Les réflexions d'indices supérieurs sont difficiles à positionner. L'état de contrainte résiduelle du grain individuel ainsi que son orientation cristallographique sont présentés Tableau V-6.

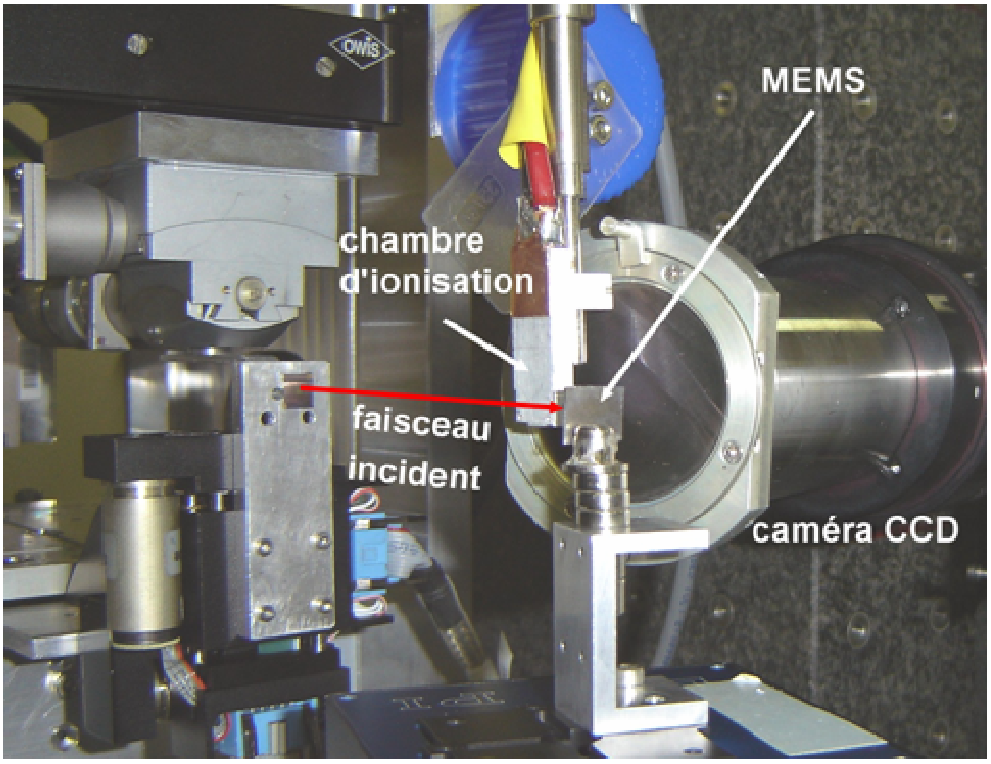
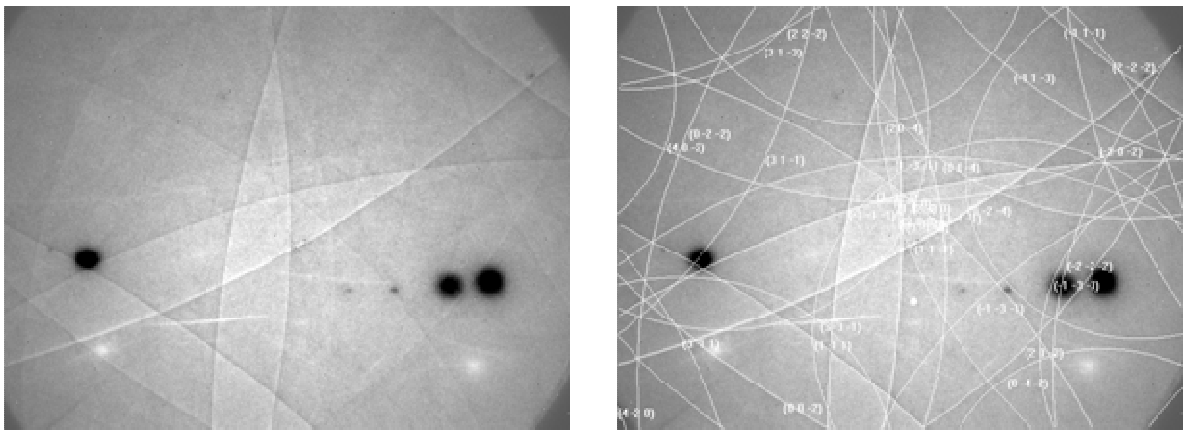


Figure V-28 : Photo du montage utilisé pour l'obtention de clichés Kossel sur MEMS à l'ESRF - Plateforme 3 de la ligne ID13



(a) (b)

Figure V-29 : Exemple de cliché Kossel dans un grain d'un pointeur central (a) et simulation associée (b)

Orientation cristallographique (HKL) [UVW]	Tenseur de contraintes (MPa) repère de l'échantillon
$(3\,4\,\bar{1}\,2)\,[1\bar{2}\,\bar{3}\,4]$	$\begin{pmatrix} 470 & -230 & 160 \\ -230 & 170 & 70 \\ 160 & 70 & 0 \end{pmatrix}$

Tableau V-6 : Détermination de l'orientation cristallographique et du tenseur de contraintes résiduelles d'un grain individuel d'un pointeur central d'un capteur MEMS par microdiffraction Kossel à l'ESRF

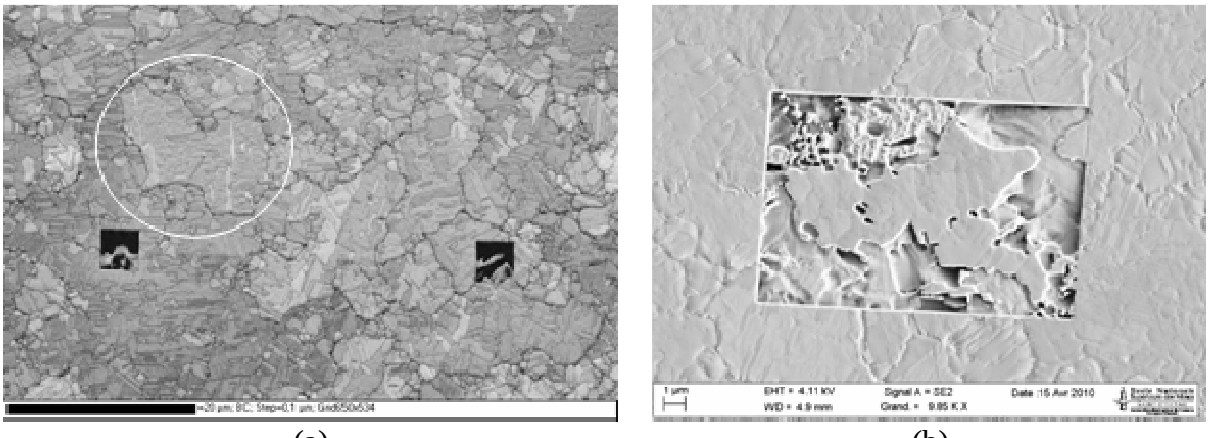
La direction '11' correspond à la direction longitudinale de la ligne de cuivre considérée. En utilisant l'hypothèse 'σ_{33}=0', nous obtenons des valeurs de contraintes élevées, plutôt en traction pour les composantes normales. La contrainte longitudinale est la plus élevée, de l'ordre de 500 MPa. Les composantes de cisaillement ne sont pas négligeables.

Le signe et l'ordre de grandeur de σ_{11} sont plutôt en accord avec la contrainte calculée à partir de la déformation résiduelle longitudinale des capteurs pivotants. Celle-ci a été estimée à 370 MPa pour une largeur de ligne de 2 µm après un recuit à 400 °C [84].

L'utilisation de seulement sept lignes pour l'analyse de contraintes conduit à une précision faible. Ces résultats devront donc être utilisés avec beaucoup de précaution. D'autres essais devront être réalisés pour confirmer le résultat obtenu.

5.3.2 Film de cuivre

L'obtention de clichés Kossel de bonne qualité sur les capteurs MEMS est très difficile. Nous avons donc travaillé également sur un échantillon d'épaisseur plus importante : un film mince de cuivre de 1,16 µm, sans diélectrique et sans couche de passivation, fabriqué par électrodéposition. Les grains les plus gros et les moins maclés ont été repérés à l'aide d'une analyse EBSD. Ensuite, à l'aide d'un faisceau d'ions focalisé (FIB) dans le MEB, un grain a été localisé par des gravures et un autre a été isolé de ses voisins (Figure V-30). Cet échantillon a ensuite été envoyé pour analyses par microdiffraction Kossel.



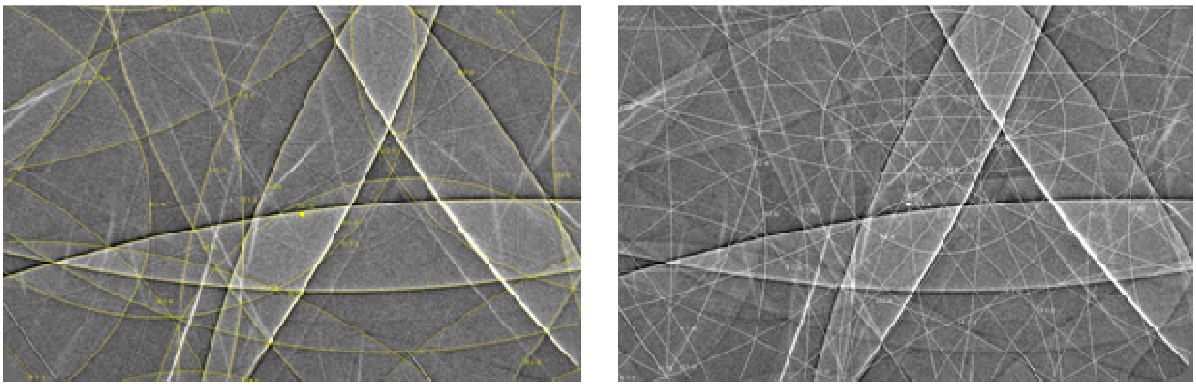
(a) (b)

Figure V-30 : Localisation d'un grain au FIB par la réalisation de gravures (marques carées) - le grain est encerclé (a) ou par gravure permettant de l'isoler de ces voisins (b)

Le grain isolé de ces voisins n'a pas conduit à un cliché Kossel de qualité suffisante pour être exploité. Le faisceau d'ions a peut-être dégradé le matériau en créant de l'écrouissage et/ou en implantant des ions gallium.

Par contre, le cliché Kossel du grain repéré par les gravures a pu être analysé. Il est constitué de deux jeux de lignes (Figure V-31) :

- des lignes de Kossel provenant du grain de cuivre ;
- des lignes de pseudo-Kossel provenant du substrat (silicium monocristallin) situé en dessous.

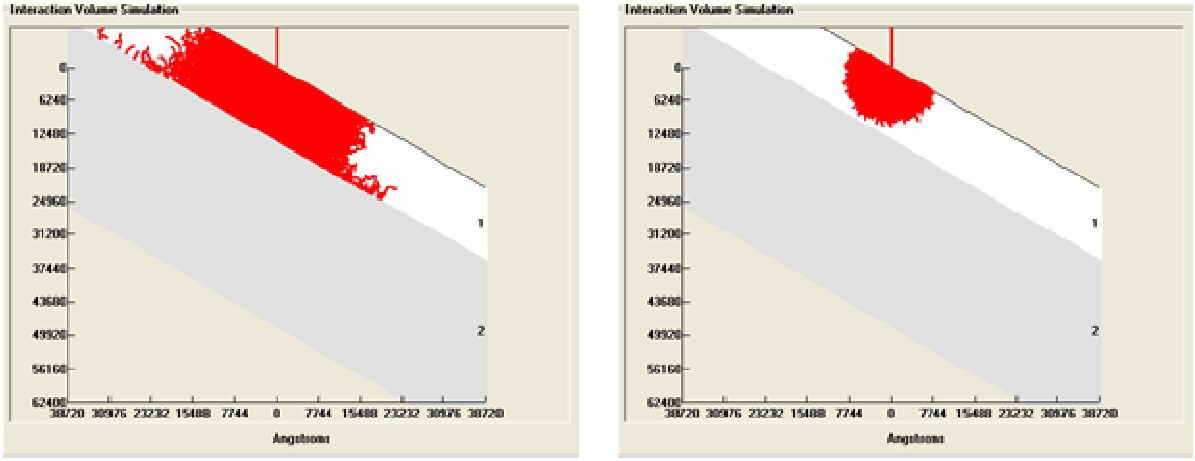


(a) (b)

Figure V-31 : Cliché expérimental obtenu avec superposition du cliché Kossel simulé (a) et superposition d'un cliché pseudo-Kossel simulé avec les paramètres cristallins du silicium (b)

En effet, pour une tension d'accélération de 30 kV, la résolution en profondeur théorique des rayons X de fluorescence du cuivre est d'environ 2 µm (Tableau II-1). Une partie de ces rayons peut donc être diffractée par le réseau cristallin du silicium et conduire à des réflexions de pseudo-Kossel. Des simulations de Monte-Carlo confirment bien qu'à 30 kV les rayons X de fluorescence sont générés par toute l'épaisseur du dépôt (Figure V- 32).

Pour une tension d'accélération de 20 kV, nous avons également observé des lignes de pseudo-Kossel. La simulation de Monte-Carlo nous indique une taille de poire d'émission des rayons X de l'ordre de l'épaisseur du dépôt.



(a) (b)

Figure V- 32 : Simulations de Monte-Carlo des rayons X émis par le film mince (en blanc, noté 1) pour des tensions d'accélérations de 30kV (a) et 20 kV (b) - 10 000 trajectoires électroniques simulées, Tilt : 30°

Pour le cliché du cuivre, 12 lignes ont été repérées manuellement en positionnant les points :

- au maximum d'intensité du profil de ligne pour les lignes claires, correspondant aux familles de plans {220}, {311}, {331}, {400} et {420} ;
- au point d'inflexion du profil de ligne pour les lignes claires/sombres, correspondant aux réflexions {111} et {200}.

Les résultats de l'analyse du grain individuel figurent Tableau V-7, en utilisant l'hypothèse '$\sigma_{33}=0$'.

Orientation cristallographique (HKL) [UVW]	Tenseur de contraintes (MPa) repère de l'échantillon
$(0\,1\,0)\,[\bar{1}0\,0\,7]$	$\begin{pmatrix} -30 & -65 & -60 \\ -65 & 250 & 5 \\ -60 & 5 & 0 \end{pmatrix}$

Tableau V-7 : Détermination de l'orientation cristallographique et du tenseur de contraintes résiduelles d'un grain individuel d'un film mince de cuivre par microdiffraction Kossel

L'évolution de la contrainte au cours d'un cycle thermique (ici : recuit de 400°C) peut être déterminée à partir de la mesure de la courbure du système film/substrat et de l'utilisation du modèle de Stoney [130]. Une valeur de contrainte est extraite du calcul : elle correspond à la contrainte résiduelle biaxiale isotrope moyenne du film de cuivre. Sur un échantillon similaire à celui que nous avons étudié, des mesures de courbure réalisées par Renaud Vayrette [84] (STMicroelectronics) donnent un niveau de contrainte de 180 MPa (Figure V-33).

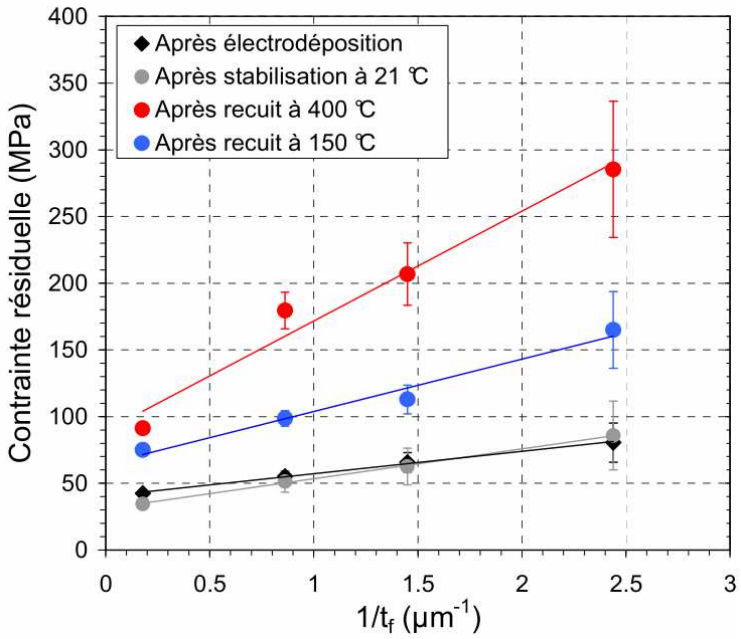


Figure V-33 : Niveaux de contraintes résiduelles des films minces de cuivre, évalués par Renaud Vayrette - STMicroelectronics, en fonction de l'épaisseur t_f des films et des traitements thermiques [84]

Les résultats de l'analyse de contraintes tensorielle par microdiffraction Kossel sont plutôt en accord avec un état de contraintes biaxial et une mise en tension du cuivre après le recuit. De plus, la valeur de contrainte du grain individuel dans la direction transverse est du même ordre de grandeur que la valeur moyenne du film. Par contre, la contrainte du grain individuel n'est pas isotrope dans le plan du film.

Il est important de noter que l'orientation du grain de cuivre est similaire à celle du wafer de silicium déterminée à partir du cliché pseudo-Kossel. Par contre, le logiciel n'ayant pas été validé pour la détermination de l'état de déformations/contraintes pour des analyses en pseudo-Kossel, les contraintes résiduelles dans le wafer ne sont pas accessibles.

5.3.3 Conclusions

Nous avons vu qu'il était envisageable d'obtenir des ordres de grandeur de contraintes résiduelles sur des échantillons de la microélectronique par microdiffraction Kossel. Les clichés étant difficiles à acquérir à cause de la petitesse des domaines cohérents de diffraction, les grains les plus gros (quelques micromètres en surface) ont été privilégiés. Une seule valeur a été obtenue : elle semble plutôt en accord avec des mesures moyennes de déformations résiduelles réalisées dans des films minces.

Conclusion générale et perspectives

Le but de cette étude était de développer la microdiffraction Kossel pour obtenir les états de déformations / contraintes d'un volume de matière de quelques μm^3. C'était un réel défi. En effet, l'étude bibliographique avait mis en exergue le fait que cette technique, bien qu'ancienne, avait été très peu utilisée pour l'analyse des contraintes. Seule une équipe de recherche avait obtenu des résultats cohérents sur des monocristaux ou des polycristaux à gros grains et à notre connaissance, aucune analyse n'avait été effectuée sur des polycristaux à grains fins.

Nous avons tout d'abord donné les clefs nécessaires à l'obtention de clichés de diffraction Kossel expérimentaux. Pour cela, il est nécessaire de bien connaître le matériau. En effet, tous les éléments ne sont pas analysables par microdiffraction Kossel, la rugosité et l'écrouissage de surface doivent être faibles et une taille de grains inférieure à cinq micromètres peut aboutir à des clichés de mauvaise qualité. Ensuite, le choix de la caméra et des paramètres d'acquisition sont importants. Nous avons montré qu'il était intéressant de minimiser la distance caméra - échantillon afin de maximiser le nombre de réflexions interceptées et diminuer les temps d'acquisition. Enfin, au niveau du MEB, augmenter la puissance du faisceau électronique permet de diminuer les temps d'exposition mais peut conduire à une perte en résolution spatiale et à un échauffement local du matériau.

Nous avons ensuite présenté la méthodologie pour analyser les clichés expérimentaux à l'aide d'un logiciel développé par Adam Morawiec. Nous avons participé aux améliorations de celui-ci et nous en sommes pour l'instant les seuls utilisateurs. Ce logiciel utilise une procédure semi-automatique pour la détermination absolue des six composantes du tenseur des déformations. L'opérateur doit positionner manuellement des points sur le cliché afin de fixer la position des réflexions. Ce positionnement doit être très précis, inférieur au pixel. Une étude paramétrique a permis de déterminer le nombre minimal de lignes qu'il fallait positionner pour avoir une résolution en déformation de l'ordre de 2.10^{-4}. L'influence de la dynamique de la diffraction des rayons X n'est pas intégrée au logiciel. Pourtant, elle peut provoquer un décalage des maxima d'intensité et ainsi un mauvais positionnement des lignes par l'opérateur. C'est pour cela qu'une procédure relative a été développée afin de pallier à cette difficulté. En confrontant deux clichés, il est possible d'en déduire l'état de déformation relatif à partir d'une corrélation automatique des profils de lignes.

En réalisant des analyses sur des monocristaux nous avons pu vérifier que le passage des déformations aux contraintes donnait des résultats cohérents. Des monocristaux de cuivre et de germanium supposés non contraints ont été utilisés pour une première validation et pour étudier l'influence de l'échauffement causé par la focalisation du faisceau électronique. Une validation plus complète a été obtenue sur des monocristaux de superalliages base nickel sollicités à l'aide d'une micromachine de traction. Les résultats d'analyses au MEB et à l'ESRF ont été comparés à ceux obtenus par diffraction des rayons X et neutronique ainsi qu'à la contrainte appliquée par le dispositif de traction *in situ*. Même si ce matériau n'est pas le candidat idéal (deux phases pouvant induire des hétérogénéités locales), tous les résultats sont plutôt en accord.

Ainsi, nous avons pu appliquer cette technique à des matériaux polycristallins en diminuant progressivement la taille des grains analysés. Tout d'abord, des analyses intergranulaires sur des matériaux à taille de grains millimétrique (un alliage à transformation de phase (CuAlBe) et un fer-silicium) ont été réalisées. Elles ont permis de montrer la présence d'hétérogénéités intergranulaires, liées à des différences d'orientation cristallographique notamment. Ensuite, des mesures ont été effectuées sur quelques grains d'acier IF, ayant des tailles de 15 à 50 micromètres. La plus grande hétérogénéité du domaine diffractant a rendu ces analyses plus délicates. Nous avons tout de même réussi à obtenir des évolutions de contraintes cohérentes au cours d'une sollicitation *in situ*. Des hétérogénéités intergranulaires et même intragranulaires ont pu être détectées. Enfin, cette technique a été appliquée à un cas industriel concret, des structures MEMS utilisées en microélectronique. La microstructure fine et fortement maclée a conduit à des analyses très difficiles au MEB. Une mesure sur un grain individuel a été réalisée à partir d'un faisceau nanométrique de rayons X à l'ESRF de façon à diminuer la taille du volume diffractant. D'autres essais doivent être réalisés pour confirmer le résultat obtenu. Un échantillon de type couche mince, plus épais avec des grains plus gros, a également été testé. Une analyse sur un grain individuel donne un état de contrainte plutôt en accord avec des analyses de courbure moyenne du film réalisées par ailleurs.

Cette étude ouvre de réelles perspectives tant quant au développement de la technique elle-même que pour l'application de celle-ci à différents domaines de la science des matériaux.

En ce qui concerne le développement de la technique, plusieurs améliorations peuvent encore être apportées.

L'intégration des effets de la dynamique de la diffraction des rayons X sur la position exacte des lignes de Kossel au sein du logiciel de post-traitement des clichés permettrait d'améliorer la sensibilité de la technique quant aux mesures des déformations absolues.

L'intégration d'un processus d'automatisation dans la reconnaissance des coniques améliorerait la reproductibilité de la mesure et aboutirait à un gain de temps considérable dans le post-traitement de clichés. Dans ce sens, des travaux ont été amorcés par l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, dans le cadre de l'ANR SAKE (PNANO-07-029).

Des essais seront prochainement réalisés à partir d'un faisceau d'électrons provenant d'un canon à émission de champ. La plus grande finesse du faisceau électronique devrait permettre d'améliorer légèrement la résolution spatiale. La brillance accrue et la plus grande stabilité apporteraient un gain de temps et conduiraient à la possibilité de réaliser des cartographies.

Un travail intéressant pourra également être entrepris pour estimer les contraintes d'ordre III à partir des élargissements des lignes de Kossel. En effet, en éloignant la caméra par rapport à l'échantillon, il est possible de se concentrer sur des lignes de Kossel particulières, décrites par un nombre plus important de pixels. Des élargissements au cours d'un chargement mécanique ont déjà été observés. Des variations le long d'une conique peuvent également apparaître.

L'utilisation d'une caméra 'in-vacuum', intégrée entièrement dans la chambre du microscope et ainsi dépourvue de fibres optiques permettrait de gagner en encombrement et peut être de diminuer encore la distance caméra - échantillon. Ainsi, les temps d'acqusition seraient réduits et la précision des mesures améliorée, par la collecte d'un plus grand nombre de coniques

La formation des cônes de Kossel se caractérise par un très faible rapport signal sur bruit. Le développement des caméras discrétisées en énergie pourra apporter un gain considérable en précision et en temps d'exposition.
Des essais supplémentaires doivent être réalisés sur des matériaux à grains fins afin de valider les résultats que nous avons présentés et d'estimer plus précisément la résolution de la technique. Des campagnes d'intercomparaisons avec les techniques analogues présentées au premier chapitre peuvent aussi être entreprises. Enfin, il serait intéressant d'intégrer des mesures de champs permettant d'estimer les déformations locales en surface du matériau et de les corréler avec les champs de déformations du réseau cristallin déterminés par microdiffraction Kossel.

Il faut noter que cette technique a l'avantage d'opérer dans un microscope électronique à balayage, outil disponible en laboratoire, et de permettre un couplage direct avec la microstructure du matériau. En ce qui concerne ses applications, nous voyons son utilisation dans deux domaines principaux.

Les modèles micromécaniques prennent en compte les caractéristiques de la microstructure à une échelle de plus en plus fine, il est donc indispensable d'avoir des méthodes expérimentales qui permettent de caractériser les champs de déformation et les champs de rotation à ces échelles. Les effets multiples pouvant influencer les états de contraintes intergranulaires et intragranulaires comme la taille des grains, la proximité par rapport au joint de grains ou à un précipité, les caractéristiques des grains avoisinants sont de plus en plus intégrés dans les modèles mais sont difficilement mesurables expérimentalement.

De plus en plus d'objets sont fabriqués à des échelles micrométriques voire sub-micrométriques. A mesure que leurs dimensions diminuent, leurs comportements mécaniques tendent à s'écarter de ceux des matériaux massifs. En effet, les rôles des surfaces et des interfaces deviennent prépondérants et les densités de défauts diminuent. Un outil expérimental permettant d'estimer les contraintes au sein de ces objets serait un atout précieux.

Références bibliographiques

[1] Barralis, J., Castex, L., Maeder, G. (1999). Précontraintes et traitements superficiels. Techniques de l'Ingénieur M 1-180.

[2] Maeder, G., Lebrun, J.L., Sprauel, J.M. (1981). Present possibilities for the X-ray diffraction method of stress measurement. NDT International. Vol. 14, 235-247

[3] Ruud, C.O. (1982). A review of selected non-destructive methods for residual stress measurement. NDT International. Vol. 15, 15-23.

[4] Barbe, F., Forest, S., Cailletaud, G. (2001). Intergranular and intragranular behavior of polycrystalline aggregates. Part2: Results. International Journal of Plasticity. Vol. 17, 537-563.

[5] Okabayashi, H. (1993). Stress-induced void formation in metallization for integrated circuits. Materials Science and Engineering - Reports. Vol. 11, 191-241.

[6] Andrieu, F., Weber, O., Ernst, T., Faynot, O., Deleonibus, S. (2007). Strain and channel engineering for fully depleted SOI MOSFETs towards the 32 nm technology node. Microelectronics Engineering. Vol. 84, 2047-2053.

[7] De Wolf, I. (1996). Micro-Raman spectroscopy to study local mechanical stress in silicon integrated circuits. Semiconductor Science and Technology. Vol. 11, 139–154.

[8] De Wolf, I., Ignat, M., Pozza, G., Maniguet, L., Maes, H.E. (1999). Analysis of local mechanical stresses in and near tungsten lines on silicon substrate. Journal of Applied Physics. Vol. 82, 6477-6485.

[9] MacDowell, A.A. (2000). Submicron X-ray diffraction. eScholarship Repository, University of California (http://repositories.cdlib.org/lbnl/LBNL-45241).

[10] Ulrich, O., Biquard, X., Bleuet, P., Geaymond, O., Gergaud, P., Micha, J.S., Robach, O., Rieutord, F. (2011). A new white beam x-ray microdiffraction setup on the BM32 beamline at the European Synchrotron Radiation Facility. Review of Scientific Instruments.

[11] Sicardy, O., Biquard, X., Rieutord, F., Robach, O., Ulrich, O. (2007). Détermination de contraintes résiduelles locales par microdiffraction en faisceau blanc et monochromatique sur la ligne CRG IF-BM32 de l'ESRF. 18ème Congrès Français de Mécanique, Grenoble, 27-31 août 2007.

[12] Tamura, N., Padmore, H.A., Patel, J.R. (2005). High spatial resolution stress measurements using synchrotron based scanning X-ray microdiffraction with white or monochromatic beam. Materials Science and Engineering. Vol. 399, 92-98.

[13] Goudeau, P., Villain, P., Tamura, N., Padmore, H.A. (2003). Mesoscale x-ray diffraction measurement of stress relaxation associated with buckling in compressed thin films. Applied Physic Letters. Vol. 83, 51-53.

[14] Morniroli, J.P. (1998). Diffraction électronique en faisceau convergent à grand angle : applications aux défauts cristallins. Monographie de la société française de microscopie.

[15] Krämer, S., Mayer, J. (1999). Using the Hough transform for HOLZ line identification in convergent beam electron diffraction. Journal of Microscopy. Vol. 194, 2-11.

[16] Morawiec, A. (2005). Formal conditions for unambiguous residual strain determination by CBED. Philosophical Magazine. Vol. 85, 1611-1623.

[17] Morawiec, A. (2006). Determinability of complete residual strain tensor from multiple CBED patterns. Materials Science Forum. Vol. 524-525, 115-120.

[18] Morawiec, A. (2007). An algorithm for refinement of lattice parameters using CBED patterns. Ultramicroscopy. Vol. 107, 390-395.

[19] Toda, A., Ikarashi, N., Ono, H. (2000). Local lattice strain measurements in semiconductor devices by using CBED. Journal of Crystal Growth. Vol. 210, 341-345.

[20] Krämer, S., Mayer, J., Witt., C., Weickenmeier, A., Rühle, M. (2000). Analysis of local strain in aluminium interconnects by energy filtered CBED. Ultramicroscopy. Vol. 81, 245-262.

[21] Clement, L., Pantel, R., Kwakman, L., Rouvière, J.L. (2004). Strain measurements by convergent-beam electron diffraction: the importance of stress relaxation in lamella preparations. Applied Physic Letters. Vol. 85, 651-653.

[22] Clement, L., Pantel, R., Morin, P., Kwakman, L., Wyon, C. (2007). Quantitative strain measurement in 45-65 nm CMOS transistors by energy-filtered convergent beam electron diffraction at low temperature. Colloque Sfμ-2007 – Grenoble.

[23] Houdellier, F., Roucau, C., Clément, L., Rouvière, J.L., Casanove, M.J. (2006). Quantitative analysis of HOLZ line splitting in CBED patterns of epitaxially strained layers. Ultramicroscopy. Vol. 106, 951-959.

[24] Groupement National de Microscopie Electronique à Balayage et de Microanalyses. (2004). L'analyse EBSD : Principes et applications. EDP Sciences.

[25] Maurice, C., Fortunier, R. (2008). A 3D-Hough transform for indexing EBSD and Kossel patterns. Journal of Microscopy. Vol. 230, 520-529.

[26] Villert, S., Maurice, C., Wyon C., Fortunier, R. (2009), Accuracy assessment of elastic strain measurement by EBSD. Journal of Microscopy. Vol. 233, 290-301.

[27] Wilkinson, A.J. (1996), Measurement of elastic strains and small lattice rotations using electron back scatter diffraction. Ultramicroscopy. Vol. 62, 237-247.

[28] Wilkinson, A.J. (2000), Advances in SEM-based diffraction studies of defects and strains in semiconductors. Journal of Electron Microsopy. Vol. 49, 299-310.

[29] Wilkinson, A.J., Meaden, G., Dingley, D.J. (2006). High-resolution mapping of strains and rotations using electron backscatter diffraction. Materials Science and Technology. Vol. 22, 1271-1278.

[30] Wilkinson, A.J., Meaden, G., Dingley, D.J. (2009). Mapping strains at the nanoscale using electron backscatter diffraction. Superlattices and Microstructures. Vol. 45, 285-294.

[31] http://www.blgproductions.co.uk/

[32] Kossel, W., Loeck, V., Voges, H. (1935). Die Richtungsverteilung der in einem Kristall entstandenen charakteristischen Röntgenstrahlung. Zeitschrift für Physik. Vol. 94, 139-144.

[33] Castaing, R. (1951). Application des sondes électroniques à une méthode d'analyse ponctuelle, chimique et cristallographique. Thèse de doctorat. Université de Paris.

[34] Yakowitz, H. (1966). Effect of sample thickness and operating voltage on the contrast of Kossel transmission photographs. Journal of Applied Physics. Vol. 37, 4455-4458.

[35] Dingley, D.J. (1975). Kossel diffraction and scanning electron microscopy. Scanning Electron Microscopy - Proceedings of the Eighth Annual Scanning Electron Microscope Symposium. 173-180.

[36] Tixier, R., Waché, C. (1970). Kossel patterns. Journal of Applied Crystallography. Vol. 3, 466-485.

[37] Bauch, J., Brechbühl, J., Ullrich, H.-J. (2000). Further applications of Kossel technique by means of electron and synchrotron beam excitation. Advances in X-ray Analysis. Vol. 42, 471-481.

[38] Borrmann, G. (1936). Über die Interferenzen aus Gitterquellen bei Anregung durch Röntgenstrahlen. Annalen der Physik (Leipzig). Vol. 27, 669-693.

[39] Däbritz, S., Langer, E., Hauffe, W. (1997). Combined use of lattice source interferences and divergent beam X-ray interferences to investigate the microstructure of in-bombarded Cu-Sn-diffusion zones. Fresenius' Journal of Analytical Chemistry. Vol. 358, 148-153.

[40] Däbritz, S., Langer, E., Hauffe, W. (1999). New observation method for divergent beam X-ray diffraction patterns. Journal of Analytical Atomic Spectrometry. Vol. 14, 409-412.

[41] Langer, E., Däbritz, S., Röder, A., Hauffe, W. (1999). Studies of polycrystalline materials by pseudo Kossel technique. Fresenius' Journal of Analytical Chemistry. Vol. 365, 212-216.

[42] Dingley, D.J. (1978). Theory and application of Kossel X-ray diffraction in the Scanning Electron Microscope. Scanning. Vol. 1, 79-99.

[43] Dingley, D.J., Razavizadeh, N. (1981). The use of Kossel diffraction in the SEM for precision crystallographic studies in metallurgy, mineralogy and semiconductor materials. Scanning Electron Microscopy. 287-294.

[44] Däbritz, S., Langer, E., Hauffe, W. (2001). Kossel and pseudo Kossel CCD pattern in comparison with electron backscattering diffraction diagrams. Applied Surface Science. Vol. 179, 38-44.

[45] Langer, E., Kurt, R., Däbritz, S. (1999). KOPSKO: a computer program for generation of Kossel and pseudo-Kossel diffraction patterns. Crystal Research and Technology. Vol. 34, 801-816.

[46] Langer, E., Däbritz, S., Kurt, R., Hauffe, W. (1998). Investigation of divergent beam X-ray reflex sections especially indication by computer simulation and assignment to the grains in polycristalline samples. Fresenius' Journal of Analytical Chemistry. Vol. 361, 728-732.

[47] Zhang, J-Z. (1989). The utilization of incomplete pseudo-Kossel lines in crystal diffraction. Acta Physica Sinica. Vol. 38, 502-507.

[48] Ullrich, H.J., Schlaubitz, M., Friedel, F., Spann, T., Bauch, J., Wroblewski, T., Garbe, S., Gaul, G., Knöchel, A., Lechtenberg, F., Rossmanith, E., Kumpat, G., Ulrich, G. (1994). Excitation of Kossel patterns by synchrotron radiation. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A. Vol. 349, 269-273.

[49] Schetelich, C., Weber, S., Geist, V., Schlaubitz, M., Ullrich, H.J., Kek, S., Krane, H.G. (1995). Recording of Kossel patterns using monochromatic synchrotron radiation. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B. Vol. 103, 236-242.

[50] Glazer, A.M., Collins, S.P., Zekria, D., Liu, J., Golshan, M. (2004). Observation of divergent-beam X-ray diffraction from a crystal of diamond using synchrotron radiation. Journal of Synchrotron Radiation. Vol. 11, 187-189.

[51] Langer, E., Däbritz, S., Hauffe, W., Haschke, M. (2005). Advances in X-ray excitation of Kossel patterns by a focusing polycapillary lens. Applied Surface Science. Vol. 252, 240-244.

[52] Langer, E., Haschke, M., Däbritz, S. (2008). First X-ray fluorescence excited Kossel diffraction in SEM. Microchimica Acta. Vol. 161, 455-458.

[53] Geist, V., Ascheron, C. (1984). The proton-induced Kossel effect and its application to crystallographic studies Crystal Research and Technology. Vol. 19, 1231-1244.

[54] Goehner, R.P., Michael, J.R. (1995). Applied crystallography in the scanning electron microscope using a CCD detector. Advances in X-ray Analysis. Vol. 38, 539-545.

[55] Bauch, J., Brechbühl, J., Ullrich, H.-J., Meinl, G., Lin, H., Kebede, W. (1999). Innovative analysis of X-ray microdiffraction images on selected applications of the Kossel technique. Crystal Research and Technology. Vol. 34, 71-88.

[56] Böhling, M., Bauch, J. (2007). Precise determination of residual stresses in FeSi3 electrical sheets in the vicinity of laser scratches with high lateral resolution. Crystal Research and Technology. Vol. 42, 905-913.

[57] Newman, B.A. (1970), The equation of pseudo-Kossel curves, Journal of Applied Crystallography. Vol. 3, 191-193.

[58] Lonsdale, K. (1947). The divergent X-ray photography of crystals. Philosophical Transactions of the Royal Society A. Vol. 240, 219-258.

[59] Hanneman, R.E., Ogilvie, R.E., Modrzejewski, A. (1962). Kossel line studies of irradiated nickel crystals. Journal of Applied Physics. Vol. 33.

[60] Frazer, J., Arrhenius, G. (1966). Divergent-beam diffraction geometry for interpretation of Kossel diffraction patterns in space group assignment lattice parameters and structure factor evaluation. X-ray Optics and Microanalysis. Edition Hermann.

[61] Morris, W. G. (1968). Crystal orientation and lattice parameters from Kossel lines. Journal of Applied Physics. Vol. 39.

[62] Weber, S., Schetelich, Ch., Geist, V. (1994). Computer-aided evaluation of Kossel patterns obtained from quasicrystals. Crystal Research and Technology. Vol. 29, 727-735.

[63] Zhang, J-Z, Cao, Y-N. (1992). Computer generation of pseudo-Kossel diffraction. Physic Status Solidi (a). Vol. 130, 9-17.

[64] Heise, B.M. (1962). Precision determination of the lattice constant by the Kossel line technique. Journal of Applied Physics. Vol. 33, 938-941.

[65] Shrier, A.A., Kalman, Z.H., Weissmann, S. (1966). A precise determination of interplanar spacing from divergent beam photographs. Defense Technical Information Center.

[66] Koishi, Y., Gillies, D.C. (1979). Lattice parameters of talc as measured by a back-reflection pseudo-Kossel technique. American Mineralogist. Vol. 64, 211-214.

[67] Langer, E., Däbritz, S., Schurig, S., Hauffe, W. (2001). Lattice constant determination from Kossel patterns observed by CCD camera. Applied Surface Science. Vol. 179, 45-48.

[68] Mendelssohn, M. J., Milledge, H. J. (1999). Divergent-beam technique used in a SEM to measure the cell parameters of isotopically distinct samples of LiF over the temperature range 15-375 K. Acta Crystallographica A. Vol. 55, 204-211.

[69] Erben, N., Paufler, P., Löschke, K., Däbritz, S., Kleinstück, K. (1982). Kossel line broadening near a scratch on GaP. Physica Status Solidi (a). Vol. 72, 15-18.

[70] Cunningham, B., Ashbee, K.H.G. (1990). An in-situ SEM Kossel X-ray diffraction study of pseudoelasticity. Acta Metallurgica et Materialia. Vol. 38, 2561-2565.

[71] Brechbühl, J., Bauch, J., Ullrich, H.-J. (2000). Measurements of residual stresses in micro regions by using synchrotron excited Kossel diffraction. Advances in X-ray Analysis. Vol. 42, 482-491.

[72] Bauch, J., Wege, St., Böhling, M., Ullrich, H.-J. (2004). Improved approaches to the determination of residual stresses in micro regions with the Kossel and the XRT technique. Crystal Research and Technology. Vol. 39, 623-633.

[73] Bauch, J., Ullrich, H.-J., Reiche, D. (2000). X-Ray Rotation Tilt Method – First results of a new X-ray diffraction technique. Crystal Research and Technology. Vol. 35, 473-478.

[74] Bauch, J., Ullrich, H.-J., Böhling, M., Reiche, D. (2003). A comparison of the Kossel and the X-ray rotation tilt technique. Crystal Research and Technology. Vol. 38, 440-449.

[75] Böhling, M., Bauch, J., Ullrich, H. J. (2009). Effect of the cutting technique on the residual stress distribution of cut edges in FeSi3 transformer sheets. Crystal Research and Technology. Vol. 44, 1185-1191.

[76] Berveiller, S., Dubos, P., Inal, K., Eberhardt, A., Patoor, E. (2005). Inter and intra granular strain analysis by microdiffraction Kossel. Materials Science Forum. Vol. 490-491, 159-164.

[77] Pesci, R., Inal, K., Berveiller, S., Patoor, E., Lecomte, J.S., Eberhardt, A. (2006). Inter- and intragranular stress determination with Kossel microdiffraction in a scanning electron microscope. Materials Science Forum. Vol. 524-525, 109-114.

[78] http://learn.hamamatsu.com/articles/microscopyimaging.html

[79] Langer, E. (2004). Der Einfluss von Kristallfehlern auf Kossel- und Weitwinkel-Interferenzen. Thèse de doctorat. Institut für Festkörperphysik Fakultät Mathematik und Naturwissenschaften Technische Universität Dresden.

[80] Pouchou, J.L., GN-MEBA. (2004). L'analyse EBSD. Principe et applications. EDP Sciences. p. 7.

[81] Goldstein, J., Newbury, D.E., Joy, D.C., Lyman, C.E., Echlin, P., Lifshin, E., Sawyer, L., Michael, J.R. (2003). Scanning electron microscopy and X-ray microanalysis - 3rd edition. Springer. p. 285-286.

[82] Paqueton, H., Ruste. (2006). Microscope électronique à balayage - Principe et équipement. Techniques de l'ingénieur P-865.

[83] Leng, Y. (2008). Material Characterization - Introduction to Microscopic and Spectroscopic methods. John Wiley and Sons. p. 124.

[84] Vayrette, R. (2011). Analyse des contraintes mécaniques et de la résistivité des interconnexions de cuivre des circuits intégrés. Thèse de doctorat. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne.

[85] Joy, D.C. (1991). An Introduction to Monte Carlo simulations. Scanning Microscopy. Vol. 5, 329-337.

[86] Morawiec, A., Pesci, R., Lecomte, J.S. (2008). Semiautomatic determination of orientations and elastic strain from Kossel microdiffraction. Ceramic Transactions, 201, 163-169.

[87] Ewald, P.P. (1917). Zur Begründung der Kristalloptik. III. Die Kristalloptik der Röntgenstrahlen. Annalen der Physik. Vol. 54, 519-597.

[88] Darwin, C.G. (1922). The Theory of X-ray Reflection. Philosophical Magazine. Vol. 27.

[89] Laue, M. von (1931). Die dynamische Theorie der Röntgenstrahlinterferenzen in neuer Form. Ergebnisse der exakten Naturwissensehaften. Vol. 10, 133-158.

[90] Stephan, D., Blau, W., Ullrich, H.J., Schulze, G.E.R. (1974). Helldunkel-Struktur der Kossel-Interferenzlinien und Kristallstrukturanalyse-(I). Kristall und Technik. 707-727.

[91] Stephan, D., Ullrich, H.J., Schulze, G.E.R. (1976). Helldunkel-Struktur der Kossel-Interferenzlinien und Kristallstrukturanalyse-(II). Kristall und Technik. 475-500.

[92] Sutter, E.C. (2000). The theory of Kossel lines. Thèse de doctorat. Université d'Etat de New-York.

[93] Morawiec, A. (1999). Automatic orientation determination from Kikuchi patterns. Journal of Applied Crystallography. Vol. 32, 788-798.

[94] Egerton, R.F., Li, P., Malac, M. (2004). Radiation damage in the TEM and SEM. Micron. Vol. 35, 399-409.

[95] Liu, M., Xu, L., Lin, X. (1994). Heating effect of electron beam bombardment. Scanning. Vol. 16, 1-5.

[96] Gale, B., Hale, K.F. (1961). Heating of metallic foils in an electron microscope. British Journal of Applied Physics. Vol. 12.

[97] Chu, D., Bilir, D.T., Pease, R.F.W. (2002). Submicron thermocouple measurements of electron-beam resist heating. Journal of Vacuum Science and Technology B. Vol. 20.

[98] Harris, N. (1974). Correction for the effect of electron beam heating on Kossel pattern lattice spacing results. Journal of Materials Science. Vol. 9, 1211-1213.

[99] Lide, D.R. (2009). CRC Handbook of Chemistry and Physics. CRC Press Inc. 90è éd.

[100] Ortner, B. (1983). Röntgenographische Spannungsmessung an einkristallinen Proben, Eigenspannungen Entstehung-Messung Bewertung. Deutsche Gesellschaft für Metallkunde, edited by Macherauch and Hauk, 49-68.

[101] Pathiraj, B., Koster, H., Nijssen, A.M., Willemse, P.F., Kolste, B.H. (1984). Strain measurements on single crystals and macrograins with the aid of an automated phi-psi goniometer. Advances in X-ray analysis. Vol.28, 297-304.

[102] Gergaud, P., Dour, G., Inal, K., Lebrun, J. L. (1997). X-ray determination of stresses distribution in a coarse grained silicon billet. Advances in X-ray analysis. Vol.39, 225-237.

[103] Eberl, F. (1999). Second Order Heterogeneities in a Multicrystal. Thèse de doctorat. Ecole Nationale Supérieure d'Arts et Métiers, Paris.

[104] Ortner, B. (1986). The choice of lattice planes in X-ray strain measurements of single crystals. Advances in X-ray analysis. Vol.29, 113-118.

[105] Ortner, B. (1986). Simultaneous determination of the lattice constant and elastic strain in cubic single crystal. Advances in X-ray analysis. Vol.29, 387-394.

[106] Schweizer, J. (2003). Neutrons et matériaux : introduction. Journal de Physique IV.

[107] Heger, G. (2008). Introduction à l'interaction rayonnement matière. Collection SFN 9. 19-33.

[108] Lauriat, J.P. (2003). Complémentarité des rayons X et des neutrons. Journal de Physique IV.

[109] Mathon, M.H. (2008). Caractérisation des textures par diffraction neutronique. Collection SFN 9. 49-64.

[110] Dakhlaoui, R., Klosek, V., Mathon, M.H., Marini, B. (2010). Orientation stress field analysis in polycrystalline bcc steel using neutron diffraction. Acta Materialia. Vol.58, 459-509.

[111] Ledbetter, H., Kim, S. Monocrystal elastic constants and derived properties of the cubic and the hexagonal elements. Handbook of Elastic Properties of Solids, Liquids, and Gases. Vol. 2.

[112] Belkahla, S. (1990). Elaboration et caractérisation de nouveaux alliages à mémoire de forme basse température type Cu-Al-Be. Thèse de doctorat. INSA Lyon.

[113] Caron, P., Khan, T. (1990). Development of a new nickel based single crystal turbine blade alloy for very high temperatures. Advanced Materials and Processes. Vol. 1, 333-338.

[114] Durand-Charre, M. (1997). The microstructure of superalloys. Edition Gordon and Breach Science.

[115] Hazotte, A., Racine, A., Denis, S. (1996). Internal Mismatch Stresses in Nickel-Based Superalloys: A Finite Element Approach. Journal de Physique IV. 119-128.

[116] Kayser, F.X., Stassis, C. (1981). The elastic constants of Ni3Al at 0 and 23.5°C. Physica status solidi. Vol.64, 335-342.

[117] Hanriot, F. (1993). Comportement du superalliage monocristallin AM1 sous sollicitations cycliques. Thèse de doctorat. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris. Annexe 5.

[118] Gaubert, A. (2009). Modélisation des effets de l'évolution microstructurale sur le comportement mécanique du superalliage monocristallin AM1. Thèse de doctorat. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.

[119] Pettinari, F., Douin, J., Saada, G., Caron, P., Coujou, A., Clément, N. (2002). Stacking fault energy in short-range ordered γ-phases of Ni-based superalloys. Materials and Science Engineering A. Vol. 325, 511-519.

[120] Kalluri, S., Abdul-Aziz, A., McGaw, M.A. (1991). Elastic response of [001]-oriented PWA 1480 single crystal. NASA Technical Memorandum 103782.

[121] http://www.esrf.eu/UsersAndScience/Experiments/SoftMatter/ID13

[122] Caron, P. (2000). High γ' solvus new generation nickel-based superalloys for single crystal turbine blade applications. Superalloys 2000, Warrendale (USA). 737-746.

[123] Patoor, E., Berveiller, M. (1994). Technologie des Alliages à Mémoire de Forme. Edition Hermès.

[124] Moreau, F. (1998). Etude par diffraction des rayons X des effets du cyclage pseudoélastique de l'alliage à mémoire de forme CuAlBe. Thèse de doctorat. Université de Metz.

[125] Kaouache, B. (2006). Analyse multiéchelles de la transformation martensitique induite par contrainte dans les alliages à mémoire de forme. Corrélation contraintes-microstructure. Thèse de doctorat. Ecole Nationale Supérieure d'Arts et Métiers de Metz.

[126] Nicaise, N. (2009). Effets de longueur interne sur les propriétés effectives des polycristaux métalliques : applications aux aciers. Thèse de doctorat. Université de Metz.

[127] Maurice, C., Driver, J., Fortunier, R. (2011). On solving the orientation gradient dependency of high angular resolution EBSD. Ultramicroscopy. Vol. 113, 171-181.

[128] Kasbari, M., Delamare, R., Blayac, S., Rivero, C., Fortunier, R. (2008). Embedded stress sensors for strained technologies process control, IEEE Transactions on Semiconductor manufacturing. Vol. 21, 352-357.

[129] Vayrette, R., Rivero, C., Gros, B., Blayac, S., Inal, K., (2010). Residual stress estimation in damascene copper interconnects using embedded sensors, Microelectronic Engineering. Vol. 87, 412-415.

[130] Stoney, G.G. (1909). The tension of metallic films deposited by electrolysis. Proceedings of the Royal Society A. Vol. 82, 172-175.

DEVELOPPEMENT DE LA MICRODIFFRACTION KOSSEL POUR L'ANALYSE DES DEFORMATIONS ET CONTRAINTES À L'ECHELLE DU MICROMETRE - APPLICATIONS À DES MATERIAUX CRISTALLINS

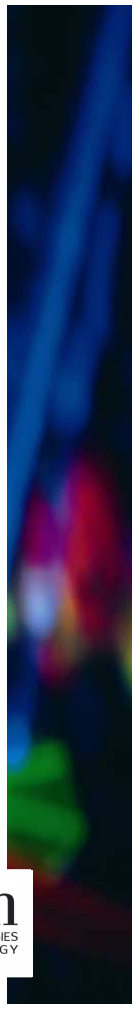
RESUME : La diffraction des rayons X est une technique non destructive fréquemment utilisée en sciences des matériaux pour déterminer les contraintes résiduelles à une échelle macroscopique. Du fait de la complexité croissante des nouveaux matériaux et de leurs applications, il devient nécessaire de connaître l'état de déformation / contrainte à une échelle plus petite. Dans ce sens, un outil expérimental appelé microdiffraction Kossel a été développé au sein d'un microscope électronique à balayage. Il permet de déterminer l'orientation cristallographique et les déformations / contraintes avec une résolution spatiale de plusieurs micromètres. Des analyses ont aussi été réalisées avec un rayonnement synchrotron. Une méthodologie expérimentale a été développée de manière à optimiser l'acquisition des clichés et leur post-traitement. La procédure de détermination des contraintes a été validée en comparant les états de contrainte de monocristaux sous chargement mécanique *in situ*, obtenus en microdiffraction Kossel et avec des techniques de diffraction classiques. La microdiffraction Kossel a ensuite été appliquée à des matériaux polycristallins en diminuant progressivement la taille des grains analysés. Des hétérogénéités intergranulaires assez marquées ont par exemple été mesurées sur un acier IF. Des mesures ont enfin été réalisées sur des couches minces représentatives des composants de la microélectronique.

Mots clés : microdiffraction Kossel, microscopie électronique à balayage, rayonnement synchrotron, mesure des déformations du réseau, contraintes, échelle du micromètre.

DEVELOPMENT OF KOSSEL MICRODIFFRACTION FOR STRAIN AND STRESS ANALYSIS AT THE MICROMETER SCALE - APPLICATIONS TO CRYSTALLINE MATERIALS

ABSTRACT: X-ray diffraction is a non-destructive method frequently used in materials science to analyse the stress state at a macroscopic scale. Due to the growing complexity of new materials and their applications, it is necessary to know the strain and stress state at a lower scale. Thus, a Kossel microdiffraction experimental set-up was developed inside a scanning electron microscope. It allows to obtain the crystallographic orientation as well as the strains and stresses within a volume of a few cubic micrometers. Some experiments were also performed using a synchrotron radiation. An experimental procedure was developed to optimize the acquisition of Kossel line patterns and their post-processing. The stress calculation from Kossel patterns was validated by comparing the stress state of single crystals during *in situ* mechanical loading, obtained by Kossel microdiffraction and with classical diffraction methods. Then Kossel microdiffraction was applied to polycrystalline samples by gradually decreasing the grain size. Intergranular stress heterogeneities were for example measured in an interstitial-free steel. Experiments were finally carried out in thin layer samples representative of microelectronic components.

Keywords : Kossel microdiffraction, scanning electron microscope, synchrotron radiation, lattice strain measurement, stresses, micrometer scale.



ARTS ET MÉTIERS ParisTech

ParisTech INSTITUT DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES PARIS INSTITUTE OF TECHNOLOGY