

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

---

## Sommaire

---

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

---

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

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

## 4.1 Caractérisations générales des échantillons

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

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

#### 4.1.1 Aspects morphologiques par microscopie électronique

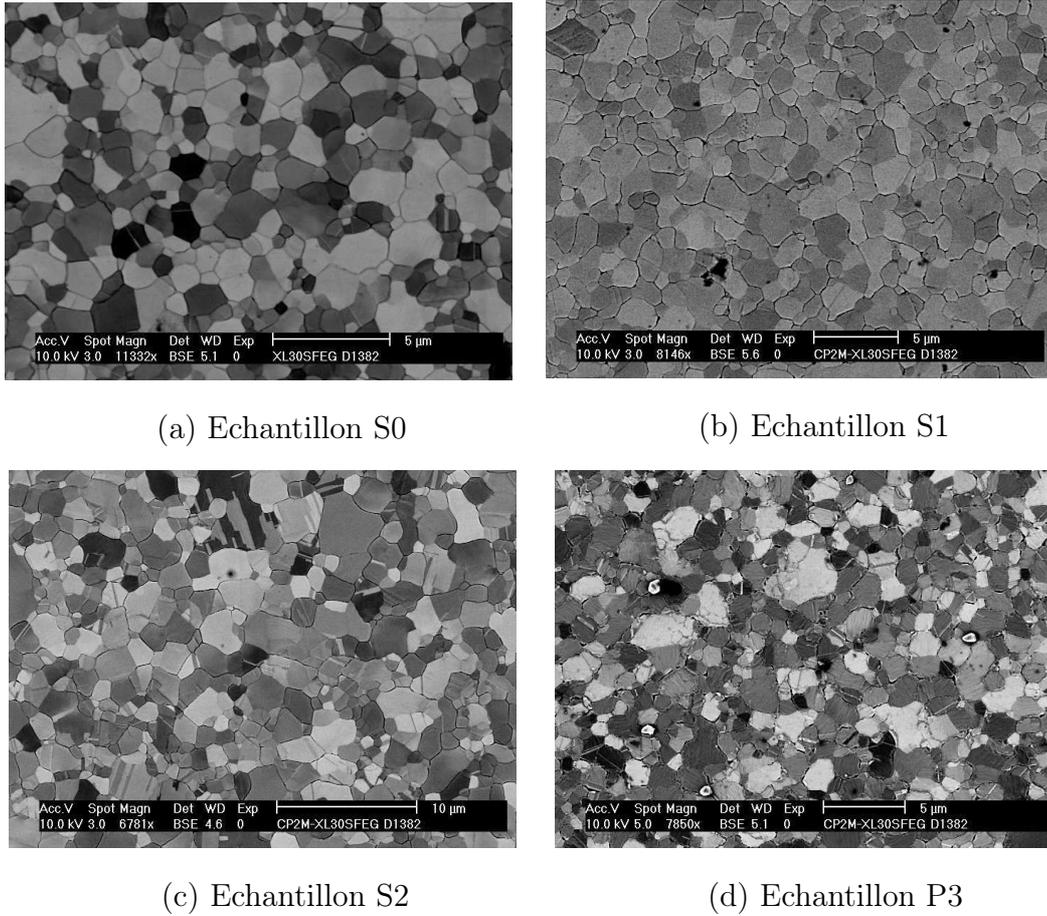


FIG. 4.1 – Images par microscopie électronique à balayage des quatre échantillons étudiés en détail : images (a,c,d) obtenues en détection d'électrons rétrodiffusés et l'image (b) en détection d'électrons secondaires

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

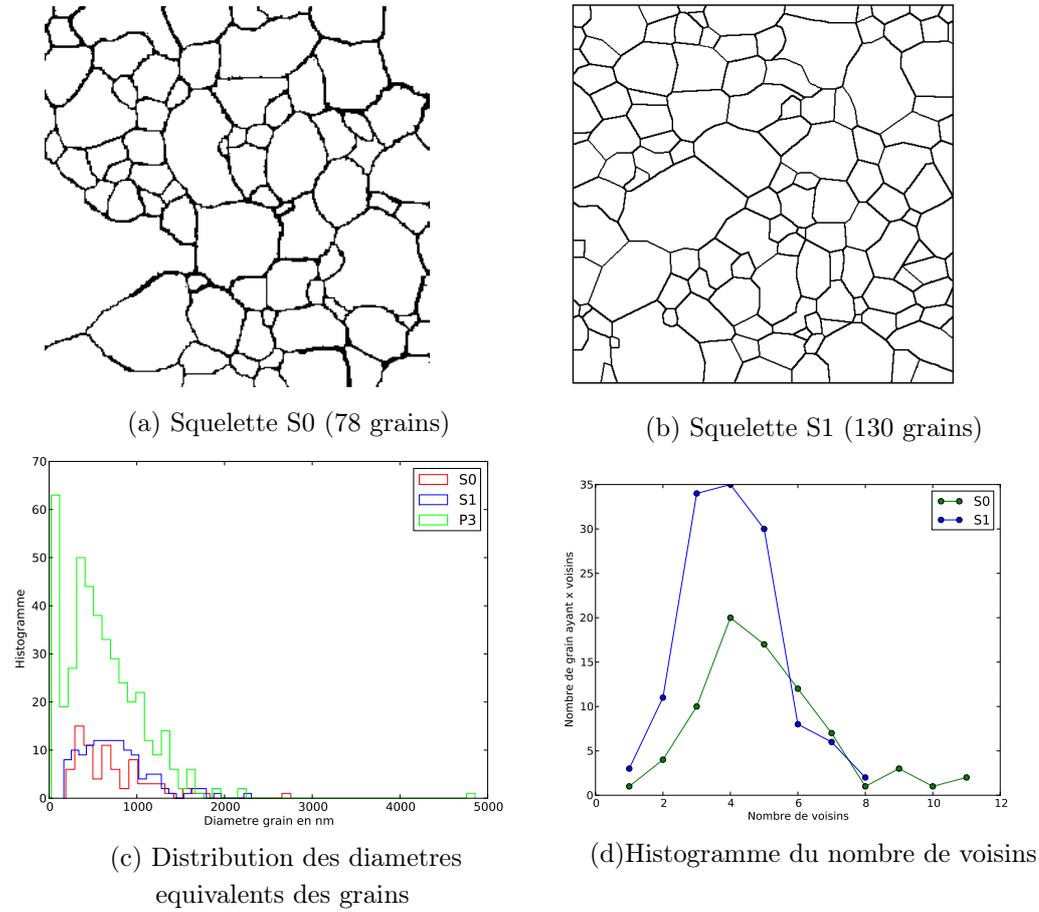


FIG. 4.2 – Informations morphologiques provenant de l'étude de la microstructure des films polycristallins

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

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

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

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

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

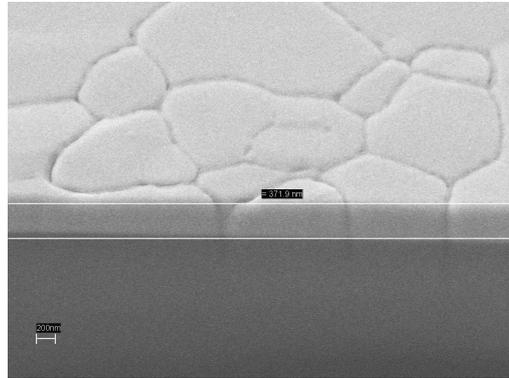


FIG. 4.3 – Image MEB du bord du film S1

#### 4.1.2 Caractérisation de la texture

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

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

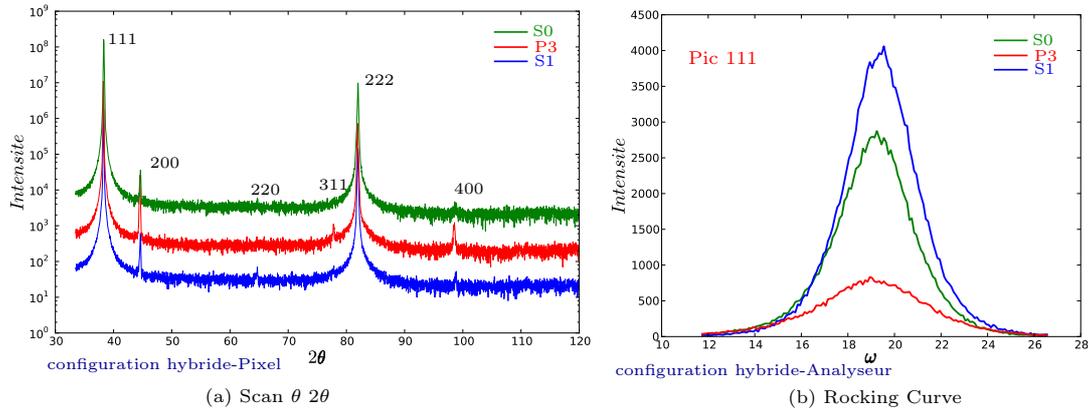


FIG. 4.4 – Scan symétrique  $\theta/2\theta$  et rocking curve réalisés avec la source de laboratoire

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

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

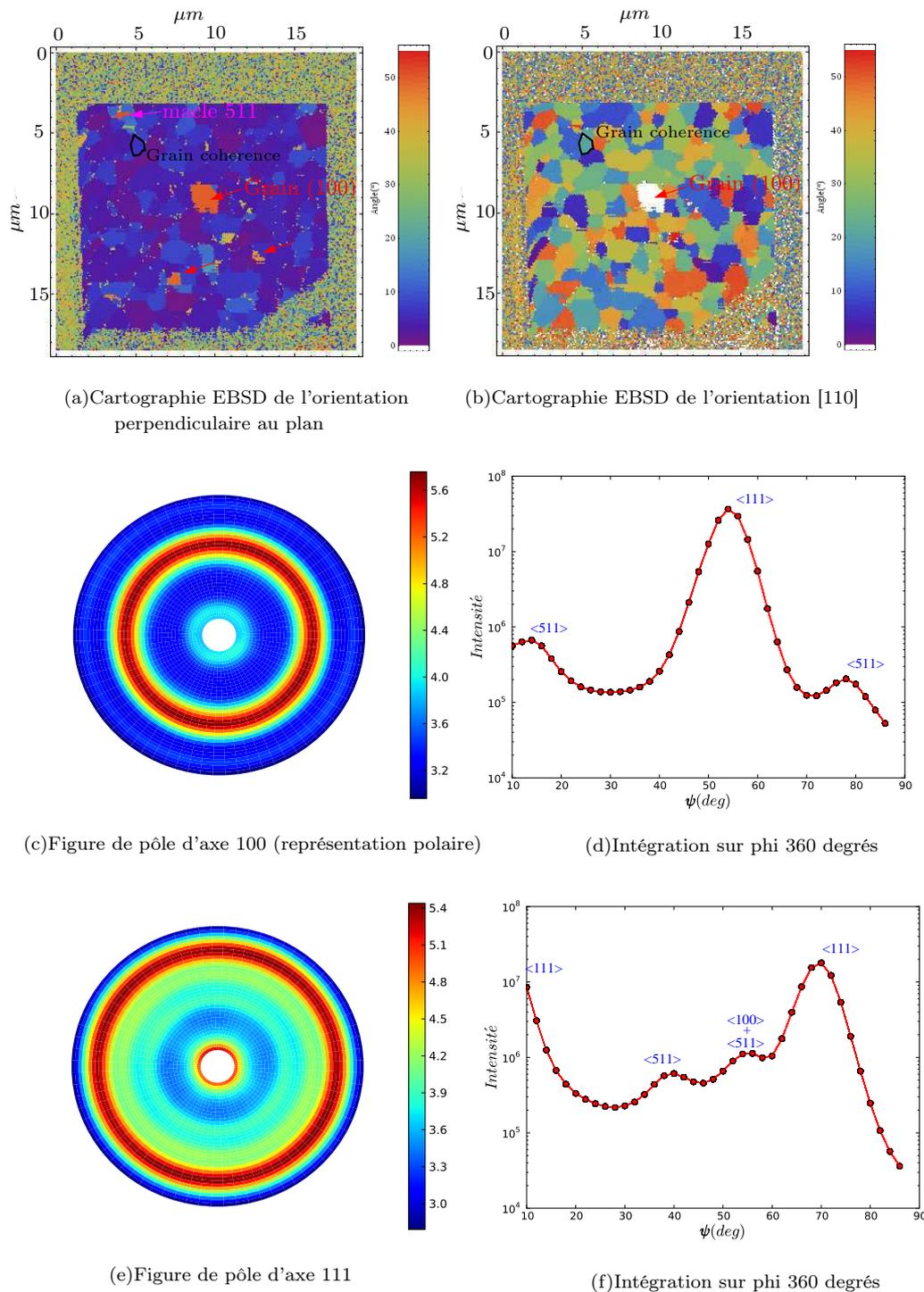


FIG. 4.5 – Cartographie EBSD et figure de pôle réalisées sur l'échantillon P3. Les mesures EBSD ont été effectuées par C. Kirchlechner à l'institut Eric Schmidt-Université de Leoben

## 4.2 Caractérisations des déformations et des contraintes moyennes

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

### 4.2.1 Etat de contrainte résiduelle

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

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

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

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

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

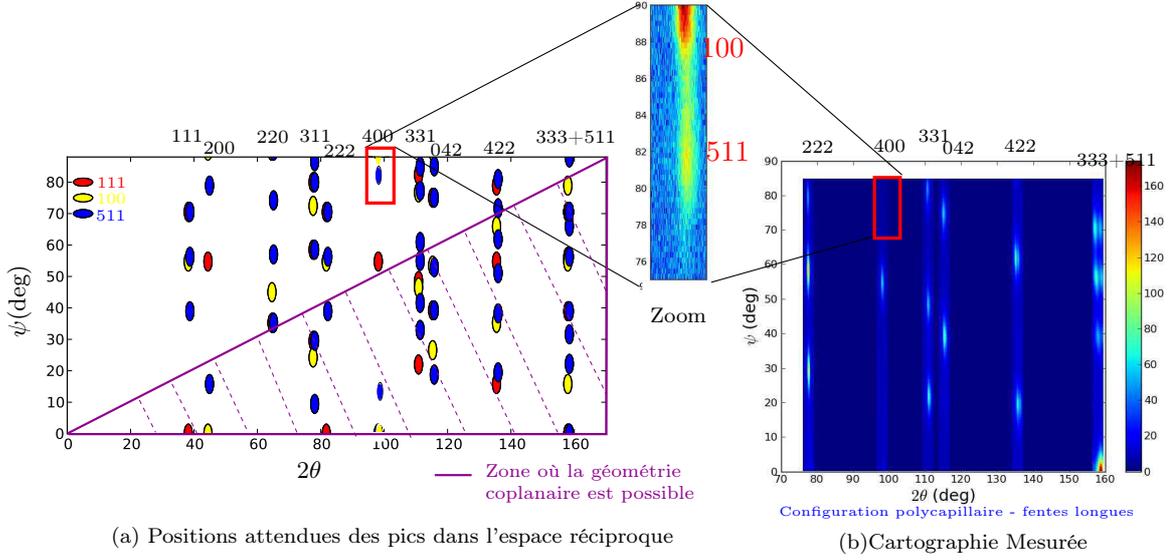


FIG. 4.6 – Cartes angulaires  $(2\theta, \psi)$  théoriques (a) et expérimentales (b) où sont positionnés les pics de diffraction des trois familles majoritaires (111), (100) et (511)

Bragg :

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

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

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

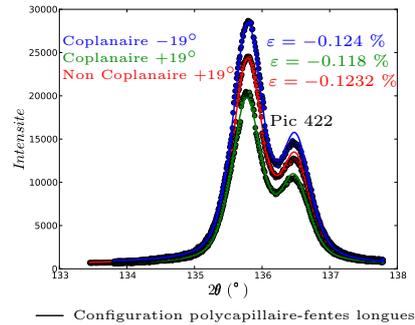


FIG. 4.7 – Déformation calculée à partir de pics mesurés en géométrie coplanaire ou en géométrie non coplanaire

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

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

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

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

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

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

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

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

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

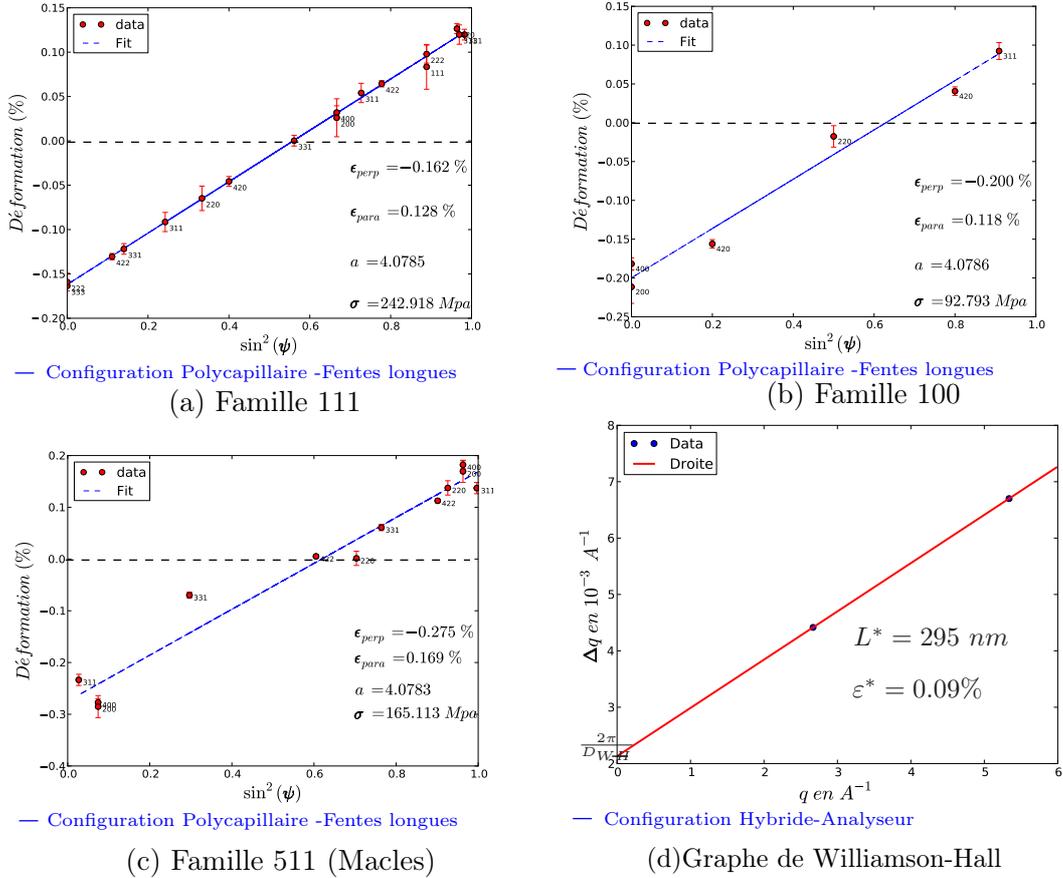


FIG. 4.8 – (a)  $\sin^2 \psi$  pour les 3 familles (111), (100) et (511) de l'échantillon P3. (b) Graphe de Williamson-Hall pour P3.

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

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

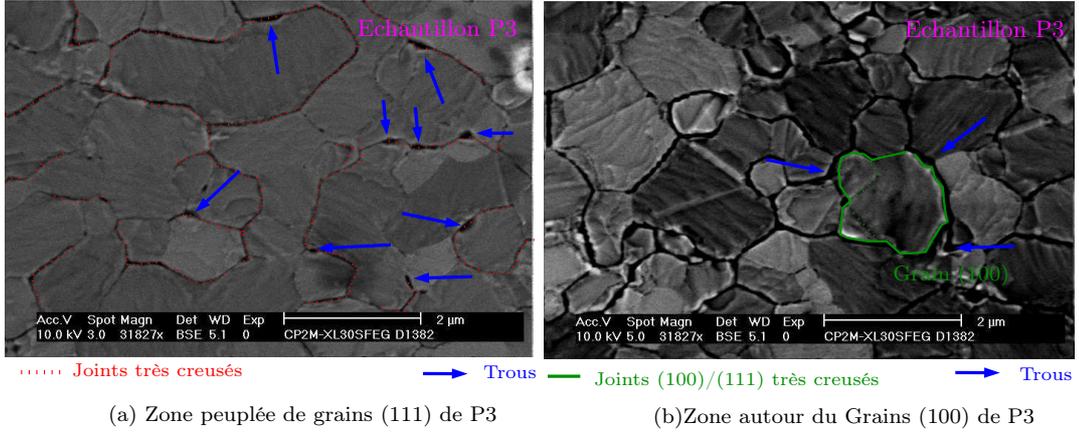


FIG. 4.9 – Défauts de la microstructure du polycristal isolé P3

#### 4.2.2 Comportement thermique moyen

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

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

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

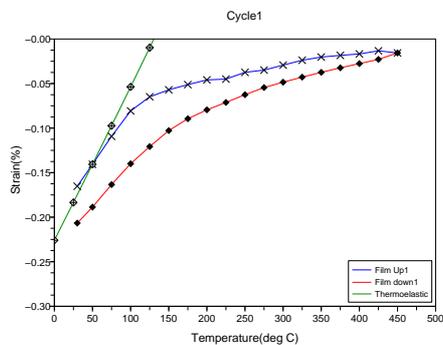
La pente initiale ne correspond pas au comportement thermo-élastique attendu. Il pourrait s'agir d'un problème d'adhérence du film sur le substrat. Cette adhérence est une inconnue, et reste difficile à caractériser. Le substrat en verre est très peu électronégatif et peut laisser penser à une adhérence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

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

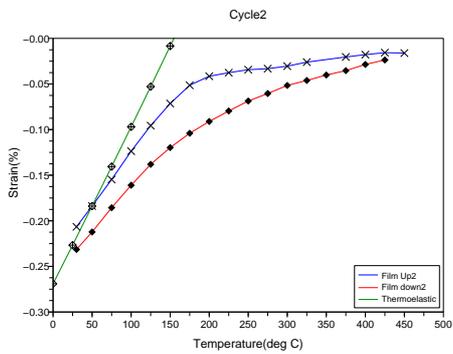
TAB. 4.3 – *Pseudo Coefficient de dilatation thermique effectif moyen pour les échantillon S1 et P3 (mesure analyseur)*

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

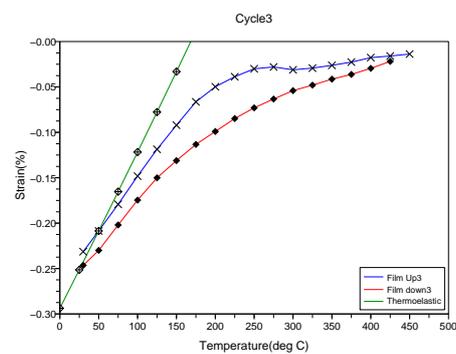
Ces cycles demeurent complexes et non directement comparables aux comportements classiques précédemment exposés (§. 1.4). La partie non linéaire des cycles apparaît alors que le film est encore en tension et alors que l'énergie élastique diminue. Ces cycles seront comparés par la suite aux comportements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



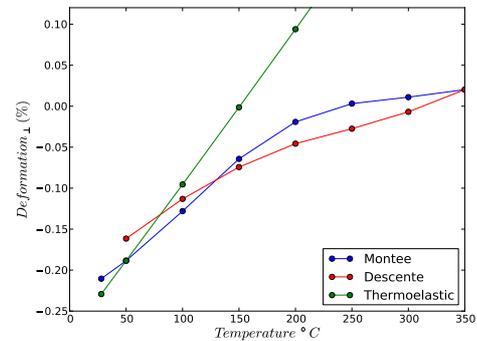
(a) S1 - Cycle 1



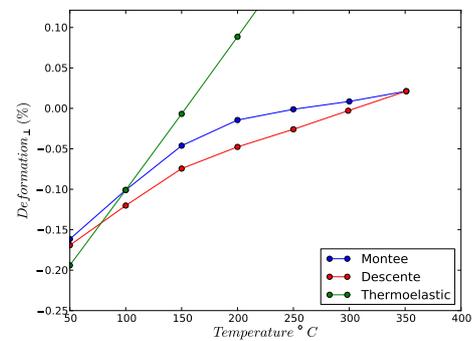
(b) S1 - Cycle 2



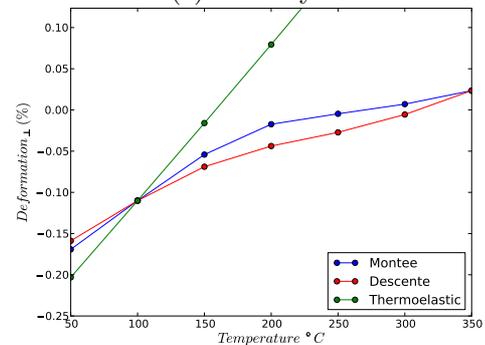
(c) S1 - Cycle 3



(d) P3 - Cycle 1



(e) P3 - Cycle 1



(f) P3 - Cycle 1

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

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

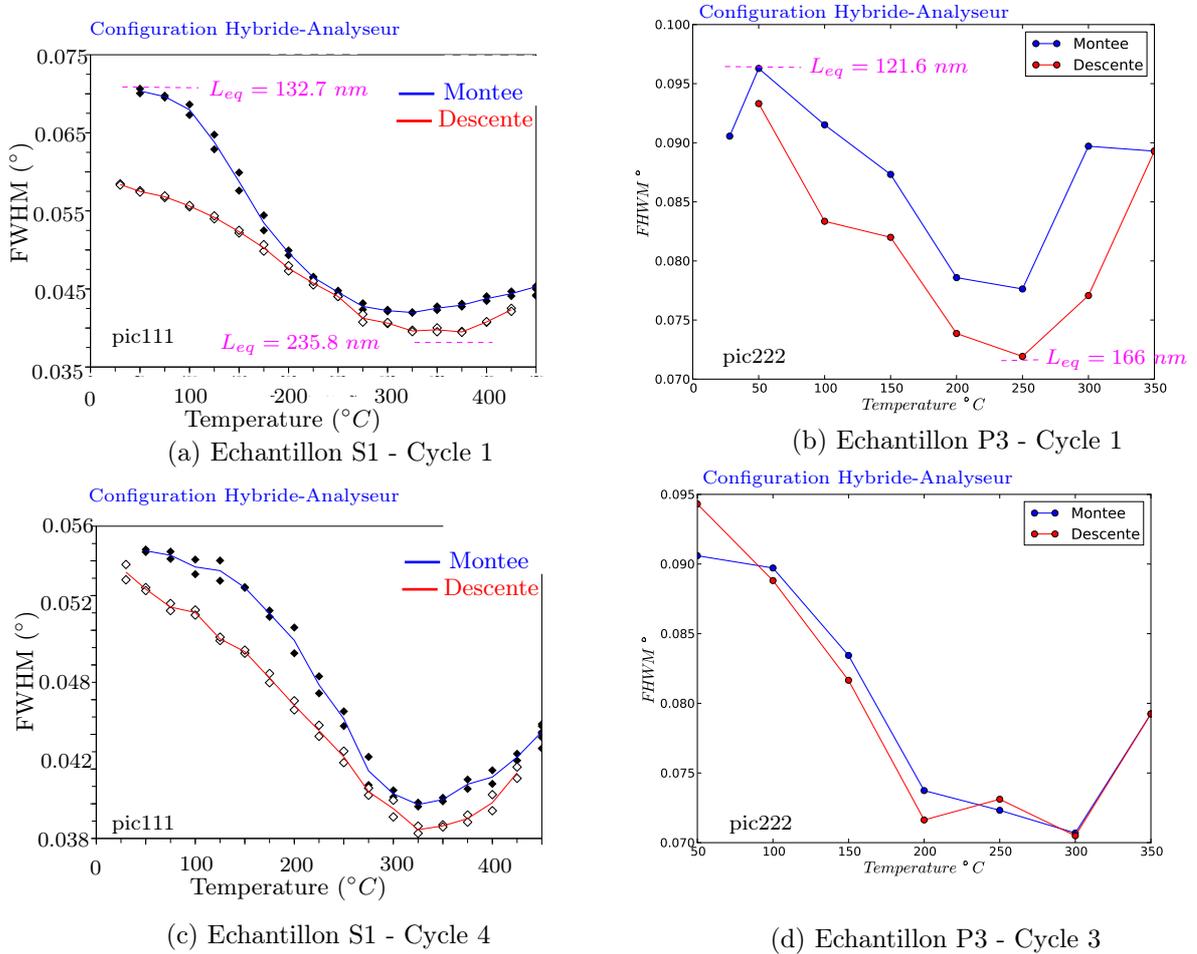


FIG. 4.11 – Evolution des largeurs lors des cycles thermiques pour les échantillons S1 (pic111) et P3 (pic222)

### 4.3 Etude des déformations moyennes de grains uniques

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

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

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

#### 4.3.1 Analyse des anneaux de Debye

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

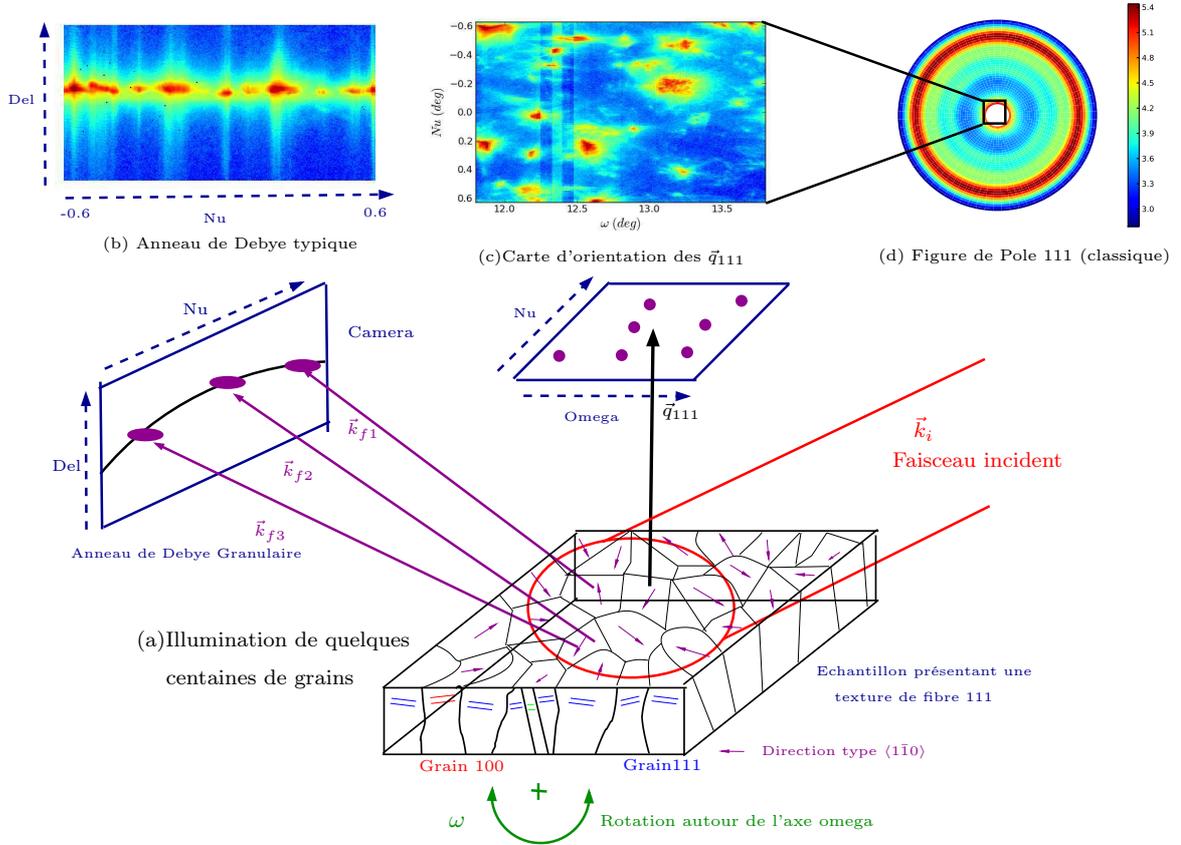


FIG. 4.12 – Principe de l'acquisition d'une portion haute résolution d'une figure de pôle par mesure d'anneau de Debye lors d'une rocking curve

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

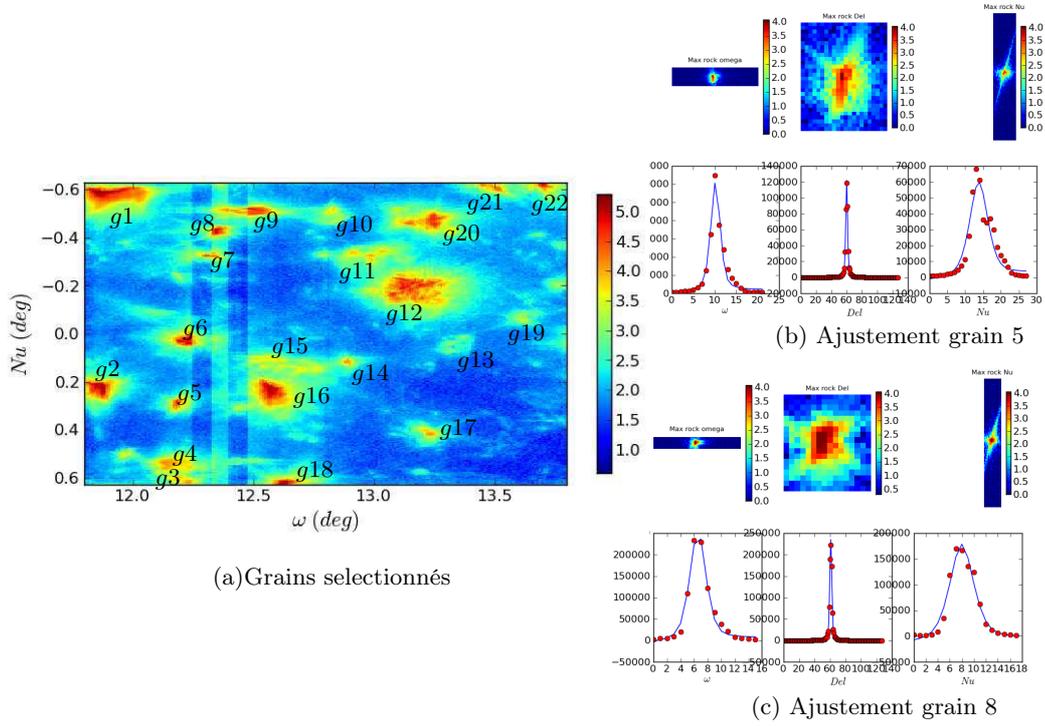


FIG. 4.13 – Ajustement du signal 3D de grain

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

### 4.3.2 Inhomogénéités inter-grain à température ambiante

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

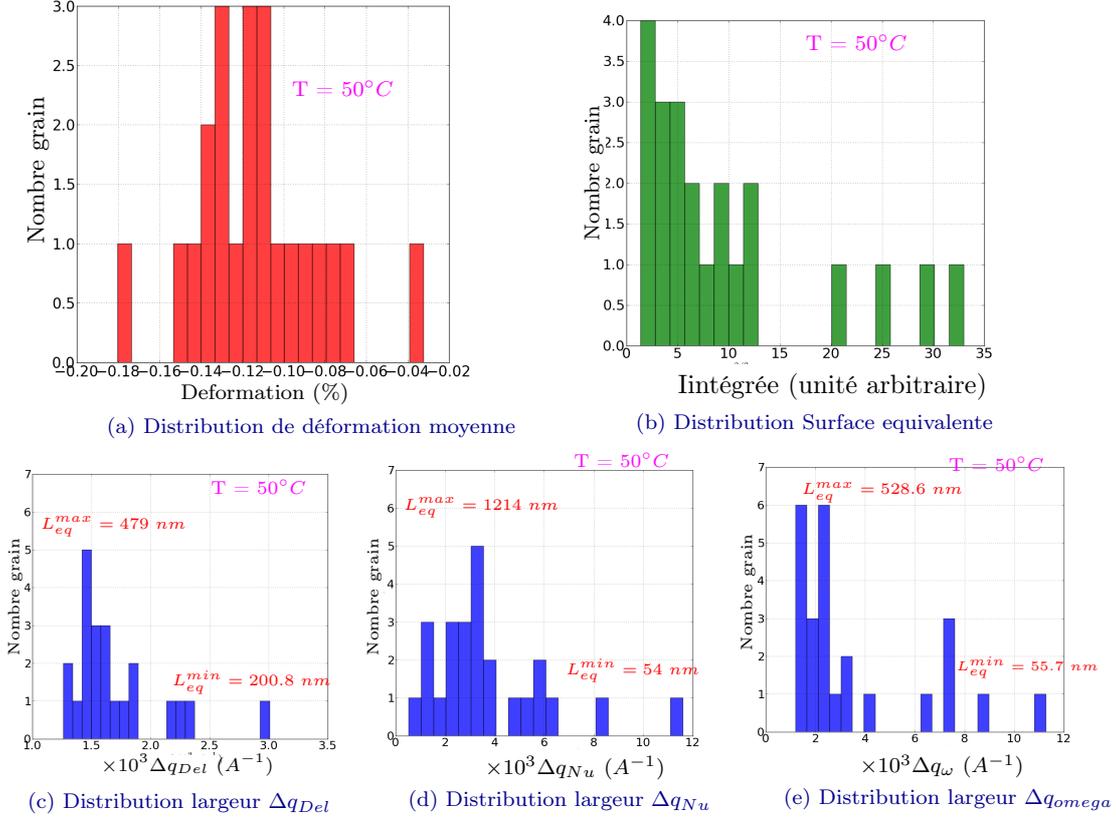


FIG. 4.14 – Distribution des déformation, des largeurs pour les 22 grains indexés

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

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

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

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

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

### 4.3.3 Evolutions avec la température

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

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

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

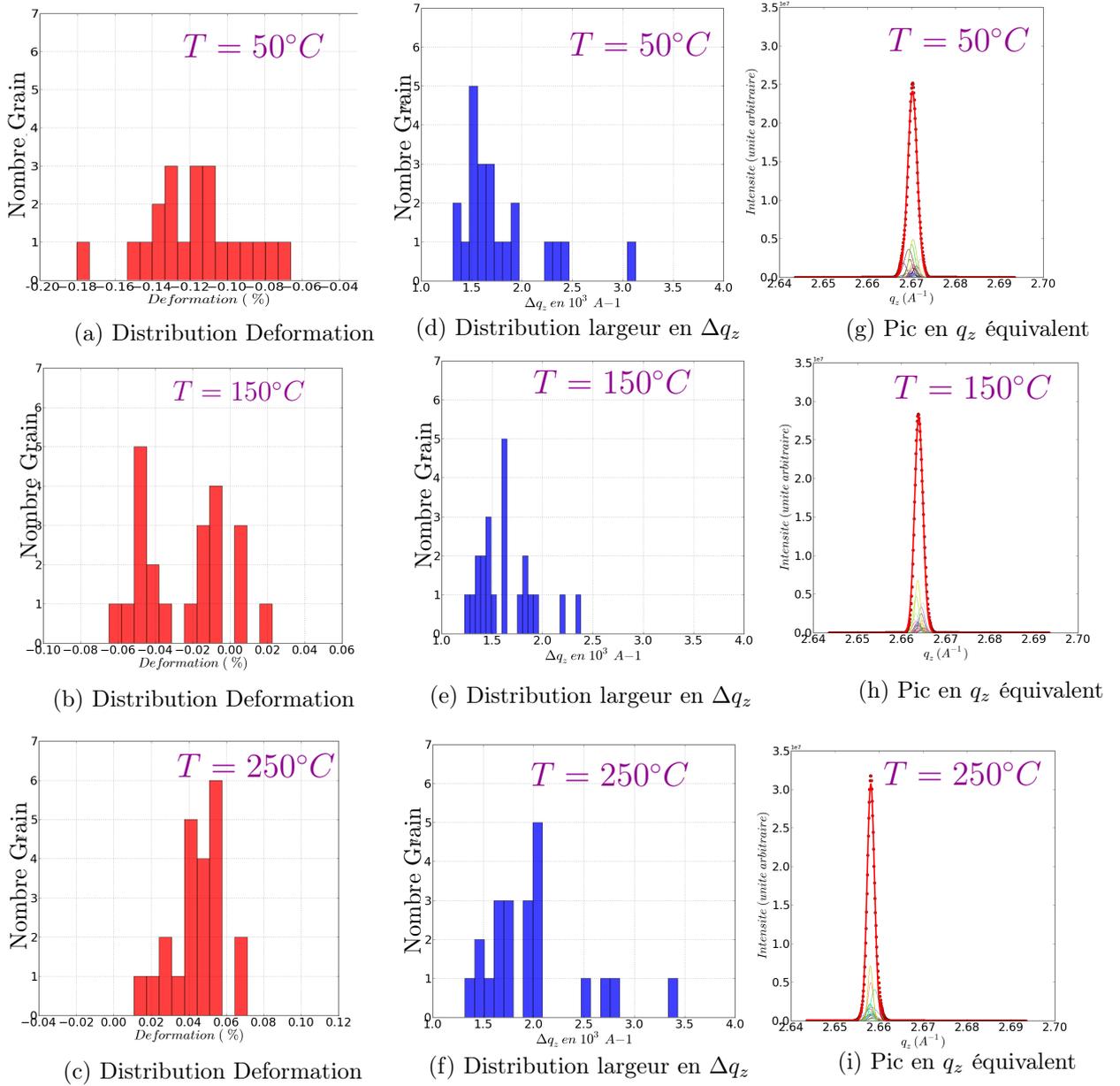


FIG. 4.15 – Evolution en température des distributions de déformation moyenne et de la largeur  $\delta q_z$  pour les 22 grains

## 4.3.4 Discussion

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

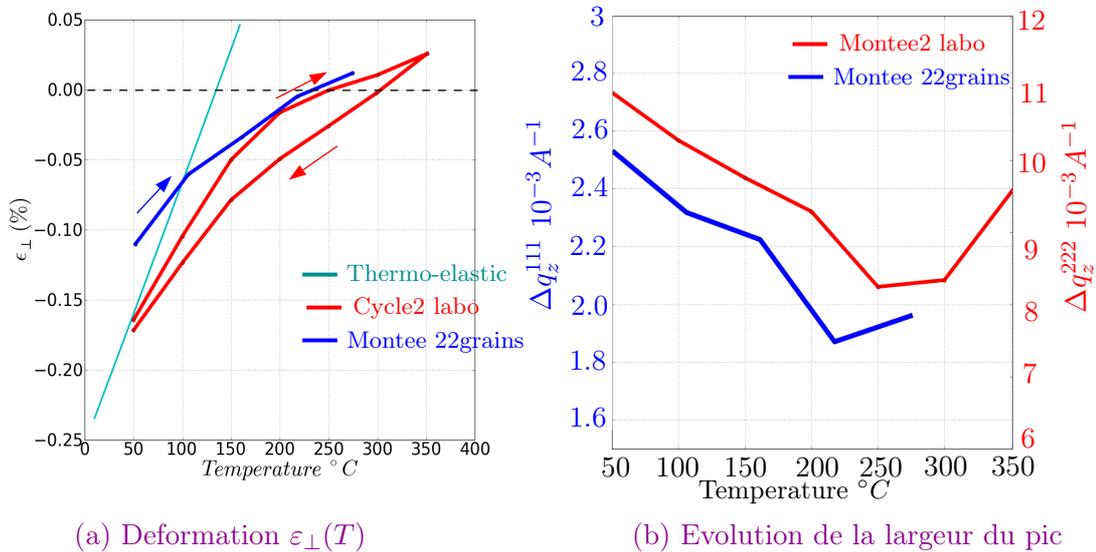


FIG. 4.16 – Comparaison entre le pic moyen sur 22 grains et pic obtenu au laboratoire

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

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

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

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

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

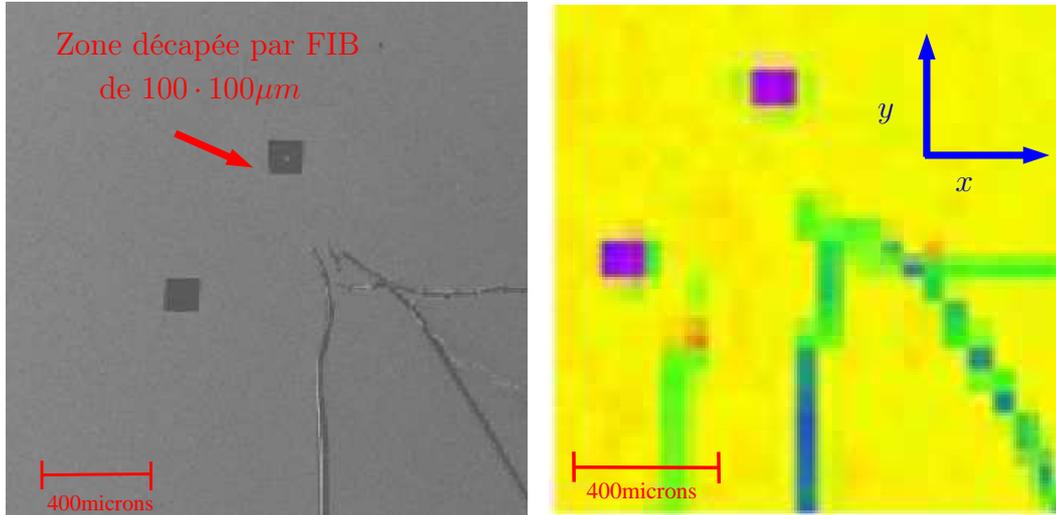
#### 4.4 Stratégie en vue de l'identification du grain diffractant

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

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

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

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



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

(b) Cartographie de fluorescence correspondante

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

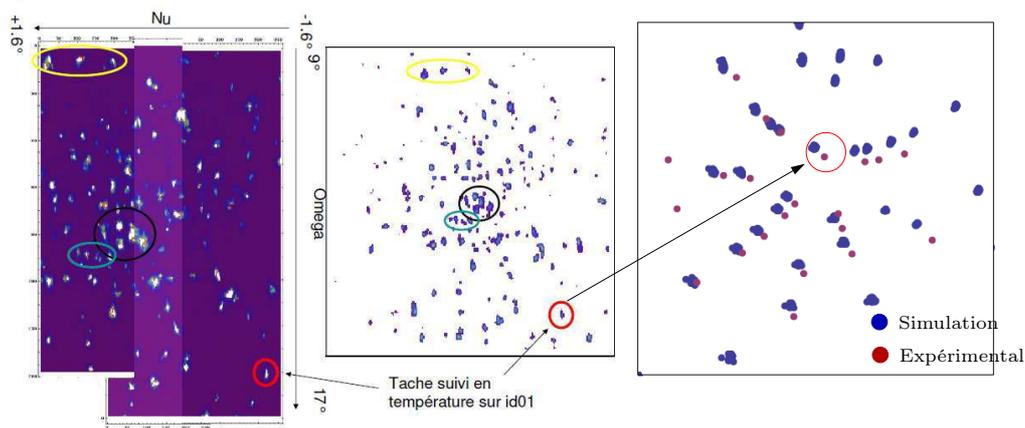
dans la pratique. Le contraste obtenu sur ces cartes est faible rendant difficile le repérage des zones d'intérêt. Des cartographies  $(x,y)$  avec des pas très fins doivent donc être réalisées pour être sûr de bien repérer la zone découpée de  $150 \times 150 \mu m$ . Cette approche est donc assez longue.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

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

(cf §. 5).

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

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



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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

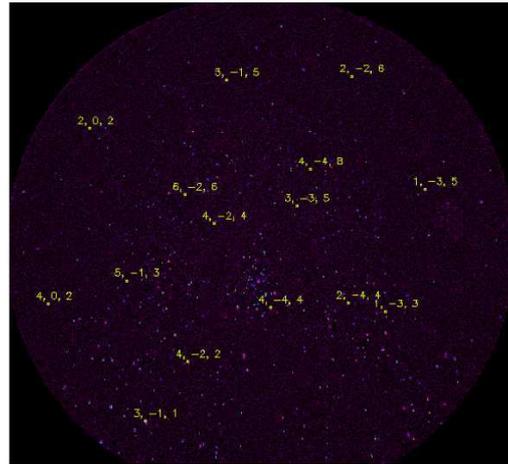


FIG. 4.19 – *Extraction du signal de Laue du grain étudié*

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

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

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

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

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

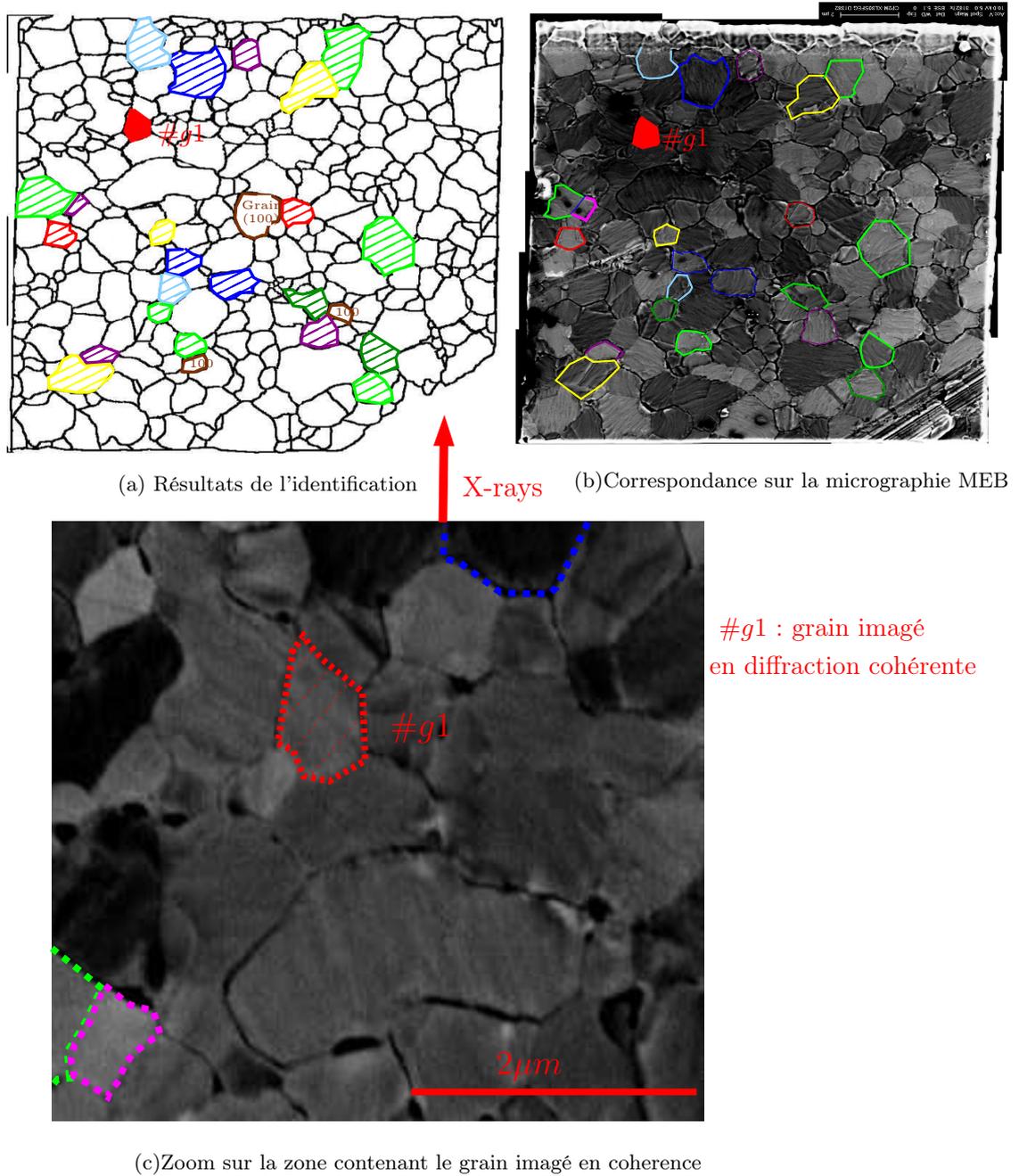


FIG. 4.20 – Identification par multi-comparaison dans l'espace direct des 22 grains étudiés en 3DXRD et du grain étudié en cohérence

### 4.5 Etude intra grain : Diffraction cohérente

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

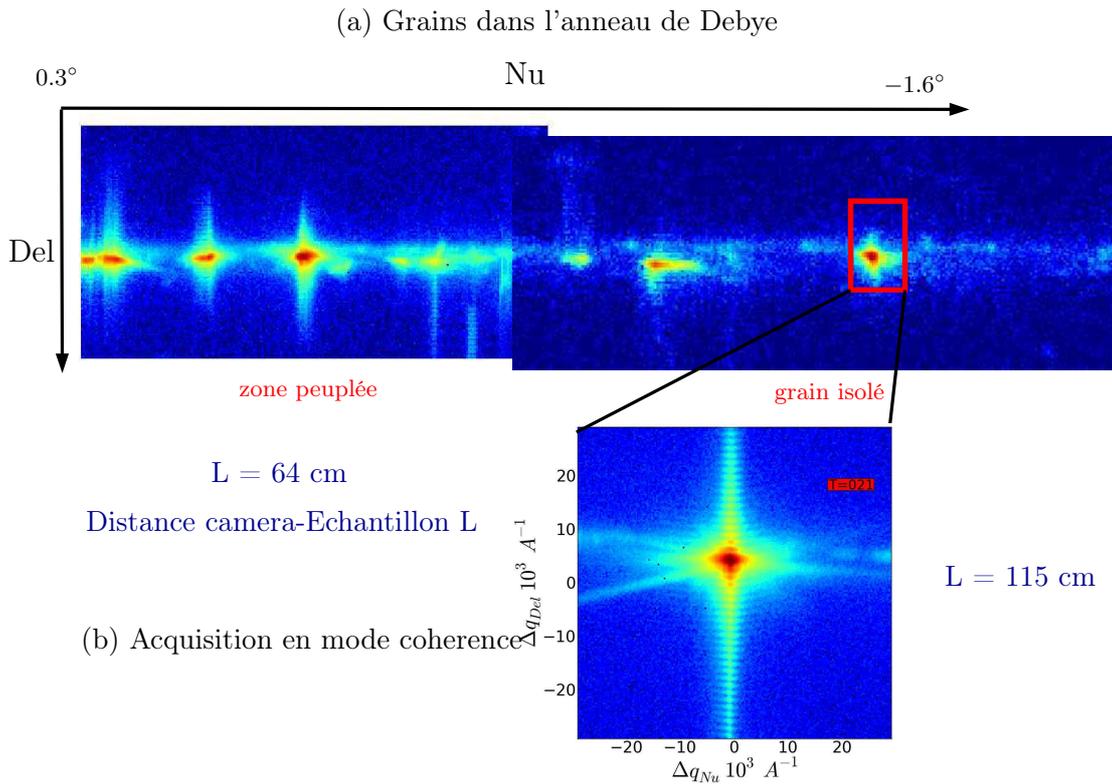


FIG. 4.21 – Sélection d'un grain isolé dans l'espace réciproque

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

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

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

#### 4.5.1 Aspects tomographiques

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

##### 4.5.1.1 Réflexion symétrique

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

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

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

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

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

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

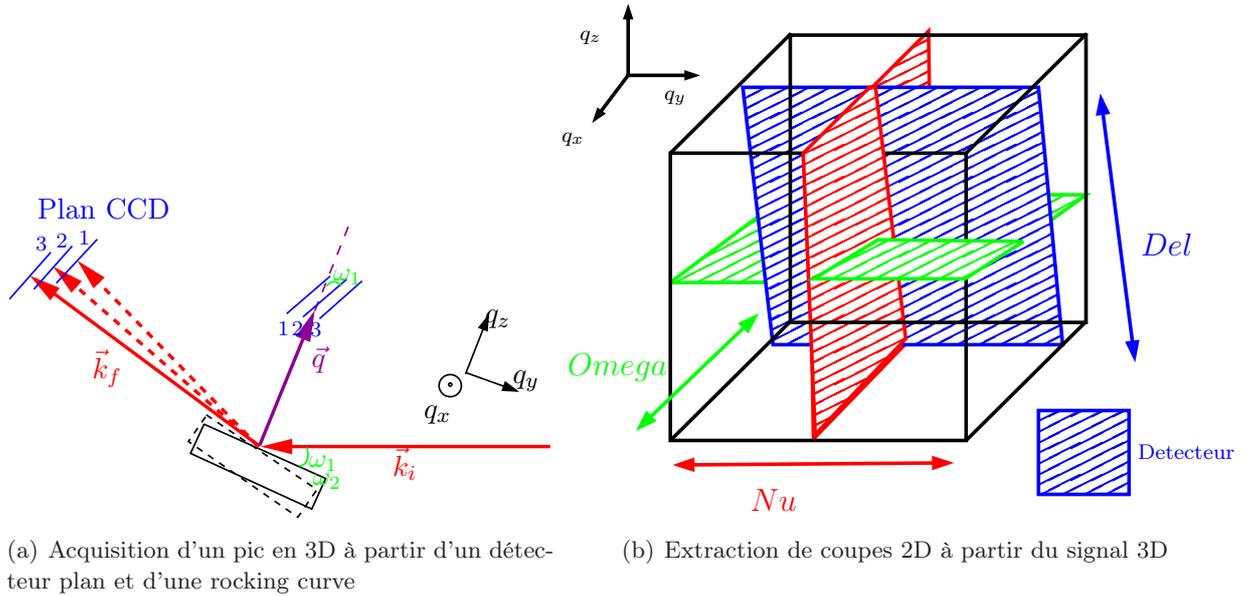


FIG. 4.22 – Deux manières particulières de découper l'espace réciproque

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

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

### Correspondance direction Espace Réel - direction Espace Réciproque

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

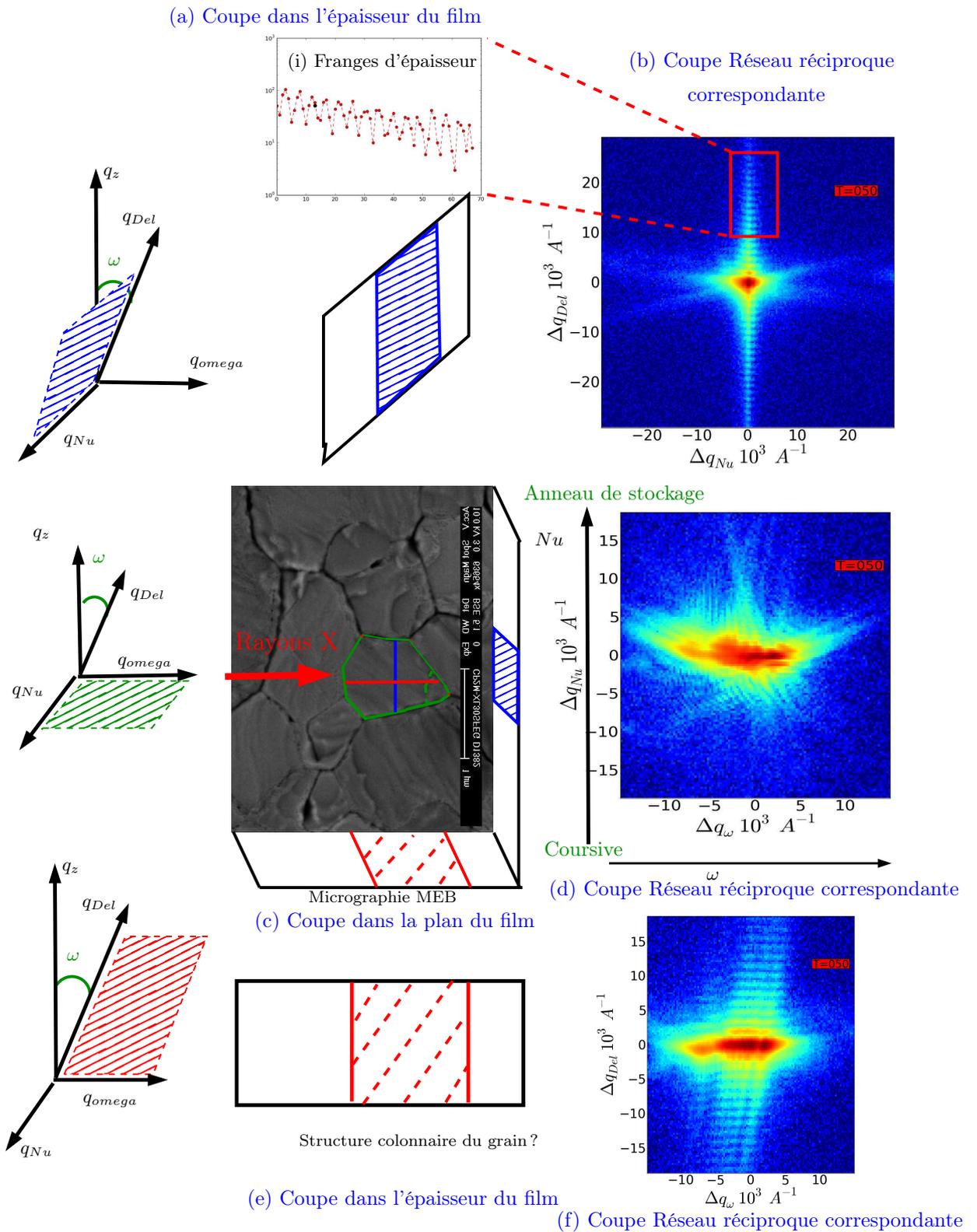


FIG. 4.23 – Correspondance entre les trois coupes 2D croisées issues du pic 3D et l'objet réel (grain #g1 de P3). Ce pic 111 a été obtenu sur la ligne ID01@esrf à  $E = 11.91\text{keV}$  avec la caméra Medipix (pixel  $55\mu\text{m}$ ) placée à  $1.14\text{m}$ .

#### 4.5.1.2 Réflexion Asymétrique

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

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

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

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

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

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

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

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

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

---

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

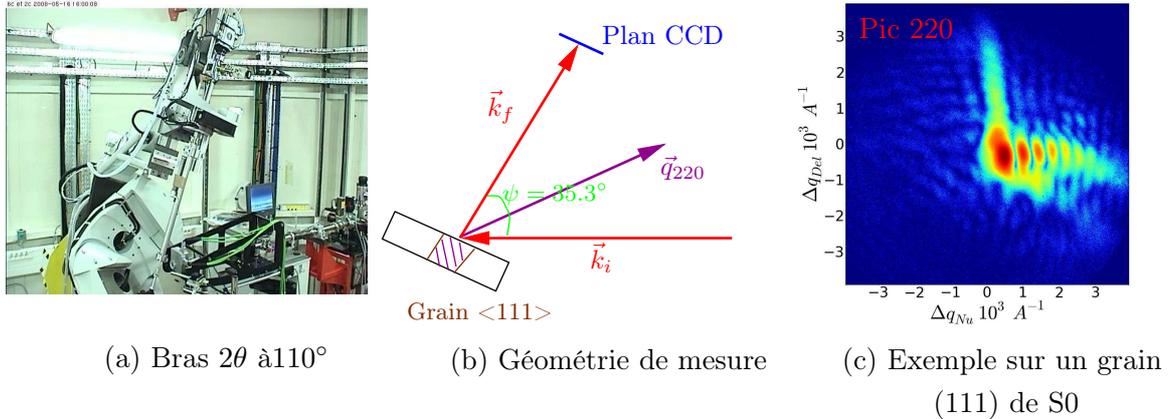


FIG. 4.24 – (a,b) Géométrie asymétrique avec caméra parallèle à la surface de l'échantillon (c) Coupe 2D de la réflexion 220 d'un grain de l'échantillon S0 (Mesures effectuées sur la ligne Cristal@Soleil, à  $E = 5.26\text{keV}$ , avec la caméra Andor (pixel  $13\mu\text{m}$ ))

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

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

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

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

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

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

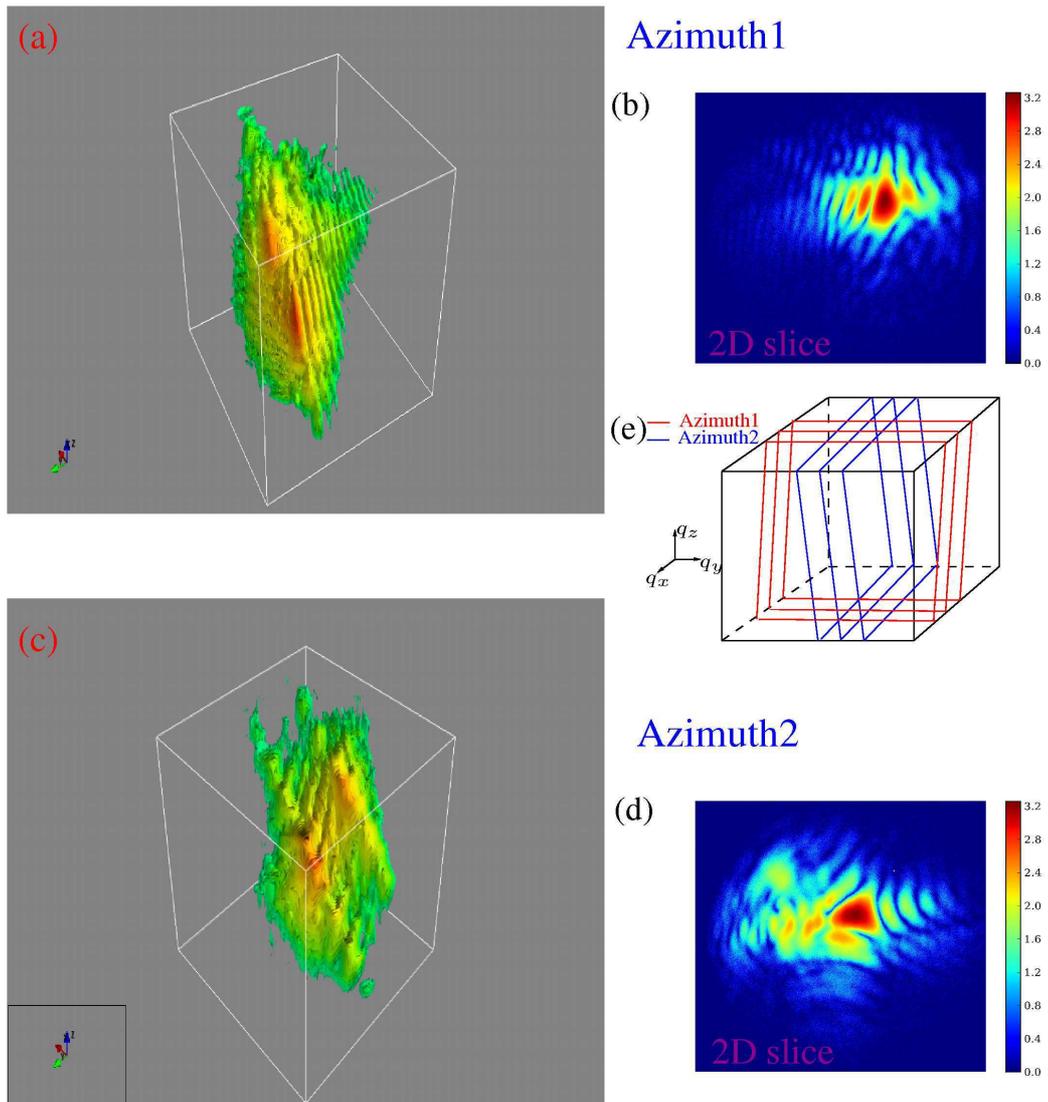


FIG. 4.25 – Pic 111 d'un grain de  $S0$  imagé en 3D selon 2 directions perpendiculaires (Mesures effectuées sur la ligne Cristal@Soleil, à  $E = 5.26\text{keV}$ , avec la caméra Andor (pixel  $13\mu\text{m}$ ))

#### 4.5.1.4 Aspects géométrique connexes

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

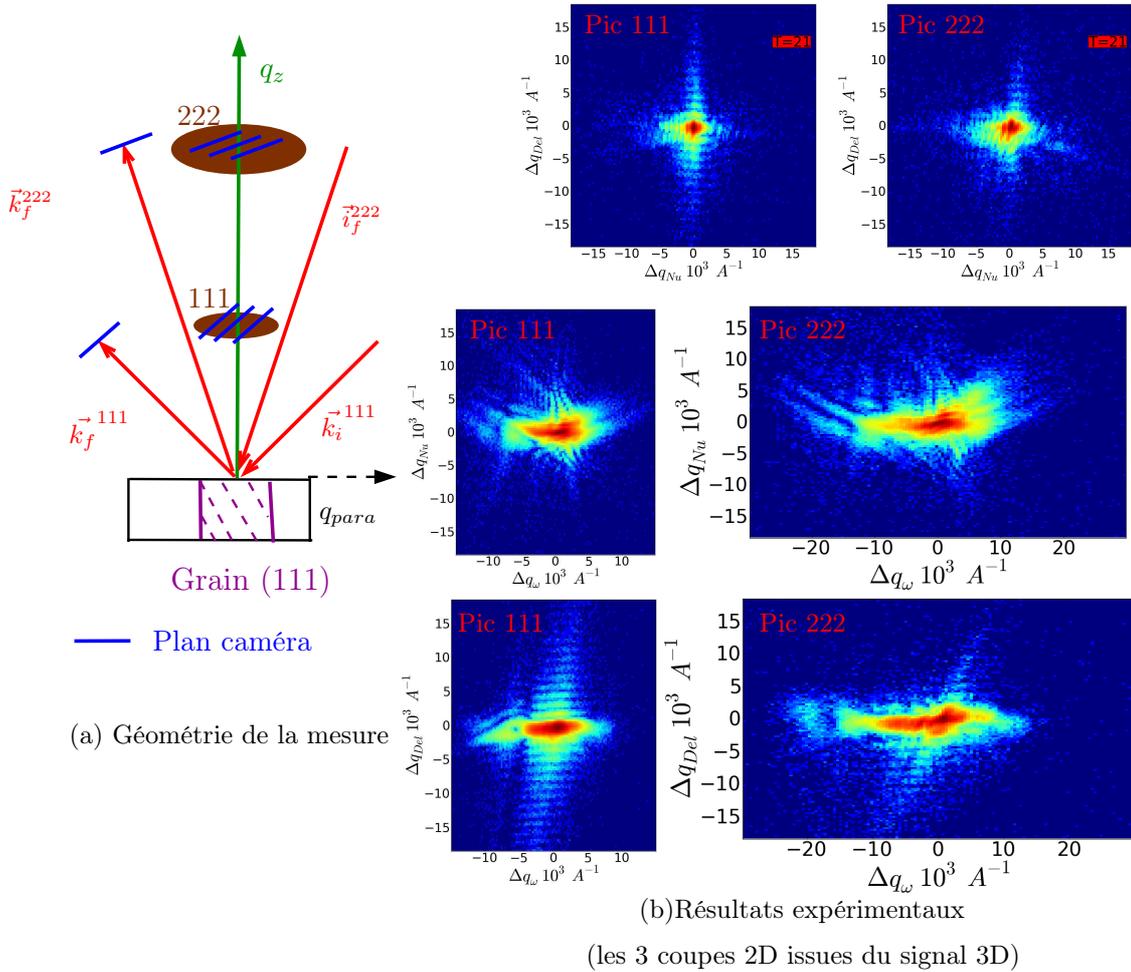


FIG. 4.26 – Comparaison à température ambiante (début du 3ième cycle) de la réflexion 3D 111 et 222 du grain #g1 (Mesures effectuées sur la ligne IDO1@esrf, à  $E = 11.91\text{keV}$ , avec la caméra Medipix)

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

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

TAB. 4.5 – Paramètre déduit du graphe Williamson-Hall

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

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

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

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

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

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

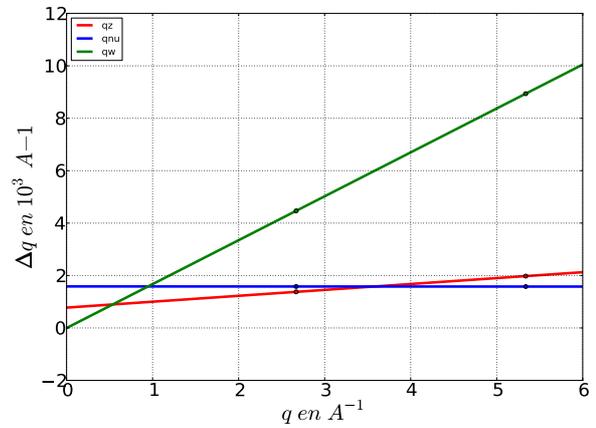


FIG. 4.27 – Graphique de Williamson-Hall sur le grain unique #g1

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

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

### 4.5.3 Mesures expérimentales des hautes fréquences

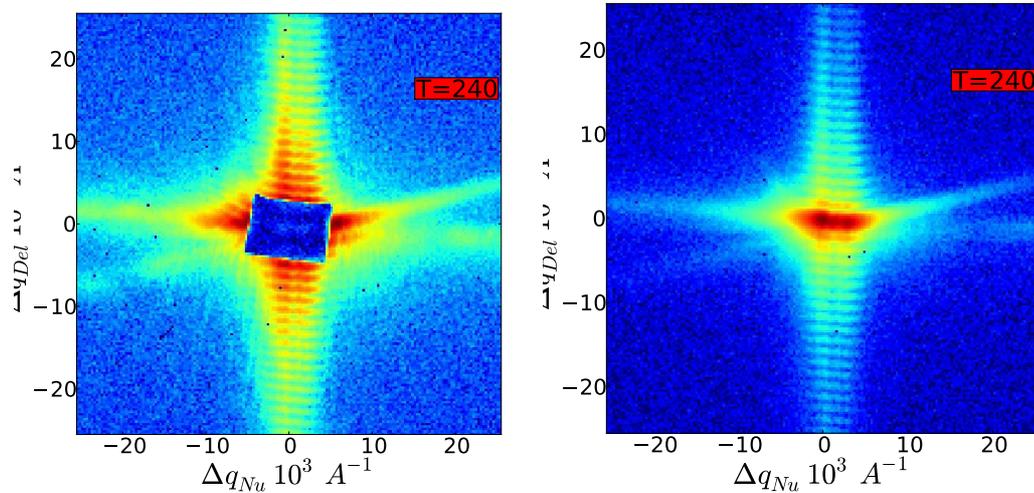
Pour l'analyse des données il est important de mesurer l'intensité de diffraction le plus loin possible autour des pics de Bragg. La limite serait de pouvoir mesurer correctement tout l'espace réciproque entre les noeuds de l'espace réciproque. Evidemment les possibilités expérimentales fixent les limites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

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

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

### 4.5.4 Diffraction cohérente en température

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



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

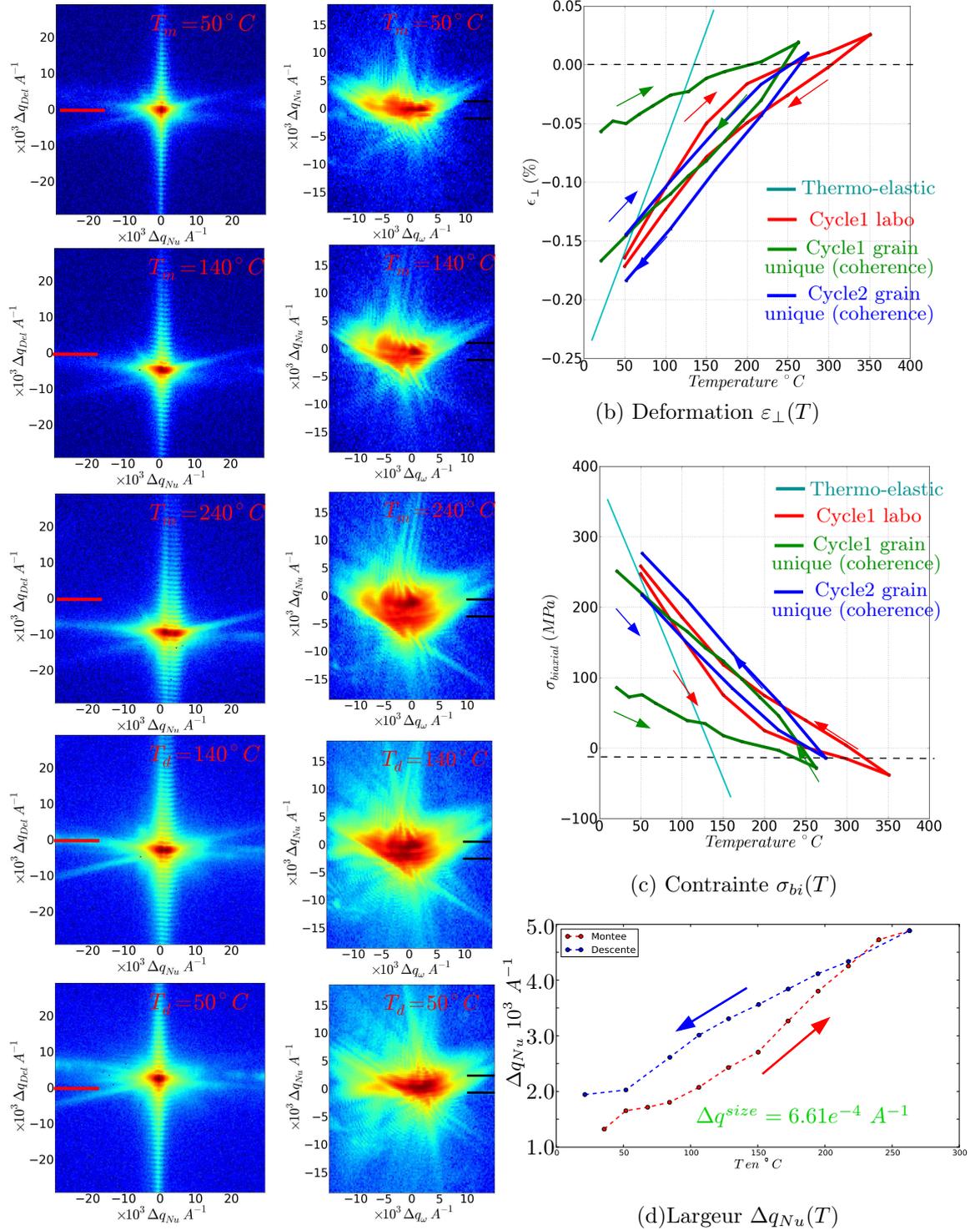
FIG. 4.28 – Coupe 2D de la réflexion 111 du grain #g1 P3 avec et sans beamstop (Mesures effectuées sur la ligne id01@esrf, à  $E = 11.91\text{keV}$ , avec la caméra Medipix)

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

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

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

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



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

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

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

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

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

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

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

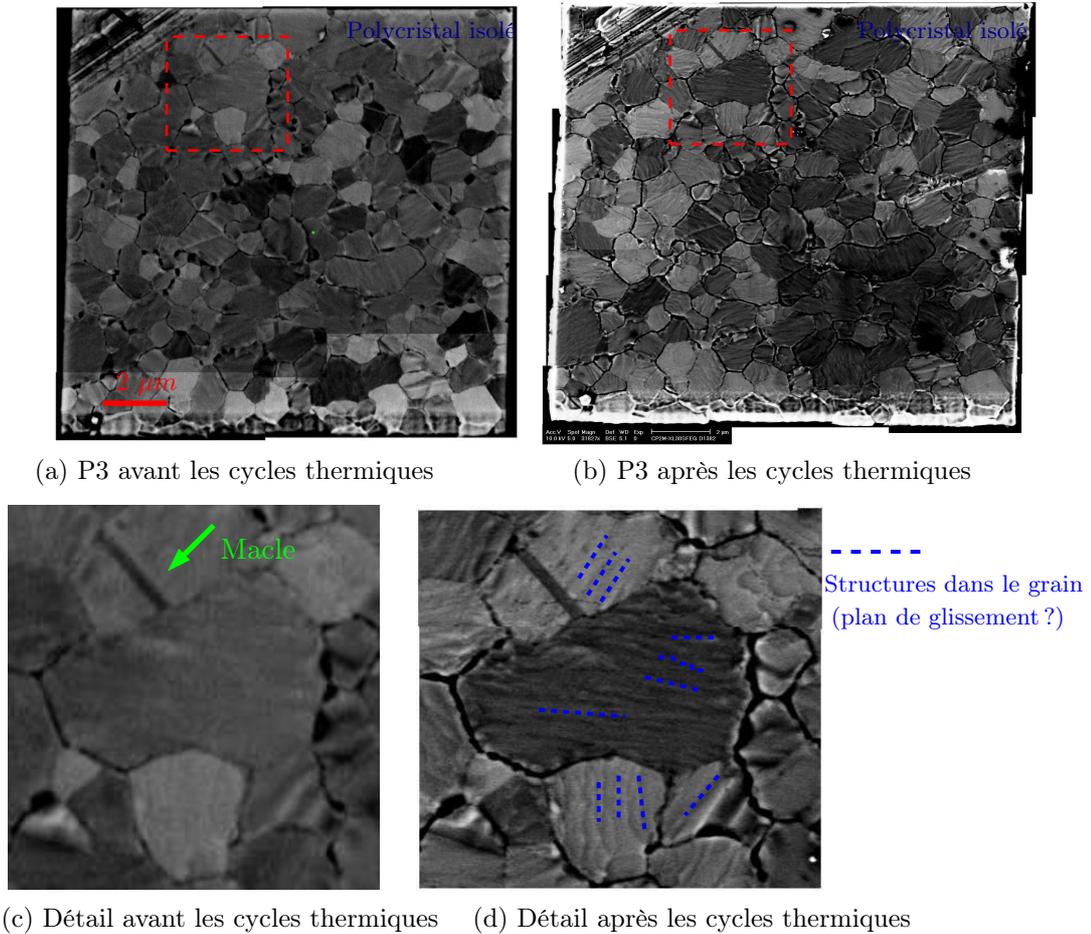


FIG. 4.30 – Evolutions morphologiques du polycristal isolé de P3 avant et après les recuits

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

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

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

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

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

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

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

---

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

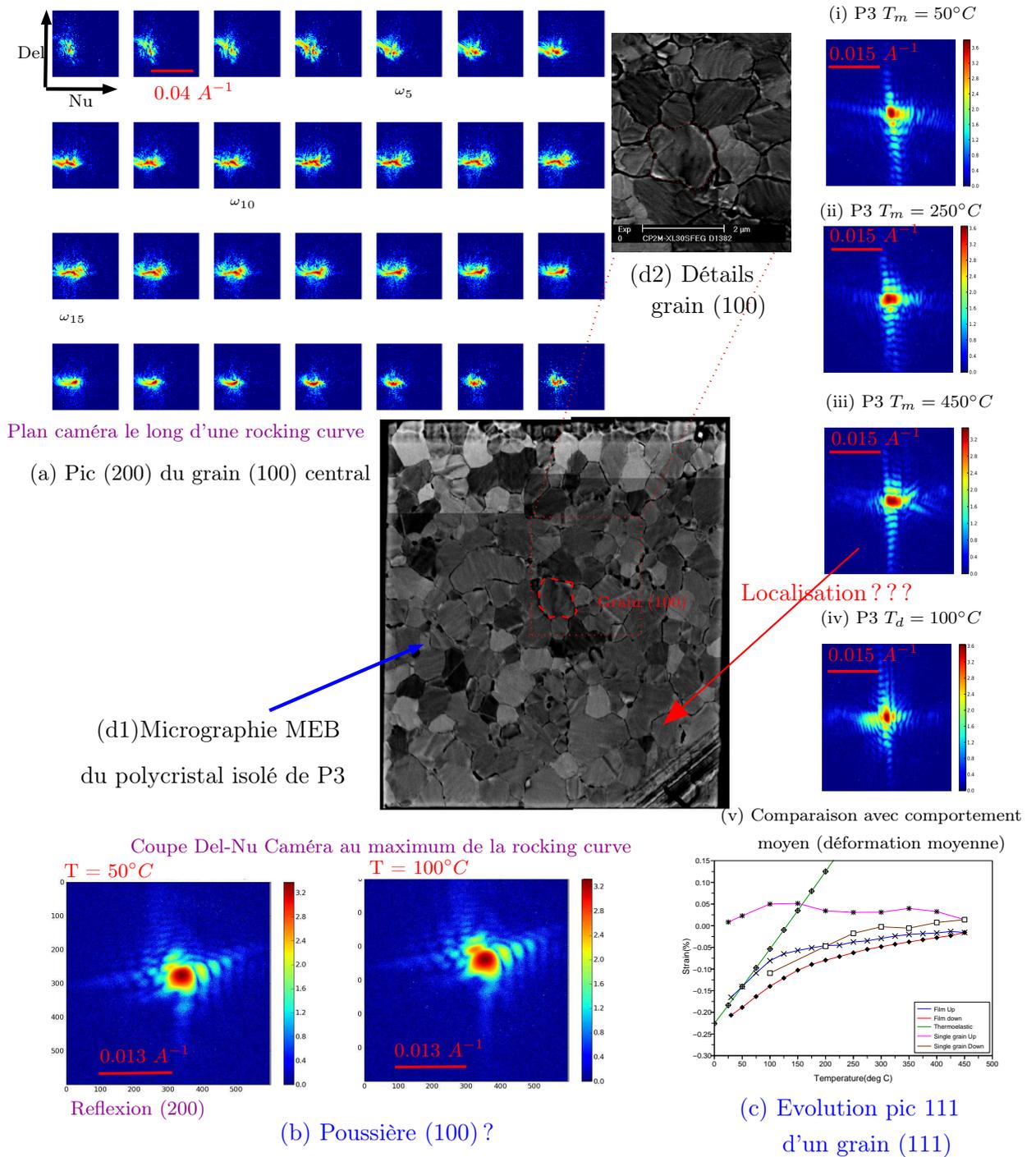


FIG. 4.31 – Diffraction cohérente sur d'autres grains de P3 (Mesures effectuées sur la ligne Cristal@Soleil, à  $E = 11.92keV$ , avec la caméra Andor (pixel  $13\mu m$ ))

## 4.6 Simulations Eléments Finis et diffraction cohérente

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

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

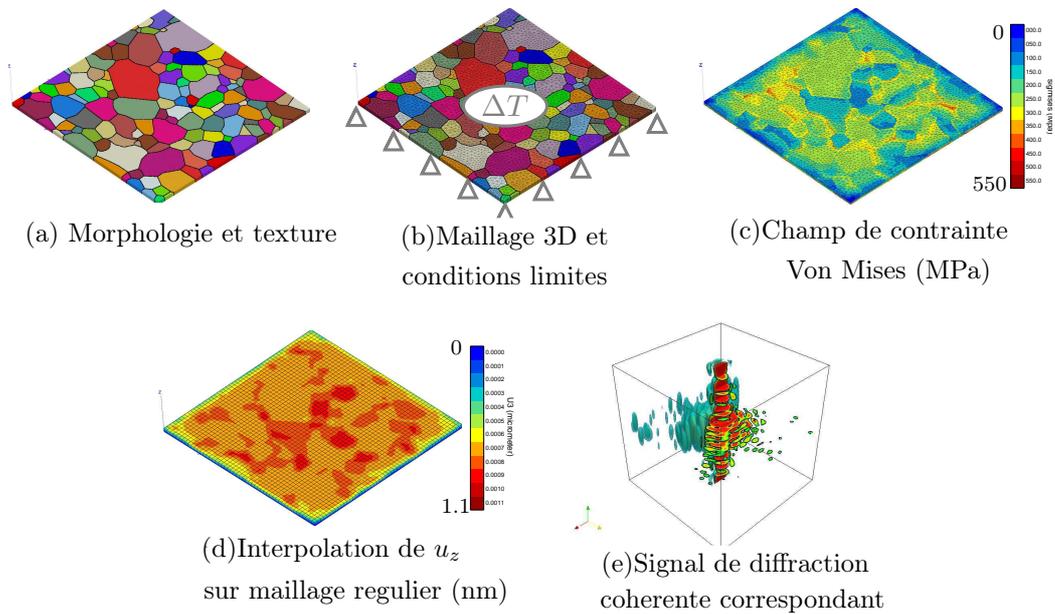


FIG. 4.32 – Méthodologie employée pour calculer le signal de cohérence d'un grain unique à partir d'une simulation éléments finis

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

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

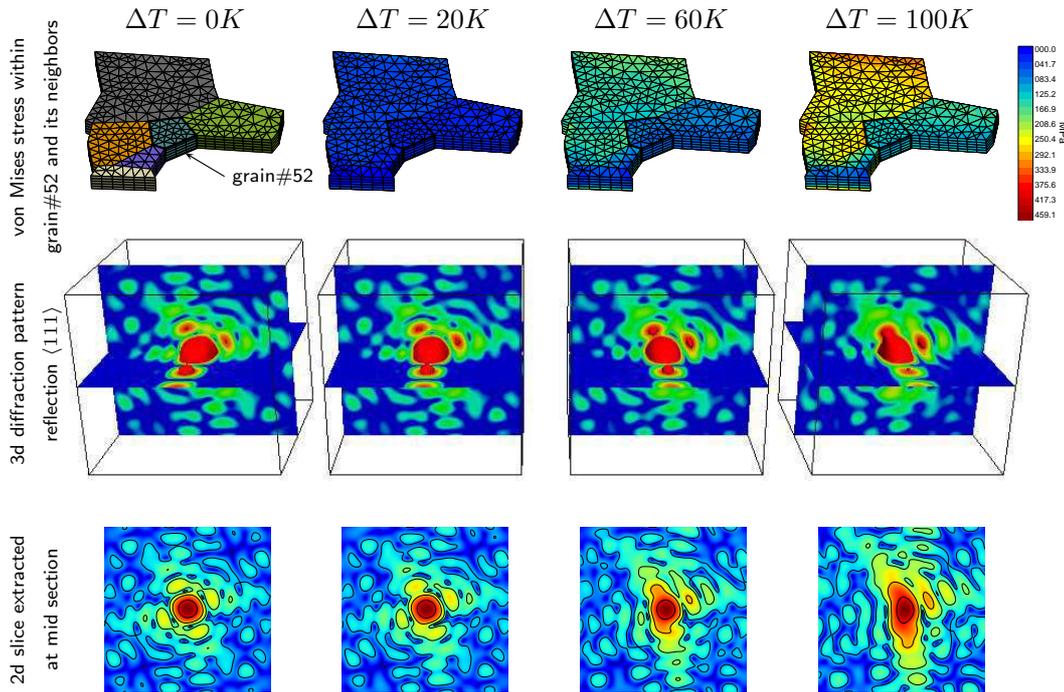


FIG. 4.33 – (a) Champ de contrainte Von Mises du grain sélectionné (b) Pic 111 3D correspondant (c) Coupe parallèle à la surface extraite du signal 3D.

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

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

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

progressivement des distorsions.

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

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

## 4.7 Grains très déformés

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

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

---

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

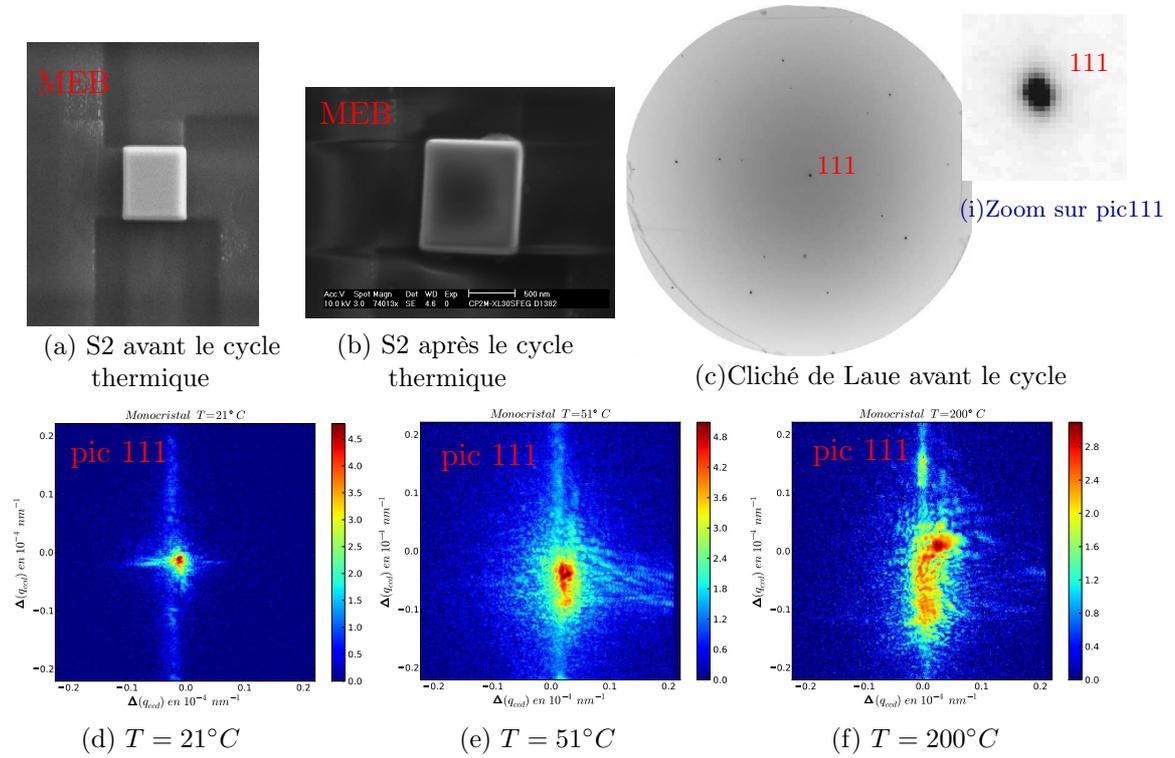


FIG. 4.34 – Monocrystal taillé dans le film S2 avant et après (a,b) le cycle thermique. (c,d,e) Evolution du pic 111 correspondant. (Mesures effectuées sur la ligne ID01@esrf, à  $E = 11.91\text{keV}$ , avec la caméra Medipix)

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

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

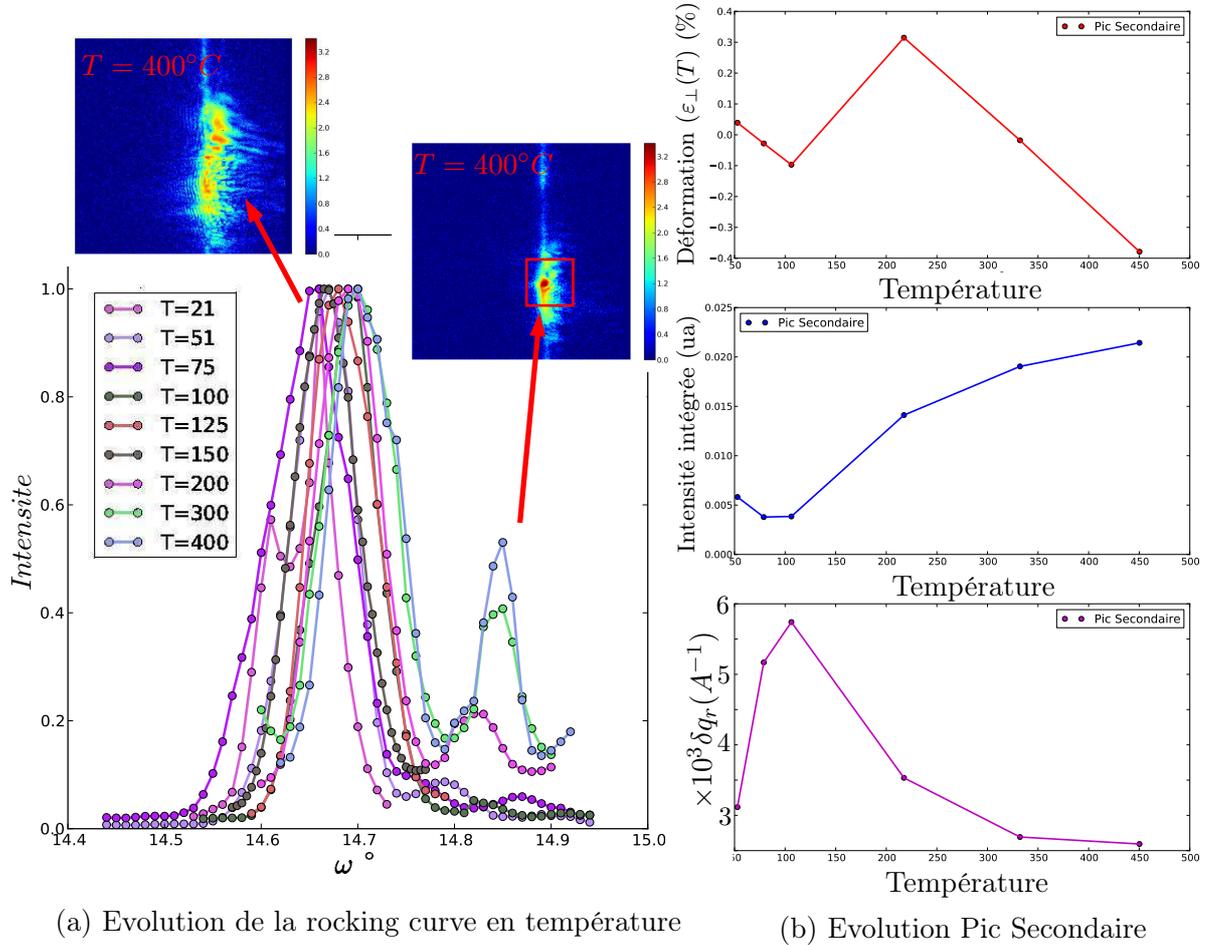


FIG. 4.35 – Apparition d'un pic secondaire au cours du cycle thermique

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

Les données collectées sont cependant insuffisantes pour pouvoir confirmer de manière catégorique ces intuitions. Mais il est probable que les phénomènes observés

sont la conséquence de réarrangements des dislocations dans ce petit cristal isolé. Ce type d'analyse semble intéressante à développer de manière plus détaillée pour étudier la dynamique de défauts en 3D de manière in-situ. De telles études en volume sont difficiles avec les techniques de microscopie électronique à transmission.

Des observations similaires ont été reportées dans les articles suivants [Jakobsen 2006, Jakobsen 2007]. L'échantillon étudié est une éprouvette polycristalline de cuivre. Une cartographie de la réflexion 400 issue d'un grain unique de  $5 \times 2 \mu m$  est acquise en mode haute résolution  $\Delta q \simeq 5.10^{-4} \text{\AA}^{-1}$  durant un chargement uniaxial en tension jusqu'à 2% de déformation. Cette expérience a été réalisée sur la ligne 1-ID-C de l'APS dédiée à la 3DXRD. Une évolution des sous-domaines est reportée et les auteurs concluent sur des phénomènes de réarrangements complexes des dislocations.

## Synthèse Chapitre 4

Des films minces polycristallins d'or ont été caractérisés par diffraction X à différentes échelles. En particulier, l'échantillon P3 montre des hétérogénéités de contraintes moyennes entre les différentes familles de grains dont il est composé. Une contrainte moyenne d'environ 240 MPa a été mesurée pour les grains (111) contre une contrainte d'environ 93 MPa dans les grains (100). Les macles (511) de la famille majoritaire (111) ont pu être caractérisées via l'acquisition de réflexions asymétriques choisies isolées dans l'espace réciproque. Les macles présentent un comportement intermédiaire iso-déformation/iso-contrainte avec les grains (111) dans lesquels elles sont enchâssées.

Dans la famille majoritaire (111) des hétérogénéités de déformation grain à grain ont été mises en évidence par des mesures de micro-diffraction monochromatique. L'état individuel d'une vingtaine de grains a pu être suivi lors d'un cycle en température. Des hétérogénéités de déformation moyenne inter-grain de 0.14% à température ambiante ont été mises en évidence pour 22 grains de cette famille (111). Ces hétérogénéités inter-grain diminuent lors d'une montée en température. De plus, le pic de diffraction obtenue en moyennant le signal de ces 22 grains est comparable au pic de diffraction obtenu au laboratoire moyenné sur des millions de grains.

D'autre part, les hétérogénéités internes dans un grain 111 unique ont été sondées avec une très bonne résolution par diffraction cohérente lors d'un cycle thermique. Le grain #g1 de P3 présente un signal de diffraction 3D très complexe dans le plan du film. Le pic(111) symétrique est sensible à la composante  $u_z(x, y, z)$  du champ de déplacement interne de l'objet. Les hétérogénéités internes dans ce grain semble être anisotropes, comme semble l'indiquer une forte dissymétrie du signal cohérent. Plus généralement, une méthodologie robuste a été mise en place pour étudier en diffraction cohérente un objet unique non isolé dans l'espace direct. Les aspects géométriques des mesures ont été étudiés en détail. Une approche pour identifier le grain diffractant a également été développée. La connaissance du grain diffractant facilite les analyses et les interprétations du signal de diffraction cohérente.

Des résultats complémentaires semblent indiquer l'influence complexe de la forme du champ de déplacement  $\vec{u}$  sur le signal de diffraction. Des simulations éléments finis ont montré qu'un champ  $\vec{u}$  d'origine élastique peut produire des distorsions importantes dans le signal de diffraction cohérente. D'autre part un échantillon contenant probablement de nombreux défauts présente également un pic très complexe.