



HAL
open science

Caractérisation 3D de la microstructure et des déformations élastiques des polycristaux par microdiffractiodiffraction Laue

Jean-Baptiste Marijon

► **To cite this version:**

Jean-Baptiste Marijon. Caractérisation 3D de la microstructure et des déformations élastiques des polycristaux par microdiffractiodiffraction Laue. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. Ecole nationale supérieure d'arts et métiers - ENSAM, 2017. Français. NNT : 2017ENAM0023 . tel-01748479

HAL Id: tel-01748479

<https://hal.science/tel-01748479v1>

Submitted on 29 Mar 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

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

Doctorat ParisTech

THÈSE

pour obtenir le grade de docteur délivré par

l'École Nationale Supérieure d'Arts et Métiers

Spécialité "Mécanique - Matériaux"

par

Jean-Baptiste MARIJON

Soutenance publique le 11 juillet 2017

Caractérisation 3D de la microstructure et des déformations élastiques des polycristaux par microdiffraction Laue

Directeur de thèse : **Olivier CASTELNAU**

Co-directrice de thèse : **Odile ROBACH**

Jury

M. Thomas CORNELIUS, Chargé de Recherche CNRS, IM2NP, Marseille

M. Hervé PALANCHER, Ingénieur CEA, Saint-Paul-les-Durance

M. Benoit DEVINCRE, Directeur de Recherche CNRS, LEM, Chatillon

M. Philippe GOUDEAU, Directeur de Recherche CNRS, Institut Pprime, Poitiers

Mme Odile ROBACH, Ingénieur CEA, CRG-IF à l'ESRF, Grenoble

M. Olivier CASTELNAU, Directeur de recherche CNRS, laboratoire PIMM, Paris

M. Jean-Sébastien MICHA, Ingénieur de Recherche CNRS, CRG-IF à l'ESRF, Grenoble

Rapporteur

Rapporteur

Examineur

Examineur

Examineur

Examineur

Invité

A mon grand-père J-P Nolin

Remerciements

Je tiens à remercier l'ensemble des membres du jury : Messieurs Thomas Cornelius et Hervé Palancher pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail malgré mes retards, Monsieur Philippe Goudeau pour avoir présidé ce jury, Benoit Devincré et Jean-Sébastien Micha pour avoir bien voulu participer au jury de thèse, sans oublier mes encadrants : Madame Odile Robach pour avoir su me mettre à l'ouvrage et pour nos marches réflexives autour de l'ESRF et enfin Monsieur Olivier Castelnau qui malgré son emploi du temps de ministre a bien voulu me proposer cette thèse tout en connaissant mes difficultés à l'écrit. Il a dû les compenser par un accompagnement quotidien au cours de la rédaction.

Je veux aussi remercier les participants à l'ANR microstress qui a financé mes travaux. Ma participation à ce projet a été fructueuse et agréable grâce à leur engagement scientifique et humain. Je tiens particulièrement à remercier Fanny Grennerat qui a énormément contribué à ma recherche en rédigeant la base du code nécessaire à cette thèse ainsi que Claire Maurice et l'équipe technique de l'École des Mines de Saint Étienne pour la fabrication de la machine de flexion 4 points. Enfin Emeric Plancher pour avoir rendu les heures de manip sur BM32 plus courtes et les calculs de deux heures du matin plus sûrs.

Je veux aussi remercier le personnel de BM32 et généralement le personnel des lignes CRG à l'ESRF pour leur bonne humeur et leur disponibilité à des heures indues mais aussi pour les réflexions et les échanges à la cantine de l'ESRF.

Je n'oublie pas le laboratoire PIMM pour m'avoir accueilli et finalement gardé. Je l'avais d'abord découvert au travers du master MAGIS dont une partie des enseignants recherchent au PIMM. Puis j'ai appris à connaître les stagiaires, les doctorants, les post-doc et les ITA. Je pense en particulier à Lucille G, Frédéric V, Paulo ...

Merci également à Johan H. et ses collègues de Lund pour leur enthousiasme à travailler avec moi et le sentiment d'utilité qu'ils m'ont offert.

Je tiens aussi à remercier l'ensemble des enseignants et éducateurs qui ont jalonné mon parcours scolaire du dur apprentissage de la lecture à ce manuscrit en passant par de nombreuses réussites et des échecs surmontés. Je pense à Madame Patose et sa classe passerelle, à Monsieur Henard et son cours de techno et tant d'autres ...

Je tiens encore à remercier ma famille, en particulier mes parents pour leur accompagnement et leur abnégation que ce soit pour corriger des rapports incompréhensibles ou paraître admiratif devant une équation sans rien y comprendre. Mais aussi papy pour ce goût du bricolage et de la rigueur qu'il a su m'insuffler, et mamie et son obstination à me redemander ce que je fais même si elle n'arrive pas à comprendre et que je l'ai déjà expliqué cent fois. Je pense aussi aux tatas Marijon (Yolande, Hélène et Gilbert) pour leur maison toujours ouverte et leur cuisine formidable. Enfin (sinon ils vont me tuer) mes frères et sœur pour leur soutien, nos coups de gueule et câlins. Je pense aussi bien sûr à tous les autres Marijon, Nolin, Chautain, Raymond, Delplanque, pour les respirations partagées tous ensemble ou en petit groupe.

Et enfin les copains,

- Ceux des collocations qui m'ont mis face à la diversité des parcours que je n'aurai pas croisés par ailleurs (Albéric, Tulline, Rv, Flavien B, Flavien R ...).
- Ceux de l'ENS Cachan pour la fraternité et l'impression de ne pas être l'exception (oui on peut rire à des blagues à base d'exponentielle et d'intégration) et aussi pour la Med et les pots et les discussions qui ne peuvent avoir lieu qu'entre 2 et 8 heures du matin (Pat, Cécile, Cécilia (coca et chocolat), Patou, Wish, Rémis Go ...).
- Ceux de la CMDF dans tous les différents groupe SdV : service jeune, jeune pro, la crypte, pôle jeune, et aussi les anciens de l'équipe BTP (Patrick Salaün, Michel Ragé Dédé, Martin, Frede O, Lille ...).
- Enfin ceux que j'ai un peu abandonné en partant à Paris : les copains de la Nat (Vivien, Nico, Laurent, Maud, Matthieu, GG et Robin ...).
- Les copains de Manif avec qui on chante on marche on s'indigne et on pleure à cause des lacrymo (Sonia, Daniel, Camille, Guillaume ...).

Table des matières

Table des matières	vii
1 Introduction	1
2 Revue bibliographique	5
2.1 Interaction rayons X - matière	5
2.1.1 Absorption des rayons X	5
2.1.2 Fluorescence X	6
2.1.3 Diffraction des rayons X	7
2.2 La microdiffraction Laue	9
2.2.1 Principe	9
2.2.2 Calcul de l'orientation cristalline et des déformations élastiques	11
2.2.3 Quelques résultats de la littérature	13
2.3 Differential Aperture X-Ray Microscopy (DAXM)	16
2.3.1 Principe	16
2.3.2 Quelques résultats de la littérature	18
2.4 Conclusion	23
3 Montage expérimental de DAXM sur la ligne synchrotron BM32	25
3.1 Introduction	25
3.2 Montage de microdiffraction Laue	25
3.2.1 Propriétés du faisceau de rayons X incident	26
3.2.2 Détection des rayons X	29
3.2.3 Repère détecteur et définition des paramètres de calibration	30
3.2.4 Environnement échantillon	32
3.2.5 Procédure d'alignement	34
3.2.5.1 Alignement du microscope optique	34
3.2.5.2 Mise en place de l'échantillon	37
3.2.5.3 Calibration du montage de Laue	39
3.3 Montage de DAXM	39
3.3.1 Géométrie	41
3.3.2 Conception du montage mécanique	42
3.3.3 Tentative multi-fils	45
3.4 Machine de flexion 4-points in-situ	45
3.4.1 Conception du montage	47
3.4.2 Interprétation des essais	49
3.5 Bilan	51

4	Modélisation de la DAXM	53
4.1	Introduction	53
4.2	Formulation du modèle général	54
4.3	Modèle géométrique	57
4.3.1	Point de vue détecteur vs. point de vue échantillon	58
4.3.2	Hypothèses géométriques	58
4.3.3	Cas d'une géométrie quelconque	59
4.3.3.1	Position de Y_f et Y_b , connaissant le pixel P (point de vue détecteur)	59
4.3.3.2	Position de P_f et P_b , connaissant la source Y (point de vue échantillon)	63
4.3.4	Cas d'une géométrie idéale	65
4.3.5	Solution approchée dans le cas d'une géométrie idéale	68
4.4	Sensibilité du modèle aux paramètres géométriques	69
4.4.1	Position et taille de l'ombre sur le détecteur	69
4.4.2	Position et dimension de la zone écrantée dans l'échantillon	70
4.4.3	Effet de la distance H	70
4.4.4	Synthèse de l'effet de la direction de translation du fil	73
4.4.5	Précision de la solution approchée	74
4.5	Conclusion	75
5	Calibration du montage de DAXM	77
5.1	Introduction	77
5.2	Modèle de calibration	78
5.2.1	Choix de la source secondaire	78
5.2.2	Modélisation de la source secondaire	80
5.2.3	Sensibilité du modèle de calibration aux paramètres matériaux	83
5.3	Mise en oeuvre	89
5.3.1	Procédure de calibration	89
5.3.2	Application	89
5.3.3	Sensibilité de la calibration aux pixels choisis	93
5.3.4	Limites de l'approche, et solutions possibles	95
5.4	Conclusion	96
6	Analyse de la position d'une interface : cas d'une macule d'un acier 316L	99
6.1	Introduction	99
6.2	Matériau d'étude	100
6.3	Analyse en Laue classique	103
6.3.1	Conditions expérimentales	103
6.3.2	Orientation du plan de macule à partir des images de Laue	103
6.4	Mise en oeuvre de la DAXM	105
6.4.1	Conditions expérimentales	105
6.4.2	Analyse brute des profils d'intensité	107
6.5	Calibration précise du montage de DAXM	110
6.6	Reconstruction de I_s pour un pixel P	115

6.6.1	Utilisation du bord avant	115
6.6.2	Généralisation : reconstruction aux profondeurs supérieures au diamètre du fil	116
6.6.3	Résultats	117
6.7	Reconstruction de I_s pour plusieurs pixels voisins	120
6.8	Conclusion	123
7	Analyse d'un gradient intragranulaire de contrainte : cas de l'UO2 implanté	125
7.1	Introduction	125
7.2	Conditions expérimentales et reconstruction des images de Laue en profondeur .	126
7.2.1	Echantillon	126
7.2.2	Acquisition des données et calibration du montage	127
7.2.3	Reconstruction	127
7.3	Analyse de la transmission dans le fil	131
7.3.1	Formulation	131
7.3.2	Calcul de la distance ℓ_w traversée par le faisceau	134
7.3.3	Comparaison à l'expérience (source quasi-ponctuelle)	136
7.4	Application à l'UO2	138
7.5	Conclusion	140
8	Conclusion et perspectives	143
	Annexe A Notations	147
	Annexe B Rotations et changements de repère	149
B.1	Définition des repères	149
B.2	Angles d'Euler (convention de Bunge)	150
B.3	Vecteurs	150
B.4	Tenseurs	151
	Annexe C Empilement de microfils de GaN sur substrat Ge	153
	Annexe D Mesure 3D des déformations élastiques au pied d'un fil d'étain	159
	Annexe E Procédure expérimentale standard de DAXM	165
E.1	Mise en place de l'échantillon	165
E.2	Relevé/préparation du scan	166
E.2.1	Distance H	166
E.2.2	Positions extrêmes	168
E.3	Acquisition des données	169
E.4	A la fin de l'acquisition	170
	Bibliographie	171

CHAPITRE 1

Introduction

Les progrès de cette dernière décennie en matière de modélisation et simulation numérique sont tels que l'on peut maintenant prévoir le comportement mécanique des matériaux et des structures dans des conditions qui n'ont pas ou peu été explorées expérimentalement. La fiabilité des modèles repose cependant, entre autre, sur leur contenu physique et la robustesse des paramètres identifiés. La validation des modèles à l'aide d'expériences mises en place avec rigueur et précision, capable d'engendrer des conditions aux limites ou des champs mécaniques complexes, et sollicitant le matériau ou la structure dans des conditions discriminantes pour le modèle, reste une nécessité.

Concernant le comportement mécanique des matériaux polycristallins, le développement de modèles prédictifs passe par une approche micromécanique qui permet de prendre en compte le comportement mécanique local du matériau et sa microstructure afin d'en prévoir le comportement effectif à une échelle supérieure, à l'aide de techniques de transitions d'échelles. Les approches micromécaniques se développent simultanément d'un point de vue théorique, numérique, et expérimental. Parmi les nombreuses échelles auxquelles ces approches peuvent s'appliquer, depuis l'échelle atomique ($\sim \text{\AA}$) jusqu'à celle de la structure (m voire km), nous nous limitons dans ce travail à une échelle locale de l'ordre du (sub)micromètre, i.e. une échelle supérieure à la structuration des défauts cristallins tels que les dislocations mais inférieure à la taille de grain typique. L'approche mise en place vise à mieux estimer le comportement effectif du matériau, à une échelle typiquement millimétrique, échelle à laquelle l'ingénieur pourra remplacer, dans un calcul de structure, le matériau polycristallin hétérogène par un Milieu Homogène Equivalent.

Dans le domaine expérimental, il est maintenant établi que les matériaux polycristallins se déforment de manière largement hétérogène, avec l'apparition quasi-systématique de bandes dans lesquelles la déformation se concentre. Ces bandes ont une étendue de typiquement 5 à 10 tailles de grains. De telles observations ont pu être mises en évidence grâce à l'explosion du développement et de l'utilisation des mesures de champs cinématiques, notamment via la corrélation d'images (DIC) obtenues par Microscopie Electronique à Balayage (MEB), cf. par exemple [Hoc et al., 2003, Héripré, 2006, Dexet, 2006, Avril et al., 2008, Grédiac and Hild, 2011, Guéry, 2006].

La technique de corrélation d'images MEB permet d'accéder aux composantes du champ des déformations *totales* (i.e. élastique + plastique), mais uniquement dans le plan de la surface explorée de l'échantillon. Ces données sont d'une grande richesse ; il apparaît cependant, pour les alliages métalliques classiques, que le champ de surface est fortement affecté par la structure des grains présents sous la surface [Héripré, 2006]. L'utilisation de ce champ reste donc problématique dans une optique d'identification du comportement local, sauf à passer à des techniques d'exploration 3D de la microstructure et des champs mécaniques [Renversade, 2016]. De telles techniques commencent à être disponibles, basées sur diverses variantes de la tomographie par rayons X (3DXRD, HEDM, DCT, ...), mais elles sont toutes limitées à des grains faiblement désorientés, typiquement des matériaux recristallisés ou ayant subi de faibles ($< 1 - 2\%$) déformations plastiques. D'un autre côté, la mise en place, il y a une quinzaine d'années, de la technique

de microdiffraction Laue sur quelques lignes synchrotron (ex. ALS à Berkeley, APS à Chicago, ESRF à Grenoble, ...) laisse espérer la possibilité de nouvelles mesures de champs, celles du champ des contraintes (champ statique), qui n'est pas mesuré directement mais qui peut être déduit du champ des déformations élastiques mesuré avec une résolution spatiale micrométrique.

C'est ainsi que le projet ANR MICROSTRESS [Microstress, 2011-2016], par lequel ma thèse a été financée, a été monté. Ce projet avait pour ambition de coupler les mesures de champs de surface mesurés sur les matériaux polycristallins, avec une résolution micrométrique : champ d'orientation cristalline obtenu par EBSD, champ de déformation totale obtenu par DIC, et champ de contrainte obtenu par microdiffraction Laue (figure 1.1). L'idée sous-jacente est l'enrichissement de la base des données expérimentales dans l'espoir de mieux contraindre l'identification du comportement local.

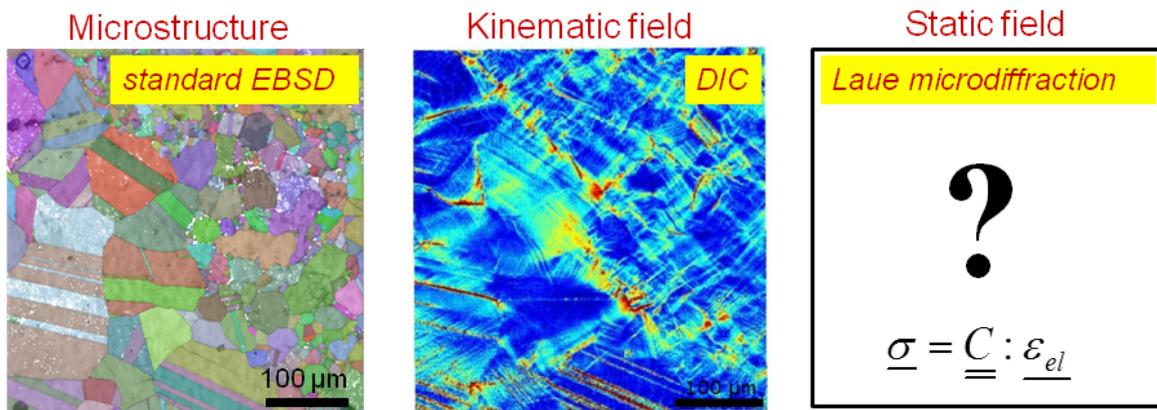


FIGURE 1.1 – (gauche) Microstructure EBSD d'un alliage de Titane, et (centre) champ des déformations totales dans ce même échantillon mesuré par corrélation d'images numérique lors d'un essai mécanique, d'après Héripéré [2006]. (droite) La projet ANR MICROSTRESS avait pour ambition de mesurer le champ des contraintes avec la même résolution spatiale, micrométrique.

Les partenaires de ce projet ANR, piloté par O. Castelnau du laboratoire PIMM, avaient des compétences complémentaires : expertise en DIC pour le laboratoire Navier et LMS-X (Michel Bornert, Eva Héripéré, Alexandre Tanguy); EBSD à haute résolution angulaire et calcul de microstructures pour le laboratoire Georges Friedel (Claire Maurice et Romain Quey); Microdiffraction Laue pour l'équipe de la ligne CRG-BM32 installée à l'ESRF (Odile Robach, Jean-Sébastien Micha, Olivier Ulrich); Aciers austénitiques et microscopie électronique pour le département R&D d'EDF-Les Renardières (Lucie Saintoyant, Olivier Dupond, Dominique Loinsard, Emilie Bosso, Nicolas Rupin, Julien Stodolna); Mécanique des matériaux et rayons X au laboratoire PIMM (Véronique Favier, Vincent Michel). Etaient invités dans ce projet l'équipe du CEA-Cadarache (Hervé Palancher, Etienne Castelier) pour sa compétence sur les matériaux irradiés, et Johann Petit (LEME - Univ. Paris Ouest). Dans ce contexte, trois thèses ont été menées, dont la mienne. Zhang [2015] a travaillé sur l'utilisation de la technique de corrélation d'images pour améliorer la résolution en contrainte de la microdiffraction Laue. Plancher [2015] a travaillé sur la comparaison des techniques de microdiffraction Laue et d'EBSD à haute résolution

angulaire (HR-EBSD), et a appliqué ces techniques à un acier inoxydable industriel. Enfin, deux post-doctorants de un an chacun ont été financés, celui de Lam Phung à Saint-Etienne sur le développement de l'EBSD-HR, et Fanny Grennerat sur le développement méthodologique et logiciel pour l'analyse des données de DAXM sur la ligne BM32, qui a eu lieu en même temps que ma première année de thèse. La collecte de données de DAXM était pratiquée sur BM32 depuis avril 2010, mais les données n'avaient pas été analysées, notamment celles sur l'UO2 obtenues dans le cadre de la thèse d'Axel Richard encadrée par Hervé Palancher (CEA-Cadarache).

La technique de microdiffraction Laue consiste faire diffracter un faisceau de rayons X fortement focalisé, de section (sub)micrométrique, et polychromatique, par un cristal. Le diagramme de diffraction, ou diagramme de Laue, qui est enregistré sur le détecteur 2D comporte l'information sur la cristallographie de l'échantillon, et notamment l'orientation du cristal et la distorsion de la maille par rapport à un cristal de référence, i.e. la déformation élastique locale. La technique permet de mesurer le déviateur des déformations élastiques. Elle se développe actuellement sur la ligne BM32 selon différentes directions complémentaires : mesure du volume absolu de la maille cristalline (trace du tenseur de déformation) [Robach et al., 2011b, 2013], mesure fine de la distorsion des diagramme par corrélation d'image (Laue-DIC) [Petit et al., 2012, 2015, Zhang et al., 2015], couplage avec l'EBSD pour les échantillons compliqués (faible symétrie cristalline et/ou faible taille de grain) [Ors et al.], et enfin l'analyse des gradients de microstructure et de contrainte selon la profondeur de l'échantillon, technique appelée DAXM (Differential Aperture X-ray Microscopy), qui fait l'objet du présent travail.

Cette thèse porte donc sur le développement et la mise en place de la DAXM sur la ligne BM32. La DAXM permet de mesurer la microstructure et la partie déviatorique de la déformation élastique d'un cristal, sur des *volumes micrométriques*. Cette technique a été initialement développée par Larson et al. [2002]. L'apport, par rapport à la microdiffraction Laue standard, est la discrétisation spatiale selon la profondeur dans l'échantillon. La DAXM utilise la pénétration du faisceau incident de rayons X dans l'échantillon, qui est typiquement de 10 μm à 1 mm selon l'échantillon. En microdiffraction Laue classique, le volume de jauge est de forme très allongée, un long cylindre de diamètre (sub)micrométrique et long de quelques dizaines de microns. La DAXM propose de découper ce volume de jauge en petits voxels à peu près equiaxes. Concrètement, la technique consiste à rajouter au montage de microdiffraction Laue un dispositif comportant un masque mobile entre l'échantillon et le détecteur, dont la fonction est d'écranter une partie des faisceaux diffractés par l'échantillon. Ainsi, à partir des images de Laue pour plusieurs positions du masque, il est possible, par triangulation, de remonter à la distribution d'intensité émise le long du volume de jauge, avec une résolution micrométrique selon la profondeur. La reconstruction des diagrammes de Laue pour différentes profondeurs dans l'échantillon doit pouvoir permettre l'estimation de cartographies 3D de microstructures et de contraintes dans l'échantillon. Un autre avantage de la DAXM est la possibilité de pouvoir effectuer ces mesures indépendamment de la structure des grains du matériau, et donc notamment de pouvoir potentiellement étendre l'analyse classique de la microdiffraction Laue au cas des alliages métalliques fortement écrouis. La DAXM nécessite par contre l'acquisition d'un grand nombre d'images de Laue, typiquement 1000 à 2000, ce qui demande un temps d'acquisition conséquent avec les détecteurs actuels, mais cette limitation est en train d'être levée avec l'installation sur BM32 d'un détecteur avec une fréquence d'acquisition de quelques Hz. La deuxième difficulté est la nécessaire mise en place d'une méthode de traitement fiable et robuste des grandes quantités de données qui sont

généérées. Ce dernier point a été l'objectif de ce travail de thèse.

Pour terminer cette introduction générale, il est à noter que la méthode générale de traitement des images de DAXM n'a jamais été publiée, à notre connaissance, malgré la présentation d'articles dans des revues prestigieuses [Larson et al., 2002, Levine et al., 2006, Ice et al., 2011]. Au mieux, les auteurs font une description très générale des grands principes, sans plus de détails. Pour la mise en place de la DAXM sur la ligne CRG-BM32, nous avons donc été amenés à repartir des principes de base et à formuler le problème : cela a été l'objet du travail de post-doctorat de Fanny Grennerat, et de la présente thèse.

Ce manuscrit est structuré de la façon suivante. Après une rapide présentation de l'état de l'art et de la microdiffraction Laue (chapitre 2), nous présentons dans le chapitre 3 le montage expérimental qui a été mis en place sur la ligne BM32. Nous en profitons pour définir des éléments de géométrie du montage. Dans le chapitre 4, nous formulons le problème. Nous montrons que la géométrie du montage doit être considérée avec précision, et que la DAXM repose sur une procédure de dérivation des niveaux de gris des pixels. Dans le chapitre 5, nous présentons la méthode qui a été développée pour la détermination de tous les paramètres géométriques du montage. Il s'agit d'une étape essentielle pour l'exploitation des images de DAXM ; nous utilisons pour cela la fluorescence des échantillons. Dans le but de vérifier la qualité de la reconstruction 3D mais aussi d'en estimer la résolution spatiale, sur un échantillon réel, nous appliquons la DAXM au cas d'une macule d'un acier austénitique dans le chapitre 6. Nous montrons ainsi que la résolution est micrométrique. Nous terminons ce manuscrit par l'étude d'un échantillon présentant un fort gradient de contrainte (chapitre 7). Nous mettons en évidence certains artefacts dans la reconstruction, liés à la transmission du faisceau au travers du masque absorbant, et nous proposons une piste d'amélioration de la reconstruction. Le manuscrit se termine par une conclusion générale et des voies de recherche à explorer dans le futur.

CHAPITRE 2

Revue bibliographique

Sommaire

2.1 Interaction rayons X - matière	5
2.1.1 Absorption des rayons X	5
2.1.2 Fluorescence X	6
2.1.3 Diffraction des rayons X	7
2.2 La microdiffraction Laue	9
2.2.1 Principe	9
2.2.2 Calcul de l'orientation cristalline et des déformations élastiques	11
2.2.3 Quelques résultats de la littérature	13
2.3 Differential Aperture X-Ray Microscopy (DAXM)	16
2.3.1 Principe	16
2.3.2 Quelques résultats de la littérature	18
2.4 Conclusion	23

Dans ce chapitre, nous faisons un rapide état des lieux des développements expérimentaux, exposés dans la littérature, relatifs à la microdiffraction Laue et à la DAXM, ainsi que les résultats obtenus. Nous commençons par décrire quelques interactions entre les rayons X et le matériau.

2.1 Interaction rayons X - matière

Nous ne faisons pas ici un exposé général sur l'interaction rayons X - matière ; nous introduisons uniquement les mécanismes qui seront utilisées dans la suite du travail.

2.1.1 Absorption des rayons X

L'absorption des rayons X se produit à l'intérieur de l'échantillon, on ne peut donc pas mesurer directement son évolution en profondeur. L'absorption d'un faisceau de rayons X par un échantillon suit une loi de Beer-Lambert

$$I = I_0 \exp(-\mu d) \tag{2.1}$$

où μ est le coefficient d'absorption linéaire, qui dépend des éléments présents dans l'échantillon. I_0 est l'intensité incidente, et I l'intensité restante après avoir traversé la profondeur d . On définit également une longueur d'atténuation, telle que $I/I_0 = 1/e$; cette longueur est donc simplement $\ell = 1/\mu$. Le coefficient d'absorption est une fonction de l'énergie du faisceau incident. L'absorption se passe à l'intérieur de l'échantillon, on ne peut donc pas la mesurer directement.

Par contre, on sait simuler ses effets pour un échantillon de composition connue, le coefficient d'absorption étant directement une combinaison linéaire (pondéré par les fractions massiques) des coefficients de chaque constituant.

Les courbes de coefficient d'absorption (ou de manière équivalente de la longueur d'atténuation) en fonction de l'énergie du faisceau présentent généralement de fortes discontinuités, liées aux seuils électroniques (figure 2.1).

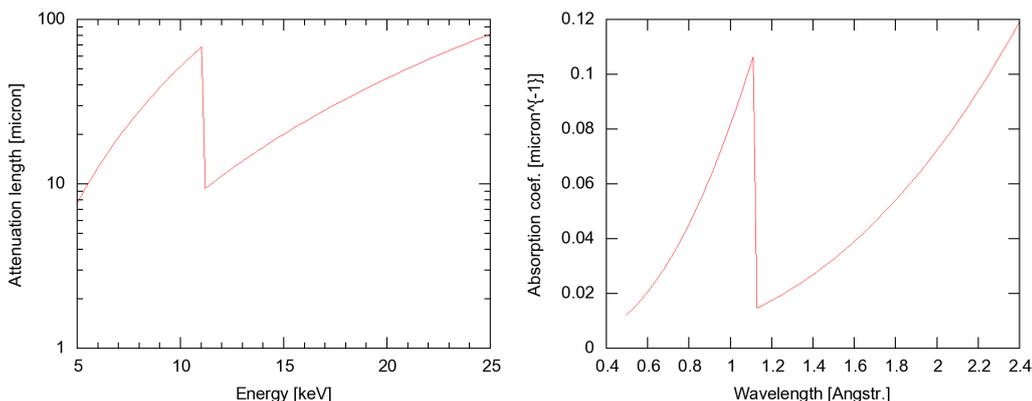


FIGURE 2.1 – Atténuation dans un cristal de Ge pur. (gauche) En fonction de l'énergie du faisceau de rayons X, sur une échelle logarithmique. (droite) Coefficient d'absorption en fonction de la longueur d'onde, sur une échelle linéaire.

Lors d'une expérience de DAXM, l'absorption va atténuer l'intensité du faisceau incident (polychromatique) lors de sa pénétration dans la matière, et ceci de manière différente pour chaque longueur d'onde. Le faisceau diffracté par l'échantillon, de longueur d'onde \sim unique pour une tache de Bragg donnée, doit également traverser une certaine longueur de matière avant d'émerger en surface de l'échantillon et atteindre le détecteur (cf. section 5.2.2); son intensité sera donc également atténuée par l'absorption. Il en va de même pour le rayonnement de fluorescence émis au sein de l'échantillon.

2.1.2 Fluorescence X

Lorsque l'on bombarde la matière avec un rayonnement de forte énergie comme les rayons X, un électron de la couche interne de l'atome peut être arraché (ionisation), et la matière réémet de l'énergie sous forme entre autre de rayons X : c'est la fluorescence X. Ce phénomène est étudié depuis les débuts des rayons X [Heinrich, 1981]. Cet effet, dit 'photoélectrique', se produit lorsque l'énergie du photon incident est plus grande que le potentiel d'ionisation. L'atome se retrouve alors dans un état excité. La désexcitation se fait par une transition électronique qui libère l'énergie correspondant à la différence d'énergie des orbitales impliquées, soit par l'émission d'un photon X, soit en transmettant l'énergie à l'un des électrons atomiques. Le premier cas correspond à la fluorescence X, le second à l'émission Auger. L'énergie du photon X émis est égale à la différence d'énergie des deux orbitales concernées; elle est donc plus faible que celle du photon incident. Le spectre d'énergie de la fluorescence X est caractéristique de la composition

chimique de l'échantillon, chaque élément chimique étant caractérisé par un petit nombre de transitions possibles. Les pics de certaines énergies / longueur d'onde ressortent d'un fond continu dépendant principalement du rayonnement d'excitation. Dans le cas d'alliages, on n'obtiendra pas exactement (écart faible) une combinaison des spectres de chaque élément de l'échantillon à cause d'un effet de matrice [Golstein et al., 1992].

Ce rayonnement de fluorescence X est donc un rayonnement diffusif (ou isotrope, i.e. émis dans toutes les directions de l'espace) et caractéristique de l'échantillon. Avant de ressortir de l'échantillon, il sera soumis à l'absorption comme tout rayonnement X. Par contre, si le rayonnement d'excitation est d'énergie trop faible, l'échantillon ne produit pas de fluorescence.

2.1.3 Diffraction des rayons X

La diffraction des rayons X, découverte en 1912 par Max Von Laue, est un phénomène étudié depuis un siècle par les physiciens. Il est basé sur la diffusion élastique (i.e. sans perte d'énergie) de l'onde électromagnétique incidente par le cortège électronique des atomes. Dans un cristal, la densité d'électrons est périodique, avec une période proche de la longueur d'onde des rayons X. Il en résulte une interférence constructive des ondes diffusées, ce qui crée une figure de diffraction qui n'est autre que la transformée de Fourier de la densité d'électrons. A partir des clichés de diffraction, on peut remonter à la structure cristalline du matériau diffractant grâce à l'analyse de l'intensité et de la direction des vecteurs d'onde diffractés. La loi de Bragg

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

que l'on retrouve aisément dans le cadre de la théorie cinématique, relie la longueur d'onde λ du faisceau de rayons X, la distance d_{hkl} entre deux plans cristallographiques d'indice de Miller (hkl), et l'angle de Bragg θ qui est la moitié de l'angle entre le vecteur d'onde incident \vec{k} et le vecteur d'onde diffracté \vec{k}' (figure 2.2). La loi contient un entier n car le plan (nh, nk, nl) diffracte au même angle θ que le plan (hkl) mais pour la longueur d'onde $\frac{n}{\lambda}$. Pour la diffraction Laue, chaque tache pourra donc contenir des raies multiples, de longueur d'onde $\frac{n}{\lambda}$. La loi de Bragg (2.2) seule ne suffit pas à définir les conditions de diffraction. Il faut lui rajouter les conditions de Bragg, qui indiquent que la direction du vecteur de diffraction doit être parallèle au vecteur du réseau réciproque. Ces conditions s'expriment plus simplement dans le réseau réciproque

$$\vec{K} = \vec{Q}, \quad \text{avec} \quad \vec{K} = \vec{k}' - \vec{k}, \quad \vec{Q} = h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^*, \quad (2.3)$$

avec $\|\vec{k}\| = \|\vec{k}'\| = 1/\lambda$, $\|\vec{K}\| = 2 \sin \theta / \lambda$, $\|\vec{Q}\| = 1/d_{hkl}$, et où \vec{K} est le vecteur de diffraction, \vec{Q} le vecteur du réseau réciproque pour le plan (hkl), qui est normal à ce plan cristallographique, et \vec{a}^* , \vec{b}^* , et \vec{c}^* les vecteurs de base du réseau réciproque.

En pratique, les expériences de diffraction sont réalisées avec un faisceau incident de direction connue. Deux approches sont mises en oeuvre. Si le faisceau incident est polychromatique et que la direction du faisceau diffracté est fixée (par exemple à l'aide d'un système de fentes), alors on peut remonter à la distribution des distances interréticulaires d_{hkl} en utilisant un détecteur ponctuel résolu en énergie (diffraction en dispersion d'énergie). Si le faisceau incident est monochromatique, alors on doit mesurer la direction du faisceau diffracté pour estimer les d_{hkl} (diffraction en dispersion angulaire).

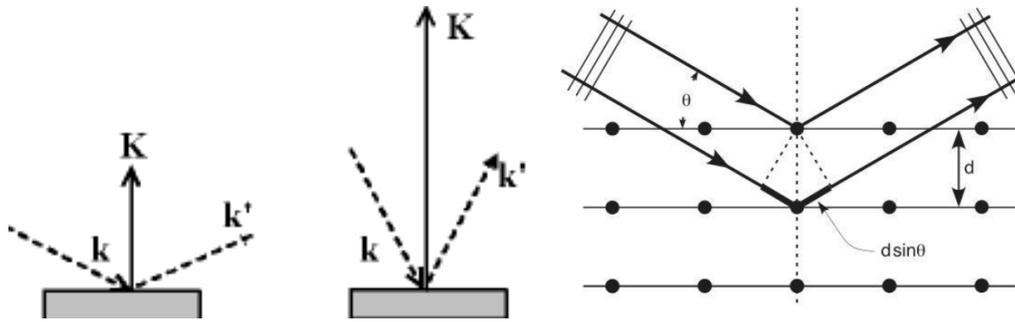


FIGURE 2.2 – Illustration de la loi de Bragg.

Le faisceau de rayons X diffracté n'est pas affecté par une déformation plastique du cristal ; il n'est sensible qu'à la partie élastique de la déformation. Par contre, lors d'une déformation plastique, la structure de dislocations évolue fortement (écrouissage) ; la diffraction des rayons X permet de capter cette évolution, les dislocations engendrant une distorsion élastique du réseau cristallin et des désorientations intragranulaires. Il existe une littérature abondante sur l'estimation des densités de dislocations à partir de l'analyse des profils des raies de diffraction, ex. [Ungár et al., 2007, Csiszar et al., 2012, Groma et al., 2013, Erinosh and Dunne, 2014].

En différenciant la loi de Bragg, en condition monochromatique, on peut estimer la variation de la distance interréticulaire avec le déplacement du pic de Bragg

$$\frac{\delta d}{d} = -\frac{\delta 2\theta}{2 \tan \theta} \quad (2.4)$$

où $\delta d/d$ n'est autre que la projection du tenseur des déformations élastiques sur la direction de mesure \vec{Q} . En réalité, la mesure est réalisée sur un petit volume (le volume diffractant) qui est constitué de l'ensemble des grains baignant dans le faisceau et remplissant la condition de Bragg. La mesure de $\delta d/d$ est une moyenne sur ce volume, et dans l'équation (2.4), la position 2θ à considérer est celle du centre de gravité du pic de diffraction [Bretheau and Castelnau, 2006, Le Bourlot, 2012].

Pour un échantillon monocristallin, on peut, en combinant des mesures pour plusieurs \vec{Q} bien choisis, estimer les 6 composantes du tenseur des déformations élastiques sur le volume diffractant. L'utilisation d'un faisceau incident monochromatique requiert au moins deux rotations de l'échantillon pour pouvoir mettre le plan (hkl) désiré en condition de Bragg, pour toutes les orientations possibles de \vec{Q} par rapport au cristal. Ces rotations sont réalisées avec un goniomètre. Or les cercles de rotation des goniomètres ne sont pas parfaits. Les axes de rotation ne sont pas exactement concourants, et le centre de rotation théorique est plutôt une petite région de l'espace (la sphère de confusion) dans laquelle évolue le centre de rotation du goniomètre. La taille de la sphère de confusion est généralement supérieure à $\sim 20 \mu\text{m}$. Il devient alors très compliqué de réaliser des mesures pour plusieurs \vec{Q} si l'on cherche à localiser le point d'impact du faisceau sur l'échantillon avec une résolution (sub)micrométrique. C'est tout l'intérêt d'utiliser un faisceau polychromatique, comme en microdiffraction Laue.

2.2 La microdiffraction Laue

2.2.1 Principe

La diffraction Laue consiste à faire diffracter un faisceau *blanc* (*polychromatique*) de rayons, X de direction connue, dans un échantillon cristallin. On obtient alors un cliché de Laue qui contient une superposition de pics de diffraction des différents cristaux rencontrés par le faisceau incident. Ce type d'expérience a été mise en place initialement pour l'identification de phases cristallines.

Avec le fort développement dans les années 80-90 des sources synchrotron à haute brillance et de nouveaux éléments optiques pour les rayons X, ex. [Ice et al., 2011], on a pu focaliser des faisceaux blancs à l'aide d'optiques achromatiques (ex. miroirs de Kirkpatrick et Baez, appelés souvent 'KB') jusqu'à des sections sub-micrométriques. C'est ainsi qu'ont vu le jour les expériences de microdiffraction Laue, permettant de scanner la surface d'un échantillon avec une résolution spatiale micrométrique, liée à la section latérale du faisceau, à sa profondeur de pénétration dans l'échantillon, et à la précision mécanique du montage. La figure 2.3 donne un schéma de principe du montage de microdiffraction Laue de la ligne CRG-BM32 installée à l'ESRF. La détection est réalisée à l'aide d'un détecteur 2D. Le détecteur de fluorescence est utilisé pour l'alignement du montage, mais il permet aussi la réalisation de cartographies d'espèces chimiques. Le microscope optique permet de visualiser l'échantillon. Un exemple de cliché de microdiffraction Laue, obtenu sur un alliage de zirconium avant et après déformation plastique, est donné en figure 2.4. On trouvera une description détaillée de la technique dans [Robach et al., 2014, 2017] et dans les références incluses notamment [Chung and Ice, 1999, MacDowell et al., 2001, Ulrich et al., 2011].

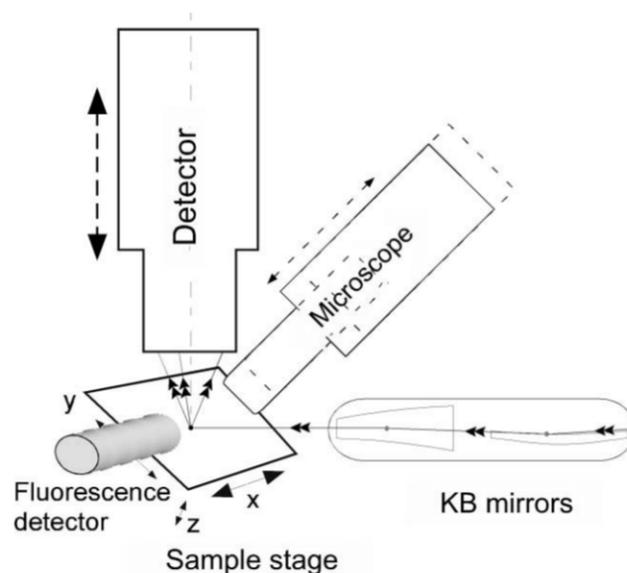


FIGURE 2.3 – Configuration typique d'un montage de microdiffraction Laue.

Les détecteurs 2D utilisés n'ont pas de résolution en énergie. Comme discuté dans la section

précédente, si la longueur d'onde λ n'est pas connue, la distance interréticulaire d_{hkl} n'est pas accessible par la loi de Bragg (2.2). Cependant, la condition de Bragg (2.3) permet de remonter à l'orientation du plan diffractant (hkl). Or, si l'on connaît l'orientation de 2 plans cristallins (non-parallèles) d'un même grain, on peut remonter à l'orientation du grain, lorsque la maille cristalline est connue. Avec la mesure de l'orientation de 4 plans, il est possible de déterminer les vecteurs du réseau cristallin, à un coefficient multiplicatif près. Ainsi, en combinant la position relative des différents pics de diffraction mesurés sur le détecteur 2D, on peut remonter à l'orientation du grain formant le cliché de Laue. Si le diagramme mesuré est comparé à celui qui serait obtenu pour un grain non contraint du même matériau, alors la partie déviatorique du tenseur des déformations élastiques peut être estimée. La détermination de la partie volumique du tenseur des déformations élastiques, $\text{tr}\epsilon$, requiert la mesure d'au moins une distance d_{hkl} ; il faut pour cela connaître l'énergie de la tache de Laue correspondante [Chung and Ice, 1999].

La microdiffraction Laue offre donc l'avantage de pouvoir cartographier les orientations cristallines et le déviateur des déformations élastiques en surface de l'échantillon, qui peut être massif, de manière non-destructive, et avec une résolution spatiale micrométrique. Des informations similaires peuvent être obtenus en Microscopie Electronique à Balayage (MEB) à l'aide des techniques d'EBSA à haute résolution angulaire (EBSA-HR), ex. [Wilkinson et al., 2006, Villert et al., 2009, Maurice et al., 2012], ou de diffraction de Kossel [Bouscaud et al., 2014]. L'EBSA-HR a un avantage d'accessibilité par rapport à la microdiffraction Laue (équipement de laboratoire vs. ligne synchrotron), la résolution spatiale est meilleure, mais la résolution en déformation est moins bonne. Une comparaison détaillée des deux techniques est donnée dans [Plancher, 2015, Plancher et al., 2016].

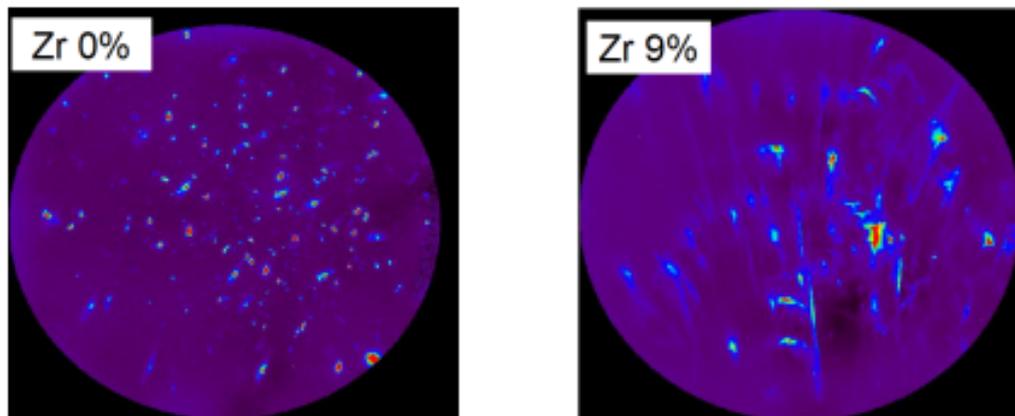


FIGURE 2.4 – Evolution des clichés de Laue d'un échantillon de Zr dans un état (gauche) recristallisé, et (droite) déformé de 9%. Ici, les diagrammes de quelques grains sont superposés. Données tirées de Ungár et al. [2007].

La microdiffraction Laue, dans son mode 'standard' décrit ci-dessus, comporte quelques limitations. (i) La partie volumique de la déformation n'est pas mesurée. (ii) La détermination des déformations élastiques dans le cristal requiert la mesure de la position des taches de Laue sur le détecteur avec une grande précision, de l'ordre du dixième de pixel. On trouve dans la

littérature, ex. [Magid et al., 2009], l'estimation de contraintes très largement supérieures à la limite élastique du matériau, probablement irréalistes et sans doute reliées davantage à des imprécisions de traitement qu'à un réel champ de contrainte. (iii) La pénétration du faisceau incident limite la résolution spatiale; le volume sondé à un rapport d'aspect important : pour les micro-faisceaux, les dimensions latérales sont (sub)micrométrique mais la dimension le long du faisceau incident est celle de la longueur de pénétration dans l'échantillon (du μm au mm selon le matériau). Pour pallier à ces limitations, des extensions à la technique 'standard' ont été proposées :

1. Afin de mesurer la partie volumique de la déformation, plusieurs méthodes sont possibles.
 - (a) On peut passer du mode polychromatique à un mode monochromatique, en insérant dans le faisceau incident le monochromateur de la ligne de lumière; la difficulté principale est alors liée à la nécessité de devoir réaliser le scan en énergie d'une tache de Bragg sans déplacer le faisceau incident sur l'échantillon.
 - (b) On peut également mesurer l'énergie d'une tache à l'aide d'un détecteur ponctuel résolu en énergie judicieusement positionné [Robach et al., 2011a].
 - (c) Dans la méthode dite 'Rainbow' [Robach et al., 2013], une fine lame monocristalline de diamant est insérée dans le faisceau incident, avant les KBs. En diffractant, ce cristal ôte du faisceau certaines longueurs d'onde. On peut alors déterminer l'énergie des taches de Laue en suivant leur intensité en fonction de l'orientation de ce cristal.
2. Pour améliorer la précision sur l'orientation cristalline et la déformation élastique, les faibles différences entre deux images de Laue peuvent être analysées avec une précision de quelques centièmes de pixels avec la technique de corrélation d'images numériques (technique dite de 'Laue-DIC'). On obtient ainsi une résolution en déformation de $\sim 10^{-5}$ (et en contrainte de l'ordre du MPa) sur un monocristal de Ge déformé en flexion in-situ [Petit et al., 2012, 2015, Zhang et al., 2015, 2017].
3. Enfin, pour obtenir des informations résolues en profondeur, on peut utiliser une technique de triangulation à partir de mesures à plusieurs distances échantillon-détecteur [Bale et al., 2006], mais la résolution spatiale n'est pas très bonne ($\pm 25 \mu\text{m}$). Il est aussi possible d'utiliser la technique de DAXM, décrite plus en détail dans la section suivante, qui consiste à masquer de façon incrémentale une partie des faisceaux diffractés. C'est la technique mise en oeuvre dans le présent travail.

2.2.2 Calcul de l'orientation cristalline et des déformations élastiques

Comme mentionné ci-dessus, la donnée de base d'une expérience de microdiffraction est une image 2D dans laquelle sont positionnés les pics de diffraction. On présente ici, dans les grandes lignes, les étapes pour passer de cette image à une mesure quantitative de l'orientation cristalline du grain analysé et de sa déformation élastique. Cette procédure est celle utilisée par le logiciel [LaueTools](#) développé sur la ligne BM32.

1. La première étape consiste à détecter les pics de Bragg dans l'image. Plusieurs techniques de détection sont implémentées dans le logiciel [LaueTools](#).

2. L'estimation de la position des taches de Laue passe classiquement par un fit des taches à l'aide d'une fonction analytique 2D simple (ex. fonctions Gaussienne ou Lorentzienne). On notera que l'utilisation d'une fonction analytique revient à apporter à la mesure une information *a priori* qui ne reflète pas nécessairement la vraie nature des taches. Le déplacement des taches entre deux images successives peut être mesuré avec une meilleure précision avec la technique Laue-DIC.
3. Le montage de Laue ayant été préalablement aligné et calibré, la direction du faisceau incident, la position du détecteur, et la position du point d'impact du faisceau sur l'échantillon¹ sont connus. La direction du faisceau diffracté peut alors être calculé à partir de la position de la tache sur le détecteur. On peut ainsi en tirer la direction du vecteur de diffraction \vec{K} .
4. Lorsque l'étape ci-dessus est réalisée pour au moins 4 taches de Laue², on calcule les angles entre les différents vecteurs de diffraction. On peut alors comparer cette série d'angles avec celle calculée à partir de la maille cristalline théorique du cristal. Cette procédure permet d'indexer le cliché de Laue, i.e. de savoir à quel plan (hkl) correspondent les différentes taches. On a alors l'orientation du cristal par rapport à un système de coordonnées lié au détecteur. On peut aussi, par le calcul, fournir une estimation de l'énergie du faisceau diffracté, pour chaque tache de Laue.
5. La dernière étape consiste ensuite à affiner les paramètres de maille du cristal ainsi que son orientation cristalline, en minimisant l'erreur entre la position théorique des taches et celles mesurées. La comparaison de ces paramètres de maille avec ceux d'un cristal non-contraint permet l'estimation de la déformation élastique.

Les détails de la méthode de calcul de la déformation élastique sont donnés dans [Chung and Ice, 1999]. L'auteur utilise un formalisme avec une vision 'de cristallographe' : la définition de la matrice $\mathbf{U.B}$, qui est centrale dans la méthode et qui relie le vecteur normal au plan diffractant à ses indices (hkl), est dépendante du système de coordonnées choisie. Dans la communauté de mécanique, il est d'usage d'utiliser plutôt une formulation indépendante des repères utilisés, et de calculer le tenseur gradient de la transformation \mathbf{F} qui relie un vecteur du réseau de la maille non-déformée \mathbf{a}_0 (configuration initiale, $i = 1, 2, 3$) au vecteur \mathbf{a} correspondant de la maille déformée (configuration déformée)

$$\mathbf{a} = \mathbf{F} \cdot \mathbf{a}_0. \quad (2.5)$$

Les vecteurs du réseau réciproque sont reliés par $\mathbf{a}^* = \mathbf{F}^{-t} \cdot \mathbf{a}_0^*$ (\mathbf{F}^{-t} est l'inverse de la transposé de \mathbf{F}). Les relations entre $\mathbf{U.B}$ et \mathbf{F} sont détaillés dans Plancher [2015].

Enfin, la loi de Hooke

$$\boldsymbol{\sigma} = \mathbf{C} : \boldsymbol{\varepsilon} \quad (2.6)$$

permet d'estimer le tenseur des contraintes $\boldsymbol{\sigma}$ à partir du tenseur des déformations élastiques $\boldsymbol{\varepsilon}$ et du tenseur des modules élastiques \mathbf{C} . On notera que cette loi ne peut pas être utilisée dans le

1. En microdiffraction Laue 'classique', on considère en général que le diagramme de Laue provient de la surface de l'échantillon, négligeant ainsi la pénétration du faisceau, contrairement à la DAXM.

2. En pratique, plus le nombre de taches utilisées dans l'analyse est grand et plus l'erreur sur le résultat sera faible [Zhang et al., 2017]

cas général d'anisotropie élastique pour relier les déviateurs des contraintes et des déformations élastiques (voir le 'supplementary material' de [Petit et al. \[2015\]](#))

$$\text{dev}(\boldsymbol{\sigma}) \neq \mathbf{C} : \text{dev}(\boldsymbol{\varepsilon}). \quad (2.7)$$

En effet, un tenseur \mathbf{C} anisotrope couple les parties isotrope et déviatorique des tenseurs, et par exemple un chargement hydrostatique (i.e. $\boldsymbol{\sigma}$ isotrope) entraîne un changement de volume mais aussi des déformations déviatoriques. Cette limitation est vrai pour toutes les symétries cristallines, sauf pour la symétrie cubique et bien sur un comportement isotrope.

2.2.3 Quelques résultats de la littérature

Les premières expériences en microdiffraction Laue se sont concentrées sur des applications en micro-électronique, en même temps que des validations de la technique sur des monocristaux semi-conducteur de Si [[Larson et al., 2002](#)] ou Ge [[Chung and Ice, 1999](#)]. Les premières applications ont portées sur des connecteurs métalliques [[Tamura et al., 2002a,b](#)] (figure 2.5) et des couches minces [[Spolenak et al., 2003](#), [Budai et al., 2003](#), [Tamura et al., 2005](#), [Nylas et al., 2010](#)], des matériaux ferro-électrique (BaTiO₃) [[Rogan et al., 2003](#)]. [Tardif et al. \[2016\]](#) comparent des mesures obtenus avec la méthode 'Rainbow' sur de micro-échantillon de Ge déformés en traction uniaxiale et biaxiale, et obtiennent un très bon accord avec la simulation (figure 2.6).

D'autres études se sont focalisées sur les liens entre densités de dislocations et gradients d'orientation, dans plusieurs matériaux métalliques [[Barabash et al., 2009](#), [Kirchlechner et al., 2011](#)]. Ces densités sont extraites du gradient d'orientation que l'on peut extraire à partir de la forme des taches de Laue, ou Laue résolue en profondeur (cf. section suivante), cf. [Barabash et al. \[2001\]](#). Ces travaux ne présentent pas les cartographies de déformation associées, car il ne s'agit pas d'une information pertinente pour ces études. D'autres travaux traitent plus spécifiquement du rôle des joints de grains, dans du cuivre [[Daveau, 2012](#)] et de l'aluminium [Larson et al. \[2004\]](#). Des analyses sur des micro-piliers sont décrites dans [[Mass et al., 2006, 2007, 2008](#)]. Citons également les travaux réalisés sur une couche implantée d'UO₂ [[Richard, 2012b](#)] et sur un matériau multicouche pour la fabrication de piles à combustibles [[Villanova et al., 2012](#), [Sanchez et al., 2015](#)].

Seulement un nombre réduit d'études traite des mesures de déformations élastiques dans des échantillons métalliques [[Levine et al., 2006](#), [Mughrabi and Ungár, 2006](#), [Magid et al., 2009](#), [Chao et al., 2012](#)]. Des valeurs élevées sont parfois rapportées avec par exemple des contraintes supérieures à 500 MPa dans un monocristal de Cu déformé de 10% en compression [[Magid et al., 2009](#)] ou des déformations élastiques supérieures à 1% à proximité d'une fissure dans un alliage base nickel [[Chao et al., 2012](#)]. Il est probable que ces valeurs inattendues proviennent d'artefacts liés à la forme des pics de diffraction plutôt que de l'état mécanique du matériau [[Larson and Levine, 2013](#)]. L'existence de ces artefacts impose de bien maîtriser les incertitudes liées à l'expérience.

Plus récemment, nous avons pu coupler la DIC pour estimer le champ des déformations *totales* (i.e. élastiques + plastiques), et le Laue-DIC pour estimer le champ des déformations *élastiques* [[Plancher et al., 2017b](#)]; ce couplage a permis la mesure directe de la loi du comportement local élasto-plastique d'un acier inoxydable, sur des volumes d'analyse de l'ordre du μm^3 .

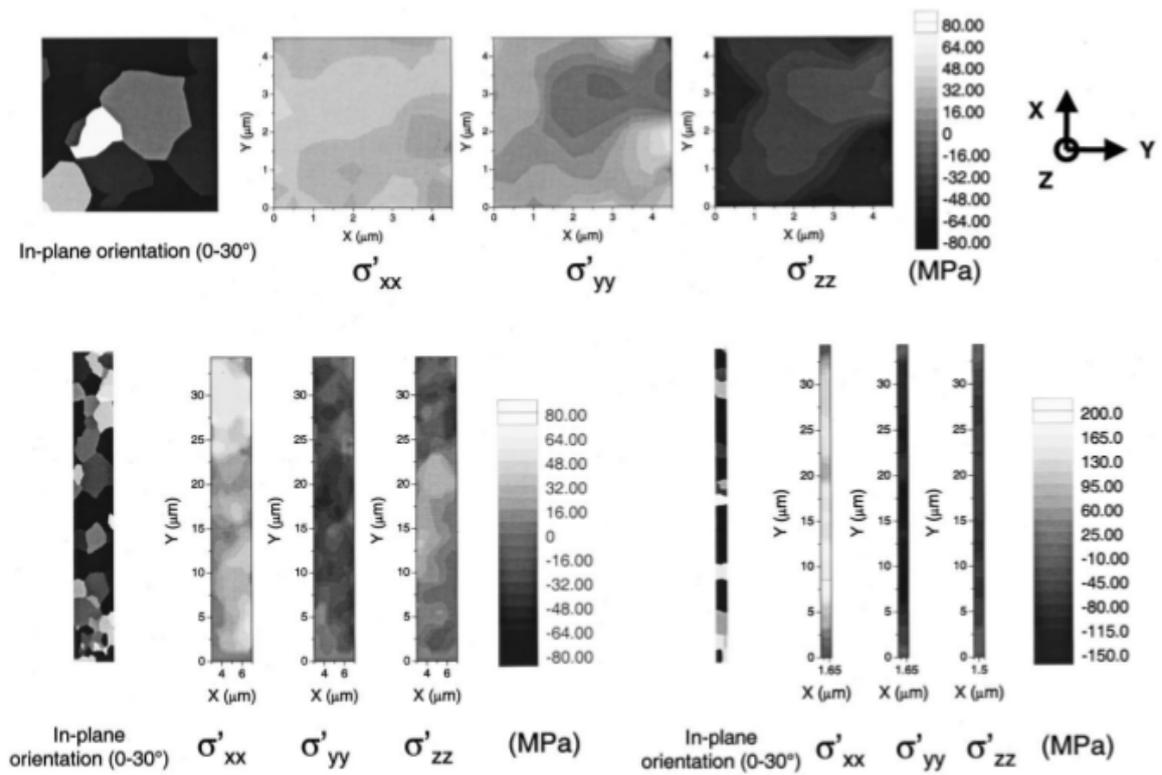


FIGURE 2.5 – Résultats obtenus par microdiffraction Laue sur un échantillon d'Al-Cu déposé sur un substrat Si amorphe. D'après [Tamura et al., 2002a].

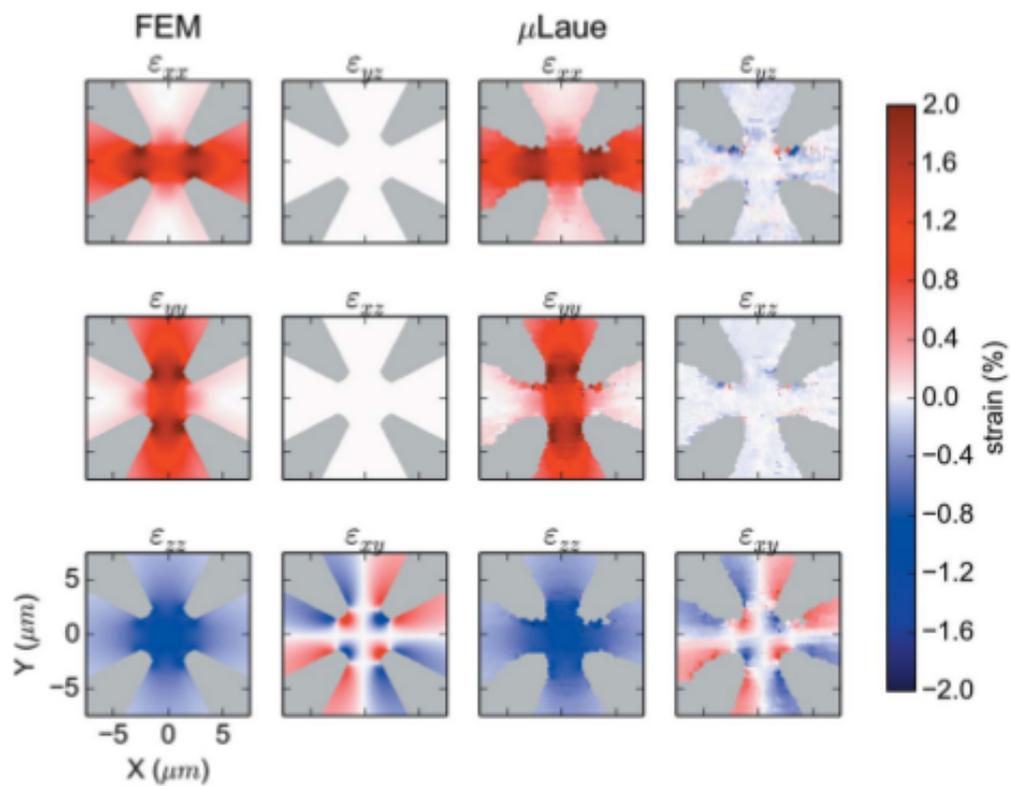


FIGURE 2.6 – Comparaison des profils de contrainte obtenus par microdiffraction Laue et par simulation FEM sur un fin monocristal de Ge en traction biaxiale. D'après [Tardif et al., 2016].

2.3 Differential Aperture X-Ray Microscopy (DAXM)

La Microscopie à Rayons X à Ouverture Différentielle (en anglais : Differential Aperture X-Ray Microscopy - on utilisera dans ce travail l'acronyme DAXM) a été proposée il y a une quinzaine d'années sur quelques lignes synchrotron, notamment à l'APS et l'ALS aux États-Unis [Larson et al., 2002].

2.3.1 Principe

L'objectif de la DAXM est de décomposer les clichés de Laue, qui sont mesurés sur toute la profondeur de pénétration du faisceau incident dans l'échantillon, en plusieurs coupes correspondant chacune à une profondeur donnée (cf. figure 2.7). Pour cela on place entre le détecteur et l'échantillon un masque (généralement un fin fil de Pt ou W) absorbant mobile, dont le but est d'absorber une partie des faisceaux diffractés par l'échantillon. On enregistre plusieurs clichés de Laue pour plusieurs positions du masque (typiquement plusieurs centaines de clichés), sur lesquels l'ombre du masque est visible, ex. figure 2.8. En combinant ces images et en tenant compte de la position du masque pour chaque cliché, on peut décomposer le cliché de Laue initial en clichés *résolus en profondeur*, avec une résolution en profondeur micrométrique. La mise en oeuvre est réalisée avec une distance échantillon-fil très petite (sub-millimétrique) devant la distance échantillon-détecteur (~ 60 mm) de façon à avoir un effet d'agrandissement sur le détecteur (microscopie). Les clichés résolus en profondeur peuvent alors être analysés comme des clichés de Laue 'classiques' : on peut en extraire l'information sur l'orientation cristalline locale et la distorsion du réseau cristallin (déformation élastique), avec des volumes reconstruits de taille $\sim 1\mu\text{m}^3$ [Guo et al., 2015] voire moins [Ice et al., 2005b, Ice, 2008]. Comme pour la microdiffraction Laue classique, il est possible (pour les matériaux de symétrie cubique) de remonter au déviateur des contraintes.

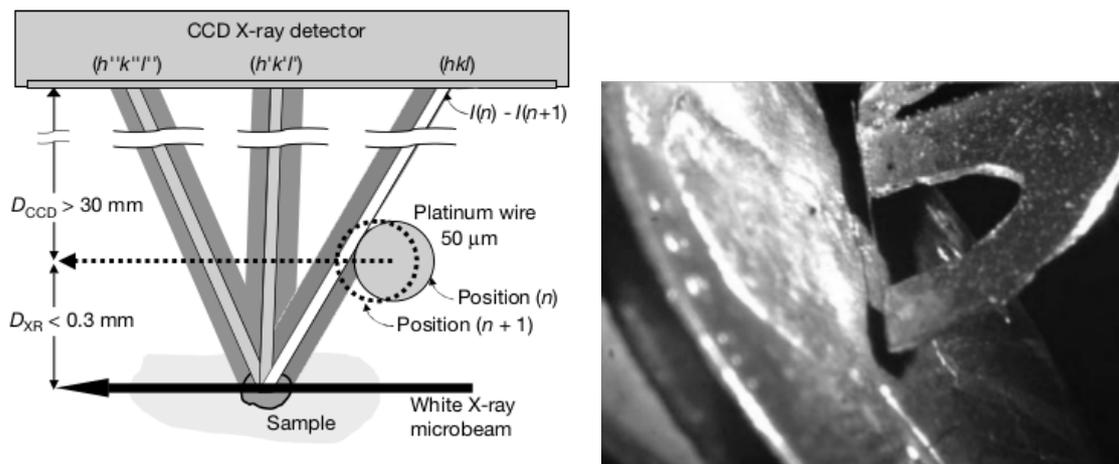


FIGURE 2.7 – (gauche) Schéma de principe de la DAXM, tiré de [Larson et al., 2002]. (droite) Image du fin fil de Pt et de son support eu U, utilisé par Ice et al. [2006b]

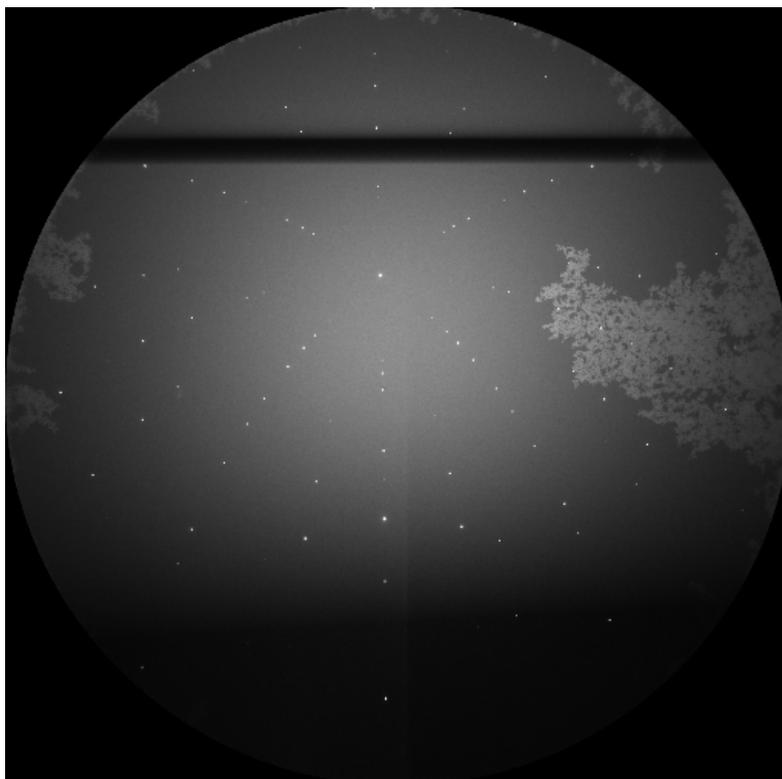


FIGURE 2.8 – Exemple typique d’image de DAXM, obtenue sur un échantillon de Ge. L’ombre du fil sur le détecteur apparaît horizontale.

2.3.2 Quelques résultats de la littérature

Un certain nombre d'articles [Ice et al., 2005a,b, 2006a, Budai et al., 2008, Ice, 2008] sont dédiés à une description générale de la DAXM, l'implémentation de la technique sur des lignes de lumière, et l'évolution possible des montages. Des exemples d'application viennent illustrer ces possibilités. Ils portent sur la croissance de whiskers de Sn ou ZnO, la caractérisation de joints de grains, les couches epitaxiées et leur relation avec l'orientation du substrat, la reconstruction de microstructure 3D dans des matériaux polycristallins (ex. figure 2.9), l'intermittence de la plasticité. Dans ces articles, les avantages de la technique sont mis en avant. Les difficultés de reconstruction, quant à elles, ne sont pas réellement détaillées. Les auteurs affichent une résolution en déformation de l'ordre de 10^{-4} , en rotation de l'ordre de 0.01° , et la capacité de la DAXM à analyser des volumes equiaxes de quelques centièmes de μm^3 . Concernant l'analyse des résultats, il est fait régulièrement référence à un code numérique qui prend en compte, en plus des paramètres de calibration classique de la microdiffraction Laue, la forme circulaire du fil et le 'parallaxe' associé à la projection de la taille du pixel du détecteur sur le faisceau incident, qui induit une incertitude sur la position de la source dans l'échantillon de $\sim 0.1 \mu\text{m}$ [Yang et al., 2004]. Cette erreur de parallaxe devient petite lorsque la distance échantillon-fil et très petite devant la distance échantillon-détecteur [Larson et al., 2002, Yang et al., 2004], ce sont les conditions utilisées. L'article de Ice et al. [2011], publié dans *Science*, reprend de manière plus générale les possibilités offertes en Sciences des Matériaux par les techniques utilisant des micro- et nano-faisceaux, avec un focus particulier sur la DAXM.

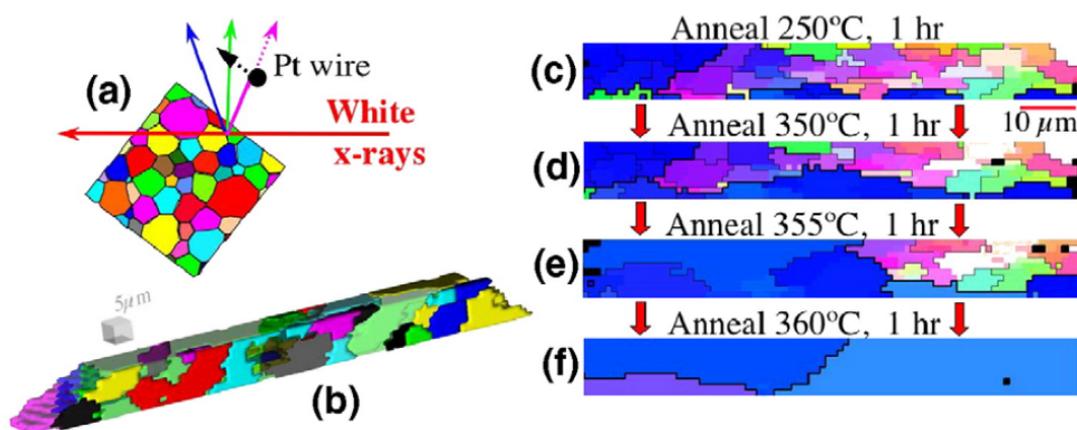


FIGURE 2.9 – Vue en coupe de l'évolution de la microstructure d'un échantillon d'aluminium fortement déformé, lors de la recristallisation. D'après Budai et al. [2008]

Barabash et al. [2009] montrent comment la DAXM³ peut être utilisée pour estimer la densité de dislocations géométriquement nécessaires (GND) dans les matériaux fortement déformés (figure 2.10). Les équations de base reliant l'étalement des taches de Laue sur le détecteur à la structure des GND sont données. Les possibilités de la technique sont illustrées sur un alliage

3. Les auteurs utilisent l'acronyme PXM (Polychromatic X-ray Microdiffraction) pour désigner la microdiffraction Laue standard.

de Ti soudé par Fraction Malaxage (FSW), un procédé engendrant un complexe chargement thermomécanique, et en particulier des déformations plastiques sévères. Le traitement leur permet d'estimer une borne inférieure pour la densité minimale de GND ($5 \times 10^{13} \text{ m}^{-2}$). Dans un but similaire, [Larson et al. \[2007\]](#) reprennent la formulation du tenseur de Nye, son lien avec les déformations et rotations du réseau cristallin, et montrent comment cette formulation se combine avec les mesures en DAXM. L'application porte sur un fin échantillon de Si déformé en flexion élastique et activation de la plasticité lors d'un chauffage à 700°C .

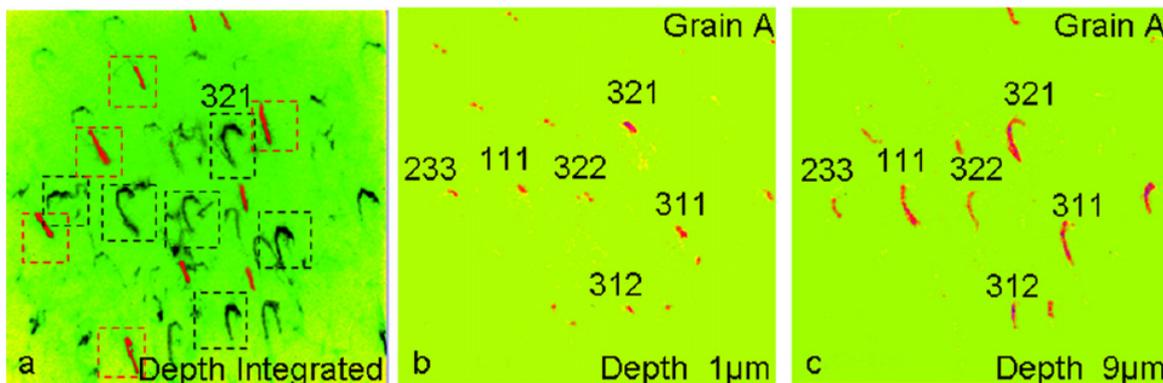


FIGURE 2.10 – Comparaison du diagramme de Laue classique (intégré sur la profondeur de pénétration du faisceau) avec ceux reconstruits à deux profondeurs, pour un alliage de Ti. D'après [Barabash et al. \[2009\]](#).

Une première application de la DAXM à l'étude de la désorientation du réseau cristallin au voisinage d'un joint de grain est présentée dans [\[Larson et al., 2004\]](#), pour un tri-cristal d'Al (figure 2.11). Pour cette étude, l'avantage de l'Al est la forte pénétration du faisceau X. Une étude sur la structure des joints de grains d'échantillon de Ni est présentée dans [Liu et al. \[2005\]](#). [Pang et al. \[2014\]](#) utilisent aussi la DAXM pour étudier l'effet des joints de grains sur la plasticité de polycristaux de Ni, et plus précisément sur l'effet d'une déformation plastique (8%) sur la courbure du réseau cristallin au voisinage des joints de grains. La distribution des déformations élastiques et des contraintes n'est pas discutée dans l'article. Les auteurs reconstruisent des diagrammes de Laue résolus en profondeur, tous les microns, à l'aide de 400 positions du fil. Ils estiment la résolution de l'orientation cristalline qu'ils obtiennent de l'ordre de 0.02° ⁴. [Guo et al. \[2015\]](#) montrent enfin une étude intéressante dans laquelle les résultats de la DAXM sont comparés à des mesures de déformations élastiques obtenues par EBSD-HR au voisinage d'un joint de grains d'un échantillon de Ti (figure 2.12). Les mesures sont effectuées autour d'une bande de glissement bloquée par le joint. Les résultats DAXM et EBSD-HR sont globalement en accord, avec des niveaux de contraintes de quelques centaines de MPa et très variables selon la localisation de la ligne de scan dans l'échantillon.

La DAXM peut en principe être utilisé à la fois avec un faisceau incident blanc ou monochromatique [\[Yang et al., 2003\]](#), la combinaison des deux permettant de remonter au tenseur de déformation élastique complet comme en microdiffraction Laue classique. Dans la version monochromatique,

4. ndlr : ce qui correspond à une résolution en déformation élastique de $\sim 0.02 \times \pi/180 \simeq 3 \times 10^{-4}$

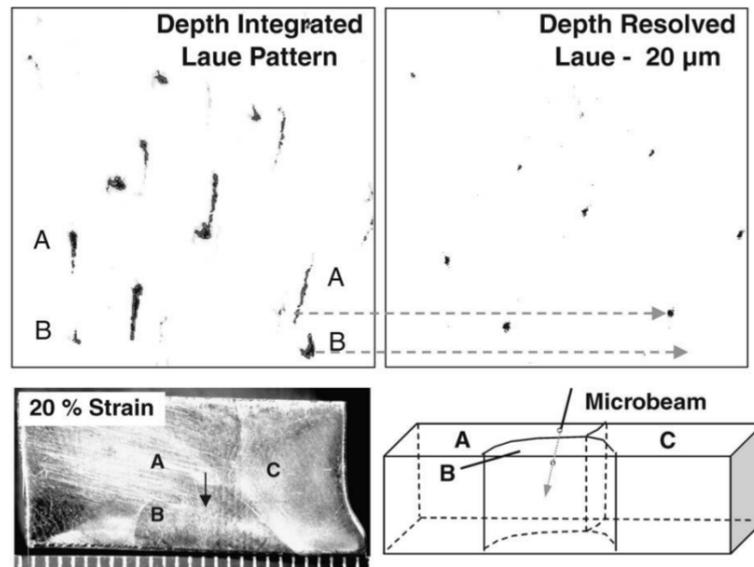


FIGURE 2.11 – Microstructure du multi-cristal d'aluminium déformé, diagramme de Laue intégré sur la longueur de pénétration du faisceau incident, et reconstruit à $20\ \mu\text{m}$ de profondeur. D'après Larson et al. [2004].

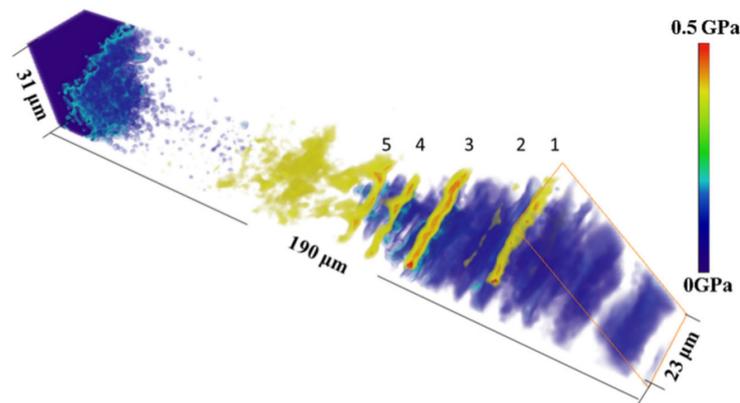


FIGURE 2.12 – Vue 3D de la contrainte de cisaillement induite par des plans de glissement bloqués par un joint de grain (les zones qui devraient être colorées en vert ont été retirées pour faire apparaître les valeurs extrêmes). D'après Guo et al. [2015].

une seule tache de diffraction est étudiée. La technique requiert de scanner à la fois l'énergie du faisceau incident et la position du fil absorbant. Les auteurs appliquent la méthode au cas d'une feuille de Si monocristalline déformée en flexion. La résolution en déformation obtenue, de 10^{-4} , leur permet l'estimation du coefficient de Poisson. Ils montrent un bon accord entre la courbure mesurée et celle modélisée.

La DAXM monochromatique est combinée à la version polychromatique dans [Okoro et al., 2014] pour l'étude de l'effet de la fatigue thermique sur les contraintes dans un composant micro-électronique. Une autre originalité de cette étude est l'utilisation de trois détecteurs 2D dans le but d'augmenter l'angle solide de capture des faisceaux diffractés.

Levine et al. [2006], dans un article publié dans la revue *Nature*, utilisent la DAXM monochromatique (~ 14 keV) pour mesurer les contraintes dans les cellules de dislocations de deux échantillons de Cu, l'un déformé en traction, l'autre en compression. En accord avec le modèle cellule-paroi de Mughrabi (cf. référence dans le commentaire à cet article, [Mughrabi and Ungár, 2006]), ils obtiennent des déformations élastiques négatives (compression) pour le premier échantillon, et positive (traction) pour le deuxième (figure 2.13). La résolution en déformation est de l'ordre de 10^{-4} . Les auteurs obtiennent d'importantes fluctuations de déformation élastique en fonction du volume mesuré, qu'ils associent à des fluctuations de contrainte entre les cellules de dislocations. Ils terminent l'article en faisant le lien entre ces mesures et les analyses de profil des raies de diffraction. Les résultats sont repris dans Kassner et al. [2009] et comparés à un échantillon soumis à un chargement cyclique. Levine et al. [2011, 2012] poursuivent avec un nombre de points de mesure (280) plus important, permettant une analyse statistique de la distribution des contraintes et une interprétation de l'asymétrie des raies de diffraction mesurées sur de plus grands volumes, dans un échantillon de Cu déformé de 28%. Ici, les auteurs prétendent réaliser des mesures dans les cellules et les parois de dislocations indépendamment⁵.

Pour finir, afin de diminuer le temps d'acquisition des images, qui est l'une des limitations de la DAXM, Chung et al. [2007] proposent une technique DAXM multi-fil⁶ (figure 2.14). Le but de la proposition est de réduire le temps d'acquisition des données (en standard, 400 images par position du faisceau). Ce court article est centré sur les contraintes d'agencement des fils couplées à la direction de déplacement des fils. Une application est proposée avec 3 fils. Concernant les résultats, les auteurs disent avoir reproduit avec succès la position spatiale et l'orientation de deux grains de Ni, sans donner plus de détails.

D'une manière générale, la littérature est peu extensive sur les paramètres expérimentaux utilisés (ex. position du fil par rapport au détecteur et à l'échantillon), et sur l'algorithme de recalcul des diagrammes de Laue résolus en profondeur. Ces aspects ne sont jamais réellement abordés, ni dans les articles mentionnés ci-dessus, ni dans les références citées dans ces articles ; seul le principe général est indiqué en quelques lignes. La méthode de calibration du montage de DAXM est aussi présentée au mieux en quelques mots : par exemple, Larson et al. [2007] indiquent, en une phrase, l'utilisation d'un fin ($4 \mu\text{m}$) cristal de Si pour la calibration [Yang et al., 2004, Guo et al., 2015].

5. sans pour autant avoir mesuré la position du faisceau in situ avec une telle résolution

6. La technique multi-fil a été évoquée pour la première fois dans la conclusion de Ice et al. [2006a]

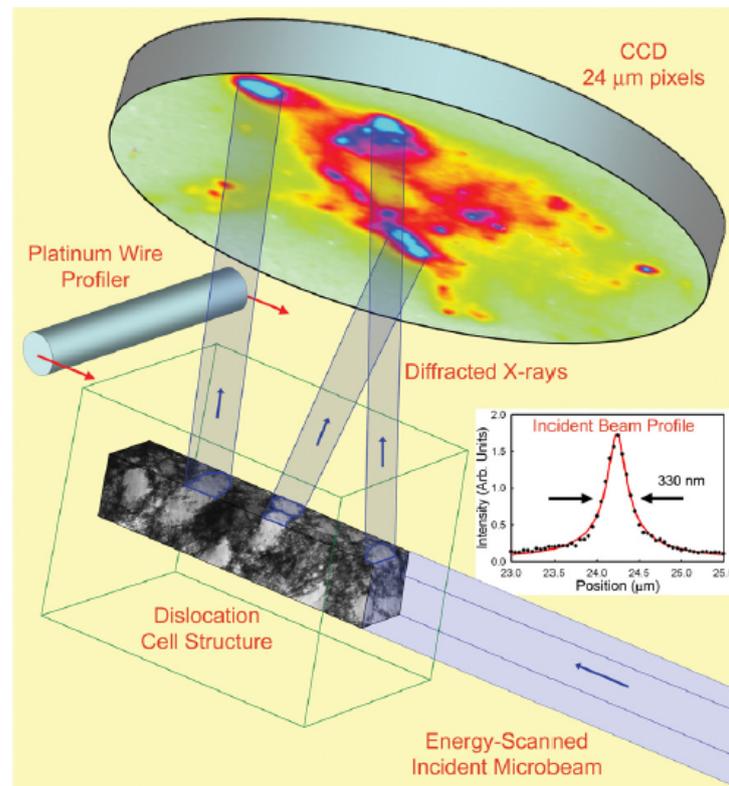


FIGURE 2.13 – Montage expérimental utilisé par [Levine et al., 2011] par la mesure des contraintes dans les cellules de dislocations dans un échantillon de Cu.

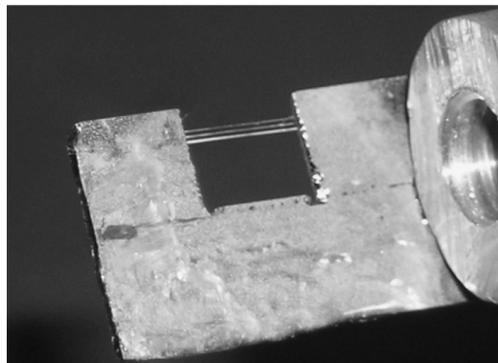


FIGURE 2.14 – Support du masque multi-fils utilisé dans Chung et al. [2007].

2.4 Conclusion

Dans cette revue bibliographique, nous avons listé une large part des articles publiés utilisant la DAXM. La potentialité de la technique est grande. Elle permet de réaliser des mesures 3D de champs mécaniques dans les matériaux déformés, avec une résolution spatiale micrométrique. Cela ouvre la porte à de nombreuses applications en mécanique des matériaux : hétérogénéité du champ de contrainte en lien avec la microstructure du matériau, concentration des contraintes en fond de fissures, effet des interfaces (ex. joints de grains), effet de l'énergie élastique stockée sur la migration des joints (recristallisation), etc. La DAXM permet aussi d'étendre la microdiffraction Laue classique au cas des matériaux fortement déformés, pour lesquels les taches de Laue sont trop étalées sur le détecteur pour envisager (pour l'instant au moins) une analyse quantitative des contraintes avec la microdiffraction Laue classique. L'autre avantage de la DAXM est son caractère non-destructif ; la technique peut être appliquée à un échantillon massif et de grande taille, contrairement aux techniques basées sur la tomographie (DCT, 3DXRD, HEDM, ...).

Cependant, la littérature ne dit pas grand chose sur le détail des moyens expérimentaux utilisés, la calibration du montage, les approximations sur la géométrie du montage... L'objectif de ce travail est de pouvoir réaliser, sur la ligne BM32, des mesures du champ de contrainte 3D et de microstructure 3D dans des matériaux déformés plastiquement. Un petit nombre d'exemples, obtenus sur d'autres lignes de lumières, ont été publiés dans la littérature. Il nous semble cependant important de pouvoir caractériser précisément les incertitudes sur les cartographies reconstruites. Etant données les précautions à prendre déjà lors des mesures de microdiffraction Laue classiques, et notamment l'impact de l'étape de calibration qui doit être menée avec précaution, il nous paraît important de maîtriser toutes les étapes de la DAXM, depuis l'acquisition des données jusqu'à l'étape de reconstruction. La démarche demande notamment l'identification des approximations faites à chaque étape, et l'estimation de leur impact sur le résultat final. C'est dans ce sens que sont écrits les chapitres qui suivent.

Notons que l'absence de publication (hormis un brouillon d'article) suite au travail de Fanny Grennerat nous a conduits à inclure dans ce manuscrit une description détaillée des méthodes qu'elle a contribué à développer et qu'elle a implémentées dans son code d'analyse des données de DAXM. Ma thèse a été l'occasion revenir sur son travail et de le poursuivre ce travail, de vérifier le code d'analyse, de le rendre plus lisible, de le simplifier, d'en améliorer la vitesse d'exécution, et d'y rajouter certains développements.

CHAPITRE 3

Montage expérimental de DAXM sur la ligne synchrotron BM32

Sommaire

3.1	Introduction	25
3.2	Montage de microdiffraction Laue	25
3.2.1	Propriétés du faisceau de rayons X incident	26
3.2.2	Détection des rayons X	29
3.2.3	Repère détecteur et définition des paramètres de calibration	30
3.2.4	Environnement échantillon	32
3.2.5	Procédure d'alignement	34
3.2.5.1	Alignement du microscope optique	34
3.2.5.2	Mise en place de l'échantillon	37
3.2.5.3	Calibration du montage de Laue	39
3.3	Montage de DAXM	39
3.3.1	Géométrie	41
3.3.2	Conception du montage mécanique	42
3.3.3	Tentative multi-fils	45
3.4	Machine de flexion 4-points in-situ	45
3.4.1	Conception du montage	47
3.4.2	Interprétation des essais	49
3.5	Bilan	51

3.1 Introduction

Dans ce chapitre, nous allons décrire le montage expérimental qui a été mis en place et utilisé sur la ligne CRG-BM32 CEA/CNRS à l'ESRF pour les expériences de microdiffraction Laue et de DAXM. Nous présenterons également la machine de flexion qui a été développée, et utilisée dans plusieurs expériences de déformation in situ, au cours de ce travail de thèse comme pour celui de [Plancher \[2015\]](#); Certaines données de DAXM correspondantes sont en cours d'analyse, et ne seront pas présentées ici.

3.2 Montage de microdiffraction Laue

Afin de décrire le montage, nous allons présenter séparément les 3 éléments constitutifs principaux contrôlant le faisceau incident, le porte-échantillon, et le détecteur 2D. Puis, la

procédure d’alignement et de calibration de l’ensemble de ces éléments, qui a été utilisée, sera expliquée. Il est à noter que le montage de microdiffraction Laue de la ligne BM32, sur lequel ont été menées les mesures de DAXM, a bénéficié d’un upgrade significatif au tout début de ma thèse : les miroirs focalisants (KB) et leur support ont été changés (passage à des miroirs à courbure fixe), une table anti-vibration a été installée, et le déplacement du détecteur 2D de rayons X a été motorisé. C’est avec ce nouveau montage que les expériences de ce travail ont été réalisées. Des données plus anciennes, antérieures à cet upgrade, sur des échantillons d’UO₂ implantés, seront cependant utilisées dans ce travail (cf. chapitre 7).

3.2.1 Propriétés du faisceau de rayons X incident

Comme déjà mentionné dans le chapitre 2, la technique de microdiffraction Laue est basée sur l’utilisation d’un faisceau blanc (polychromatique) de section sub-micrométrique. La source utilisée provient de l’aimant de courbure BM32 sur l’anneau de stockage des électrons du synchrotron européen (ESRF). Au niveau de la source, le faisceau est divergent et de section d’environ $30 \times 250 \mu\text{m}^2$. Le flux en fonction énergie est sensiblement plat (comparé au spectre correspondant à un onduleur) et est donc particulièrement adapté à l’emploi d’un faisceau polychromatique, cf figure 3.1.

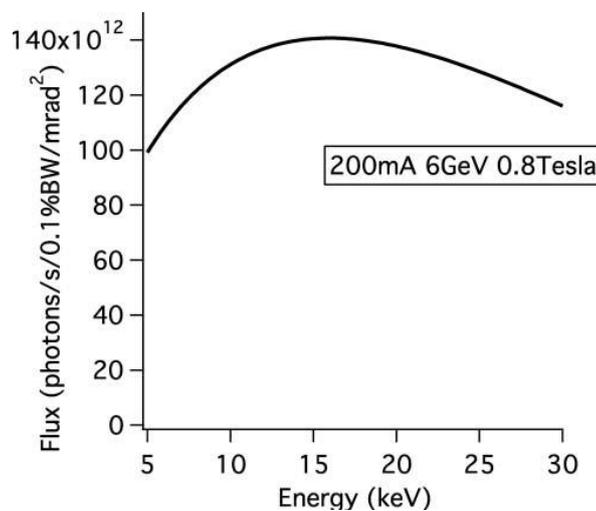


FIGURE 3.1 – Spectre en énergie de la brillance de la source de rayons X de l’aimant de courbure BM32 à l’ESRF (flux de photons par unité d’énergie rapporté à la taille de source et à la divergence du faisceau) [Ulrich et al., 2011]

Dans la cabane optique, le faisceau est focalisé verticalement, et les hautes énergies contenues dans la bande spectrale sont absorbées à l’aide de deux miroirs cylindriques dont on peut ajuster la courbure (quelques kilomètres de rayon de courbure) et l’angle d’incidence (quelques milliradians). Des fentes (dites fentes secondaires) d’ouverture allant typiquement de $20 \times 20 \mu\text{m}^2$ à $50 \times 50 \mu\text{m}^2$ sont placées au niveau du point focal du système de focalisation verticale (composée de ces deux miroirs) ; elles forment une source secondaire stable pour les éléments optiques placés

en aval, s'affranchissant d'éventuelles variations de la position et de l'angle d'émission des rayons X émis par la source primaire dans l'anneau de stockage.

Enfin, dans la cabane expérimentale, le faisceau est micro-focalisé à l'aide d'une paire de miroirs de Kirkpatrick-Baez (dits miroirs de KB) en verre de pyrex revêtu de platine, qui sont placés dans un boîtier sous atmosphère azote afin de limiter la dégradation de leur surface par le faisceau de RX. Ces miroirs forment sur l'échantillon l'image de la source secondaire. Lors de l'installation de la nouvelle version du montage de microdiffraction Laue de la ligne BM32, les miroirs de KB ont été changés. Les miroirs actuels sont à courbure fixe, alors que les miroirs précédents étaient constitués de lame planes courbés mécaniquement. Les miroirs actuels sont chacun montés sur un hexapode, permettant le réglage de leur position et de leur orientation avec une grande précision (cf. figure 3.2).

Afin d'assurer la stabilité de la position du faisceau sur l'échantillon pendant toute la durée des expériences (typiquement quelques jours), les miroirs de KB sont disposés sur une table anti-vibration active, qui permet une isolation quasi-parfaite (bande de fréquence 2Hz – 200Hz) des vibrations du sol [Ulrich et al., 2011]. Le support échantillon, ainsi que le microscope optique d'alignement du montage, dont les positions sont définies plus loin (section 3.2.4), sont également positionnés sur la table anti-vibration, rendant ainsi l'échantillon et le microscope mécaniquement solidaires des optiques de KB (figure 3.7). La table est basée sur un principe de mesure des déplacements du sol et une correction en temps réels à l'aide d'actionneurs dynamiques. L'amortissement des vibrations au niveau de la table est réellement efficace (facteur 100). Cependant, l'orientation de la table, est sensible à la distribution des charges qu'elle supporte. Ainsi, tout déplacement de l'échantillon – par exemple lors d'un balayage d'une zone de l'échantillon à cartographier – ou du microscope fait basculer la table, d'une manière similaire à un bateau sur l'eau. Il en résulte un écart d'inclinaison variable des miroirs par rapport aux conditions de focalisation optimales (principalement dans la direction verticale) se traduisant par un élargissement (plusieurs centaines de nanomètres) et le déplacement (quelques micromètres) du faisceau microfocalisé sur l'échantillon. Ce défaut est compensé par un asservissement mis en place progressivement par l'équipe de BM32 au cours de cette thèse : l'orientation de la table est mesurée à l'aide d'un inclinomètre fixé sur l'hexapode du miroir KB de focalisation verticale ; la compensation de l'orientation de la table est assurée par le déplacement le long du faisceau incident d'une masse (~ 2 kg) placée sur la table. Après ces corrections, il reste encore une oscillation d'environ ± 50 nm de la position horizontale et verticale du faisceau sur l'échantillon avec une période de ~ 20 min. A titre d'illustration, et pour pointer les difficultés expérimentales à surmonter lorsque l'on cherche une résolution sub-micrométrique sur un montage de la taille du mètre, un tel déplacement du faisceau pourrait aussi être le résultat d'une fluctuation de température $\pm 0.05^\circ\text{C}$ dans la cabane expérimentale.

Avec le montage actuel de la ligne (utilisation d'une table anti-vibration et de nouveaux miroirs de KB à courbure fixe), le faisceau focalisé au niveau de l'échantillon a une section d'environ $0.3 \times 0.7 \mu\text{m}^2$. L'ensemble de ces éléments optiques est reparti sur environ 55 m, depuis l'aimant de courbure jusqu'à l'échantillon ; la source secondaire est quant à elle à 28 m de l'échantillon. La distance entre les optiques de KB et le point focal du faisceau est d'environ 170 mm (cf. figure 3.3). Cette distance est relativement grande, et en tout cas suffisante pour y insérer un environnement échantillon (de taille inférieure à ~ 40 mm), comme dans notre cas une petite machine d'essai mécanique.

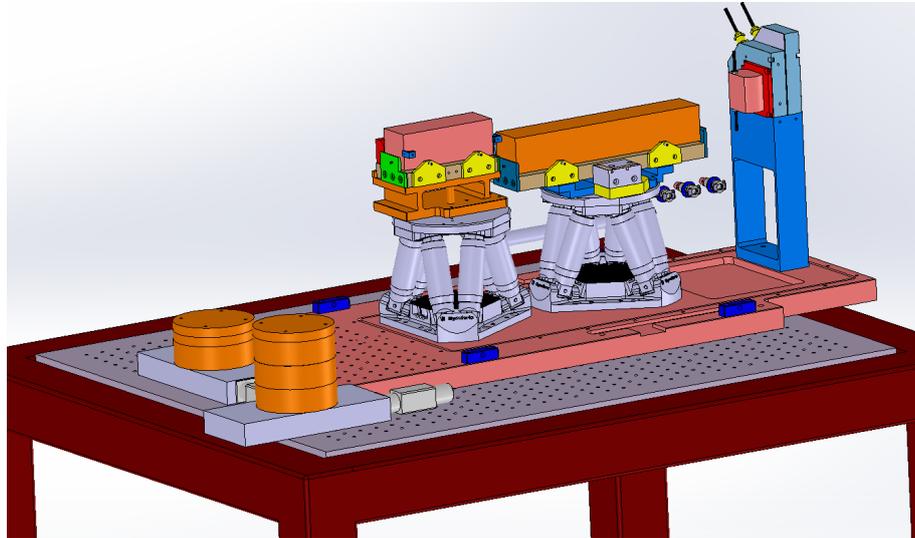


FIGURE 3.2 – Les miroirs de KB sont positionnés sur la table anti-vibration. Leur positionnement est assuré par des hexapodes. Les deux masses cylindriques servent à corriger les défauts d’inclinaison de la table anti-vibration. Image issue du modèle solid work de BM32.

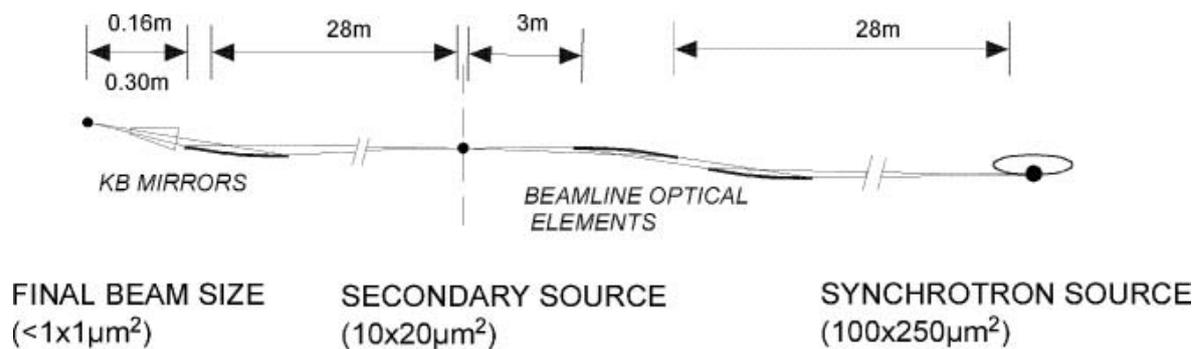


FIGURE 3.3 – Eléments optiques de la ligne BM32 [Ulrich et al., 2011]. Les deux distances à gauche, 0.16 m et 0.30 m correspondent aux deux distances focales des KB pour les focalisations verticale et horizontale. Image issue du modèle solid work de BM32.

La distance optique-échantillon relativement grande, et la grande stabilité du faisceau de RX, sont clairement des avantages de la technique de microdiffraction Laue en rayonnement synchrotron pour l'analyse des déformations élastiques à l'échelle du micron, par rapport à la technique de EBSD-HR disponible dans les MEB de laboratoire.

3.2.2 Détection des rayons X

Nous allons ici décrire le détecteur à rayons X utilisé pour l'acquisition des images de Laue, et son positionnement dans l'espace (figure 3.4).

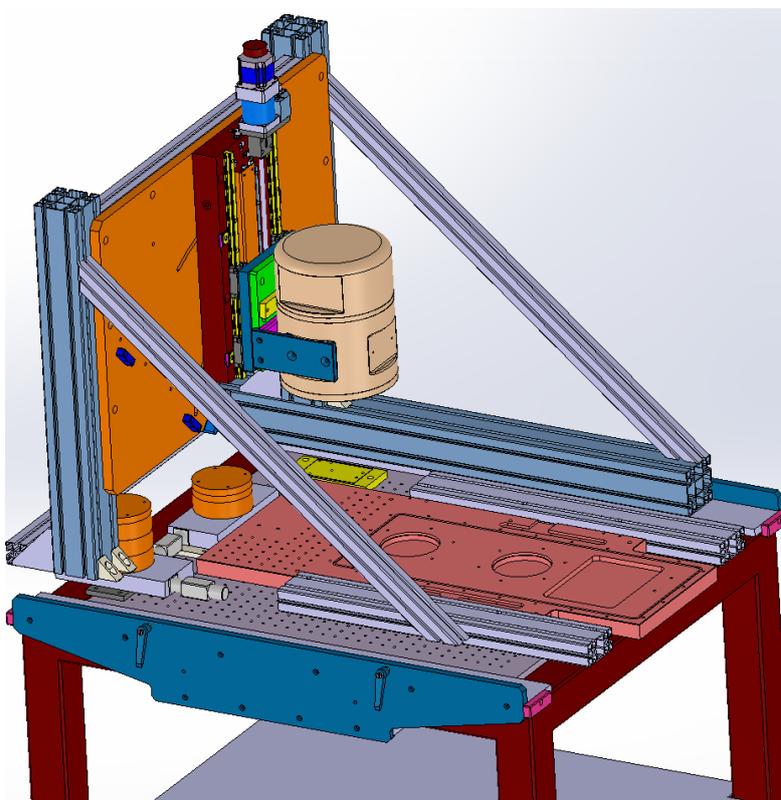


FIGURE 3.4 – Positionnement de détecteur pour l'acquisition des images de Laue.

Le détecteur utilisé dans ce travail est un détecteur de la marque MAR Research (devenu Rayonix maintenant). Il est composé d'un fin film fluorescent ($40\mu\text{m}$) permettant de transformer les photons X en photons visibles. Ces photons visibles sont ensuite récupérés par une bonnette de fibres optiques, dont le but est de démagnifier l'image afin de la réduire à la taille du capteur CCD. L'écran de la MAR CCD fait 165mm de diamètre. Le CCD est quant à lui composé de 2048×2048 pixels. La taille de pixel (mesurée sur le film fluorescent) est de $79.14 \times 79.14 \mu\text{m}$ après binning 2×2 (compromis performance - sensibilité - bruit - temps de lecture). L'intensité est codée sur 16 bits (soit 65536 niveaux de gris). L'intérêt de la bonnette de fibres optiques, par rapport à une lentille standard, est une meilleure efficacité dans la transmission des photons du film fluorescent au capteur (réflexion totale). Elle introduit par contre une distorsion de

l'image, qui peut être significative (~ 20 pixels) ; cette distorsion est corrigée par le constructeur du détecteur, et c'est cette correction qui est classiquement utilisée dans les expériences de microdiffraction Laue. Elle s'est avérée suffisante dans toutes les études passées.

3.2.3 Repère détecteur et définition des paramètres de calibration

Dans la suite de ce travail, nous noterons \vec{y}_b le vecteur unitaire parallèle au faisceau incident et orienté dans la direction de propagation des rayons X. Le point de rencontre entre ce faisceau et la surface géométrique de l'échantillon sera le point noté O , cf figure 3.5.

Nous introduisons maintenant le repère attaché au détecteur (indice d). Ce sera le repère principal des expériences de microdiffraction Laue, dans lequel les calculs seront effectués (figure 3.5). Les axes \vec{x}_d et \vec{y}_d sont pris parallèles à la grille de pixels du détecteur, avec \vec{y}_d proche de la direction du faisceau incident \vec{y}_b et de même sens. Le troisième vecteur \vec{z}_d est la normale rentrante à la surface du détecteur.

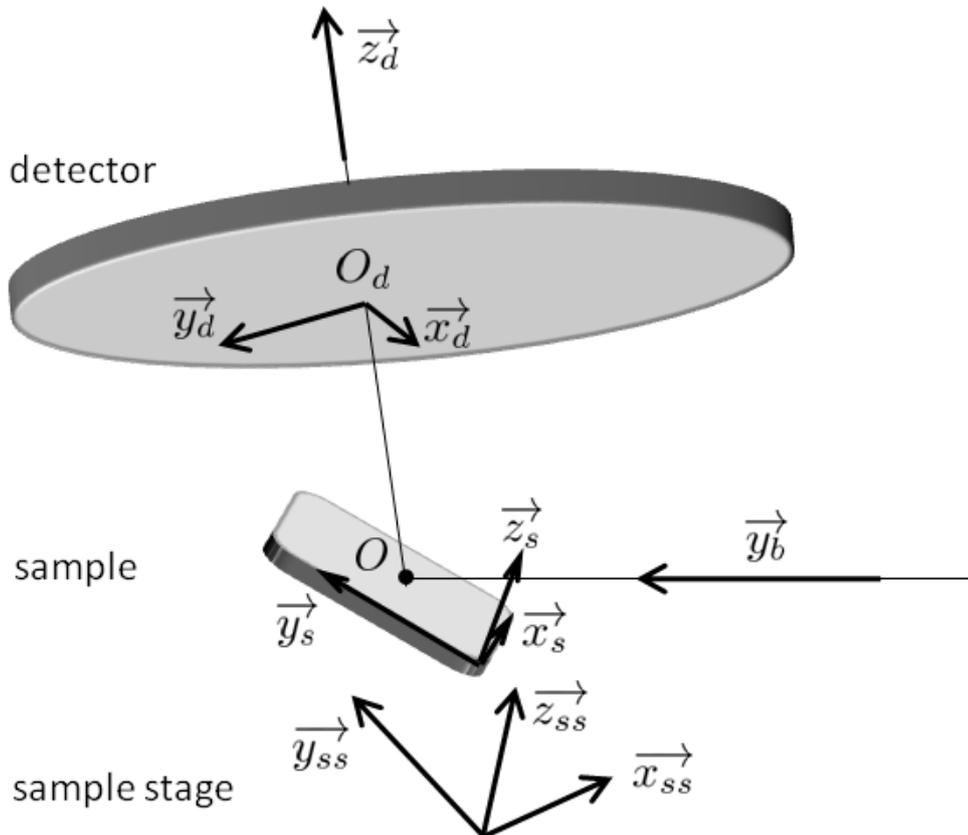


FIGURE 3.5 – Définition de la géométrie utilisée. Le vecteur \vec{y}_b est parallèle au faisceau incident. Le point O est l'intersection du faisceau incident avec la surface géométrique de l'échantillon. Le point O_d est le projection de O sur la surface du détecteur. Le repère 'détecteur' porte l'indice d , le repère 'échantillon' l'indice s (pour 'sample'), et le repère 'platine échantillon' l'indice ss (pour 'sample stage').

On va maintenant définir la position des différents éléments du montage dans ce repère d . Cela nous conduira à définir les 5 paramètres de calibration, qui sont les angles et distances à déterminer afin de connaître parfaitement la géométrie du montage. Tout d'abord, la direction du faisceau incident par rapport au repère détecteur est définie à l'aide de 2 angles β et γ , définis dans la figure 3.6. Ainsi, dans le repère détecteur, le vecteur \vec{y}_b a pour coordonnées

$$\vec{y}_b = \begin{pmatrix} -\sin \gamma \cos \beta \\ \cos \gamma \cos \beta \\ \sin \beta \end{pmatrix}_d. \quad (3.1)$$

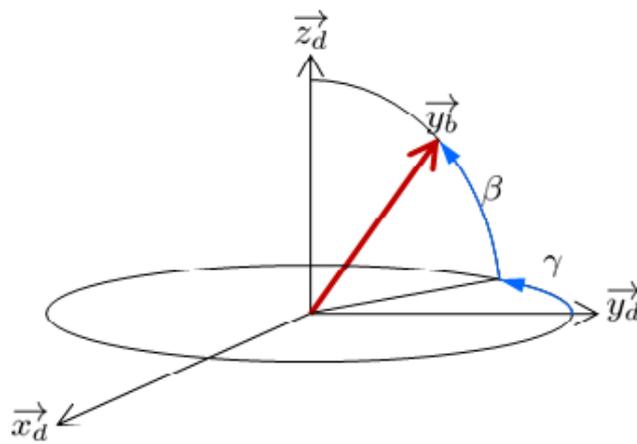


FIGURE 3.6 – Angles β et γ définissant l'orientation du faisceau incident par rapport au repère 'détecteur'.

L'annexe B rappelle les relations générales de changement de repère, par exemple pour passer du repère 'détecteur' au repère 'échantillon', et indique la convention utilisée dans ce travail. Lorsque les images de Laue sont affichées sur l'écran de l'ordinateur à l'aide des logiciels d'analyse LaueTools ou XMAS, le diagramme observé est celui vu par un observateur situé à la place de l'échantillon et observant le détecteur au dessus de lui, le faisceau direct entrant par sa tête et sortant par ses pieds ; l'angle de Bragg 2θ augmente sur l'écran lorsque l'on se déplace du bas vers le haut. Nous appelons X_{cam} et Y_{cam} les coordonnées d'un point de la surface du détecteur, en unités de *pixel*. Alors sur l'écran, l'axe Y_{cam} est vertical et orienté vers le bas, et l'axe X_{cam} est horizontal et pointe vers la droite.

Pour définir la position du faisceau par rapport au détecteur, on utilise 3 paramètres X_{cen} , Y_{cen} , et D . Définissons tout d'abord un point O_d appartenant à la surface du détecteur, tel que $\overrightarrow{OO_d}$ soit parallèle au vecteur \vec{z}_d , avec O est le point intersection du faisceau avec la surface de l'échantillon. Alors on définit D comme la distance OO_d , i.e.

$$\overrightarrow{OO_d} = D\vec{z}_d, \quad (3.2)$$

et les coordonnées (exprimées en *pixel*) du point O_d sur le détecteur sont notées X_{cen} et Y_{cen} .

Ainsi, les coordonnées X_{cam} et Y_{cam} , exprimées en (fraction de) pixel, d'un pixel P du détecteur d'abscisse P_x et d'ordonnées P_y dans le repère d (P_x et P_y sont exprimés en unité de longueur, ex. mm), sont données par

$$\begin{aligned} P_x &= \ell_p(X_{cam} - X_{cen}), \\ P_y &= \ell_p(Y_{cam} - Y_{cen}). \end{aligned} \quad (3.3)$$

avec ℓ_p la taille physique des pixels.

Les 5 paramètres X_{cen} , Y_{cen} , D , β , et γ , qui définissent la position et l'orientation du faisceau par rapport au détecteur, constituent l'ensemble des paramètres de calibration, dont la méthode de détermination expérimentale est précisée dans la suite de ce chapitre.

3.2.4 Environnement échantillon

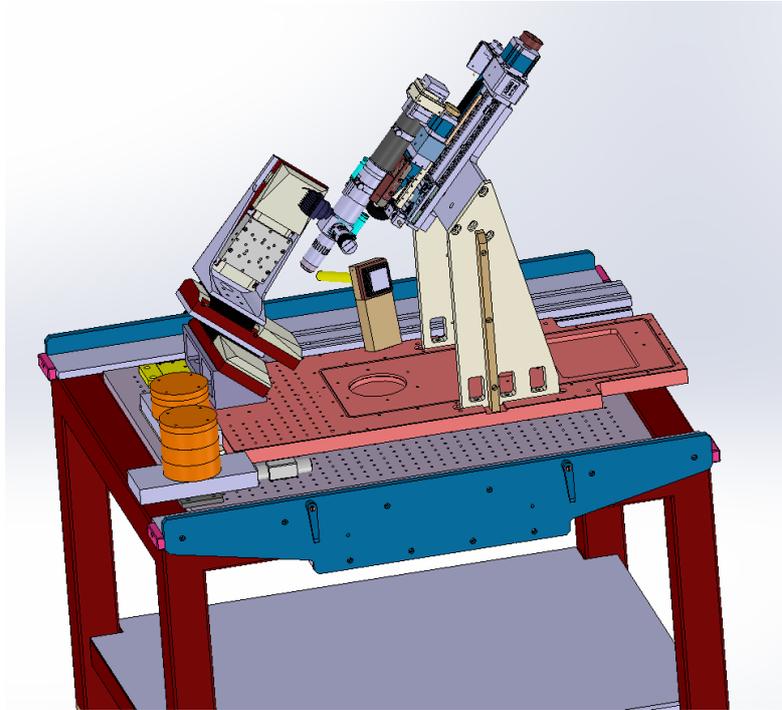


FIGURE 3.7 – Moteurs \vec{x}_{ss} , \vec{y}_{ss} , et \vec{z}_{ss} du porte-échantillon installés à 40° sur la table anti-vibration. Sur cette figure, le faisceau de rayons X vient de la droite. Le microscope optique est également représenté. Image issue du modèle solid work de BM32.

Nous allons décrire dans cette partie le positionnement de l'échantillon sur le montage.

La variété des expériences à réaliser sur la ligne BM32 impose le choix d'un porte-échantillon versatile. Le support échantillon sur lequel sera monté la machine d'essai mécanique in-situ est constitué de trois axes de translation perpendiculaires deux à deux, dont la course de chaque axe est de ± 16 mm avec une précision relative en déplacement de $0.1 \mu\text{m}$ (figure 3.7). Ce support peut supporter un environnement échantillon (machine d'essai mécanique par exemple) de 1.5 kg

sans détérioration des spécifications. Il s'agit en fait de l'empilement mécanique de trois platines de translation, et dans la suite de ce travail, nous supposons que le montage expérimental de ces platines est suffisamment précis pour pouvoir négliger les défauts de perpendicularité entre les trois directions de déplacement. Cette disposition permet donc des mouvements d'échantillon dans un repère orthonormé, que l'on appellera repère 'platine échantillon'; on appellera donc \vec{x}_{ss} , \vec{y}_{ss} , et \vec{z}_{ss} les trois directions de déplacement moteur (indice *ss* pour 'sample stage'). Sur le montage utilisé dans mon travail, l'empilement des translations était incliné de $\sim 40^\circ$ par rapport au faisceau incident, cf. figures 3.7 et 3.8. Ainsi, le repère $(\vec{x}_{ss}, \vec{y}_{ss}, \vec{z}_{ss})$ est obtenu approximativement par une rotation du repère 'detector' attaché au détecteur $(\vec{x}_d, \vec{y}_d, \vec{z}_d)$ de $\alpha \sim +40^\circ$ autour de \vec{x}_d . Le qualificatif *approximativement* a été utilisé car l'angle α n'est pas exactement de 40° , et la direction de translation \vec{x}_{ss} n'est pas exactement alignée avec \vec{x}_d .

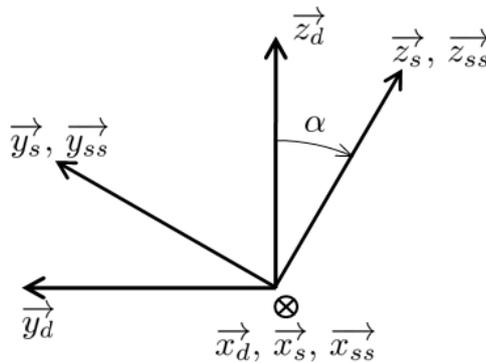


FIGURE 3.8 – Dans cette étude, nous supposons que les repères 'échantillon' (indice *s*) et 'platine échantillon' (*ss*) sont alignés, et que les axes \vec{x}_d , \vec{x}_s , et \vec{x}_{ss} sont parallèles. La valeur de l'angle α varie selon l'expérience, mais elle est souvent de $\sim 40^\circ$.

Pour la suite de ce travail, nous avons également besoin de définir un repère attaché à l'échantillon. Ce repère sera noté avec un indice *s*, pour 'sample'. Nous le choisissons identique au repère *ss*, i.e. $\vec{x}_s = \vec{x}_{ss}$, $\vec{y}_s = \vec{y}_{ss}$, et $\vec{z}_s = \vec{z}_{ss}$. L'orientation exacte de l'échantillon dans le repère *s* dépend donc de la qualité de la méthode utilisée pour fixer l'échantillon sur les platines de translation. Notons que cette définition du repère échantillon ne correspond pas à celle utilisée dans LaueTools, cf [Petit et al., 2015].

Nous verrons par la suite que les légers écarts (qui n'ont pas été quantifiés, mais ils sont inférieur au degré) dans l'alignement de ces deux repères *ss*, et *s* ne sont pas critiques pour notre étude. Ces écarts se répercuteront directement par exemple comme une erreur sur l'orientation absolue d'un grain de l'échantillon, mais pas sur les désorientations au sein d'un même échantillon.

Durant les expériences, la porte de la cabane expérimentale est fermée afin d'éviter tout risque d'irradiation par les rayons X. On utilise alors un microscope optique, muni d'un zoom et d'une caméra CCD, pour visualiser la région d'analyse sur l'échantillon. Ce microscope, monté sur des platines de translation, aura été préalablement aligné de façon à positionner le point *O* dans le plan focal du microscope et au centre de son champ de vision, lorsque le zoom de l'optique est maximal. L'axe optique du microscope coïncide alors approximativement avec l'axe \vec{z}_s .

3.2.5 Procédure d'alignement

Parmi les facteurs limitant la résolution des analyses de contraintes par microdiffraction Laue qui découle de la précision sur la mesure des positions des taches de diffraction sur les images produites par le capteur CCD, la précision sur la détermination des 5 paramètres de calibration X_{cen} et Y_{cen} , D , β , γ , ainsi que le bruit de l'image, jouent un rôle important [Zhang, 2015]. Le bruit d'image du détecteur MAR CCD a été étudié dans [Petit et al., 2015] à l'aide d'une série d'images de Laue prises à la volée sur différents échantillons, sans bouger l'échantillon ni le faisceau, et une étude statistique sur la fluctuation du niveau de gris de chaque pixel a été menée. Il a été obtenu que ce bruit est essentiellement du bruit de photons, lié à la statistique de comptage (l'intensité mesurée est distribuée selon une loi de Poisson), au bruit électronique (agitation thermique des électrons) et au bruit de lecture (lié aux déplacements des charges d'un pixel à l'autre dans la technologie CCD). Les paramètres du modèle de bruit, reliant l'écart type de l'intensité par pixel à l'intensité moyenne par pixel sur toutes les images, peuvent être approximés à partir des caractéristiques du détecteur (gain, rendement quantique, etc.) fournies par le constructeur. Dans la thèse de Zhang [2015], le bruit d'image d'un autre détecteur, la VHR de Photonic Sciences, codée sur 12 bits, a été également caractérisé, avec des conclusions similaires. Zhang et al. [2017] fournissent également des résultats quantitatifs quant à l'impact des erreurs de calibration sur les valeurs des contraintes estimées à partir de l'analyse des images de Laue.

La qualité de l'analyse des images de microdiffraction Laue dépend intimement de la précision avec laquelle est décrit l'arrangement géométrique des différents éléments du montage. Si l'on cherche par exemple à estimer une contrainte avec une incertitude de l'ordre de 10 MPa dans un échantillon d'acier, i.e. une résolution adaptée aux études micromécaniques, il est assez aisé de vérifier qu'une précision de ~ 0.1 pixel sur la position des taches de Laue sur le détecteur est nécessaire. Cela n'est atteignable que si les paramètres de calibration, X_{cen} , Y_{cen} , D , β , et γ , qui déterminent la position faisceau incident par rapport au détecteur, sont connus précisément, par exemple avec une précision de l'ordre de quelques microns pour D [Hofmann et al., 2011, Poshadel et al., 2012]. Avant toute mesure, le montage expérimental doit donc être caractérisé avec précaution.

Dans cette partie, nous allons décrire les trois étapes successives d'alignement :

- alignement du microscope optique et du faisceau incident,
- positionnement de l'échantillon dans le faisceau, et
- détermination des 5 paramètres de calibration.

Nous nous intéressons uniquement à l'alignement du montage de Laue, i.e. nous ne décrivons pas le réglage de l'ensemble des éléments optiques de la ligne, depuis la source primaire synchrotron jusqu'à la sortie des miroirs de KB.

3.2.5.1 Alignement du microscope optique

Une des difficultés dans l'utilisation des rayons X provient du fait qu'il n'existe aucun capteur permettant de voir à la fois l'échantillon (lumière visible) et le faisceau (rayons X). Une solution classiquement utilisée consiste à transformer le faisceau X en lumière visible, par exemple à l'aide d'un cristal fluorescent, ce qui permet de l'imager à l'aide d'un microscope optique.

Dans le montage de Laue de la ligne BM32, le microscope optique est un élément important

dans l'alignement du faisceau et de l'échantillon. En effet, les positions du microfaisceau et de l'échantillon sont réperées dans le plan focal du microscope. L'axe optique du microscope est à environ 50° du faisceau incident, et lorsque le zoom est au maximum, la profondeur de champ est de $\sim 1\mu\text{m}$. Une fine lame monocristalline de YAG (Yttrium Aluminium Garnet, $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$, généralement dopé), d'épaisseur $5\mu\text{m}$, est dans un premier temps positionné sur le porte échantillon. Eclairé par les rayons X, le YAG fluoresce dans le domaine du visible. Aux énergies du faisceau incident (5–25 keV), la longueur d'atténuation des rayons X dans le YAG varie entre $10\mu\text{m}$ et $300\mu\text{m}$, i.e. une longueur largement supérieure à l'épaisseur de la lame utilisée. La source de lumière visible inclue le point O , intersection du faisceau incident et de la surface du YAG, mais on ne peut négliger la contribution de l'épaisseur de la couche de YAG, et la diffusion de lumière dans celui-ci. Il est alors possible, en translatant le microscope selon les trois directions de l'espace, de repérer la position approximative de ce point O . Cette première opération est relativement simple à mettre en œuvre, mais on préférera toujours la confirmer à l'aide de la deuxième méthode décrite ci-dessous, plus précise, permettant notamment de s'affranchir de l'incertitude (quelques μm) associée à la profondeur de pénétration du faisceau dans le YAG.

Un second échantillon modèle est utilisé. Il est constitué de lignes et/ou de plots de Au ou de Cu, de faible épaisseur (dépôt de quelques dizaines de nanomètres), déposés sur un substrat de Ge ou de Si de taille millimétrique. La taille latérale de lignes/plots est de quelques (dizaines de) microns (figure 3.9). Cet échantillon étant relativement facile à manier, il est d'ailleurs en général collé sur les 'vrais' échantillons d'étude afin de vérifier régulièrement le bon alignement du montage. L'échantillon modèle est cette fois-ci observé à la fois par le microscope optique et par un détecteur de fluorescence (5 – 25 keV Rontec X-Flash 10 mm²) positionné sur le côté. L'échantillon est déplacé devant le faisceau dans une direction perpendiculaire au bord de la ligne ou du plot, avec un pas fin (les moteurs de translation ont une précision de $\sim 100\text{nm}$). Les seuils de fluorescence des lignes/plots et du substrat étant très différents, il est très facile de repérer la position à laquelle le faisceau commence à illuminer les lignes/plots. La courbe obtenue (figure 3.10) a la forme d'une sigmoïde, de front montant ou descendant selon que l'on rentre ou que l'on sorte des lignes/plots. L'ajustement de cette courbe avec un modèle basé sur la convolution de la distribution latérale d'intensité (gaussienne) dans le faisceau avec une fonction de Heaviside permet d'obtenir deux informations importantes : la position relative du flan et du faisceau de rayons X, et la dimension latérale du faisceau selon la direction de déplacement de l'échantillon. L'opération est réalisée selon deux directions orthogonales, et, en repérant simultanément les flans des lignes/plots avec le microscope optique, la position précise, au micron prêt, du point O peut être déterminée dans un repère attaché au microscope. Avec cette méthode, l'épaisseur des lignes/plots déposés étant très faible, la pénétration du faisceau dans l'échantillon modèle n'ajoute pas d'incertitude.

La taille de faisceau avec le montage actuel de BM32, utilisé pour l'ensemble des données de cette thèse, est au mieux de $700 \times 300\text{nm}^2$ (H×V). Avec l'ancien montage, qui a été utilisé pour les données sur l'UO₂ implanté (chapitre 7), la taille de faisceau était plutôt de l'ordre de $3 \times 2\mu\text{m}^2$.

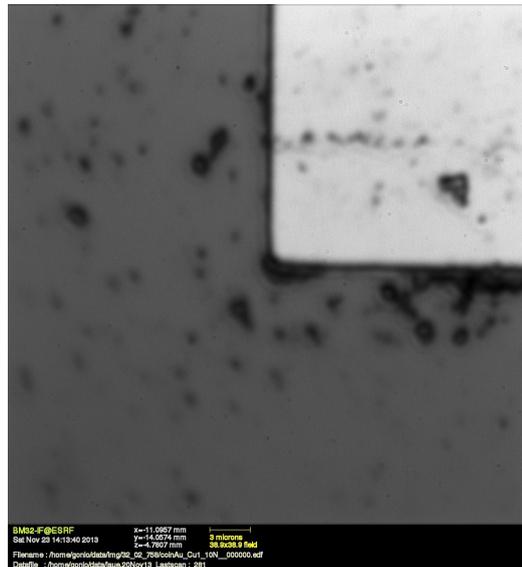


FIGURE 3.9 – Image au microscope optique d’un plot d’Au (en gris clair sur l’image) sur Ge (gris foncé). La taille de l’image est $\sim 40 \times 40 \mu\text{m}$.

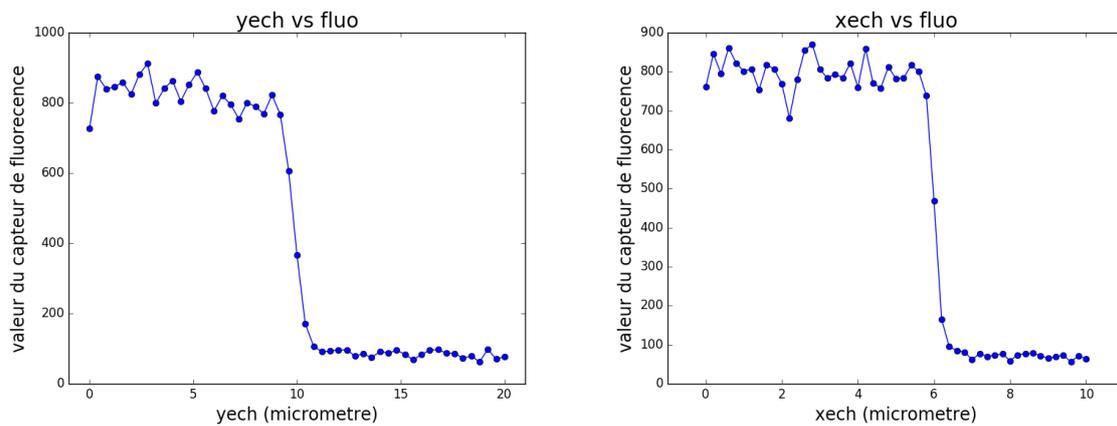


FIGURE 3.10 – Intensité mesurée par le détecteur de fluorescence en fonction de la position de l’échantillon portant le marqueur de Cu/Au, cf. figure 3.9. Le fit de cette courbe par une fonction sigmoïde permet d’estimer la taille latérale du faisceau de rayons X dans la direction du scan. La taille est ici de $1.11 \mu\text{m}$ selon y et $0.37 \mu\text{m}$ selon x (données issues de l’expérience de F.Grennerat, avril 2013.)

3.2.5.2 Mise en place de l'échantillon

Le positionnement de l'échantillon selon la direction \vec{z}_{ss} , qui est généralement la normale à la surface d'observation, est réalisé à l'aide du microscope optique : il suffit de déplacer l'échantillon selon \vec{z}_{ss} de façon à observer une image nette de la surface sur le microscope. Le point O est alors contenu dans la surface de l'échantillon, avec une précision de l'ordre du micromètre correspondant à la profondeur de champ du microscope optique.

D'un autre côté, il est important de pouvoir positionner le faisceau X précisément sur des zones de la surface de l'échantillon qui ont été définies à l'avance – des zones d'intérêt (ZOI) – par exemple en laboratoire lors d'observations en Microscopie Electronique à balayage (MEB) et/ou par EBSD. Une des difficultés provient de la nécessité de pouvoir retrouver rapidement et simplement cette ZOI sur la ligne synchrotron. La solution qui a été testée à plusieurs reprises, et qui fonctionne bien, consiste à prendre des points de repères sur la surface de l'échantillon, en laboratoire, puis à mesurer précisément la position des ZOI par rapport à ces points de repères, par exemple à l'aide de translations de l'échantillon en MEB. L'idée est d'utiliser comme points de repères des marqueurs qui soient facilement visibles à la fois en MEB, en microscopie optique, ainsi qu'en rayons X. La visibilité en MEB et en microscopie optique permet leur repérage en MEB en laboratoire et sur la ligne avec le microscope de la ligne. La visibilité en RX n'est pas strictement nécessaire, mais elle apporte de la confiance dans les mesures qui seront réalisées par la suite ; en effet, si les marqueurs sont petits et positionnés proches de la ZOI, alors les erreurs dans la position absolue de la ZOI seront moindres, car les déplacements de l'échantillon sur la ligne synchrotron, depuis les marqueurs, seront petits.

Comme solutions de marqueurs, il avait été testé, avant ce travail, des dépôts épais ($\sim 1\mu\text{m}$) d'or. Ces dépôts sont bien visibles en MEB, plus difficilement en MO. Ils sont visibles en RX avec leur rayonnement de fluorescence. Mais la dimension latérale des plots était trop grande (quelques dizaine de microns), et le signal de fluorescence pas assez contrasté ; le positionnement latéral de l'échantillon était finalement peu précis ($5\text{-}10\mu\text{m}$).

Au cours du présent travail, nous avons utilisé deux autres techniques (figure 3.11). La première, simple à mettre en œuvre, consiste à faire de petites marques d'indentation dans l'échantillon (taille de l'empreinte $\sim 10\mu\text{m}$). Le détecteur de fluorescence est positionné à peu près dans le plan de l'échantillon, et l'échantillon est déplacé dans le faisceau X. Lorsque le faisceau tape en dehors de la marque d'indentation, on observe sur le détecteur le rayonnement de fluorescence de l'échantillon. Mais lorsque le faisceau atteint la marque d'indentation, le signal de fluorescence est piégé dans le trou ; pour être visible dans le détecteur, il doit traverser une épaisseur non-négligeable de l'échantillon. On observe alors une nette chute de l'intensité dans le détecteur (figure 3.11). La même technique a ensuite été améliorée en utilisant des empreintes mieux contrôlées : des trous borgnes, d'une profondeur de $30\mu\text{m}$, d'un diamètre de $8\mu\text{m}$, et orientés à 40° de la surface de l'échantillon pour être parallèle au faisceau incident. Ces trous ont été percés en FIB (figure 3.12). Les empreintes de micro-dureté offrent une solution peu onéreuse et simple à mettre en œuvre ; elles permettent une précision dans le positionnement latéral de l'échantillon de $\sim 2\text{-}3\mu\text{m}$. Les trous FIB sont plus compliqués à réaliser. La résolution en positionnement est meilleure ($\sim 1\mu\text{m}$).

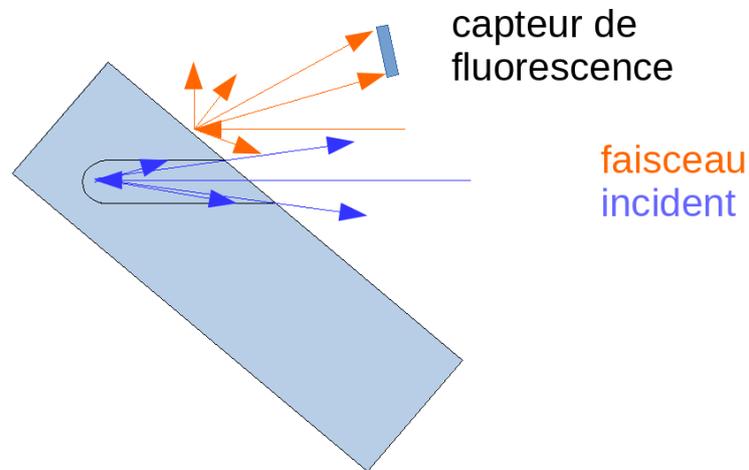


FIGURE 3.11 – Illustration de l’effet d’un trou dans la surface de l’échantillon sur le signal de fluorescence. Si le faisceau incident est dans la position "bleu", alors les rayons X émis par la fluorescence de l’échantillon doivent traverser une épaisseur de matière pour atteindre le détecteur de fluorescence, ils seront donc absorbés.

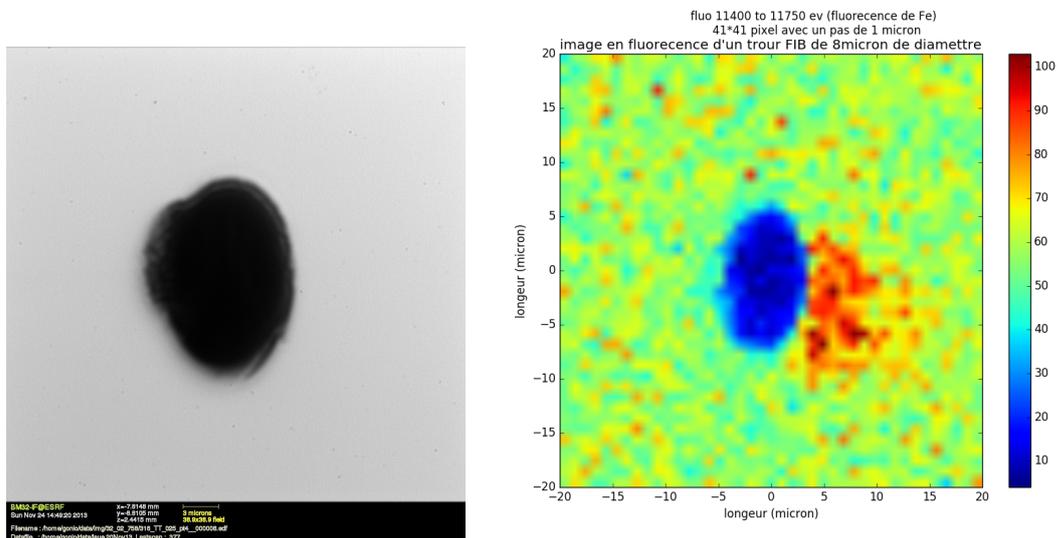


FIGURE 3.12 – (haut) (gauche) Image MEB d’un trou (diamètre 8 μm) creusé par un faisceau d’ion dans un acier austénitique 316L, et (droite) image en fluorescence du trou, obtenu sur la ligne BM32 [Plancher, 2015].

3.2.5.3 Calibration du montage de Laue

Nous avons vu à la section 3.2.2 que 5 paramètres de calibration, X_{cen} , Y_{cen} , D , β , γ , sont nécessaires pour décrire la position du point O et la direction \vec{y}_b du faisceau incident dans l'espace, par rapport au détecteur. On remarquera que, dans le cas général, il faut 6 paramètres (3 rotations et 3 translations) pour définir la position et l'orientation d'un objet dans l'espace ; ici, il nous manque l'information sur la rotation du détecteur autour du faisceau, qui est inutile (invariance). Il est par contre important de définir complètement l'orientation de l'échantillon (repère 's') par rapport au détecteur (repère 'd') à l'aide de 3 rotations, par exemple via 3 angles d'Euler.

Pour déterminer précisément ces 5 paramètres de calibration, l'idée est d'utiliser un échantillon pour lequel la maille cristalline est connue avec une grande précision, comme par exemple un monocristal de Si ou de Ge non-contraint. Sur Si par exemple, le paramètre de maille est connu jusqu'à la sixième décimale. Une telle précision requiert évidemment une température stable et bien définie, et l'absence de contraintes mécaniques appliquées au cristal (lors de son maintien par exemple).

Le cliché de Laue mesuré avec un tel échantillon, i.e. la position des taches de Bragg sur la surface du détecteur, dépend alors de 8 paramètres : les 5 paramètres de calibration, et les 3 angles donnant l'orientation du cristal. Il s'agit alors de déterminer ces 8 paramètres de façon à obtenir une parfaite coïncidence entre le cliché de Laue mesuré et le cliché théorique calculé en fonction de la géométrie du montage et du spectre d'énergie du faisceau. Le logiciel LaueTools [LaueTools], développé par les membres de la ligne BM32 permet cet ajustement de façon semi-automatique (fig. 3.13). Il faut en premier lieu trouver une solution initiale à la main, qui s'approche raisonnablement du cliché mesuré. Cette solution initiale est alors utilisée dans un algorithme de minimisation. La solution est en théorie unique, et 4 taches de Laue indépendantes¹ sont en principe suffisantes pour la calibration. Cependant, les données sont inévitablement entachées d'erreurs (bruit de photons, niveaux d'intensité discrets et non continus, distorsion de grille du détecteur, taille des pixels, ...). En pratique, on considère au minimum 20-30 taches de Laue pour cette étape de calibration. Les thèses de Ibrahim [2015] et Zhang [2015] ont montré l'importance de considérer un nombre de taches le plus grand possible tout en veillant à leur bonne répartition sur l'ensemble de la surface du détecteur.

Avec cette procédure, la précision obtenue sur les paramètres de calibration est de 0.005° pour β et γ , $4. \mu\text{m}$ pour D , d'environ 0.1 pixel pour X_{cen} et Y_{cen} .

3.3 Montage de DAXM

La DAXM est une extension de la technique de microdiffraction Laue standard permettant la cartographie en profondeur des microstructures [Robach et al., 2014]. Elle consiste à déplacer un fil métallique absorbant entre l'échantillon et le détecteur 2D de façon à absorber les rayons X diffractés par l'échantillon. Par triangulation, on peut alors remonter à la localisation en profondeur de la source émettrice de rayons X (figure 3.14). Dans cette section, nous introduisons

1. La position de chaque tache est donnée par ses deux coordonnées X_{cam} et Y_{cam} , soit 8 données au total avec 4 taches pour 8 paramètres à déterminer.

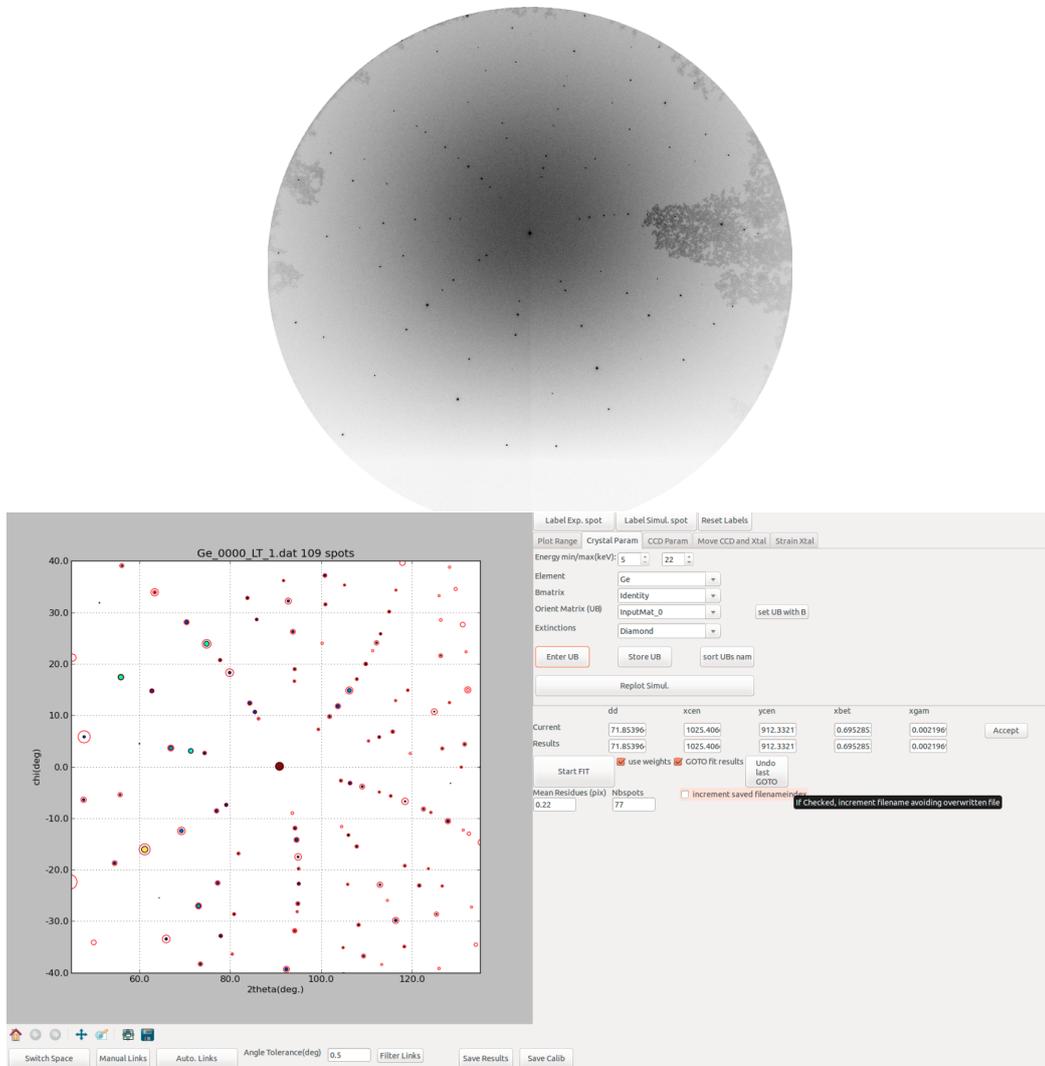


FIGURE 3.13 – (haut) Diagramme de Laue obtenue sur un cristal de Ge. (bas) Copie d’écran du logiciel LaueTools, dans l’environnement correspondant à la calibration. Les disques pleins indiquent la position mesurée des taches de Laue pour Ge, et les cercles la position calculée après ajustement des 5 paramètres de calibration β , γ , D , X_{cen} , et Y_{cen} (ainsi que des 3 angles d’orientation du cristal)

les éléments géométriques du montage, et nous décrivons le montage expérimental que nous avons conçu et utilisé dans ce travail.

3.3.1 Géométrie

Pour la mise en œuvre pratique de la DAXM, on a besoin de compléter la géométrie du montage de Laue classique décrite ci-dessus (section 3.2) par les paramètres décrivant la géométrie, la position, l'orientation, et la direction de translation du fil absorbant.

On supposera dans ce travail que le fil est un cylindre plein parfait², d'axe \vec{f} et de rayon R (figure 3.14). En particulier, nous le supposons parfaitement rectiligne ce qui, du point de vue expérimental, demande qu'il soit sous tension. Pendant les expériences, on a besoin de translater le fil dans une direction proche de l'orthogonale à \vec{f} . On considérera que ce mouvement de translation est parfaitement rectiligne, et on appelle \vec{u} la direction de translation (figure 3.14).

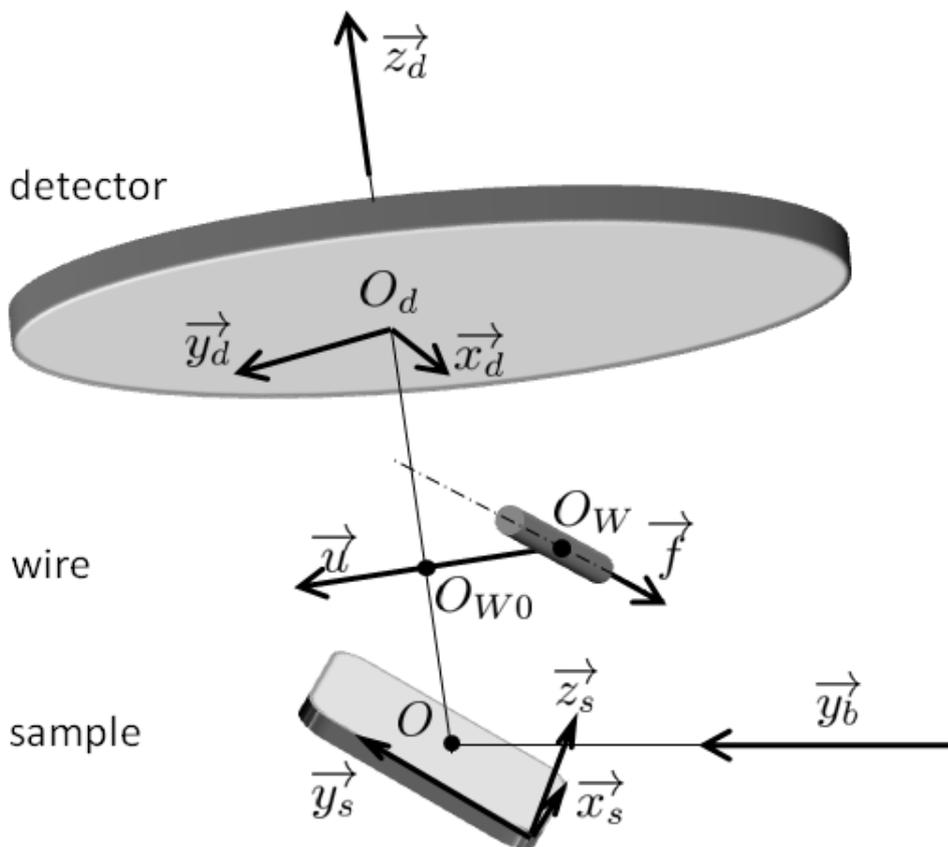


FIGURE 3.14 – Géométrie du montage de DAXM : orientation \vec{f} , et direction de translation \vec{u} du fil absorbant de rayon R .

Pour définir la position du fil, on utilise un point noté O_W , situé sur l'axe du fil. Ce point est

2. Une tentative de prise en compte de la rugosité de surface sera présentée dans le chapitre 7

tel que

$$\overrightarrow{OO_W} = H\vec{z}_d + (p_w - p_{w0})\vec{u} \quad (3.4)$$

avec p_w la valeur courante de la position du moteur de translation du fil (indice w pour 'wire'), et p_{w0} un offset sur cette position tel que, lorsque $p_w = p_{w0}$, le vecteur $\overrightarrow{OO_W}$ devient colinéaire à \vec{z}_d . La distance entre les points O et O_W est alors appelée H . On appelle O_{W0} cette position particulière, i.e.

$$\overrightarrow{OO_{W0}} = H\vec{z}_d. \quad (3.5)$$

La valeur p_{w0} représente donc le décalage entre la position de référence du fil et le montage expérimental réel.

L'orientation du vecteur \vec{f} dans le repère détecteur est donnée par les deux angles δ et κ (figure 3.15)

$$\vec{f} = \begin{pmatrix} \cos \kappa \cos \delta \\ \sin \kappa \cos \delta \\ -\sin \delta \end{pmatrix}_d \quad (3.6)$$

alors que l'orientation du vecteur translation \vec{u} est donné par les angles η et ζ

$$\vec{u} = \begin{pmatrix} -\sin \zeta \cos \eta \\ \cos \zeta \cos \eta \\ \sin \eta \end{pmatrix}_d. \quad (3.7)$$

Ainsi, aux 5 paramètres de calibration de la microdiffraction classique s'ajoutent 6 autres paramètres définissant la position, l'orientation et le déplacement du fil : $p_w - p_{w0}$, H , δ , κ , η et ζ . Le setup standard correspond à un fil dans le plan horizontal et globalement orthogonal au faisceau incident, soit $\delta \simeq 0$ et $\kappa \simeq 0$, avec un vecteur déplacement dans le plan vertical contenant le faisceau incident, soit $\zeta \simeq 0$. Lors des expériences menées dans ce travail, nous avons utilisé deux géométries différentes, correspondant à $\eta \simeq 0^\circ$ (déplacement du fil parallèle au faisceau incident) ou bien $\eta \simeq 40^\circ$ (déplacement du fil parallèle à la surface de l'échantillon). Les avantages et les inconvénients de ces géométries seront discutés plus loin (section 4.4), en fonction de la précision souhaitée dans l'étape de reconstruction. Nous avons aussi utilisé plusieurs valeurs de H , qui est de l'ordre du millimètre.

3.3.2 Conception du montage mécanique

La DAXM requiert la mise en place d'un petit montage permettant le maintien et le déplacement précis du fil, au voisinage de la surface de l'échantillon. Une première version d'un tel montage avait été réalisée peu avant le début de ma thèse. Je l'ai amélioré, en modifiant les liaisons mécaniques entre les pièces, et en l'étendant à un système dit *multi-fils* qui permet de faire passer plusieurs fils parallèles simultanément, et qui puisse s'adapter à n'importe quel type d'échantillon ou de direction de scan (angle η). Les figures 3.16 et 3.17 montrent quelques vues de ce montage conçu avec le logiciel CATIA.

Pour la conception du montage, il a été nécessaire de tenir compte de la façon dont se déroule l'expérience, i.e. à la fois lors des mesures mais aussi pendant l'étape cruciale de calibration de la géométrie. Il s'agit en particulier de pouvoir positionner rapidement et précisément un fil de $\sim 50 \mu\text{m}$ de diamètre avec une précision sub-micronique.

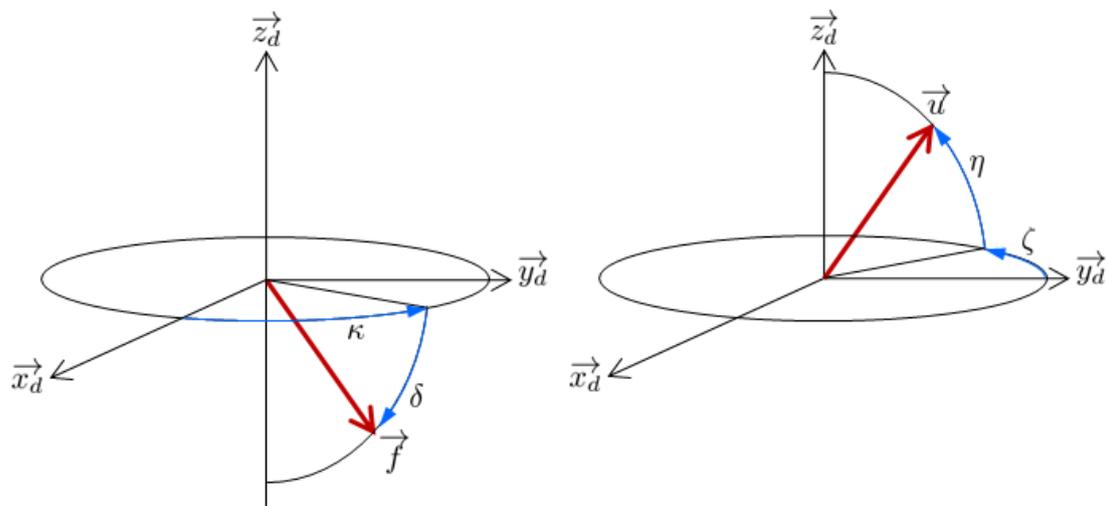


FIGURE 3.15 – Orientation des vecteurs \vec{f} (à gauche) et \vec{u} (à droite) dans le repère détecteur.

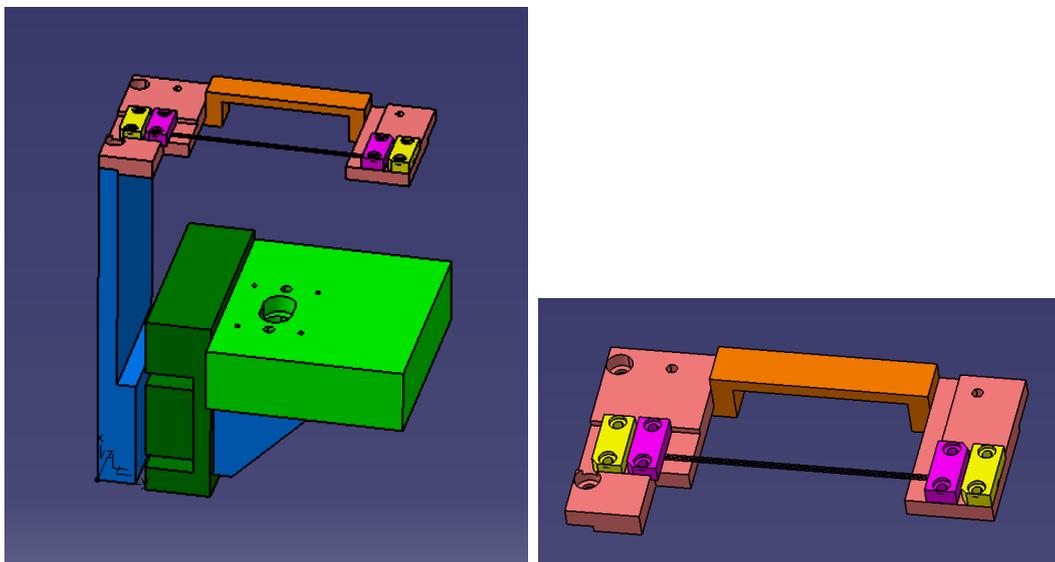


FIGURE 3.16 – (gauche) Vue d'ensemble du montage de DAXM, et (droite) zoom sur la raquette porte-fils. La machine d'essai mécanique se positionne au niveau du support de couleur verte.

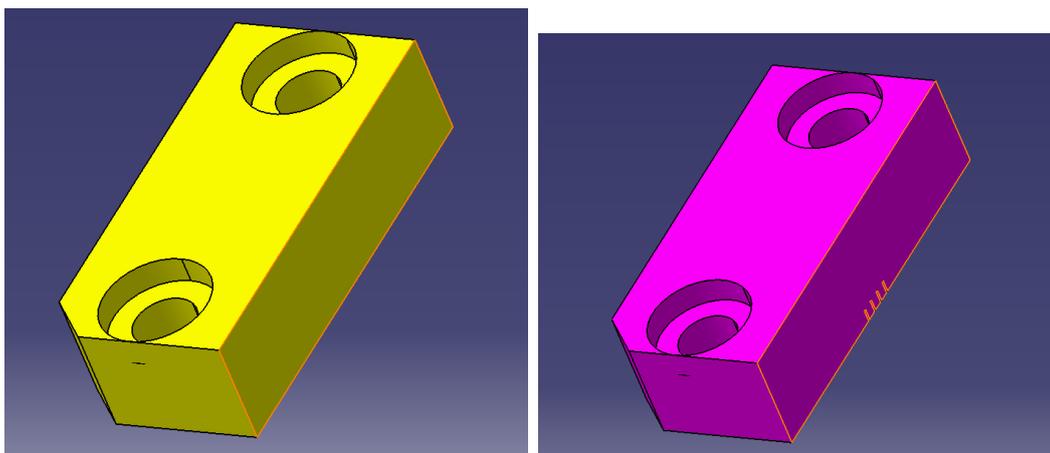


FIGURE 3.17 – Pièces de "fixation" (gauche) et de "guidage" (droite, ici pour 4 fils) des fils. On distingue en surbrillance orange l'extrémité des gorges de positionnement des fils.

La raquette porte-fils doit être montée sur deux platines de translation :

- la première translation a pour direction le vecteur \vec{u} , c'est celle qui permettra le scan avec le fil lors de l'expérience. On a besoin pour cela d'un moteur d'une précision de 100 nm voire mieux, avec une course de l'ordre de 15 mm.
- pour le réglage de la distance entre le fil et la surface de l'échantillon, i.e. de la distance H , une deuxième translation est nécessaire. Le mouvement correspondant est (aux erreurs de montage prêt) orthogonal à l'axe \vec{f} du fil et à la direction de scan \vec{u} . Une course du moteur de 5 mm s'est avérée suffisante.

La mise en place du montage par dessus l'échantillon s'est avéré être une étape délicate, surtout pendant les shifts de nuit, car le fil est quasiment invisible à l'œil nu, et il est fragile. Pour faciliter cette étape, j'ai opté pour une conception modulaire de la raquette, dans laquelle chaque pièce apporte une fonction unique. La raquette est donc composée de 9 pièces : une servant d'appui aux extrémités des fils, une autre pour leur guidage, une autre pour les fixer, et une dernière pour maintenir la tension des fils. Pour lier cette raquette et les moteurs cité précédemment on utilise une pièce elle aussi adaptable qui se présente généralement sous la forme d'une plaque verticale qui viendra se mettre en bout du porte échantillon du montage classique.

L'installation des fils dans la raquette se fait à la main, sur la paillasse de la ligne. Afin que les fils soient le plus rectilignes possible (hypothèse du modèle de reconstruction), ils doivent être fixés sous tension. Lors d'expériences mono-fil, la mise en place du fil se fait aisément. L'installation de plusieurs fils simultanés requiert un petit entraînement, mais s'est toujours bien passée au final.

Pour monter ces fils, on prend la raquette avec les deux pièces-guide montées. On passe alors les fils un par un dans les pièces-guide (attention à ne mettre qu'un seul fil par gorge et à mettre les deux bouts du fil dans la 'même' gorge). Puis on met en place une des pièces de "fixation". L'étape délicate consiste à maintenir une tension raisonnable³ des fils tout en les fixant avec la

3. i.e. suffisante pour avoir des fils tendus mais pas excessive pour ne pas les endommager.

deuxième pièce de 'fixation'⁴.

3.3.3 Tentative multi-fils

Dans un but de bénéficier d'une 'parallélisation' de la mesure, nous avons tenté pendant cette thèse de remplacer les quelques fils tendus par un réseau d'un grand nombre de fils. De tels réseaux existent sur le marché, par exemple des grilles pour la Microscopie Electronique à Transmission (MET). On trouve ainsi des grilles peu onéreuses (consommable pour la MET) avec 100, 200, 300, ... barreaux parallèles, de taille et de pas variés, en divers matériaux, disponibles par exemple chez Electron Microscopy Sciences. Il est difficile d'obtenir de la part des fabricants des informations sur la qualité géométrique de telles grilles. Mais la raison qui nous a fait nous détourner de cette solution est l'épaisseur des grilles de MET, en standard de $20.3\ \mu\text{m}$ (0.8 millième de pouce), qui est trop faible pour absorber une fraction importante des rayons diffractés. Même pour une grille élaborée dans un matériau fortement absorbant comme l'or ou le tungstène, le pouvoir absorbant d'une grille reste limité. Nous craignons que l'ombre du fil sur l'image de Laue ne soit pas assez contrastée par rapport au reste de l'image, et que cela entraîne des difficultés lors de l'étape de reconstruction (cf. chapitre 7). De plus, les grilles de MET sont généralement de forme ronde avec un diamètre extérieur de 3.5 mm, ce qui ne permet pas de reconstruire toute l'image avec un montage de DAXM standard comme celui mis en oeuvre. Nous avons donc tenté d'élaborer une grille sur mesure aux dimensions adaptées (figure 3.18) à partir d'une feuille de d' Au-Ni achetée chez Goodfellow, dont l'épaisseur de $50\ \mu\text{m}$ permet d'assurer une absorption efficace du faisceau incident (figure 3.18). Cette grille a été usinée par micro-usinage Laser par un usineur spécialisé (Vuichard, 74). Le résultat a hélas été décevant. Les barreaux, de section rectangulaire, se sont avérés n'être pas assez espacés pour une reconstruction en DAXM. Mais surtout, d'importants défauts géométriques sont apparus lors de l'usinage, en raison de l'état écroui de la feuille d' Au-Ni (une feuille recuite aurait été préférable mais plus difficile à manipuler par l'usineur). On observe sur la figure 3.19 des déplacements hors-plan des barreaux. Des déplacements transversaux importants ont aussi été observés. On notera enfin que la section rectangulaire des barreaux complique le calcul de position de l'ombre, développé dans le prochain chapitre (chapitre 4). L'utilisation d'une grille MET pour un montage de DAXM parallèle est certainement à considérer de nouveau au regard des résultats de ce travail.

3.4 Machine de flexion 4-points in-situ

Le but de cette thèse étant la mise en place de la DAXM sur la ligne BM32 de l'ESRF, et notamment d'un logiciel de traitement des données avec une estimation des erreurs de reconstruction, il était important d'avoir accès à des éprouvettes contenant un gradient maîtrisé de microstructure et/ou de contrainte. Concernant les gradients de contraintes, nous avons choisi de soumettre nos éprouvettes à des essais mécaniques in-situ. Un gradient maîtrisé de la déformation selon la profondeur d'une éprouvette peut être obtenu à l'aide d'un essai de flexion 4-points, si l'éprouvette ne présente pas de gradient de microstructure dans l'épaisseur, ou si son comportement mécanique est isotrope. Selon la théorie des poutres (valable dans le cas d'échantillons minces),

4. Cette opération nécessite l'assistance d'une deuxième personne.

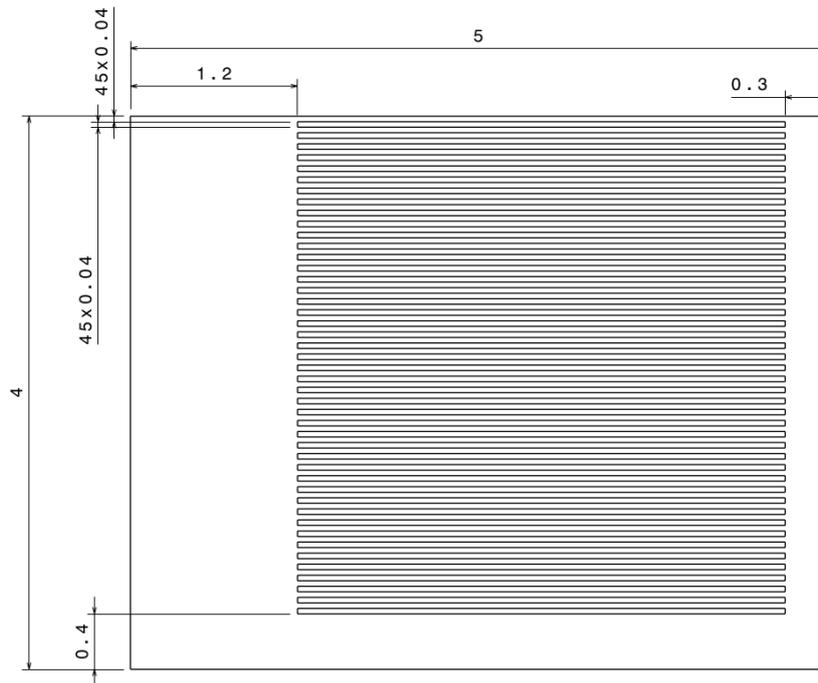


FIGURE 3.18 – Plan de la grille usinée (cotes en mm) employée pour la DAXM multi-fils.



FIGURE 3.19 – Photo en microscopie optique de la grille usinée. Les contraintes résiduelles présentes dans la feuille initiale, libérées par l’usinage, entraînent un déplacement vertical de certains barreaux, qui apparaissent flous sur l’image en raison de la faible profondeur de champ du microscope. Le déplacement vertical est de l’ordre de 5–10 μm .

le moment de flexion est constant entre les pions d'appuis, et la déformation élastique évolue linéairement avec l'épaisseur de l'éprouvette.

Un des objectifs du projet ANR Microstress était d'autre part la confrontation des mesures des déformations élastiques par microdiffraction Laue et par EBSD-HR (thèse de Emeric Plancher, [Plancher, 2015]), et pour que cette confrontation soit la plus pertinente possible, il était important qu'elle soit réalisée sur le même échantillon dans le même état mécanique.

J'ai ainsi largement participé à la mise au point d'une nouvelle machine de flexion 4-points, qui puisse être installée à la fois dans un MEB et sur la ligne BM32. Cette machine a été centrale dans la thèse de Plancher [2015], dans le cadre du projet ANR Microstress (voir les références Zhang et al. [2015], Plancher et al. [2016], et Plancher et al. [2017a]). Plusieurs expériences basées sur des essais in situ, utilisant cette machine, ont aussi été réalisés dans le cadre de ma thèse afin de tester et d'appliquer la DAXM, mais l'analyse de ces essais n'est pas finalisée et ils ne sont donc pas présentés dans ce mémoire⁵. Cette machine est décrite dans la section qui suit. Dans la section 3.4.2, nous rappelons les principales relations permettant l'exploitation des essais de flexion 4-points.

3.4.1 Conception du montage

Une première version du montage (figure 3.20) et de la conception en CAO (logiciel CATIA) avait été réalisée juste avant le début de ma thèse par deux stagiaires en fin d'études ENSAM (Y. Giroir et C. Giral). Mon travail a consisté essentiellement à reprendre leur proposition, à l'améliorer (notamment au niveau des guidages, de l'alignement mécanique des pièces, et de la conception globale pour une mise en place plus aisée et plus précise de l'échantillon). L'usinage et la mise en place d'un logiciel de pilotage (sous Labview) ont été essentiellement réalisés par l'équipe des Mines de St-Etienne (B. Allirand, G. Chauve, et J. Monnatte).

Le cahier des charges était donc le suivant :

- La machine devait pouvoir être installée facilement à la fois sur la ligne synchrotron BM32, et dans la chambre des MEB utilisés pour les analyses EBSD-HR. Cela impose des restrictions d'encombrement (notamment pour l'EBSD), de pouvoir travailler sous vide secondaire (EBSD), et l'utilisation de matériaux non-magnétique (EBSD).
- Elle devait pouvoir également accepter le fil pour la DAXM.
- L'essai mécanique devait conduire à des conditions de chargement bien maîtrisées : la géométrie de l'essai devait être respectée par le montage (parallélisme des pions, linéarité du guidage, etc.), le pilotage du chargement devait être précis. L'exploitation mécanique de l'essai nécessitait enfin la mesure de l'effort réellement appliqué à l'éprouvette, et le déplacement des pions ; ces mesures devaient s'affranchir au maximum des problèmes de rigidité de la machine.

5. Au cours de ma thèse, nous avons notamment réalisé des essais de flexion 4-points sur des échantillon de Al, Cu, et Si monocristallins, en DAXM. Ces essais avaient pour but de mesurer, sur des cas simples, la précision avec laquelle la DAXM permet de reconstruire le champ des déformations élastiques en profondeur dans le matériau (dans le domaine élastique, on sait que ce champ est linéaire avec la profondeur). D'autres expériences, n'incluant pas d'essais in-situ, ont aussi été réalisées en plus de celles présentées en annexe : (i) localisation des contraintes sur un alliage à base Ni, en collaboration avec P. Villechaise (Pprime), pour apporter une information complémentaire aux observations MEB. (ii) Déformation élastique d'un polycristal d'Al, en collaboration avec W. Ludwig, pour une confrontation avec les résultats obtenus par tomographie par contraste de diffraction (DCT).

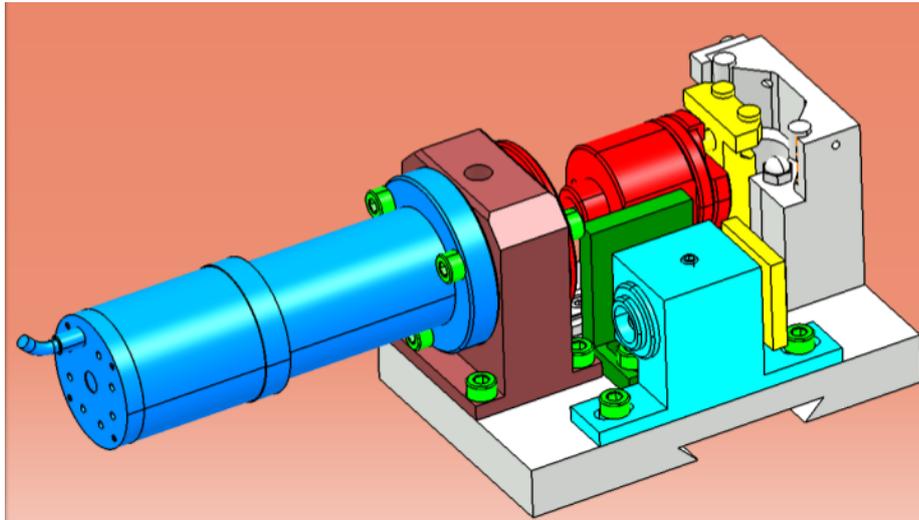


FIGURE 3.20 – Machine de flexion V2012

- Enfin, la machine devait être adaptée à des éprouvettes dont la taille est adaptée aux études EBSD-HR et microdiffraction Laue, i.e. d'une épaisseur de l'ordre du millimètre voire moins, et donc des efforts faibles (quelques dizaines de Newtons).

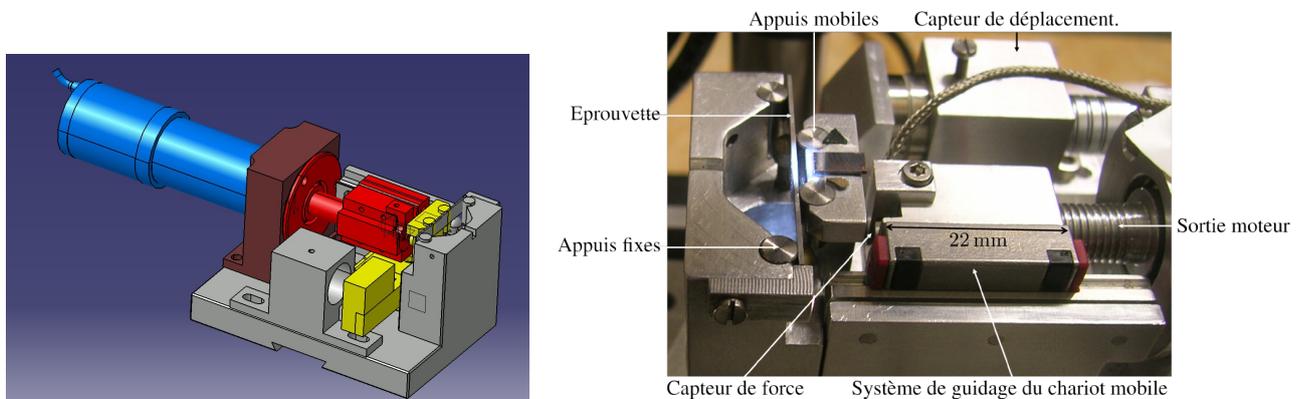


FIGURE 3.21 – Machine de flexion V2014

Le montage final est présenté sur la figure 3.21. La machine possède un encombrement faible ($148 \times 53 \times 44 \text{mm}^3$) et pèse $\sim 500 \text{g}$. Son positionnement sur le MEB (en position tiltée de 70° pour l'EBS) et sur les tables de translation de la ligne BM32 est assuré par une queue d'aronde sous la plaque support. Cela permet de déplacer la machine très facilement d'un poste d'observation (ex. Laue) à un autre (ex. microscope optique ou MEB) tout en maintenant l'éprouvette sous charge. Pour éviter les aberrations d'images lors de mesures en MEB, les matériaux utilisés sont essentiellement non-magnétiques.

La machine a été conçue de telle manière qu'aucune pièce ne dépasse (verticalement) de la surface d'observation, de façon à limiter les diffractions parasites lors de mesures synchrotron.

Une petite encoche a été usinée dans le bâti, entre les deux pions fixes et en regard du centre de l'éprouvette, de façon à laisser passer le faisceau X incident pour les analyses DAXM. La distance entre les deux pions centraux (mobiles) est de 9 mm, et celle entre un pion fixe et le prochain pion mobile est de 9 mm. La machine accepte des éprouvettes dont la hauteur maximale est de 5 mm.

La mise en charge est assurée par un moteur pas-à-pas (Phytron, 200 pas/tour, couple 9.2mNm), compatible avec les cartes utilisées en standard à l'ESRF⁶. Ce moteur est doté en sortie d'un réducteur (rapport de réduction 196 : 1 soit environ 40000 pas/tour).

La poussée du moteur est transmise à l'échantillon par l'intermédiaire d'un système vis-écrou classique (pas de 2mm, soit 51nm/pas moteur), la partie vis étant rigidement fixée à la sortie du réducteur. L'écrou est guidé en translation par rapport au bâti de la machine à l'aide d'un chariot à bille (Schneeberger), légèrement contraint, de manière à limiter au maximum les jeux dans le guidage. Les deux pions mobiles du montage de flexion sont montés sur une pièce guidée en translation par rapport au bâti par l'intermédiaire d'un deuxième chariot à bille, monté dans une rainure du bâti de manière à assurer la perpendicularité du déplacement des pions avec la grande face de l'éprouvette. La force appliquée à l'éprouvette est mesurée par un capteur d'effort placé directement entre l'écrou et les pions mobiles. Deux capteurs ont été achetés, de capacité 20 N et 200 N (Omega, résolution 0.5% de la charge nominal). L'effort mesuré intègre la force nécessaire au déplacement du chariot à bille supportant les pions mobiles; en effectuant des essais à vide, on a vérifié que l'effort de déplacement du chariot seul n'est pas mesurable avec les capteurs utilisés, car il est trop faible.

Le déplacement des pions mobiles par rapport au bâti est mesuré à l'aide d'un capteur capacitif (micro-epsilon), d'une course de 2 mm et d'une résolution statique de 1.5 nm (soit 0.03 pas moteur environ), placé sur le coté de l'éprouvette. Ce capteur peut être déplacé à la main lors d'un essai interrompu si une course plus grande est nécessaire.

Le pilotage de la machine, mis en place par J. Monnatte des Mines de St-Etienne, est assuré par une interface Labview, permettant le contrôle de la séquence de chargement, de la vitesse de déplacement des pions mobiles, et l'enregistrement de la force appliquée et du déplacement des pions (figure 3.22).

Différentes versions de la machine ont été utilisées pendant ce travail de thèse. Lors de la première utilisation (2013) pendant une expérience sur BM32 (thèse d'Emeric Plancher), on s'est aperçu d'un problème de guidage de l'écrou, et aussi d'une difficulté de manipulation lorsque l'on souhaitait changer le capteur de force. Pour remédier à ces défauts, j'ai modifié le montage selon la description donnée ci-dessus. Ce nouveau modèle a été utilisé lors de mes essais en 2014 et est encore utilisé à Saint-Étienne pour des essais en microscopie électronique à balayage.

3.4.2 Interprétation des essais

Afin de compléter la description technique de la machine de flexion, nous rappelons ici les relations utiles à l'exploitation des essais de flexion. La dérivation de ces relations est décrite en détails dans l'annexe C de la thèse de [Plancher \[2015\]](#), pour un comportement élasto-plastique

6. Il était initialement prévu d'intégrer le pilotage de la machine dans le système SPEC utilisé à l'ESRF pour le pilotage des lignes, afin de pouvoir intégrer des étapes de chargement mécanique dans les scripts de mesure. Finalement, cette option n'a pas vu le jour pour l'instant.

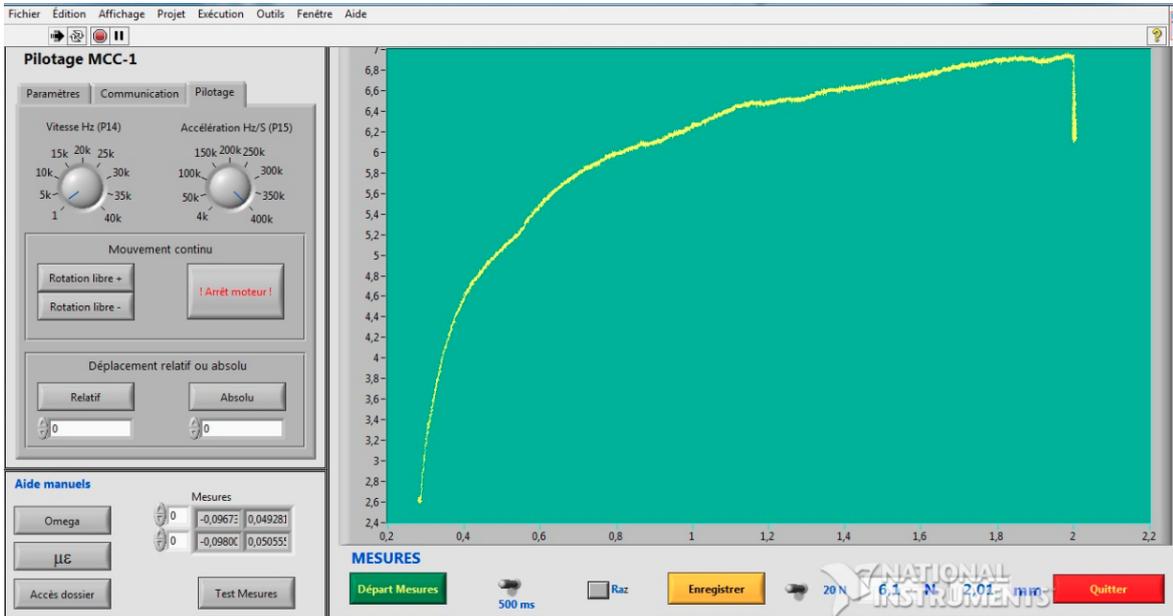


FIGURE 3.22 – Copie d’écran du logiciel de pilotage de la machine de flexion

avec écouissage linéaire. On rappelle ici uniquement les relations de base dans le cas d’un comportement élastique.

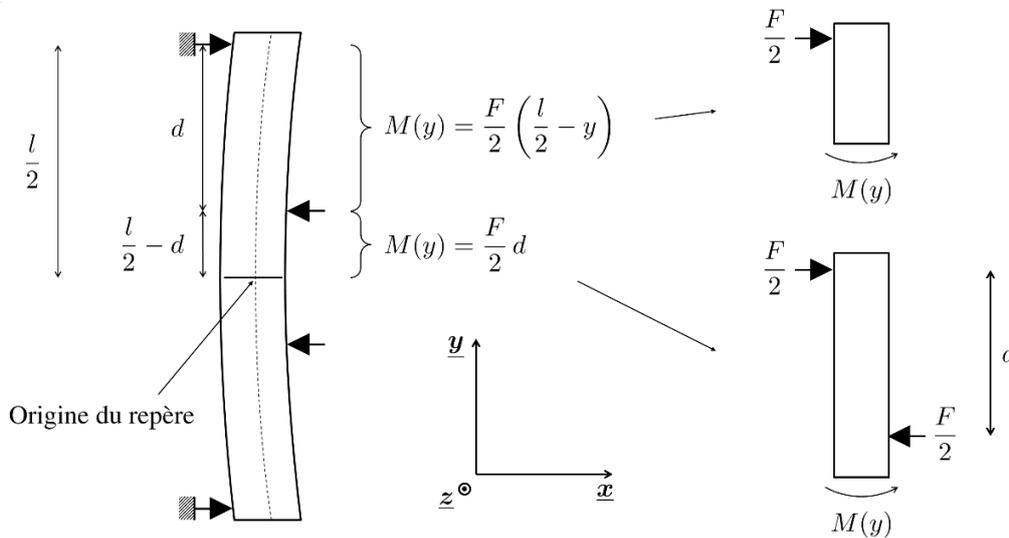


FIGURE 3.23 – schéma de l’essai de flexion, dans un repère $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$ indiqué.

Nous considérons l’essai de flexion 4-points, dans le repère $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$ indiqué sur la figure 3.23, et nous nous intéressons aux champs mécaniques dans l’éprouvette dans la zone centrale, entre les deux pions mobiles. On appelle e l’épaisseur de l’éprouvette (dimension selon \vec{x}), et b sa hauteur (selon \vec{z}). La distance entre les deux pions fixes externes est l , celle entre un pion fixe et le pion mobile est d ; celle entre les deux pions mobiles centraux est donc $l - 2d$ (sur notre

machine, $l = 27\text{mm}$, $d = 9\text{mm}$ et donc $l - 2d = 9\text{mm}$). Nous nous plaçons dans le cadre de la théorie des corps élancés (théorie des poutres), i.e. $e \ll l - 2d$. La force appliquée est F . On suppose que la microstructure de l'éprouvette est homogène. Le comportement de l'éprouvette, qui dépend de la microstructure (arrangement et forme des grains, texture cristallographique, ...) et du comportement mécanique local, est anisotrope, mais les axes d'anisotropies sont alignés avec les directions de l'essai \vec{x} , \vec{y} , et \vec{z} de manière à ne pas se placer dans des conditions 'hors-axes', i.e. afin que l'essai de flexion ne génère pas de déformation de cisaillement [Boehler and Sawezuk, 1977]. Nos applications concernent essentiellement des essais sur monocristaux, et donc l'orientation de ces monocristaux a été choisie judicieusement de façon à respecter cette hypothèse.

Dans ces conditions, l'état de contrainte local, dans la zone centrale, est un état de traction uniaxiale selon la direction \vec{y} , et il ne dépend pas de la position précise du point de mesure. La déformation élastique selon \vec{y} est donc

$$\varepsilon_{yy} = \sigma_{yy}/E_y, \quad (3.8)$$

où E_y est le module d'Young dans la direction \vec{x}_s . Le moment de flexion M dans la partie centrale est

$$M = \frac{Fd}{2}. \quad (3.9)$$

Le rayon de courbure R de l'axe neutre est donné par l'expression

$$\frac{1}{R} = \frac{3}{2} \frac{M}{b(e/2)^2 E}. \quad (3.10)$$

Le profil de contrainte selon l'épaisseur de l'échantillon varie alors linéairement avec la distance x à la fibre neutre

$$\sigma_{yy} = -\frac{E}{R}x \quad (3.11)$$

et le déplacement u_{pm} des pions mobiles est donné par la relation suivante

$$u_{pm} = \frac{5d^3}{be^3 E} F. \quad (3.12)$$

3.5 Bilan

Dans cette partie, nous avons décrit le montage de microdiffraction Laue utilisé sur la ligne BM32 de l'ESRF, ainsi que la procédure de calibration du montage. Nous avons également introduit la raquette porte-fil utilisée en DAXM, qui a été mise au point pendant cette thèse. Les paramètres géométriques, permettant le repérage complet de la géométrie (faisceau + échantillon + fil + détecteur) ont été définis. Nous avons également décrit la machine de flexion in situ qui a été conçue et fabriquée en parallèle de ce travail. Nous avons donc maintenant tous les éléments nécessaires pour formuler le modèle géométrique de DAXM, qui sera une brique importante du modèle complet, détaillé dans le chapitre suivant.

CHAPITRE 4

Modélisation de la DAXM

Sommaire

4.1	Introduction	53
4.2	Formulation du modèle général	54
4.3	Modèle géométrique	57
4.3.1	Point de vue détecteur vs. point de vue échantillon	58
4.3.2	Hypothèses géométriques	58
4.3.3	Cas d'une géométrie quelconque	59
4.3.3.1	Position de Y_f et Y_b , connaissant le pixel P (point de vue détecteur)	59
4.3.3.2	Position de P_f et P_b , connaissant la source Y (point de vue échantillon)	63
4.3.4	Cas d'une géométrie idéale	65
4.3.5	Solution approchée dans le cas d'une géométrie idéale	68
4.4	Sensibilité du modèle aux paramètres géométriques	69
4.4.1	Position et taille de l'ombre sur le détecteur	69
4.4.2	Position et dimension de la zone écrantée dans l'échantillon	70
4.4.3	Effet de la distance H	70
4.4.4	Synthèse de l'effet de la direction de translation du fil	73
4.4.5	Précision de la solution approchée	74
4.5	Conclusion	75

4.1 Introduction

Le but de la DAXM est d'introduire une troisième dimension dans les cartographies Laue. A partir de l'acquisition d'images de Laue pour plusieurs positions du fil (figure 2.8), on cherche à reconstruire des images de Laue pour chaque profondeur dans l'échantillon, avec un pas en profondeur qui dépendra des paramètres géométriques de l'expérience. Ces nouvelles images reconstruites pourront alors être traitées comme des images de Laue classiques afin de mesurer l'orientation des cristaux ou leur déformation élastique.

On cherche donc, dans un premier temps, à exprimer quelle est la contribution de chaque petit élément de volume de l'échantillon dans l'intensité totale reçue par un pixel du détecteur. Cela nous permettra d'estimer la distribution de l'intensité reçue par le pixel considéré en fonction de la profondeur du volume diffusant/diffractant dans l'échantillon. Ce volume diffusant/diffractant sera considéré comme une source secondaire interne à l'échantillon, et on supposera qu'il est entièrement localisé sur le trajet du faisceau incident. En fonction de sa position, le fil masquera – ou ne masquera pas – tout ou partie du faisceau réémis par la source secondaire.

La DAXM repose sur deux briques élémentaires.

1. Un *modèle géométrique* permettant le calcul de l'ombre du fil sur le détecteur. Etant donné que l'on cherche une résolution en profondeur plus petite que la profondeur de pénétration du faisceau dans l'échantillon, donc typiquement une résolution micrométrique, le modèle géométrique doit être précis ; en particulier, il doit tenir compte de toutes les imperfections géométriques du montage.
2. Un *modèle physique* traduisant l'intensité émise par la source secondaire en fonction de sa position le long du faisceau incident.

Lorsque le modèle physique est connu, alors la comparaison du modèle de DAXM avec des données expérimentales permet l'affinement des paramètres géométriques du montage. C'est l'étape de calibration, qui permettra de déterminer très précisément la position et la direction de déplacement du fil par rapport au détecteur. Cette étape sera détaillée dans le chapitre 5. Puis, une fois les paramètres géométriques déterminés, l'application du modèle de DAXM permet de reconstruire les images de Laue en fonction de la profondeur dans l'échantillon. Des exemples de réalisation seront présentés dans les chapitres 6 et 7.

Dans ce chapitre, nous mettons en place la formulation générale du modèle (section 4.2). Dans cette formulation, le besoin des modèles géométrique et physique apparaîtra. En section 4.3, la solution du problème géométrique est détaillée pour une géométrie quelconque du montage expérimental, puis dans le cas d'une géométrie simplifiée (mais restant proche de l'expérience). Nous fournissons également une version approchée (à l'ordre 0) du modèle géométrique, pour une estimation rapide des sensibilités expérimentales. Nous terminons ce chapitre (section 4.4) par une analyse de l'impact des paramètres géométriques sur les résultats escomptés.

En effet, même si un certain nombre d'articles scientifiques publiés présentent des résultats issus de la DAXM, nous avons été étonnés de ne trouver aucune référence bibliographique sur le détail du modèle utilisé. Seul le principe de la technique est (au mieux) présenté 2.3. L'objectif de cette section est donc de détailler la méthode, afin notamment de relever les approximations en vue d'une amélioration future.

4.2 Formulation du modèle général

Nous considérons (figure 4.1) un pixel P du détecteur, et nous nous intéressons à l'intensité reçue par ce pixel, en fonction de la position du fil. Le faisceau incident (de direction \vec{y}_b) se propage dans l'échantillon sur une certaine distance avant d'être complètement absorbé. Typiquement, la décroissance de l'intensité dans l'échantillon, le long du faisceau incident, est exponentielle. La matière de l'échantillon diffuse ou diffracte le faisceau incident, ou émet de la fluorescence.

On note O le point d'intersection du faisceau incident avec la surface de l'échantillon. Le fil se déplace dans la direction \vec{u} , et la variable p_w indique sa position lors de son déplacement, cf. équation (3.4). Pour une position p_w de fil donnée, et pour un pixel P donné, le fil écrante donc une partie du faisceau réémis par l'échantillon. On note Y_b et Y_f (les indices b et f sont pour *back* et *front*) les points intersections des droites, passant par P et tangentes au fil, avec le faisceau incident (figure 4.1). La position de ces points est repérée par les variables ξ_b et ξ_f (avec $\xi_b < \xi_f$), cf. équation (4.12).

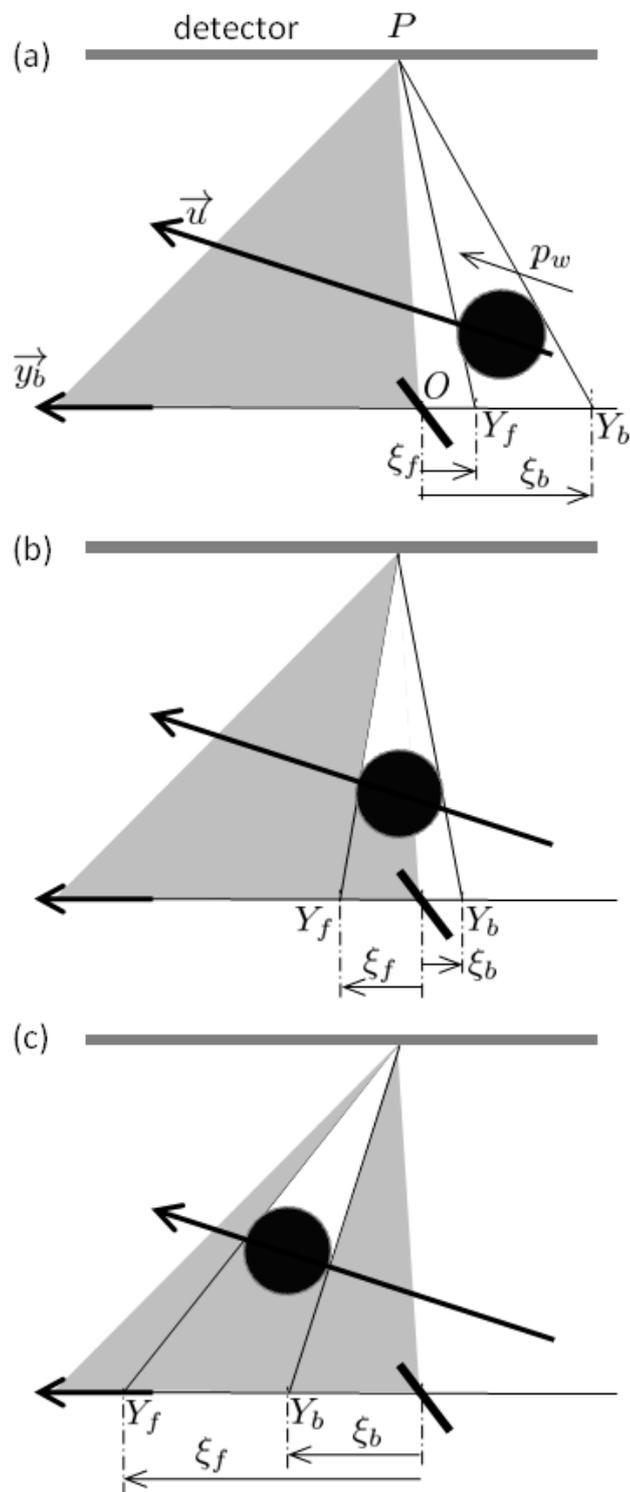


FIGURE 4.1 – Effet de la position p_w du fil sur la zone écartée par le fil dans l'échantillon, pour le pixel P . Trois positions de fil sont illustrées. Le point O correspond à la surface de l'échantillon, et \vec{y}_b est la direction de propagation du faisceau incident. Le trait épais en O symbolise la surface de l'échantillon. La direction de déplacement du fil est \vec{u} . La zone grisée correspond au lieu des rayons X réémis par l'échantillon vers le pixel P , et éventuellement absorbés par le fil. Sur cette figure, les échelles ne sont pas respectées.

Il apparaît que trois cas se dessinent.

- Lorsque la valeur de p_w est petite (figure 4.1a), alors les deux points Y_b et Y_f ne sont pas positionnés à l'intérieur de l'échantillon, mais dans l'air libre. Dans ce cas, le fil n'écrante aucun des faisceaux réémis par l'échantillon, pour le pixel P .
- A l'inverse, lorsque la valeur de p_w est grande (figure 4.1c), alors les deux points Y_b et Y_f se situent à l'intérieur de l'échantillon. Dans ce cas, le fil écrante tous les faisceaux réémis par l'échantillon entre les points Y_b et Y_f , pour le pixel P .
- Enfin, il existe un cas intermédiaire, celui pour lequel Y_b est dans l'air libre alors que Y_f se situe déjà à l'intérieur de l'échantillon (figure 4.1b). Dans ce cas, le fil n'écrante que les faisceaux réémis par l'échantillon entre les points O et Y_f , pour le pixel P .

D'après la figure 4.1, il est clair que (i) la position des points Y_b et Y_f dépend du pixel P considéré, et que (ii) la dimension de la zone écrantée, i.e. $\xi_f - \xi_b$, dépend de la position du fil. En d'autres termes, les valeurs de ξ_b et ξ_f dépendent de p_w et de P , i.e.

$$\xi_b = \xi_b(p_w, P), \quad \xi_f = \xi_f(p_w, P). \quad (4.1)$$

Pour formuler le problème, appelons $I_s(\xi, P)$ (indice s pour *source*) la densité d'intensité émise par la profondeur ξ dans l'échantillon, en direction du pixel P ¹. L'intensité totale reçue par le pixel P sera l'intégrale de toutes les intensités I_s émises par l'échantillon, donc depuis le point de surface O (pour lequel $\xi = 0$) jusqu'aux grandes valeurs de ξ , à laquelle il faut enlever les faisceaux écrantés par le fil. On appelle $S(p_w, P)$ l'intensité totale reçue par le pixel P lorsque le fil est à la position p_w . En supposant que le fil absorbe entièrement le faisceau réémis par l'échantillon, sur toute sa section², alors les trois cas décrit ci-dessus peuvent alors s'exprimer comme suit :

$$\text{si } \xi_b < \xi_f < 0, \quad S(p_w, P) = \int_0^{+\infty} I_s(\xi, P) d\xi, \quad (4.2)$$

$$\text{si } \xi_b < 0 < \xi_f, \quad S(p_w, P) = \int_{\xi_f}^{+\infty} I_s(\xi, P) d\xi, \quad (4.3)$$

$$\text{si } 0 < \xi_b < \xi_f, \quad S(p_w, P) = \int_0^{\xi_b} I_s(\xi, P) d\xi + \int_{\xi_f}^{+\infty} I_s(\xi, P) d\xi. \quad (4.4)$$

Ce sera le modèle général utilisé dans ce travail. Pour appliquer ce modèle, on voit donc que l'on a besoin des bornes d'intégration ξ_b et ξ_f , qui seront fournies par le modèle géométrique, et de la densité d'intensité I_s émise par l'échantillon, qui dépend intimement de la physique de l'interaction rayons X – matière (modèle physique).

L'étape de *calibration* du montage, qui est détaillée dans le chapitre 5, consiste à choisir un mode d'émission par l'échantillon suffisamment bien connu, pour lequel un modèle $I_s(\xi)$ peut être établi a priori. Le modèle complet de calibration peut alors être identifié sur les données expérimentales $S(p_w, P)$, permettant la détermination des paramètres géométriques du montage, i.e. des fonctions (4.1).

Une fois les fonctions (4.1) connues, le modèle peut être appliqué pour la *reconstruction* de la microstructure ou de la distribution des déformations élastiques en profondeur dans l'échantillon.

1. Plus précisément, $I_s(\xi, P)$ est l'intensité émise par unité de longueur de la source dans l'angle solide que forme la surface du pixel P pour la source supposée ponctuelle.

2. Une tentative de prise en compte de la transparence du fil est présentée dans le chapitre 7

Le principe consiste à utiliser les images $S(p_w, P)$ pour remonter à la fonction $I_s(\xi, P)$, sur l'ensemble des pixels P du détecteur, et pour toutes les profondeurs ξ . D'après les équations (4.2-4.4), $I_s(\xi, P)$ n'est en fait que la dérivée de l'intensité mesurée $S(p_w, P)$ par rapport à ξ . Cette dérivation devra cependant distinguer le cas pour lequel le point Y_b est dans l'air de celui pour lequel il est dans l'échantillon :

$$\text{si } \xi_b < 0 < \xi_f, \quad \frac{\partial S(p_w, P)}{\partial p_w} \frac{\partial p_w}{\partial \xi_f} = -I_s(\xi_f, P) \quad (4.5)$$

$$\text{si } 0 < \xi_b < \xi_f, \quad \frac{\partial S(p_w, P)}{\partial p_w} \frac{\partial p_w}{\partial \xi_f} = -I_s(\xi_f, P) + I_s(\xi_b, P) \frac{\partial \xi_b}{\partial \xi_f}. \quad (4.6)$$

Cela amène quelques commentaires :

- La dérivation ci-dessus fait intervenir le terme $\partial p_w / \partial \xi_f$, qui est purement géométrique, et qui peut être calculé à partir des relations que nous établirons dans la section 4.3. Ce terme a été introduit car les images de Laue sont enregistrées pour des valeurs discrètes de la position p_w du fil, et non pour des valeurs discrètes de ξ .
- Le dernier terme de (4.6) fait intervenir ξ_b . Nous verrons dans la section 4.3 que pour un pixel P et une position de fil p_w donnés, ξ_f et ξ_b sont parfaitement déterminés. Ainsi, ξ_b peut être exprimé comme une fonction de ξ_f . Il en résulte que ξ_f et P sont les seules variables des deux équations ci-dessus.
- Le cas $\xi_b < 0 < \xi_f$ de l'équation (4.5) apparaît plus simple à mettre en oeuvre que le cas $0 < \xi_b < \xi_f$ (équ. 4.6), car il n'introduit que la densité d'intensité I_s émise à la profondeur ξ_f , au lieu d'un mélange aux profondeurs ξ_f et ξ_b . On remarquera la présence d'un terme correctif $\partial \xi_b / \partial \xi_f$ qui traduit l'évolution de la taille de la zone écrantée en fonction de la position du fil.
- Enfin, les images sont entachées de bruit³ qui va inévitablement polluer le calcul de la dérivée $\partial S(p_w, P) / \partial p_w$. Dans le présent travail, nous n'avons pas approfondi le calcul de ces dérivées; nous nous sommes limités à une simple estimation par différence finies, i.e. à partir de la différence de deux images successives enregistrées aux positions p_w et $p_w + \delta p_w$, avec δp_w le pas du déplacement. Une part importante de ce travail de thèse a consisté en la mise en place de la DAXM sur la ligne BM32 de l'ESRF (travail aussi initié par Fanny Grennerat lors de son post-doctorat sur BM32 en 2013, pendant de la première année de ma thèse). Pour les études futures, il faudra certainement approfondir cette étape, un grand nombre de travaux ayant été dédiés à la dérivation de signaux ou d'images bruités, par ex. [Giovannelli and Idier, 2015].

4.3 Modèle géométrique

Dans cette section, nous allons donner une description *géométrique* de la position et de l'étendue de la zone écrantée par le fil.

3. Pour les détecteurs MARCCD et Photonic Science utilisés sur la ligne BM32, le bruit d'image est essentiellement dû au bruit de photons [Petit et al., 2015, Zhang, 2015, Zhang et al., 2017]. L'intensité suit alors une distribution de Poisson. Le bruit électronique responsable du Dark Field reste faible.

Nous allons considérer deux cas : nous allons tout d'abord établir les équations dans le cas général d'une géométrie quelconque (section 4.3.3). Puis, nous spécifierons ces équations dans le cas d'une géométrie 'idéale', pour laquelle le fil est perpendiculaire au faisceau incident, et le détecteur parallèle au fil et au faisceau (section 4.3.4), et nous formulerons la version approchée (au premier ordre) de ce modèle (section 4.3.5). Les vraies expériences sont en effet dans une géométrie proche de celle décrite par cette géométrie idéale ; cette situation, plus simple à mettre en oeuvre, nous permettra, dans la suite du manuscrit, d'identifier la sensibilité de la DAXM aux différents paramètres expérimentaux, et de définir le montage et le mode opératoire optimal selon l'application visée.

4.3.1 Point de vue détecteur vs. point de vue échantillon

La description de la géométrie du montage peut se faire selon deux points de vue, qui vont être développés dans les sections suivantes.

L'observateur peut se situer sur le détecteur (**point de vue détecteur**), au niveau d'un pixel. Il voit alors le fil passer devant l'échantillon. Pour certaines positions, le fil masque une partie de la source secondaire, diminuant d'autant l'intensité reçue. Cette vision permet le calcul du déplacement qu'il faut imposer au fil afin d'obtenir une *résolution en profondeur* donnée pour le pixel considéré. Nous verrons que la résolution en profondeur varie d'un pixel à l'autre, pour un même pas de déplacement du fil.

De manière symétrique, l'observateur peut se situer sur l'échantillon (**point de vue échantillon**), au niveau d'une source secondaire située au point Y . On peut alors calculer la position de l'ombre du fil sur la surface du détecteur, pour la source Y . Cette approche permet de calculer le déplacement de l'ombre en fonction du déplacement du fil, et donc d'optimiser le pas du fil en fonction de la *résolution en pixel* souhaitée. Tout comme pour le 'point de vue détecteur', nous verrons que la résolution exprimée ici dépend de la position de la source secondaire.

Évidemment, ces deux points de vue sont basés sur le même modèle géométrique, exprimé différemment. Les trois variables du modèle sont

- la position du fil,
- la position de la source secondaire, et
- la position du pixel considéré.

La connaissance de deux de ces positions permet, via le modèle géométrique, la détermination de la troisième. Les relations obtenues étant non-linéaires, il ne sera pas possible de définir la résolution de l'expérience, mais seulement d'en fournir une valeur moyenne, car la résolution dépend du pixel et de la profondeur considérés.

4.3.2 Hypothèses géométriques

Le modèle géométrique développé dans cette section est basé sur quelques approximations simples de la géométrie du montage⁴ :

1. Le fil absorbant est un cylindre parfait, i.e. parfaitement linéaire et de section circulaire. On note R le rayon du fil, et \vec{f} le vecteur unitaire parallèle à son axe (figure 3.14).

4. Sans tenir compte évidemment de tous les possibles artefacts expérimentaux tels que stabilité du faisceau, de la température, etc.

2. La calibration du montage de Laue (position du détecteur X_{cen} et Y_{cen} , distance faisceau-détecteur D , et orientation du détecteur β et γ) est connue.
3. La position du fil et sa direction de déplacement sont également connues.

Nous ne reviendrons pas sur ces approximations dans le cadre de ce travail. Les erreurs de calibration du montage de Laue, et l'incertitude sur la position exacte du fil, vont évidemment avoir un impact sur la localisation de la zone échantillonnée. Par manque de temps, l'étude de cette sensibilité n'a pas pu être menée. On notera également que la linéarité du fil n'est pas évidente à mettre en oeuvre expérimentalement. Il faut fixer sous tension le fil qui est fourni enroulé sur une bobine. Lors de nos expériences, nous avons vérifié au microscope optique la "bonne" linéarité du fil, mais nous n'avons pas procédé à une quantification de celle-ci. Il s'agit d'une estimation qu'il reste à mettre en place pour les travaux futurs. Néanmoins, en section 7.3, nous essaierons d'apporter un éclairage sur l'effet de la transmission du faisceau au travers du fil.

4.3.3 Cas d'une géométrie quelconque

Nous allons maintenant donner les expressions qui permettent de calculer la position et l'étendue de la zone de l'échantillon qui est échantillonnée par le fil. Nous nous plaçons dans le cas des hypothèses géométriques décrites ci-dessus, et nous ne faisons pas d'autre hypothèse supplémentaire quant à l'orientation du faisceau ou du fil par rapport au détecteur. C'est ce cas général qui sera utilisé dans l'analyse des expériences présentées dans ce manuscrit.

Les données du problème sont le rayon R du fil, son axe \vec{f} , ainsi qu'un point de référence O_W de l'axe du fil, dont la position est déterminée à partir de la position des moteurs de translation de la raquette porte-fil, cf. équation (3.4). Sur la ligne BM32, le montage est fait de telle manière à ce que \vec{f} soit quasi-parallèle au vecteur \vec{x}_d du repère détecteur. Nous choisissons de prendre le sens de \vec{f} identique à celui du vecteur \vec{x}_d (figure 3.14)⁵.

Le faisceau incident est évidemment connu, il est défini par une droite (O, \vec{y}_b) passant par le point O , point d'intersection du faisceau avec la surface de l'échantillon, et de direction \vec{y}_b .

4.3.3.1 Position de Y_f et Y_b , connaissant le pixel P (point de vue détecteur)

Nous allons dans un premier temps étudier le cas d'un observateur situé au niveau du détecteur ('point de vue détecteur'). Nous considérons donc un point P sur la surface du détecteur, correspondant au pixel d'intérêt (figure 4.2). Nous introduisons deux points Y_f et Y_b (les indices f et b sont pour 'front' et 'back') appartenant à la droite (O, \vec{y}_b) et tels que les droites (PY_f) et (PY_b) soient tangentes au fil. Le modèle géométrique détaillé ci-dessous a pour but de déterminer les coordonnées de ces deux points, connaissant P . En effet, pour le pixel P , les faisceaux de rayons X qui sont émis par l'échantillon (par fluorescence, diffusion, ou diffraction) dans le petit segment de droite $[Y_f Y_b]$ sont absorbés, au moins partiellement, par le fil. Ce segment $[Y_f Y_b]$ dépend évidemment du pixel P considéré, et de la position du fil.

Nous introduisons un plan, appelé plan π , contenant l'ensemble des faisceaux émis par l'échantillon et reçus par le pixel P . Ce plan passe par les points Y_f , Y_b , P , et donc il contient aussi le point O et le vecteur \vec{y}_b . La normale au plan π , notée \vec{n}_π , est perpendiculaire aux vecteurs

5. Ces deux vecteurs ne seront pas supposés parallèles, mais de sens similaire et non pas de sens opposé.

\vec{y}_b et \vec{OP} , elle a donc pour expression

$$\vec{n}_\pi = \frac{\vec{OP} \wedge \vec{y}_b}{\|\vec{OP} \wedge \vec{y}_b\|}. \quad (4.7)$$

La position du fil est donnée par le point W , défini par l'intersection de l'axe du fil (O_W, \vec{f}) avec le plan π . Le point W est donc défini par les relations suivantes

$$\vec{PW} = \vec{PO}_W + \iota \vec{f}, \quad \iota \in \mathbb{R}, \quad \text{et} \quad \vec{PW} \cdot \vec{n}_\pi = 0. \quad (4.8)$$

La distance ι s'obtient en remplaçant \vec{PW} dans la deuxième équation par son expression donnée par la première équation. On obtient alors la position du point W

$$\vec{PW} = \vec{PO}_W - \frac{\vec{PO}_W \cdot \vec{n}_\pi}{\vec{f} \cdot \vec{n}_\pi} \vec{f} \quad (4.9)$$

si \vec{f} et \vec{n}_π ne sont pas orthogonaux, ce qui le cas général expérimental.

Dans ce qui suit, nous allons détailler le calcul de la position du point Y_x (où x prend les valeurs f ou b). En effet, nous allons obtenir une équation du second degré à deux solutions, l'une pour Y_f et l'autre pour Y_b .

On introduit le point I_x , point de tangence entre la droite (PY_x) et la surface du fil, et le vecteur \vec{n}_x qui est orthogonal à la surface du fil au point I_x . Pour résoudre le problème, il faut commencer par exprimer \vec{n}_x . Ce vecteur est en fait la normale à un plan (noté τ) parallèle à l'axe \vec{f} du fil et à la droite (PY_x). On peut donc l'exprimer de la manière suivante

$$\vec{n}_x = \rho \vec{f} \wedge \vec{PY}_x, \quad \rho \in \mathbb{R} \quad (4.10)$$

avec ρ tel que

$$\vec{n}_x \cdot \vec{n}_x = 1. \quad (4.11)$$

Le point Y_x étant dans le faisceau direct, on a

$$\vec{OY}_x = \xi \vec{y}_b, \quad \xi \in \mathbb{R}. \quad (4.12)$$

On obtient alors

$$\vec{n}_x = \rho (\vec{f} \wedge \vec{PO} + \xi \vec{f} \wedge \vec{y}_b). \quad (4.13)$$

La condition de tangence du plan τ avec le cylindre en I_x se traduit par la relation

$$|\vec{WI}_x \cdot \vec{n}_x| = R, \quad (4.14)$$

qui s'écrit aussi, en décomposant $\vec{WI}_x = \vec{WP} + \vec{PI}_x$ et en notant que $\vec{PI}_x \cdot \vec{n}_x = 0$,

$$|\vec{PW} \cdot \vec{n}_x| = R. \quad (4.15)$$

Les équations (4.11), (4.13), et (4.15) forment un système à deux inconnues, ρ et ξ , qui permettent d'exprimer \vec{n}_x . En remplaçant (4.13) dans (4.11), on obtient

$$\rho^2 = \frac{1}{(\vec{f} \wedge \vec{PO} + \xi \vec{f} \wedge \vec{y}_b)^2} \quad (4.16)$$

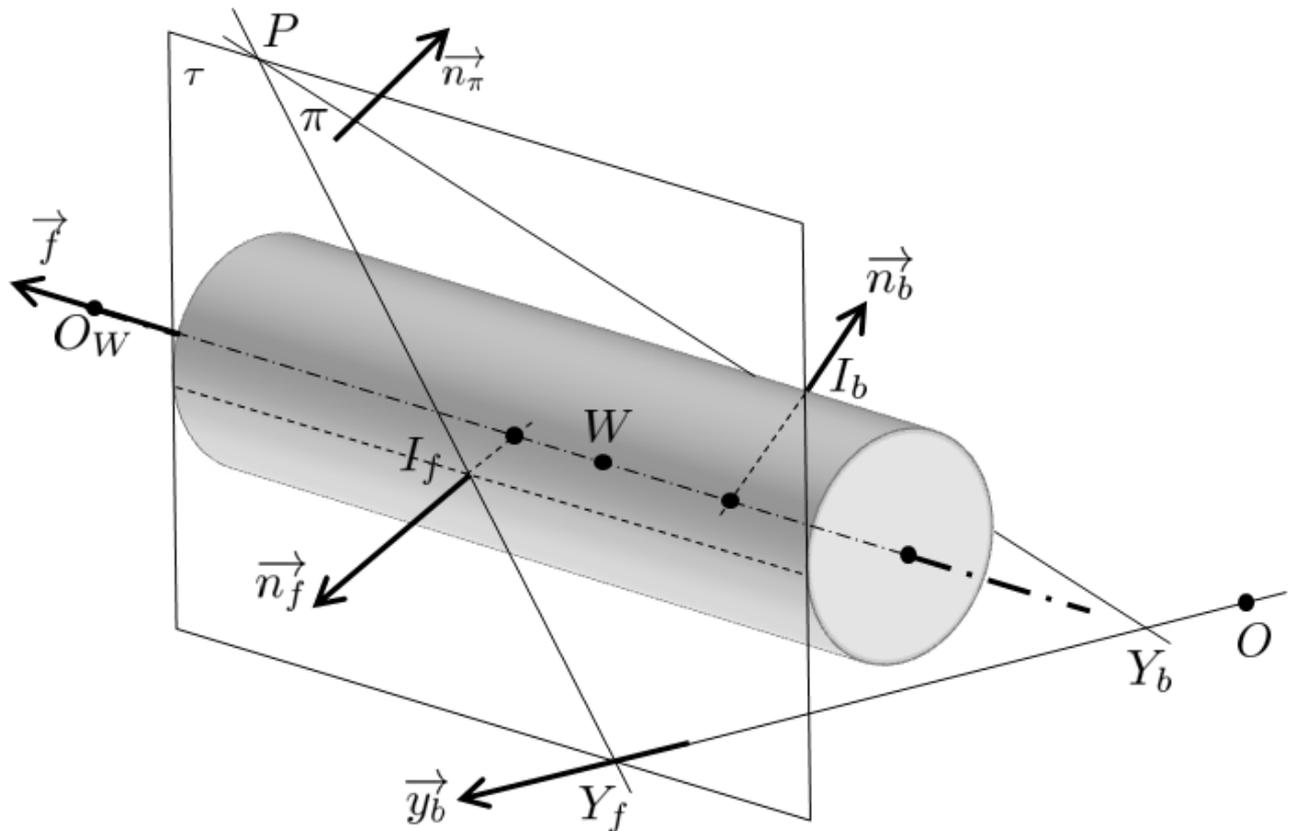


FIGURE 4.2 – Géométrie du montage de DAXM, schématisant le fil absorbant et son interaction avec les faisceaux de rayons X émis par l'échantillon. Le faisceau incident est parallèle au vecteur \vec{y}_b et passe par le point O . Le point P est un pixel du détecteur. Pour ce point, les faisceaux de rayons X émis par le petit segment de droite $[Y_f Y_b]$ sont absorbés par le fil. Les vecteurs \vec{y}_b , \vec{n}_f , \vec{n}_b , \vec{n}_π , et \vec{f} , sont unitaires. Les points I_f et I_b sont les points de tangence des droites (PY_f) et (PY_b) avec la surface cylindrique du fil.

où l'on note $\vec{u}^2 = \vec{u} \cdot \vec{u} = \|\vec{u}\|^2$. On choisit de prendre la racine positive de (4.16), soit

$$\rho = \frac{1}{\|\vec{f} \wedge \vec{PO} + \xi \vec{f} \wedge \vec{y}_b\|}, \quad (4.17)$$

le signe de ρ ne modifiant que le sens de la normale \vec{n}_x . Ensuite, dans l'équation (4.15), on remplace \vec{n}_x par son expression (4.13) en tenant compte de (4.17), et on obtient une équation non-linéaire en ξ

$$|a + b\xi| = R (\vec{B} \cdot \vec{B} \xi^2 + 2\vec{A} \cdot \vec{B} \xi + \vec{A} \cdot \vec{A})^{0.5} \quad (4.18)$$

avec

$$\begin{aligned} \vec{A} &= \vec{f} \wedge \vec{PO}, & a &= \vec{PW} \cdot \vec{A}, \\ \vec{B} &= \vec{f} \wedge \vec{y}_b, & b &= \vec{PW} \cdot \vec{B}. \end{aligned} \quad (4.19)$$

En prenant le carré de l'équation (4.18), on obtient une équation du second degré

$$(R^2 \vec{B} \cdot \vec{B} - b^2) \xi^2 + 2(R^2 \vec{A} \cdot \vec{B} - ab) \xi + (R^2 \vec{A} \cdot \vec{A} - a^2) = 0 \quad (4.20)$$

qui admet deux racines,

$$\xi = \frac{-R^2 \vec{A} \cdot \vec{B} + ab \pm \sqrt{\Delta}}{R^2 \vec{B} \cdot \vec{B} - b^2} \quad (4.21)$$

avec

$$\Delta = (R^2 \vec{A} \cdot \vec{B} - ab)^2 - (R^2 \vec{B} \cdot \vec{B} - b^2) (R^2 \vec{A} \cdot \vec{A} - a^2). \quad (4.22)$$

Ces deux valeurs correspondent aux deux points Y_f et Y_b . Par convention, on choisit $\xi_f > \xi_b$ (figure 4.2), de sorte que

$$\xi_f = \frac{-R^2 \vec{A} \cdot \vec{B} + ab + \sqrt{\Delta}}{R^2 \vec{B} \cdot \vec{B} - b^2}, \quad \xi_b = \frac{-R^2 \vec{A} \cdot \vec{B} + ab - \sqrt{\Delta}}{R^2 \vec{B} \cdot \vec{B} - b^2}. \quad (4.23)$$

En résumé, la position des points Y_f et Y_b est donnée par leur distance ξ_f et ξ_b au point O le long de la droite (O, \vec{y}_b) . La valeur solution de ξ est donnée par (4.21), dans laquelle il faut considérer la valeur $+\sqrt{\Delta}$ pour le point Y_f (i.e. ξ_f) et la valeur $-\sqrt{\Delta}$ pour le point Y_b (i.e. ξ_b). La solution utilise la position du point W qui est donnée dans (4.9), qui utilise (4.7) pour l'orientation du plan π et (3.4) pour la position du point de référence O_W du fil.

La longueur écrantée par le fil dans l'échantillon, que nous appellerons L_{scr} (*scr* pour 'screened') est la distance entre les points Y_f et Y_b , qui vaut donc

$$L_{scr} = \xi_f - \xi_b = \frac{2\sqrt{\Delta}}{R^2 \vec{B} \cdot \vec{B} - b^2}. \quad (4.24)$$

De manière pratique, cette distance est la longueur de reconstruction possible en n'utilisant que le bord avant du fil, cf. section 6.6.

4.3.3.2 Position de P_f et P_b , connaissant la source Y (point de vue échantillon)

Nous considérons maintenant le problème réciproque : nous allons chercher à savoir où se porte l'ombre du fil sur le détecteur pour un faisceau émis par une source secondaire Y dont la position dans le faisceau incident est connue.

Nous considérons donc (figure 4.3) une source secondaire ponctuelle positionnée en Y , sur la ligne du faisceau incident. Cette source étant supposée isotrope, elle va générer une ombre du fil sur le détecteur. La limite de cette ombre forme deux droites, l'une *front*, l'autre *back*, auxquelles appartiennent les points P_f et P_b . Nous cherchons donc à déterminer la position de ces deux droites. Cela permettra de savoir, par exemple, de quelle distance se déplace l'ombre du fil pour un déplacement de fil donné, en fonction de la position de Y .

Ce nouveau problème se résout en fait de manière similaire à celui exposé dans la section précédente. Une différence notable apparaît cependant : il n'y a plus deux points solutions comme précédemment (les points Y_f et Y_b), mais une infinité (les droites contenant tous les points P_f et P_b , intersection du plan tangent τ avec la surface du détecteur). Pour se ramener au problème précédent, nous allons tout d'abord déterminer deux points P_f et P_b particuliers. Pour cela, considérons un point particulier sur le détecteur et une direction parallèle à la surface du détecteur. Par souci de simplicité, nous choisissons comme point particulier le point O_d défini en section 3.2.3, mais n'importe quel autre point de la surface du détecteur pourrait être utilisé. La direction choisie est appelée \vec{u}_d , elle est quelconque dans le plan du détecteur (on pourra par exemple prendre $\vec{u}_d = \vec{y}_d$ pour les applications concrètes). Nous allons chercher les points P_f et P_b , positionnés sur la surface du détecteur, appartenant à la droite (O_d, \vec{u}_d) , et tel que les droites (YP_f) et (YP_b) soient tangentes au fil. On peut alors définir un plan Π , parallèle au vecteur \vec{u}_d et passant par les point O_d et Y , et dont la normale est appelée \vec{n}_Π . L'intersection de ce plan avec l'axe du fil est un point W . Enfin, on peut encore définir deux plans τ , tangents au fil et passant par Y , et donc contenant le faisceau (YP_f) pour l'un et (YP_b) pour l'autre.

De manière similaire à la section précédente, remplaçons maintenant par x les indices f et b , afin d'obtenir une solution générique. La normale \vec{n}_x au plan τ peut s'exprimer de la façon suivante

$$\vec{n}_x = \varrho \vec{f} \wedge \overrightarrow{YP_x}, \quad \varrho \in \mathbb{R} \quad (4.25)$$

avec ϱ tel que

$$\vec{n}_x \cdot \vec{n}_x = 1. \quad (4.26)$$

Définissons ensuite la position du point P_x par

$$\overrightarrow{O_dP_x} = \vartheta \vec{u}_d, \quad \vartheta \in \mathbb{R}. \quad (4.27)$$

Ce problème réciproque est alors exactement similaire au problème direct résolu dans la section précédente, en remplaçant O par O_d , \vec{y}_b par \vec{u}_d , Y_x par P_x , \vec{n}_τ par \vec{n}_Π , P par Y , et enfin ρ par ϱ et ξ par ϑ . Le vecteur normal au plan Π a donc pour expression

$$\vec{n}_\Pi = \frac{\overrightarrow{O_dY} \wedge \vec{u}_d}{\|\overrightarrow{O_dY} \wedge \vec{u}_d\|}, \quad (4.28)$$

et la position du point W est donnée par

$$\overrightarrow{YW} = \overrightarrow{YO_W} - \frac{\overrightarrow{YO_W} \cdot \vec{n}_\Pi}{\vec{f} \cdot \vec{n}_\Pi} \vec{f}. \quad (4.29)$$

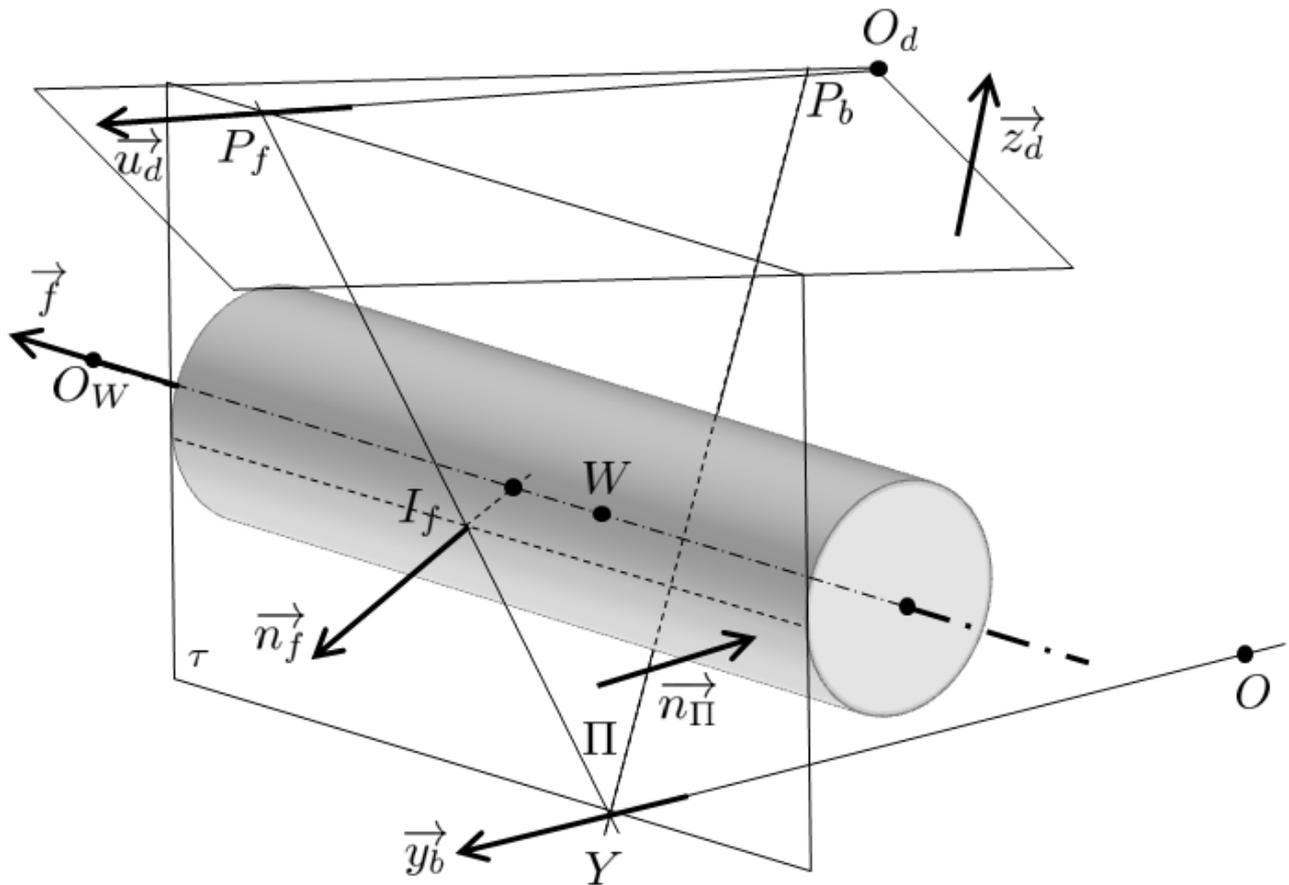


FIGURE 4.3 – Géométrie du montage de DAXM, schématisant le fil absorbant et son interaction avec les faisceaux de rayons X émis par l'échantillon. Le faisceau incident est parallèle au vecteur \vec{y}_b et passe par le point O . Le point Y correspond à une source secondaire ponctuelle, dans le faisceau incident. Les points P_f et P_b sont sur la limite de l'ombre du fil sur le détecteur, pour la source Y .

Les solutions ϑ du problème prennent donc une forme similaire à (4.23)

$$\vartheta_f = \frac{-R^2 \vec{C} \cdot \vec{D} + cd + \sqrt{\Delta}}{R^2 \vec{D} \cdot \vec{D} - d^2}, \quad \vartheta_b = \frac{-R^2 \vec{C} \cdot \vec{D} + cd - \sqrt{\Delta}}{R^2 \vec{D} \cdot \vec{D} - d^2} \quad (4.30)$$

avec

$$\Delta = (R^2 \vec{C} \cdot \vec{D} - cd)^2 - (R^2 \vec{D} \cdot \vec{D} - d^2) (R^2 \vec{C} \cdot \vec{C} - c^2). \quad (4.31)$$

et

$$\begin{aligned} \vec{C} &= \vec{f} \wedge \overrightarrow{YO_d}, & c &= \overrightarrow{YW} \cdot \vec{C}, \\ \vec{D} &= \vec{f} \wedge \vec{u}_d, & d &= \overrightarrow{YW} \cdot \vec{D}. \end{aligned} \quad (4.32)$$

Les deux droites à la limite de l'ombre du fil sur le détecteur ne sont parallèles entre elles que si le plan détecteur est parallèle à l'axe \vec{f} du fil. Elles se situent à l'intersection du plan tangent τ et du plan détecteur de normale \vec{z}_d , et contiennent chacune l'un des deux points particuliers P_f et P_b qui ont été trouvés. Ces droites sont donc le lieu des points P tels que

$$\overrightarrow{O_d P} = \vartheta_x \vec{u}_d + \varsigma \vec{n}_x \wedge \vec{z}_d, \quad \varsigma \in \mathbb{R} \quad (4.33)$$

où ς définit la position du point sur la droite, et

$$\vec{n}_x = \frac{\vec{f} \wedge (\overrightarrow{YO_d} + \vartheta_x \vec{u}_d)}{\|\vec{f} \wedge (\overrightarrow{YO_d} + \vartheta_x \vec{u}_d)\|} \quad (4.34)$$

les deux normales aux plans τ .

4.3.4 Cas d'une géométrie idéale

Nous allons maintenant spécifier les équations obtenues ci-dessus, dans le cas où la géométrie est idéale : le faisceau incident est selon \vec{y}_d , i.e. $\vec{y}_b = \vec{y}_d$, le fil est parallèle à \vec{x}_d , i.e. $\vec{f} = \vec{x}_d$, et il se déplace dans le plan (\vec{y}_d, \vec{z}_d) , i.e. $\vec{u} \cdot \vec{x}_d = 0$. Cette approche permet d'obtenir des relations analytiques plus simples, qui vont nous permettre ensuite d'analyser la résolution spatiale de la DAXM. Les expériences réelles sont en effet dans des conditions proches de cette géométrie idéale, les angles β , γ , δ , κ , et ζ étant généralement petits. Cette géométrie idéale revient donc à prendre

$$\beta = \gamma = 0, \quad \delta = \kappa = 0, \quad \zeta = 0, \quad (4.35)$$

et en choisissant l'offset de position du fil $p_w = 0$, on a

$$\vec{f} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \vec{y}_b = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \vec{u} = \begin{pmatrix} 0 \\ \cos \eta \\ \sin \eta \end{pmatrix}, \quad \overrightarrow{OO_W} = \begin{pmatrix} 0 \\ p_w \cos \eta \\ H + p_w \sin \eta \end{pmatrix} \quad (4.36)$$

(dans cette section, tous les vecteurs sont exprimés dans le repère détecteur $(O, \vec{x}_d, \vec{y}_d, \vec{z}_d)$ 3.5.

Nous allons dans un premier temps considérer un pixel P connu, et chercher les positions des points Y_f et Y_b dans le faisceau incident ('point de vue détecteur'). En notant P_x et P_y les coordonnées du point P ,

$$P = \begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ D \end{pmatrix}, \quad (4.37)$$

on obtient d'après l'équation (4.7)

$$\vec{n}_\pi = \frac{1}{\sqrt{D^2 + P_x^2}} \begin{pmatrix} -D \\ 0 \\ P_x \end{pmatrix} \quad (4.38)$$

et finalement d'après (4.9)

$$\overrightarrow{PW} = \begin{pmatrix} (p_w P_x \sin \eta)/D - P_x \\ p_w \cos \eta - P_y \\ H + p_w \sin \eta - D \end{pmatrix}. \quad (4.39)$$

Si l'on appelle W_x , W_y , et W_z les coordonnées du point W

$$\overrightarrow{OW} = \begin{pmatrix} W_x \\ W_y \\ W_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} (p_w P_x \sin \eta)/D \\ p_w \cos \eta \\ H + p_w \sin \eta \end{pmatrix}, \quad (4.40)$$

on obtient alors

$$\vec{A} = \begin{pmatrix} 0 \\ D \\ -P_y \end{pmatrix}, \quad \vec{B} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad a = DW_y - P_y W_z, \quad b = W_z - D \quad (4.41)$$

d'où

$$\Delta = R^2 D^2 [(W_y - P_y)^2 + (W_z - D)^2 - R^2]. \quad (4.42)$$

Finalement, la position des points Y_f et Y_b est donnée par

$$\xi_f = \frac{R^2 P_y + (DW_y - P_y W_z)(W_z - D) + \sqrt{\Delta}}{R^2 - (W_z - D)^2} \quad (4.43)$$

$$\xi_b = \frac{R^2 P_y + (DW_y - P_y W_z)(W_z - D) - \sqrt{\Delta}}{R^2 - (W_z - D)^2}.$$

On remarquera que, dans cette géométrie, ξ_f et ξ_b ne dépendent pas de la position P_x du pixel considéré.

De la même manière, dans le problème inverse ('point de vue échantillon'), on suppose connue la position du point source Y dans le faisceau incident, et on cherche la trace de l'ombre sur le

détecteur. Pour ce calcul, choisissons $\vec{u}_d = \vec{y}_d$ et O_d tel que $\overrightarrow{OO_d} = D\vec{z}_d$. Choisissons la variable ξ pour repérer la position de Y

$$\overrightarrow{OY} = \xi\vec{y}_b, \quad \text{i.e.} \quad \overrightarrow{OY} = \begin{pmatrix} 0 \\ \xi \\ 0 \end{pmatrix}. \quad (4.44)$$

On obtient alors $\vec{n}_{\Pi} = \vec{x}_d$,

$$\overrightarrow{OW} = \overrightarrow{OO_W} = \begin{pmatrix} W_x \\ W_y \\ W_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ p_w \cos \eta \\ H + p_w \sin \eta \end{pmatrix}, \quad (4.45)$$

$$\vec{C} = \begin{pmatrix} 0 \\ -D \\ -\xi \end{pmatrix}, \quad \vec{D} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad c = -D(W_y - \xi) - \xi W_z, \quad d = W_z, \quad (4.46)$$

d'où

$$\Delta = R^2 D^2 [(W_y - \xi)^2 + W_z^2 - R^2]. \quad (4.47)$$

Finalement, la position des points P_f et P_b est donnée par

$$\begin{aligned} \vartheta_f &= \frac{R^2 \xi + (D\xi - DW_y - \xi W_z)W_z + \sqrt{\Delta}}{R^2 - W_z^2}, \\ \vartheta_b &= \frac{R^2 \xi + (D\xi - DW_y - \xi W_z)W_z - \sqrt{\Delta}}{R^2 - W_z^2}. \end{aligned} \quad (4.48)$$

Les droites à la limite de l'ombre du fil sur le détecteur ont donc pour équation, d'après (4.33)

$$\overrightarrow{O_d P} = \vartheta_x \vec{y}_d + \varsigma \vec{x}_d, \quad \varsigma \in \mathbb{R}. \quad (4.49)$$

Dans le cas de la géométrie idéale, l'ombre du fil sur le détecteur est donc parallèle à l'axe \vec{x}_d , et sa taille (notée L_{sh} , indice *sh* pour 'shadow') vaut

$$L_{sh} = \vartheta_f - \vartheta_b = \frac{2\sqrt{\Delta}}{R^2 - W_z^2}. \quad (4.50)$$

On remarque que la taille de l'ombre dépend de la position p_w du fil, de l'inclinaison η de sa direction de translation, et de la position ξ . Cette estimation n'est pas directement comparable à la taille de l'ombre qui sera mesuré physiquement sur le détecteur lors des expériences. En effet, la relation (4.50) est pour une source ponctuelle unique à la position ξ ; pour obtenir l'ombre réellement mesurée sur le détecteur, il faut intégrer cette relation sur toutes les sources secondaires.

4.3.5 Solution approchée dans le cas d'une géométrie idéale

La formulation obtenue ci-dessus pour une géométrie idéale est bien plus simple que dans le cas d'une géométrie quelconque. Cependant, un modèle approché peut être dérivé. En effet, dans les cas concrets, le fil est positionné proche (quelques centaines de μm) de la surface de l'échantillon, le diamètre du fil est petit (quelques dizaines de μm), et son déplacement est limité (mm). Ces 3 dimensions sont donc petites devant la distance échantillon – détecteur D (dizaines de mm), i.e.

$$H \ll D, \quad R \ll D, \quad p_w \ll D. \quad (4.51)$$

En développant les équations obtenues dans la section précédente (cas de la géométrie idéale) à l'ordre 0, c'est-à-dire en négligeant les termes H/D , R/D , et p_w/D devant l'unité, on obtient une formulation simple du problème. Ce modèle approché sera utile lorsqu'il s'agira d'estimer de façon approximative les paramètres expérimentaux en vue d'obtenir la résolution souhaitée.

- Concernant le 'point de vue détecteur', les équations (4.42) et (4.43) se résument, après quelques calculs, à l'expression suivante pour la position des points Y_f et Y_b

$$\begin{aligned} \xi_f &= p_w \left(\cos \eta - \frac{P_y}{D} \sin \eta \right) - H \frac{P_y}{D} + R \sqrt{1 + \frac{P_y^2}{D^2}} \\ \xi_b &= p_w \left(\cos \eta - \frac{P_y}{D} \sin \eta \right) - H \frac{P_y}{D} - R \sqrt{1 + \frac{P_y^2}{D^2}}. \end{aligned} \quad (4.52)$$

On remarque en particulier que lorsque le déplacement \vec{u} du fil est parallèle au faisceau incident (et donc à la surface du détecteur), i.e. $\eta = 0$, alors le pas $\Delta\xi$ de déplacement des points Y_f et Y_b le long du faisceau incident est similaire au pas Δp_w de déplacement du fil, et ceci pour tous les pixels du détecteur. Lorsque $\eta \neq 0$, la résolution $\Delta\xi$ dépend de la position P_y du pixel considéré. On voit aussi clairement sur l'équation (4.52) que les pixels situés à différentes valeurs de P_y ne scannent pas tous la même profondeur ξ dans l'échantillon. Enfin, le facteur $\left(\cos \eta - \frac{P_y}{D} \sin \eta \right)$, qui est égal à $\partial \xi_x / \partial p_w$, peut être positif ou négatif. En d'autres termes, la zone écrantée peut reculer ($\Delta\xi < 0$) ou avancer ($\Delta\xi > 0$) lorsque que le fil avance ($\Delta p_w > 0$). Cela dépend des valeurs relatives de $\tan \eta$ et de D/P_y .

- Le cas d'un observateur situé au niveau du point source Y , i.e. le 'point de vue échantillon', ne se simplifie hélas pas aussi efficacement. En rajoutant aux conditions (4.51) le fait que $\xi \ll D$, on obtient une version allégée de (4.48)

$$\begin{aligned} \vartheta_f &= D \frac{W_z(\xi - W_y) + R \sqrt{(W_y - \xi)^2 + W_z^2 - R^2}}{R^2 - W_z^2}, \\ \vartheta_b &= D \frac{W_z(\xi - W_y) - R \sqrt{(W_y - \xi)^2 + W_z^2 - R^2}}{R^2 - W_z^2}, \end{aligned} \quad (4.53)$$

avec W_y et W_z donnés par l'équation (4.45), i.e. $W_y = p_w \cos \eta$ et $W_z = H + p_w \sin \eta$.

4.4 Sensibilité du modèle aux paramètres géométriques

Dans cette section, nous allons mettre en oeuvre le modèle géométrique établi ci-dessus, afin d'observer quantitativement la position, la taille, et le déplacement de la zone échantillonnée et de l'ombre, en fonction de la position p_w du fil. Pour cela, nous nous plaçons dans le cas de la géométrie idéale (section 4.3.4) avec une surface d'échantillon orienté à $\alpha = 40^\circ$ par rapport au faisceau incident. Les valeurs des paramètres géométriques, qui sont typiques des conditions utilisées sur BM32, sont indiquées dans le tableau 4.1. Nous nous intéresserons systématiquement à deux cas, celui d'un déplacement du fil parallèle au faisceau ($\eta = 0^\circ$), et celui d'un déplacement parallèle à la surface de l'échantillon ($\eta = 40^\circ$). Nous verrons que les résultats géométriques sont plus simples dans le premier cas, mais il existe par contre un risque de collision entre le fil et la surface de l'échantillon ; le risque de collision disparaît pour $\eta = \alpha = 40^\circ$, par contre le modèle géométrique est plus complexe.

Paramètre	Valeur	
α	40°	inclinaison de l'échantillon
D	80 mm	distance échantillon / détecteur
ℓ_p	$77.5 \mu\text{m}$	taille du pixel
X_{cen}	1024 pix.	
Y_{cen}	1024 pix.	
H	1 mm	distance fil / échantillon (3.4)
R	$25 \mu\text{m}$	rayon du fil

TABLE 4.1 – Valeurs des paramètres géométriques utilisés dans la section 4.4, avec l'offset $p_{w0} = 0$.

4.4.1 Position et taille de l'ombre sur le détecteur

Nous commençons par tracer la position ϑ_f et la taille $\vartheta_f - \vartheta_b$ de l'ombre du fil sur le détecteur, en fonction de la position p_w du fil et de la position ξ de la source secondaire dans l'échantillon (figure 4.4). Il s'agit du 'point de vue échantillon'. Sur ces figures, et sur les figures suivantes de ce chapitre, la couleur bleu foncé est utilisée pour les cas pour lesquels l'ombre sort du détecteur (i.e. lorsque ϑ_f exprimée en pixel est < 0 ou > 2048). On obtient les résultats suivants :

- Lorsque $\eta = 0^\circ$, un déplacement du fil de ~ 2 mm est suffisant pour que l'ombre balaye tout le détecteur. On remarque que l'amplitude de ce déplacement est indépendante de la position ξ de la source.
- Lorsque $\eta = 0^\circ$, pour des positions du fil $p_w \sim -1$ mm, on remarque que seules les sources proches de la surface (faibles valeurs de ξ) sont échantillonnées par le fil ; lorsque le fil a été déplacé vers les grandes valeurs de p_w , au contraire, seules les sources profondes sont échantillonnées. Et il existe des positions intermédiaires ($p_w \sim 0.5$ mm) pour lesquelles le fil échantillonne partiellement toutes les sources : en fonction de la profondeur ξ de la source,

l'ombre du fil se projette à différentes positions sur le détecteur correspondant à des ϑ_f allant de 0 à 2048 pixels.

- Lorsque $\eta = 40^\circ$, le déplacement de l'ombre d'une source localisée en surface ($\xi \sim 0$ mm) est globalement plus grand que celui d'une source profonde ($\xi \sim 1$ mm), pour un même déplacement du fil, contrairement au cas $\eta = 0^\circ$. Ainsi, la surface du détecteur paraît mal utilisée : un déplacement du fil jusqu'à $p_w \sim 3$ mm ne permet pas d'avoir une ombre sur les pixels aux grands ϑ_f (> 1800 pixels), et les sources profondes $\xi \sim 1$ mm ne seront visibles que sur les deux-tiers du détecteur ($\vartheta_f < 1400$ pixels).
- Lorsque $\eta = 0^\circ$, la taille de l'ombre sur le détecteur reste à peu près constante, entre ~ 50 et ~ 65 pixels.
- Lorsque $\eta = 40^\circ$, la taille de l'ombre varie bien plus, entre ~ 25 et ~ 110 pixels. Des variations très rapides apparaissent notamment pour les faibles valeurs de p_w .

4.4.2 Position et dimension de la zone écrantée dans l'échantillon

Nous nous plaçons maintenant du 'point de vue détecteur'. La figure 4.5 montre la position du bord avant de la zone écrantée par le fil, et la taille de cette zone écrantée, en fonction de la position du fil et de la position du pixel considéré. On relève les points suivants :

- Lorsque $\eta = 0^\circ$, la variation de la position de la zone écrantée avec la position du fil est similaire pour tous les pixels, i.e. elle est indépendante de P_y .
- Ce n'est plus le cas lorsque $\eta = 40^\circ$; les pixels positionnés à de grands P_y ne permettent de remonter à la densité d'intensité que pour les sources de surface (ξ_f petits), alors que les pixels positionnés à $P_y \sim 0$ scannent toute la profondeur de l'échantillon.
- La dimension de la zone écrantée évolue de manière assez similaire dans les deux cas $\eta = 0^\circ$ et $\eta = 40^\circ$. Elle varie entre ~ 50 μm et ~ 75 μm , soit un peu plus que le diamètre du fil. Elle dépend essentiellement de la position du pixel sur le détecteur.

4.4.3 Effet de la distance H

Nous nous intéressons maintenant à l'effet de la distance échantillon-fil (H). Cette distance est en effet l'un des paramètres de calibration du montage de DAXM, que l'expérimentateur doit choisir en début d'expérience. Le calcul est réalisé pour un fil positionné en $p_w = 0$ mm, et les résultats sont indiqués figure 4.6 pour des pixels positionnés sur la ligne médiane du détecteur, en $P_x = 1024$. On relève les points suivants :

- Lorsque $\eta = 0^\circ$, la valeur de H n'a pas (ou très peu) d'effet sur la taille de la zone écrantée. Il y a qu'une très légère tendance à l'augmentation de cette taille avec H . La position du pixel considéré reste de loin le paramètre entraînant le plus de variation de la taille de la zone écrantée. Cette taille reste comprise entre 50 et 75 μm .
- Lorsque $\eta = 40^\circ$, la figure ressemble globalement au cas $\eta = 0^\circ$, sauf pour les pixels positionnés aux grands P_f : par ex. pour $P_f = 2048$ pixel, une forte augmentation de la taille de la zone écrantée est observée lorsque H augmente, et la taille atteint ~ 100 μm .

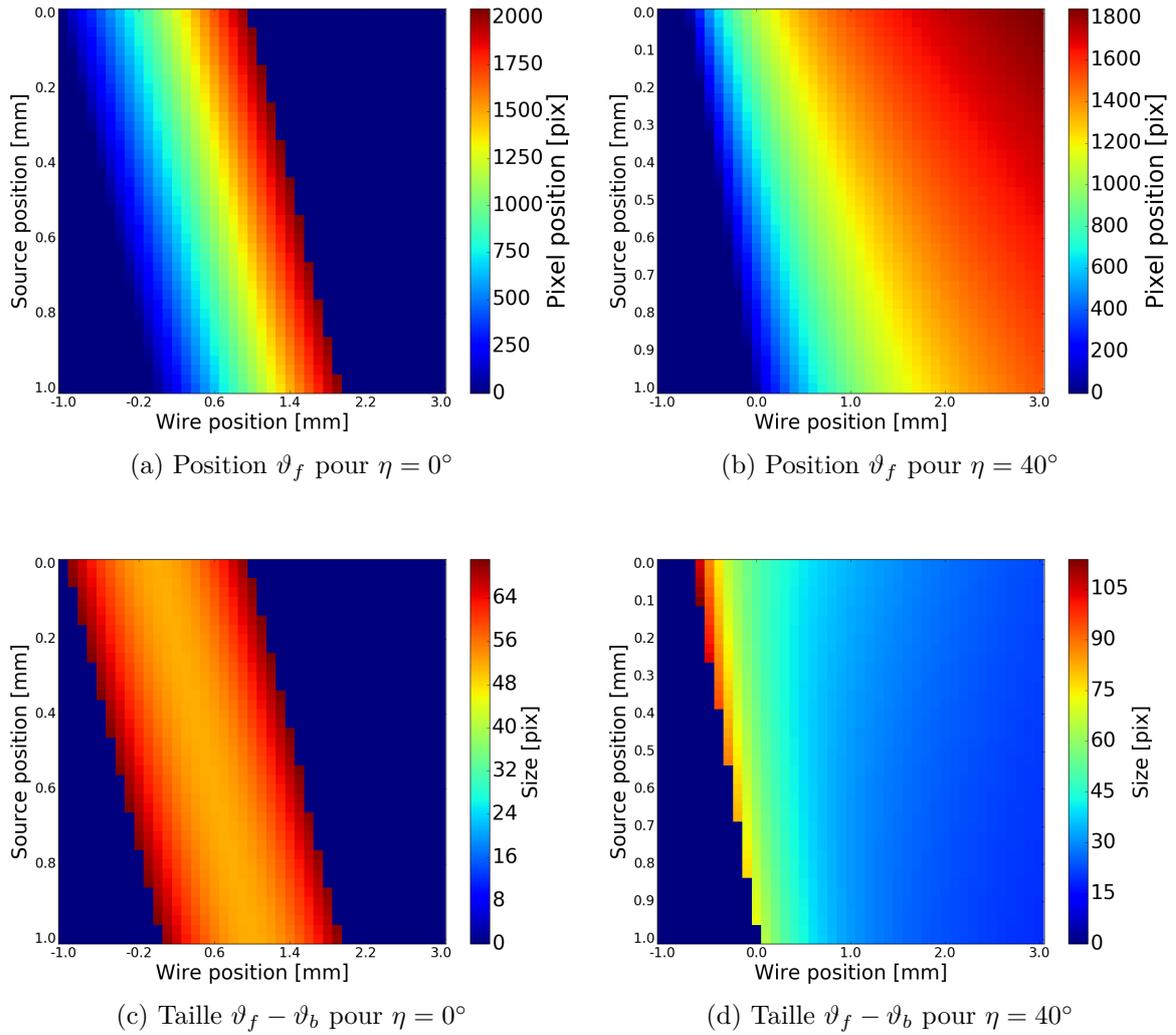


FIGURE 4.4 – Effet de la position du fil (p_w) et de la position de la source ponctuelle dans l'échantillon (ξ) sur (a,b) la position ϑ_f (exprimée en pixel) du bord avant de l'ombre du fil sur le détecteur et (c,d) la taille $\vartheta_f - \vartheta_b$ (exprimée en pixel) de l'ombre du fil sur le détecteur. Les calculs sont faits dans les conditions (a,c) $\eta = 0^\circ$ et (b,d) $\eta = 40^\circ$.

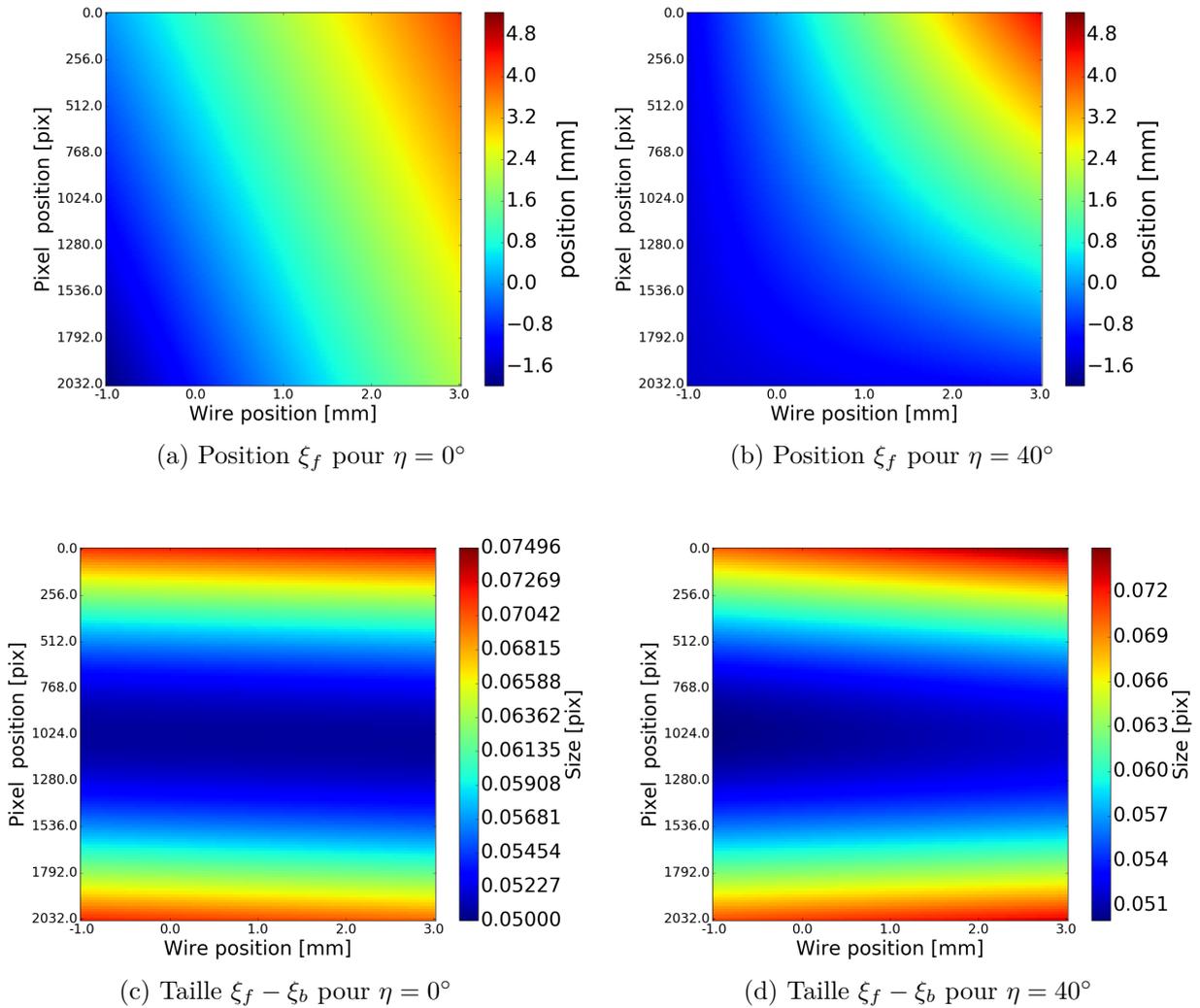


FIGURE 4.5 – Effet de la position du fil (p_w) et de la position du pixel considéré (P_y , en pixel) sur (a,b) la position ξ_f du bord avant de la zone écrantée par le fil et (c,d) la taille $\xi_f - \xi_b$ de la zone écrantée. Les calculs sont faits dans les conditions (a,c) $\eta = 0^\circ$ et (b,d) $\eta = 40^\circ$.

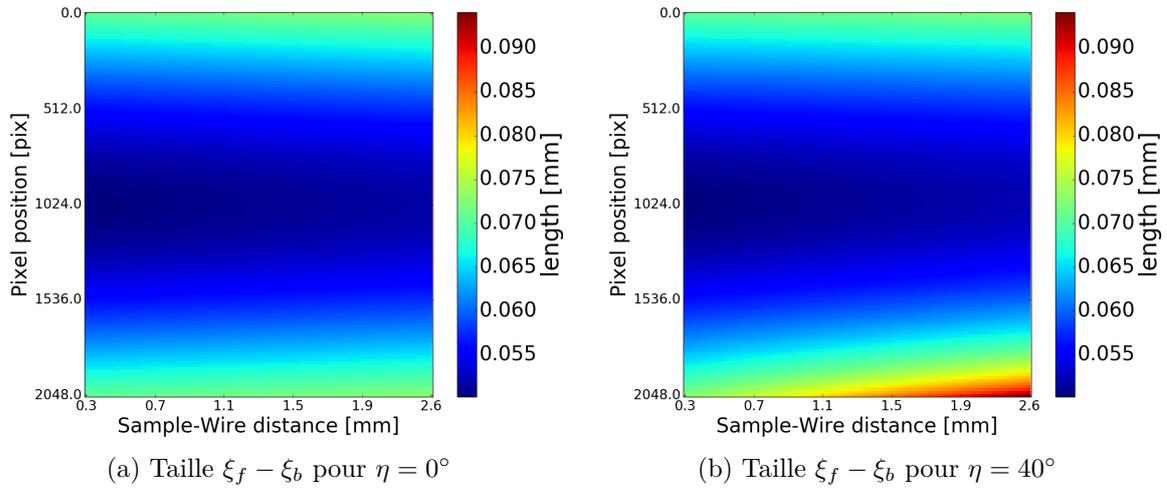


FIGURE 4.6 – Taille de la zone écartée ($\xi_f - \xi_b$) en fonction de la distance échantillon-fil (H) et de la position du pixel considéré (P_y) sur le détecteur. Le calcul est réalisé pour un fil positionné de telle manière à ce que le point O soit au centre de la zone écartée (milieu de Y_f et Y_b), en $p_w = 0$ mm.

4.4.4 Synthèse de l'effet de la direction de translation du fil

La figure 4.7 synthétise l'effet de la direction de translation du fil sur le lien existant entre la position du pixel considéré, la position de la source secondaire, et la position nécessaire du fil pour écranter la source, pour le pixel. Les courbes sont tracées pour différentes valeurs de la profondeur ξ de la source. On remarque les points suivants :

- Lorsque $\eta = 0^\circ$, la relation entre la position du pixel et la position du fil est linéaire, pour toutes les profondeurs ξ . Ainsi, le pas en pixel de déplacement de l'ombre sur le détecteur est proportionnel au pas de déplacement du fil.
- Lorsque $\eta = 40^\circ$, la situation est bien différente. La relation entre la position du pixel et la position du fil est clairement non-linéaire. Un déplacement de fil donnera un petit déplacement de l'ombre pour les pixels à petits P_y , et un déplacement bien plus important lorsque P_y est grand, laissant ainsi la possibilité d'une résolution accrue sur la position de la source ou d'une moindre sensibilité aux défauts de déplacement du fil. Ce déplacement d'ombre n'est d'ailleurs pas homogène puisqu'il varie en fonction de la profondeur de la source.
- Enfin, le montage à $\eta = 0^\circ$ comporte une difficulté. Si la surface de l'échantillon est orientée à 40° ($= \alpha$) du faisceau, et que le fil se déplace parallèlement au faisceau ($\eta = 0^\circ$), alors il y a un risque de collision entre le fil et l'échantillon, lorsque p_w devient trop grand. Le trait rouge sur la figure 4.7 indique la position à collision, et le trait bleu une condition expérimentale réaliste pour limiter les risques, pour laquelle le fil est très proche de l'échantillon. On observe que ce risque de collision limite de fait la profondeur de source qui peut être scannée. Une augmentation de la distance H permet cependant de limiter cet effet.

- Lorsque $\eta = 40^\circ$, le fil se déplace parallèlement à la surface de l'échantillon, il n'y a donc pas de risque de collision.

Lors des expériences réalisées pendant cette thèse, les deux cas $\eta = 0^\circ$ et $\eta = 40^\circ$ ont été utilisés. Le cas $\eta = 0^\circ$ demande une certaine vigilance (collision). Le cas $\eta = 40^\circ$ réclamerait, quant à lui, un pas de déplacement du fil non-constant afin d'obtenir un incrément de position de l'ombre constant sur le détecteur ; cette option avait été mise en place. On notera cependant que cette contrainte n'est pas compatible avec une des tentatives de ce travail, à savoir l'utilisation de plusieurs fil en parallèle (cf. section 3.3.3) qui permettrait en principe de diminuer significativement le temps de mesure.

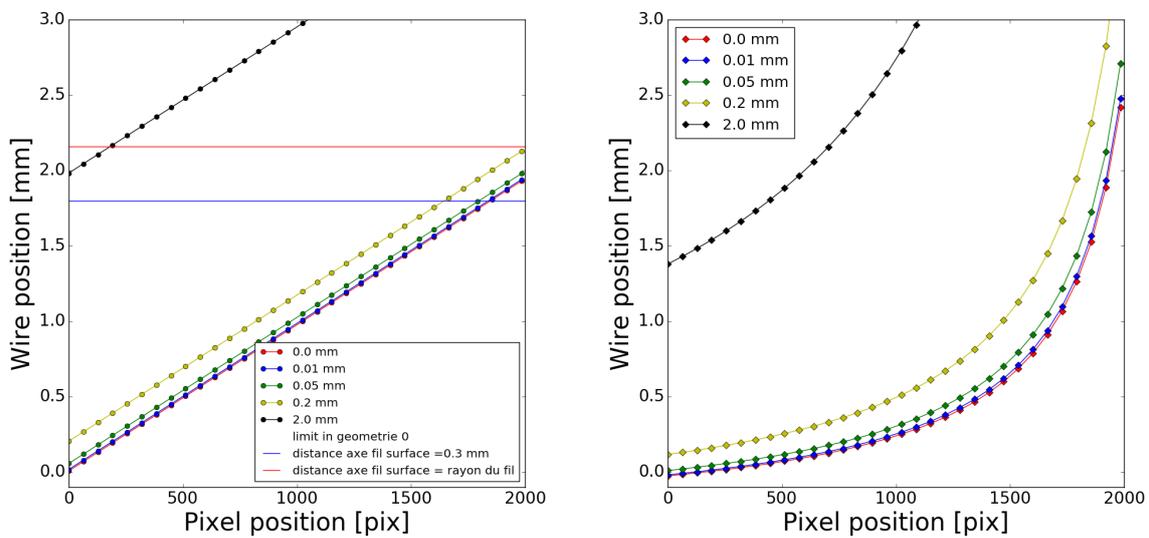


FIGURE 4.7 – Position du fil p_w nécessaire pour écranter une source à une profondeur ξ sur un pixel à la position P_y . Les différentes courbes correspondent aux différents ξ (0 mm, 0.01 mm, 0.05 mm, 0.2 mm, et 2 mm). (gauche) Conditions $\eta = 0^\circ$ et $H = 1$ mm. La ligne horizontale rouge est la position limite du fil pour laquelle il y a contact entre le fil et l'échantillon. La ligne bleue donne la position pour laquelle le fil est très proche (0.3 mm) de l'échantillon. (droite) Conditions $\eta = 40^\circ$ et $H = 0.3$ mm. Dans ce cas, le fil n'entre jamais en contact avec l'échantillon.

4.4.5 Précision de la solution approchée

Enfin, pour terminer ce chapitre, nous présentons sur le figure 4.8 la taille de la zone écranter, de manière similaire à la figure 4.5(c,d), mais calculée cette fois-ci avec la solution approchée (4.52). On remarque une différence minime entre les deux figures 4.8 et 4.5(c,d) pour le cas pour $\eta = 0^\circ$. La différence est un peu plus grande pour $\eta = 40^\circ$. Ainsi, les relations approchées peuvent être utilisées pour fixer grossièrement les paramètres géométriques à utiliser lors d'une expérience. On peut d'ailleurs certainement trouver des relations approchées plus précises en

remarquant, en plus de la relation (4.51), que le rayon R est très petit devant H et p_w , et donc faire un développement à l'ordre 0 en R/D mais à l'ordre 1 en H/D et p_w/D .

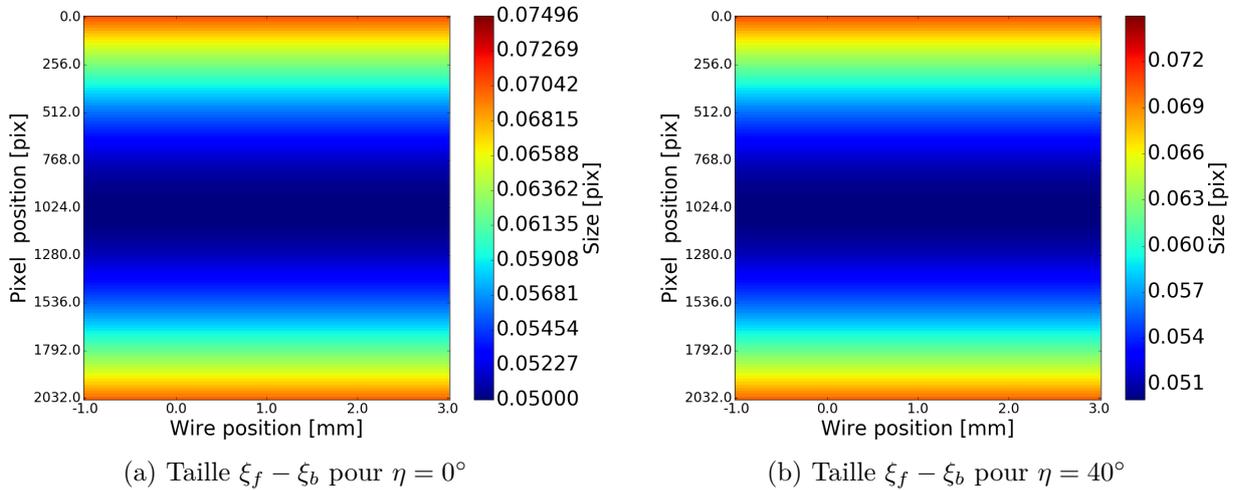


FIGURE 4.8 – Taille de la zone écartée. Même légende que les figures 4.5(c,d). Les figures ont été calculés ici avec la solution approchée (4.52).

4.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons formulé le modèle général de DAXM. Ce modèle se nourrit (i) d'un modèle physique traduisant l'intensité émise par les sources secondaires internes à l'échantillon dans la direction du pixel P considéré, et (ii) d'un modèle géométrique décrivant la position de l'ombre du fil sur le détecteur pour une source secondaire ponctuelle à une position donnée ; ce modèle géométrique prend en compte tous les défauts de désalignement du faisceau et du fil avec le détecteur.

Lorsque l'intensité de la source secondaire est connue a priori, alors le modèle général peut être utilisé pour calibrer les paramètres géométriques de la DAXM. C'est l'objet du chapitre suivant.

Une fois la géométrie du montage précisée, le modèle peut être utilisé pour reconstruire des images de Laue à chaque profondeur de source. Nous avons vu que cette étape d'inversion requiert (entre autre) la dérivation des images de Laue en fonction de la position du fil. Deux exemples de reconstruction seront présentés dans les chapitres 6 et 7.

CHAPITRE 5

Calibration du montage de DAXM

Sommaire

5.1	Introduction	77
5.2	Modèle de calibration	78
5.2.1	Choix de la source secondaire	78
5.2.2	Modélisation de la source secondaire	80
5.2.3	Sensibilité du modèle de calibration aux paramètres matériaux	83
5.3	Mise en oeuvre	89
5.3.1	Procédure de calibration	89
5.3.2	Application	89
5.3.3	Sensibilité de la calibration aux pixels choisis	93
5.3.4	Limites de l'approche, et solutions possibles	95
5.4	Conclusion	96

5.1 Introduction

Il y a dans la DAXM un certain nombre de paramètres expérimentaux à choisir en plus de ceux de la microdiffraction Laue classique, et qui vont avoir une influence directe sur la résolution finale : la distance fil-échantillon, le diamètre du fil, le matériau dans lequel le fil est réalisé, la direction de translation, le pas de cette translation, etc. L'étape de calibration, qui doit permettre une estimation de ces paramètres, est évidemment cruciale pour une reconstruction précise des diagrammes de Laue résolus en profondeur. La connaissance de la position du fil permet de déterminer quelle portion du faisceau incident est bloquée par le fil ; la connaissance du déplacement est nécessaire pour estimer la dérivée des images, qui intervient dans l'expression de l'intensité diffractée ou diffusée provenant d'une certaine profondeur dans l'échantillon.

L'une des difficultés de la calibration de la DAXM provient du fait que l'on a besoin d'utiliser une source secondaire interne à l'échantillon pour laquelle le profil d'intensité en fonction de la profondeur dans l'échantillon, i.e. le long du faisceau incident, doit être parfaitement connue. L'absorption de l'échantillon doit être parfaitement connue, pour savoir comment sont absorbés les photons produits en profondeur pendant leur trajet pour sortir de l'échantillon, et comment est absorbé le faisceau incident avant d'arriver à une certaine profondeur.

En d'autres termes, dans le modèle général (4.2 – 4.4), nous devons choisir une source pour laquelle $I_s(\xi, P)$ ¹ est connue, ce qui nous permettra d'affiner la valeur des bornes d'intégration ξ_f et ξ_b en fonction de la position p_w du fil, via l'identification des paramètres de calibration.

1. avec ξ une profondeur dans l'échantillon et P un pixel du détecteur.

Dans ce chapitre, nous argumentons dans un premier temps sur le choix de la fluorescence, parmi les différentes interactions rayons X – échantillons, comme source secondaire pour permettre la calibration précise du montage; c’est ainsi que nous établirons le *modèle physique*. Nous pourrons alors réunir ce modèle physique d’interaction rayons X – échantillons avec le modèle géométrique formulé dans la section 4.3 pour établir le *modèle général de calibration*, que nous mettrons en oeuvre pour calibrer l’expérience de DAXM. Nous discuterons des hypothèses qui ont été nécessaires à l’établissement de ce modèle, et de leurs conséquences. Cette analyse permettra également de déterminer à l’avance les paramètres du montage permettant l’obtention d’une résolution adaptée, lors de la planification d’une nouvelle expérience.

5.2 Modèle de calibration

Pour pouvoir calibrer la position et le déplacement du fil, nous avons besoin d’une source de rayons X à l’intérieur de l’échantillon, pour laquelle le profil de l’intensité émise en fonction de la profondeur dans l’échantillon est parfaitement connu. La stratégie d’attaque du problème dépend en effet de notre compréhension de cette interaction et de notre capacité à la modéliser.

Le détecteur reçoit essentiellement deux types de rayons X² : ceux provenant de la fluorescence de l’échantillon, et ceux provenant de la diffraction des grains. Ces deux sources peuvent être vus comme des sources secondaires de rayons X, internes à l’échantillon. Dans cette section, nous montrerons en quoi la fluorescence est mieux adaptée que la diffraction pour la calibration, puis nous établirons le modèle de calibration qui sera utilisé par la suite.

5.2.1 Choix de la source secondaire

Dans la suite, on appellera *source secondaire* le rayonnement émis par l’échantillon. Ce rayonnement est lié à l’interaction entre l’échantillon et le faisceau incident. Il existe différents types de sources secondaires, selon le phénomène physique sous-jacent. Ainsi, la source secondaire peut être :

- diffuse ou directionnelle,
- d’énergie connue ou variable, et
- d’intensité connue ou pas.

La connaissance de l’intensité et de la position de la source du rayonnement secondaire est le point critique, dans la mesure où ce sont les deux quantités qui doivent être estimées par le modèle physique. Dans ce travail, il sera considéré que le point source est positionné sur la droite formée par le faisceau incident³; mais la distribution d’intensité émise le long de cette droite (i.e. la localisation de la source) est plus ou moins bien maîtrisée.

Nous n’allons pas revenir sur la formation des pics de Bragg ou du rayonnement de fluorescence (cf. chapitre 2), mais simplement relever quelques différences fondamentales entre les deux mécanismes.

2. On ne considère pas ici le rayonnement parasite (diffusion par l’air, par le support échantillon, ... i.e. globalement le bruit de fond ambiant) ni le bruit électronique du détecteur.

3. Cela peut ne pas être le cas par exemple s’il y a de la diffraction et/ou de la fluorescence multiples dans l’échantillon (ex. le faisceau incident active la fluorescence d’un élément, qui ré-émet des rayons X d’énergie suffisante pour activer la fluorescence d’un autre élément).

Directionnalité : la fluorescence est émise de façon isotrope, dans toutes les directions de l'espace. Elle sera ainsi mesurée sur l'ensemble des pixels du détecteur. Le faisceau diffracté par un cristal est par contre hautement directionnel. Ainsi, l'information mesurée sur le détecteur n'est concentrée que sur un petit nombre de pixels, ceux éclairés par la tache de Laue.

Energie : l'énergie du rayonnement de fluorescence dépend de la nature de l'élément. Chaque élément émet un spectre d'énergie présentant un petit nombre de raies, les raies K_α étant significativement plus intenses que les autres. Pour les métaux purs, on est donc en présence d'un rayonnement que l'on pourra, en première approximation, considérer comme monochromatique ou alors présentant un petit nombre de longueurs d'onde. Les différentes taches de diffraction à l'intérieur d'un même cliché de Laue ont par contre des énergies variées, qui peuvent couvrir le spectre complet du faisceau incident, et qui dépendent de l'échantillon (orientation, densité de défauts, état de contrainte, etc); ainsi, les coefficients d'absorption par l'échantillon, dont nous avons besoin dans le modèle (cf. section suivante) devront être différents pour chacune des taches de Laue. D'autre part, le faisceau diffracté par un plan (hkl) d'un même grain peut être divergent, en fonction de la mosaïcité du cristal diffractant, et donc polychromatique.

Intensité : L'intensité de la fluorescence émise par un élément chimique ne dépend que de la nature de cet élément et du rayonnement incident. Le cas de la diffraction est plus complexe. La distribution de l'intensité diffractée par un grain dépend intimement de la qualité cristalline; un cristal de très bonne qualité (faible densité de défauts) et de grande taille peut être extrêmement efficace du point de vue de la diffraction, et renvoyer un faisceau très intense. Un cristal de mauvaise qualité (ex. écroui) ou de très petite taille (nanostructures) sera bien moins efficace. Ainsi, la diffraction du faisceau incident par l'échantillon, ou plus exactement la distribution de l'intensité diffractée le long du faisceau incident, dépend intimement de la microstructure de l'échantillon, qui n'est pas connue à l'avance.

Dans la suite de ce travail, nous avons donc basé notre modèle de calibration sur une source secondaire émise par la *fluorescence* de l'échantillon. Les avantages de la fluorescence sur la diffraction se résument ainsi :

- l'absence de direction d'émission privilégiée, qui fait que toute la surface du détecteur (sauf les quelques pixels recevant les pics de Bragg) peuvent être utilisés pour la calibration;
- l'indépendance de l'intensité émise par fluorescence vis-à-vis de la microstructure de l'échantillon. La qualité cristalline, la densité de défauts, la taille de la microstructure, n'ont pas d'influence significative.
- la fluorescence permet de repérer l'exacte surface de l'échantillon. Ce n'est pas le cas de la diffraction, si par exemple l'échantillon présente en surface une couche amorphe ou de très mauvaise qualité cristalline générant des pics de Bragg d'intensité nulle ou très faible.
- les faisceaux émis par l'échantillon comportent un nombre discret de longueurs d'onde, avec quelques raies plus intenses que les autres, de sorte que l'on pourra plus facilement se permettre de n'identifier qu'un seul coefficient d'absorption.

La distribution de l'intensité émise par la fluorescence peut donc être modélisée bien plus facilement que celle émise par la diffraction. Des limites à cette approche existent cependant, elles seront discutés en section 5.3.4.

5.2.2 Modélisation de la source secondaire

Nous allons maintenant expliciter le modèle de source secondaire utilisé, basé sur la fluorescence, et les hypothèses sous-jacentes. Ce modèle physique devra exprimer l'intensité S reçue par un pixel P en fonction de la profondeur de pénétration du faisceau X dans l'échantillon.

Dans un premier temps, nous avons besoin des distances parcourues dans l'échantillon par les faisceaux incident et diffusé. Ces distances nous permettront ensuite de calculer l'atténuation de l'intensité du faisceau, avec la relation (2.1).

La figure 5.1 indique la géométrie considérée. On suppose que la surface de l'échantillon est parfaitement plane; elle est décrite par le plan Π_s , de normale \vec{n}_s . Le faisceau incident, de direction \vec{y}_b , intercepte la surface de l'échantillon au point O . La source secondaire, supposée ponctuelle, se situe à l'intérieur de l'échantillon; elle est positionnée au point Y . Nous nous intéressons au faisceau diffusé de direction \vec{y}_f (vecteur unitaire) impactant le détecteur en un pixel P . Nous appelons Q le point d'intersection de ce faisceau avec la surface Π_s . Les points O , Y , et P , ainsi que les directions \vec{y}_b et \vec{y}_f , sont connus. Nous appelons ξ et ξ' les distances OY et YQ , de telle sorte que

$$\overrightarrow{OY} = \xi \vec{y}_b, \quad \overrightarrow{YQ} = \xi' \vec{y}_f. \quad (5.1)$$

La distance ξ est connue. Pour déterminer ξ' , nous exprimons le fait que Q appartient au plan Π_s

$$\overrightarrow{OQ} \cdot \vec{n}_s = (\xi \vec{y}_b + \xi' \vec{y}_f) \cdot \vec{n}_s = 0, \quad (5.2)$$

ce qui donne finalement

$$\xi' = -\xi \frac{\vec{y}_b \cdot \vec{n}_s}{\vec{y}_f \cdot \vec{n}_s}. \quad (5.3)$$

Trois facteurs⁴ entrent en compte dans le calcul de l'intensité reçue par le pixel P :

- l'absorption du faisceau incident entre les points O et Y
- le rendement de la fluorescence au point Y , et
- l'absorption du faisceau émis en Y , par l'échantillon puis par l'air, le long de son parcours jusqu'au détecteur.

En réalité, dans le modèle de fluorescence, nous n'allons pas nous intéresser à l'intensité absolue reçue par chaque pixel du détecteur, mais seulement à l'intensité relative. Et plus précisément, nous n'avons besoin que de la contribution relative de chaque profondeur Y à l'intensité reçue par le pixel P .

Pour un pixel donné, on est amené à considérer des sources secondaires Y disposées le long du faisceau incident, sur de courtes distances (ξ varie typiquement de quelques μm à quelques centaines de μm). Ainsi, dans la suite de ce travail, nous allons pouvoir négliger l'absorption par l'air (trajet QP) car la variation relative de distance QP est petite pour l'ensemble des sources Y , pour un pixel P . Dit autrement, la variation d'absorption dans l'air en fonction de la profondeur du point Y est petite devant la variation d'absorption par l'échantillon.

Nous allons également supposer que le rendement de fluorescence est constant pour un pixel donné, i.e. que le rapport (noté k_f) entre l'intensité du faisceau de longueur d'onde λ reçue en

4. en plus de bien d'autres facteurs qui ne sont pas considérés ici : l'efficacité du détecteur (qui est fonction de la longueur d'onde), le spectre du faisceau incident, l'angle d'incidence du faisceau par rapport au plan du détecteur, la vraie taille des pixels qui n'est pas uniforme et que l'on corrige avec la correction de grille, ...

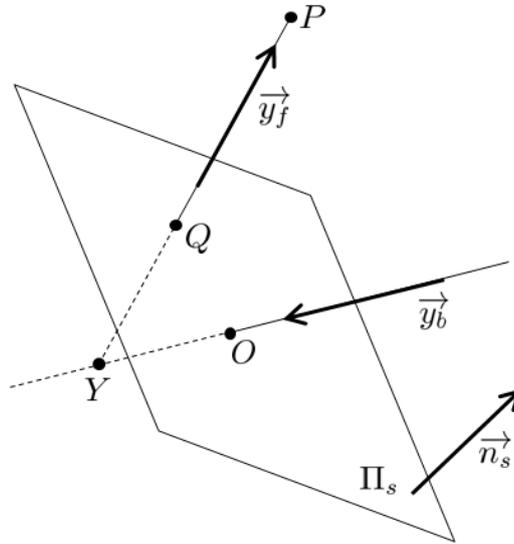


FIGURE 5.1 – Représentation du trajet des rayons X dans l'échantillon. Le point O est l'intersection du faisceau incident (direction \vec{y}_b) avec la surface de l'échantillon (plan Π_s de normale \vec{n}_s), Y est la source secondaire, et P l'intersection du faisceau diffusé (direction \vec{y}_f) avec la surface du détecteur. Le point Q est l'intersection de la droite (YP) avec le plan Π_s .

un point Y et l'intensité du faisceau de longueur d'onde λ_f ré-émise par ce point vers le pixel est constant. Notons que ce rendement de fluorescence dépend de la longueur d'onde incidente λ et de la raie caractéristique λ_f , i.e. $k_f = k_f(\lambda, \lambda_f)$.

Il nous reste maintenant à exprimer l'atténuation de l'intensité du faisceau le long de son parcours OYQ . Un faisceau incident de longueur d'onde λ et d'intensité $I(\lambda, O)$ au point O voit son intensité décroître jusqu'au point Y . L'intensité arrivant au point Y sera

$$I(\lambda, Y) = I(\lambda, O) \exp(-\xi\mu_\lambda) \quad (5.4)$$

avec μ_λ le coefficient d'absorption pour la longueur d'onde λ . L'intensité émise par fluorescence au point Y , dans la direction du pixel P , est $k_f(\lambda, \lambda_f) I(\lambda, Y)$. Le rendement $k_f(\lambda, \lambda_f)$ prend en compte l'angle solide couvrant la surface du pixel P vue depuis le point source Y . On note μ_f le coefficient d'absorption correspondant à la longueur d'onde de fluorescence λ_f . L'absorption par l'air étant négligée, l'intensité sur le pixel P provenant du faisceau incident $I(\lambda, O)$ ré-émis en Y avec la longueur d'onde λ_f s'écrit

$$k_f(\lambda, \lambda_f) I(\lambda, O) \exp(-\xi\mu_\lambda) \exp(-\xi'\mu_f) . \quad (5.5)$$

L'intensité totale reçue par le pixel P en l'absence de fil absorbant, que l'on note $S(P)$, sera la somme sur les N_f raies caractéristiques

$$\begin{aligned} S(P) &= \sum_{i_f=1}^{N_f} \int_0^{+\infty} \left[\int_{\lambda_{min}}^{\lambda_{max}} k_f(\lambda, \lambda_f) I(\lambda, O) \exp(-\xi\mu_\lambda) d\lambda \right] \exp(-\xi'\mu_f) d\xi \\ &= \sum_{i_f=1}^{N_f} \int_0^{+\infty} \int_{\lambda_{min}}^{\lambda_{max}} k_f(\lambda, \lambda_f) I(\lambda, O) \exp \left[-\xi \left(\mu_\lambda - \mu_f \frac{\vec{y}_b \cdot \vec{n}_s}{\vec{y}_d \cdot \vec{n}_s} \right) \right] d\lambda d\xi \end{aligned} \quad (5.6)$$

C'est l'intégrale sur toutes les longueurs d'onde présentes dans le spectre du faisceau incident, et pour tous les points Y depuis le point O jusqu'en profondeur (théoriquement infinie) dans l'échantillon, et pour l'ensemble des raies caractéristiques.

En pratique, l'utilisation de l'équation (5.6) pour la calibration du montage est complexe, car elle requiert la connaissance de l'évolution des $k_f(\lambda, \lambda_f)$ et μ_λ avec la longueur d'onde, la prise en compte dans k_f de l'angle solide que forme chaque pixel, et la connaissance de la distribution d'intensité $I(\lambda, O)$ du faisceau incident.

Dans ce travail, nous n'avons pas mis en place cette équation, mais nous avons utilisée une version (largement) simplifiée. La première hypothèse se base sur le fait que l'excitation de la fluorescence est plus efficace pour une énergie incidente peu différente (i.e. légèrement supérieure) au seuil du matériau. Dans l'équation (5.6), on peut donc faire disparaître l'intégrale sur les longueurs d'onde, et remplacer les λ par une longueur d'onde unique λ_{f-} un peu plus petite que λ_f , i.e. $\lambda_{f-} \lesssim \lambda_f$. Ensuite, par unique souci de simplicité, on remplace de façon assez radicale le terme $\exp(-\xi\mu_{\lambda_{f-}} - \xi'\mu_f)$ par $\exp(-\tilde{\mu}(\xi + \xi'))$, où $\tilde{\mu}$ est un coefficient d'absorption effectif. Il s'agit d'une simplification grossière dans la mesure où les coefficients d'absorption $\mu_{\lambda_{f-}}$ et μ_f diffèrent typiquement d'un ordre de grandeur, au voisinage des seuils d'absorption. On peut imaginer que $\tilde{\mu}$ doit prendre une valeur proche des valeurs réelles du matériau, et comprises entre les valeurs extrêmes du μ juste en deçà et juste au delà du seuil de fluorescence, ce que nous discuterons dans la suite. On néglige également la complexité du spectre d'énergie émis par le matériau. Enfin, comme déjà énoncé plus haut, nous n'allons pas nous intéresser à la valeur de l'intensité reçue par un pixel, mais simplement à la variation de cette intensité lors du passage du fil. Ainsi, pour un pixel donné, le produit $k_f I(\lambda, O)$ sera considéré comme un paramètre ajustable, qui sera calé sur les données. En résumé, le modèle complet (5.6) sera remplacé par l'expression

$$S(P) \propto \int_0^{+\infty} \exp(-\tilde{\mu}(\xi + \xi')) d\xi. \quad (5.7)$$

Il s'agit évidemment d'une simplification assez radicale, dont les justifications physique et mathématique restent légères, mais qui a permis l'obtention de bons résultats dans le cadre de ce travail. Ce point mériterait un approfondissement dans les travaux futurs. Dans (5.7), la distance $\xi + \xi'$ est calculée pour chaque pixel P par la relation (5.3), et le rapport de proportionnalité sur l'intensité est ajusté pour chaque pixel afin que l'intensité calculée par le modèle colle aux données. Par contre, un unique coefficient d'absorption effectif $\tilde{\mu}$ sera identifié pour tous les pixels, même si le rapport des distances ξ et ξ' varie d'un pixel à l'autre⁵.

A titre d'illustration, la figure 5.2a présente la forme générale de l'intensité relative reçue sur le pixel central du détecteur, calculée par le modèle (5.7) pour une géométrie standard et un échantillon de Ge. La figure indique la contribution relative $\exp(-\tilde{\mu}(\xi + \xi'))$ de chaque source secondaire Y en fonction de la profondeur ξ . On remarquera que la contribution de la source à l'intensité mesurée devient très faible au delà de $\sim 100 \mu\text{m}$, ce qui est un peu plus (~ 1.5 fois) que la longueur d'atténuation dans Ge juste en dessous du seuil de fluorescence (cf fig. 2.1). Des exemples d'application de ce modèle sur des données réelles sont présentés dans la suite du document.

⁵. On pourrait en effet considérer que le coefficient d'absorption effectif doit dépendre du pixel considéré, car le trajet OY est parcouru par le faisceau incident blanc, alors que YP est parcouru par un faisceau monochromatique.

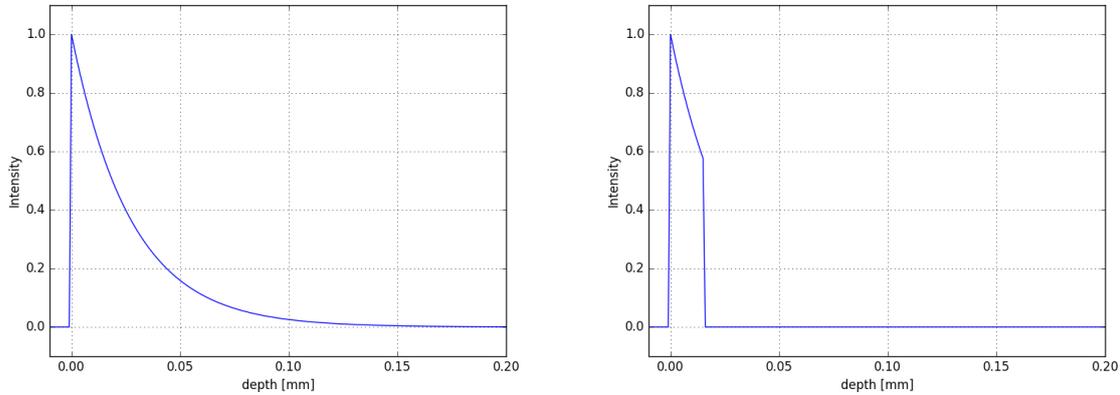


FIGURE 5.2 – Distribution de l'intensité $\exp(-\tilde{\mu}(\xi + \xi'))$ reçue par le pixel central du détecteur en fonction de la profondeur d'émission ξ de la source Y . La valeur du coefficient d'absorption utilisée, $\tilde{\mu} = 0.050 \mu\text{m}^{-1}$ tirée d'une expérience sur un échantillon de Ge, est proche de celle du Ge autour du seuil de fluorescence, cf. figure 2.1. (gauche) Cas d'un échantillon épais, et (droite) d'un échantillon fin $e = 10 \mu\text{m}$. $\alpha = 40^\circ$.

Enfin, pour la mise en oeuvre pratique, il sera parfois nécessaire de tenir compte de l'épaisseur de l'échantillon, que l'on note e . C'est le cas par exemple d'échantillons fins devant la longueur d'atténuation. La borne d'intégration dans (5.7) doit être adaptée en conséquence, et l'on obtient alors le modèle suivant

$$S(P) \propto \int_0^e \exp(-\tilde{\mu}(\xi + \xi')) d\xi \quad (5.8)$$

avec $E = e/\sin \alpha$ l'épaisseur de matière vue par le faisceau incident. L'illustration de cet effet est illustré sur la figure 5.2b. Pour les distances supérieures à E , la source est positionnée au delà de la face arrière de l'échantillon, et donc l'intensité émise devient nulle.

Si l'on tient maintenant compte de la présence du fil, il faut ôter à l'intégrale (5.8) la partie absorbée, pour les valeurs de ξ comprises entre ξ_b et ξ_f . L'expression devient alors

$$S(p_w, P) \propto \int_0^{\xi_b} \exp(-\tilde{\mu}(\xi + \xi')) d\xi + \int_{\xi_f}^E \exp(-\tilde{\mu}(\xi + \xi')) d\xi. \quad (5.9)$$

Il s'agit là du modèle complet de calibration⁶, qui tient compte à la fois de la géométrie du montage (fonctions $\xi_f(p_w)$ et $\xi_b(p_w)$) et du modèle de fluorescence (valeur de $\tilde{\mu}$).

5.2.3 Sensibilité du modèle de calibration aux paramètres matériaux

Nous allons maintenant illustrer la réponse du modèle de calibration, et en particulier nous intéresser à sa sensibilité aux paramètres matériaux $\tilde{\mu}$ et e . Nous allons appliquer le modèle (5.9) au cas d'une géométrie idéale, avec des valeurs de paramètres typiques du setup standard sur BM32. Les paramètres utilisés dans ce qui suit sont donnés dans le tableau 5.1. Il s'agit à la

6. Avec toujours l'hypothèse d'absorption totale des rayons X par le fil.

fois des paramètres du montage de Laue et de la DAXM. Ils sont regroupés selon 3 critères : les paramètres décrivant la géométrie du montage, ceux liés à la nature de l'échantillon, et enfin ceux qui seront identifiés à partir des données mais qui dépendent intimement de la façon dont l'expérience est réalisée. Dans cette dernière classe de coefficients, p_{w0} est en effet un offset sur un moteur qui peut être modifié arbitrairement en cours d'expérience par logiciel, et k_m (qui sera introduit plus précisément en section 5.3) est lié au bruit de fond sur le détecteur. Nous verrons plus loin que ces paramètres, s'ils sont tous importants pour l'identification du modèle de calibration, n'interviennent pas tous dans les étapes suivantes de reconstruction des microstructures.

Type	Paramètre	valeur utilisée
géométrique	R	25 μm
	H	0.3 mm si $\eta = 0^\circ$, 1 mm si $\eta = 40^\circ$
	κ	0.0°
	δ	0.0°
	ζ	0.0°
	η	0° ou 40°
	α	40°
	D	80 mm
	X_{cen}	1024 pixels
	Y_{cen}	1024 pixels
échantillon	ℓ_p	77.5 μm
	$1/\tilde{\mu}$	50 μm
	e	∞
réalisation	p_{w0}	0 mm
	k_m	0

TABLE 5.1 – Paramètres du modèle de calibration utilisés dans la section 5.2.3, sauf mention contraire.

Le figure 5.3 montre l'intensité reçue par trois pixels du détecteur positionnés sur l'axe $X_{cam} = 0$ et correspondant à différentes valeurs 2θ . Les courbes sont calculées pour différentes valeurs de la longueur d'atténuation $1/\tilde{\mu}$ (entre 11 μm et 500 μm) et de l'épaisseur e de l'échantillon (entre 1 μm et 2000 μm). Le fil se déplace parallèlement au faisceau incident, i.e. $\eta = 0^\circ$. Le rayon du fil est $R = 25 \mu\text{m}$ (table 5.1). Ces profils fournissent un catalogue des profils expérimentaux rencontrés en pratique pour différents types d'échantillons. On observe le comportement suivant :

- Lorsque la longueur d'atténuation est significativement plus petite que le diamètre du fil (ex. courbes pour $1/\tilde{\mu} = 11 \mu\text{m}$), l'intensité chute jusqu'à une valeur nulle. Le profil d'intensité a la forme d'une fonction porte lorsque $e \ll 1/\tilde{\mu}$ (ex. $e = 0.001 \text{ mm}$) alors que les fronts descendant et montant deviennent courbes aux plus grandes épaisseurs.
- Lorsque la longueur d'atténuation est plus grande que le diamètre du fil (ex. $1/\tilde{\mu} = 100 \mu\text{m}$), on remarque un net élargissement des profils avec l'épaisseur de l'échantillon. La largeur des profil est similaire pour les trois angles de Bragg. Pour $e = 0.001 \text{ mm}$, l'intensité chute jusqu'à une valeur nulle avec un profil similaire à une fonction porte.

Aux plus grandes épaisseurs (ex. $e = 2000 \mu\text{m}$), la chute d'intensité est moindre, environ la moitié de l'intensité maximale, et dépend de l'angle de Bragg.

- Lorsque le faisceau est pénétrant et l'échantillon épais (i.e. e et $1/\tilde{\mu}$ plus grands que R), il apparaît clairement que les fronts descendant et montant des profils n'ont pas la même forme.
- On observe également sur le profil correspondant à $e = 100 \mu\text{m}$ et $1/\tilde{\mu} = 500 \mu\text{m}$ que le front montant présente une rupture de pente. Cette rupture est également présente sur les autres profils, mais elle est moins facilement visible.
- Enfin, la figure 5.4 montre les mêmes calculs mais cette fois-ci lorsque le fil se déplace parallèlement à la surface de l'échantillon, i.e. $\eta = 40^\circ$. On retrouve les mêmes tendances que pour le cas $\eta = 0^\circ$, avec la différence importante que la largeur des profils dépend maintenant fortement de l'angle de Bragg. Ce comportement avait déjà été illustré dans le chapitre précédent, cf. figure 4.7.

Pour comprendre la forme de ces profils, nous présentons un schéma du passage du fil (figure 5.5). Pour un pixel P , quatre positions p_w particulières du fil sont à relever : celles pour lesquelles le bord avant du fil commence à écranter le pixel P (p_{wfi}) ou termine l'écrantage (p_{wfo}), et celles pour lesquelles le bord arrière du fil commence à démasquer la source (p_{wbi}) ou à traverser tous les faisceaux émis (p_{wbo}). Deux cas de figures se présentent alors (figure 5.6).

(i) Pour un échantillon fin (figure 5.6a), i.e. avec e significativement plus petit que le diamètre du fil $2R$ ⁷, l'intensité minimale devient nulle. Dans ce cas, le fil est assez gros pour masquer toute la source. Le bord avant du fil est sorti des faisceaux émis vers le pixel P avant que le bord arrière ne commence à démasquer la surface de l'échantillon, i.e. $p_{wfo} < p_{wbi}$. Ainsi, entre les positions p_{wfo} et p_{wbi} , la source est complètement écrantée et le profil d'intensité est plat. La longueur du plateau $S(p_w, P) = 0$ est liée au diamètre du fil et à l'épaisseur de l'échantillon ; d'après le modèle approché de la section 4.3.5, pour une translation selon $\eta = 0^\circ$, on a

$$p_{wbi} - p_{wfo} \simeq 2R - E. \quad (5.10)$$

Le front descendant du profil correspond à la traversée du bord avant du fil, et donc la longueur de ce front est aussi une indication de la longueur de la source. De même, la longueur du front montant correspond au déplacement nécessaire au bord arrière pour démasquer entièrement la source. Toujours avec le modèle approché, on a donc

$$p_{wfo} - p_{wfi} \simeq p_{wbo} - p_{wbi} \simeq E. \quad (5.11)$$

(ii) Lorsque l'échantillon est épais et que la longueur d'atténuation n'est pas petite devant le diamètre du fil (figure 5.6b), alors il n'y a aucune position du fil pour laquelle toute la source est écrantée. L'intensité mesurée sur le pixel ne s'annule jamais. Le bord arrière du fil commence à démasquer les sources proches de la surface (petits ξ) alors que le bord avant écranter encore les sources plus profondes ; on a dans ce cas $p_{wbi} < p_{wfo}$. On observe une rupture de pente sur le front montant, correspondant à la position p_{wfo} . Les relations (5.11) restent valables (pour $\eta = 0^\circ$), par contre (5.10) devient

$$p_{wfo} - p_{wbi} \simeq E + 2R. \quad (5.12)$$

7. Cela vaut aussi dans le cas d'un échantillon épais mais d'une distance d'atténuation $1/\tilde{\mu} \ll 2R$

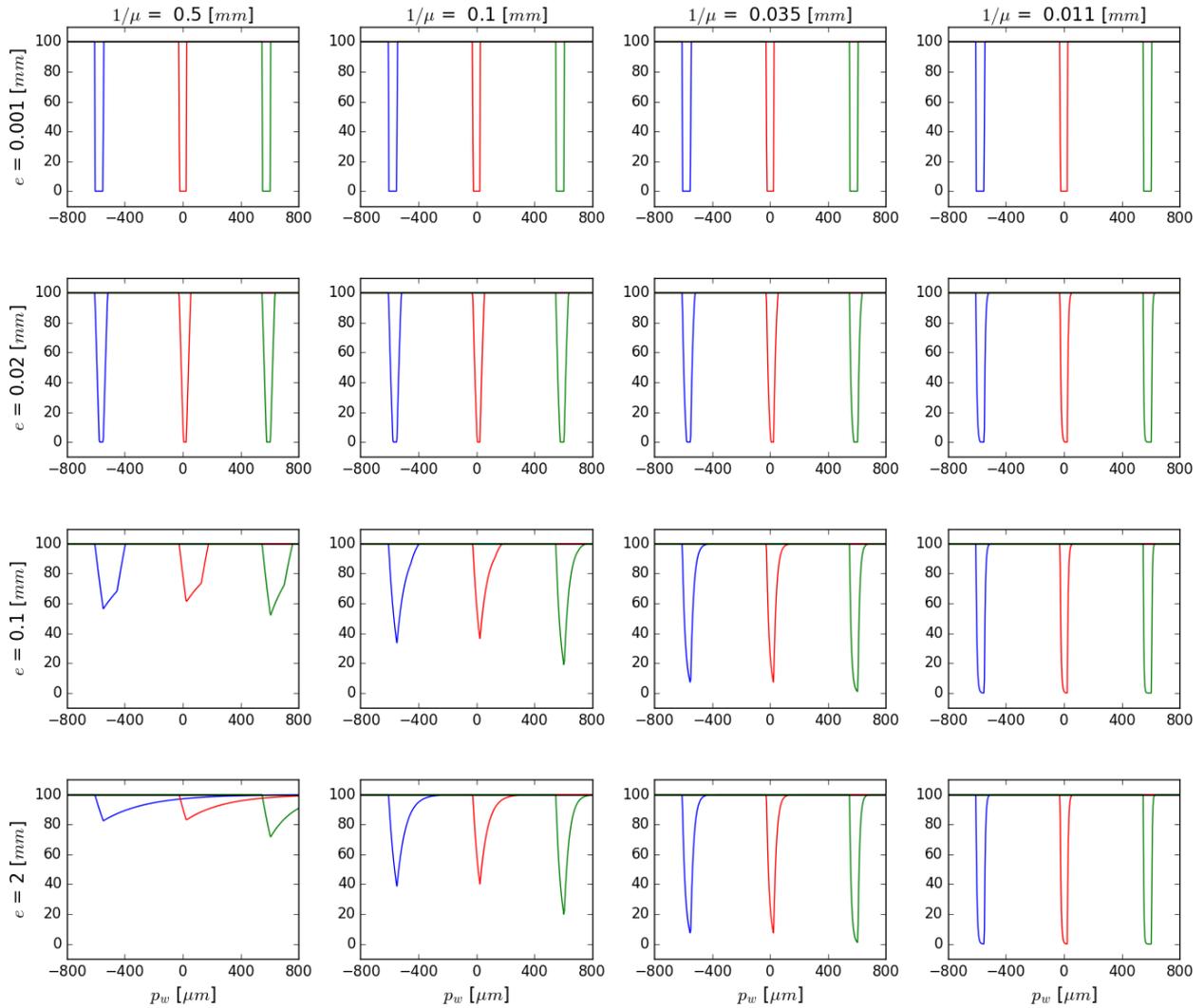
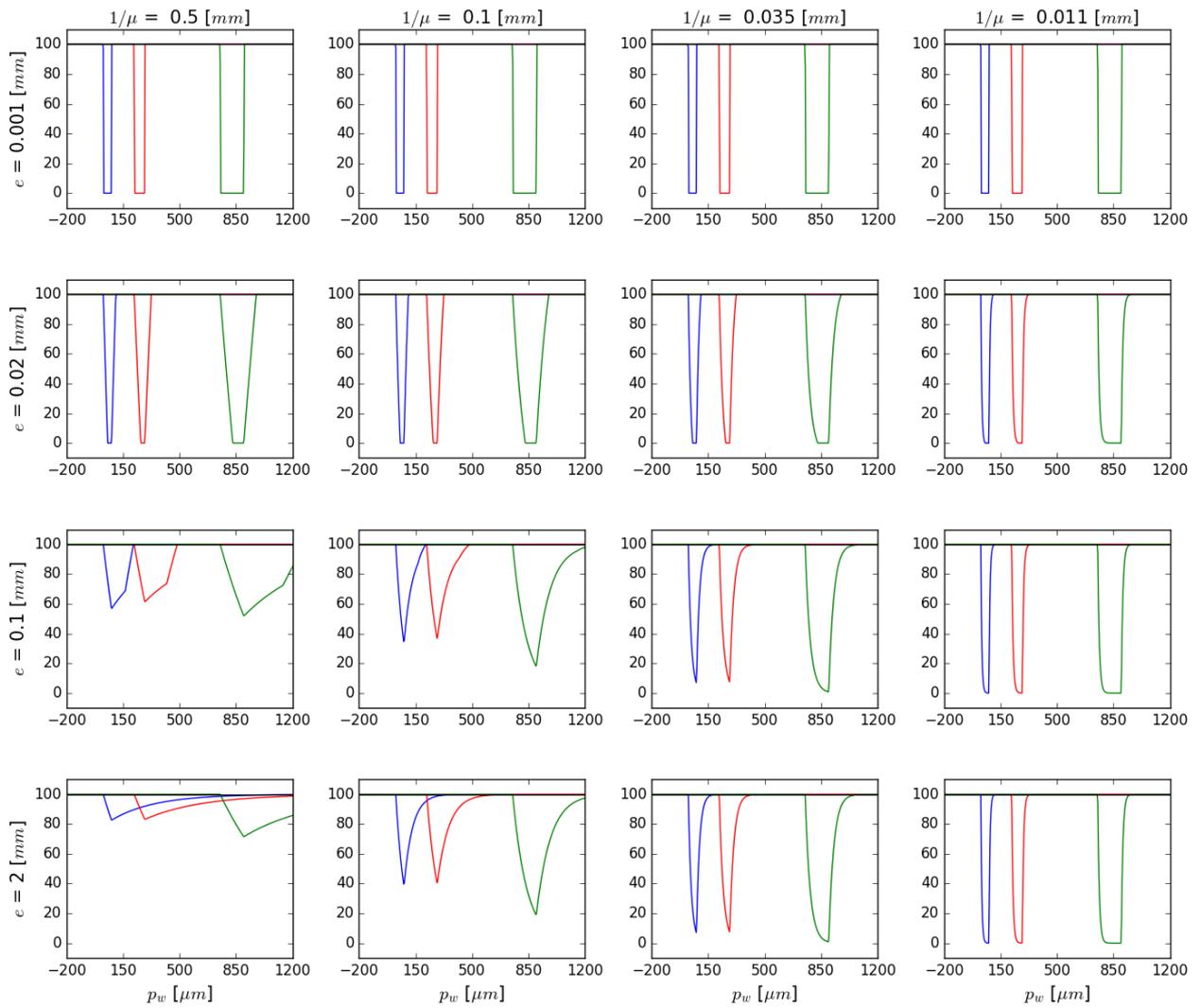


FIGURE 5.3 – Profils d'intensité mesurés sur trois pixels du détecteur, situés à $\chi = 0^\circ$ et (bleu) $2\theta = 60^\circ$, (rouge) $2\theta = 90^\circ$, (vert) $2\theta = 120^\circ$, en fonction de la position p_w du fil, pour plusieurs valeurs de la longueur d'atténuation $1/\tilde{\mu}$ et de l'épaisseur e de l'échantillon. Direction de translation $\eta = 0^\circ$.

FIGURE 5.4 – Même légende que la figure 5.3 mais pour $\eta = 40^\circ$.

On remarquera que la détermination expérimentale de p_{wfo} risque d'être délicate car la rupture de pente du front montant est faible; la taille de la source pourra donc essentiellement être mesurée à partir de la longueur $p_{wbo} - p_{wbi}$ du front montant.

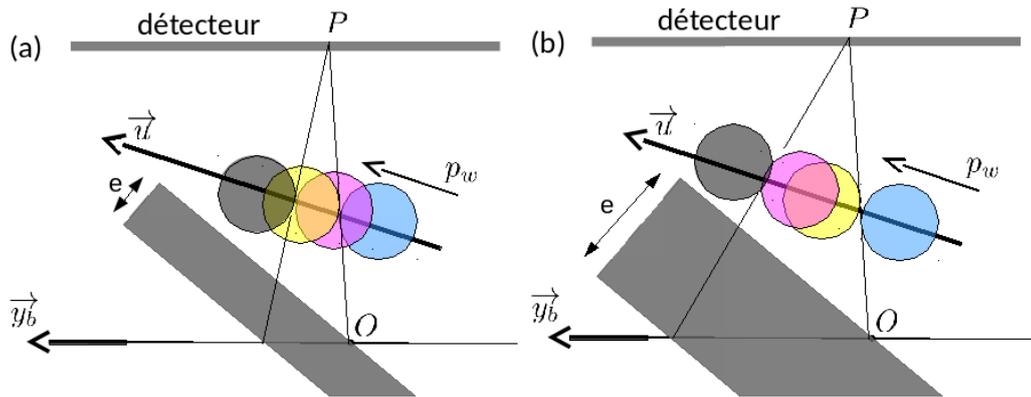


FIGURE 5.5 – Lors du déplacement du fil, il existe quatre positions particulières (p_{wfi} , p_{wfo} , p_{wbi} , et p_{wbo}) qui correspondent à l'entrée (input, indice i) ou à la sortie (output, indice o) du bord avant (front, indice f) ou arrière (back, indice b) du fil dans l'ensemble de faisceaux émis par l'échantillon vers le pixel P . Les deux configurations possibles, selon la longueur de la source e , sont représentées. Les échelles ne sont pas respectées.

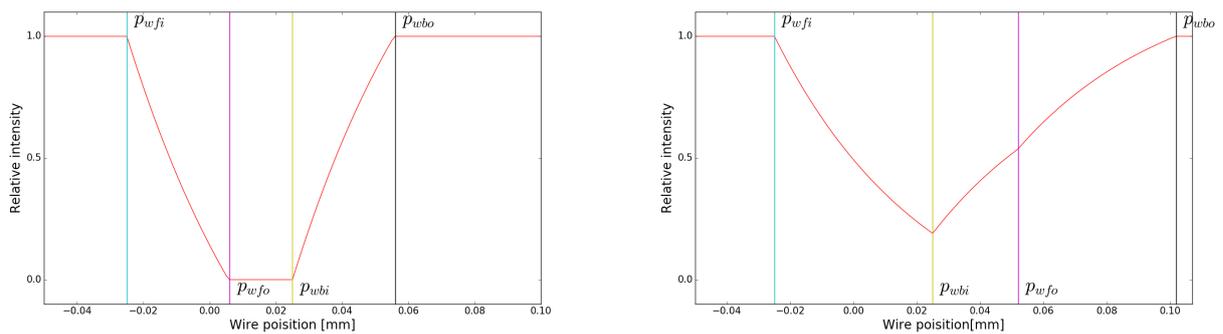


FIGURE 5.6 – Profil d'intensité calculé pour (gauche) un échantillon fin ($e = 20 \mu\text{m}$) et (droite) un échantillon dont l'épaisseur ($50 \mu\text{m}$) est similaire au diamètre du fil. Ces deux configurations correspondent aux schémas de la figure 5.5. Les quatre positions particulières du fil (p_{wfi} , p_{wfo} , p_{wbi} , et p_{wbo}) sont indiquées.

5.3 Mise en oeuvre

5.3.1 Procédure de calibration

Pour l'identification des paramètres de la DAXM, nous avons besoin de modifier légèrement le modèle (5.9). En effet, celui-ci ne fournit qu'une intensité relative. Il faut donc ajuster cette intensité en fonction de l'intensité maximale mesurée. D'autre part, l'intensité minimale mesurée n'est jamais égale à 0, en raison du bruit ambiant, de la diffusion par l'air, du bruit du détecteur (dark field), etc. On exprime donc l'intensité totale – que l'on appelle S_m (indice m pour 'model') – sur un pixel P pour la position p_w du fil selon la relation

$$S_m(p_w, P) = k_M S_u(p_w, P) + k_m \quad (5.13)$$

où S_u est l'intensité calculée entre 0 et 1 (u pour 'unit') et donnée par la normalisation de l'équation (5.9), et k_M et k_m deux coefficients à ajuster. Lors de l'identification, la valeur initiale de k_M est estimée à partir de la valeur moyenne de l'intensité sur les 10 premières images, lorsque le fil n'écrante pas la source. La valeur initiale de k_m est estimée par la valeur minimale des profils. On observe que k_M dépend du pixel considéré. Par contre, k_m est trouvé quasiment constant sur toute la surface du détecteur.

L'identification des paramètres du modèle passe par la construction d'une fonction coût \mathfrak{F} , que l'on minimise. Ici, la fonction utilisée est le carré de l'écart entre le profil expérimental et le profil modélisé (norme euclidienne), normalisé par l'écart-type du bruit expérimental

$$\mathfrak{F} = \frac{1}{N_P N_{p_w}} \sum_{P, p_w} \left(\frac{S_m(P, p_w) - S_e(P, p_w)}{SD(S_e(P, p_w))} \right)^2 \quad (5.14)$$

où S_e est le profil expérimental, et $SD(S_e)$ l'écart-type de S_e calculé sur les 30 premières images (i.e. 30 positions du fil), lorsque le fil n'écrante pas encore la source. La fonction est normalisée par le nombre de pixels considérés N_P et le nombre de pas de fil N_{p_w} . Pour la minimisation de \mathfrak{F} (parfois appelée aussi χ^2), nous avons utilisé une méthode par moindres carrés.

5.3.2 Application

Pour une première application de la méthode, nous utilisons des données obtenues sur des nano-fils de GaN déposés sur un substrat monocristallin de Ge (voir la description dans l'annexe C).

Concernant les données expérimentales (S_e) à considérer dans la minimisation de la fonction coût \mathfrak{F} , nous utilisons dans un premier temps 16 points sur le détecteur (figure 5.7). Ces points sont répartis selon une grille rectangulaire (ceci uniquement par souci de simplicité), et ils ne doivent contenir que du signal de fluorescence pour que le modèle s'applique. On vérifie donc qu'ils se situent 'loin' des taches de Laue. Le profil d'intensité obtenu, en fonction du numéro des images lors de l'expérience⁸, est montré en figure 5.8 pour le point de calibration numéro 0. Pour améliorer la statistique des données, afin de lisser le bruit de l'image, nous prenons pour

8. Dans ce travail, nous avons toujours travaillé avec un pas de translation du fil δp_w constant entre deux images. Ainsi, la position du fil varie linéairement avec le numéro de l'image.

S_e non pas la valeur d'un seul pixel, mais la somme sur 11 pixels voisins répartis selon une ligne horizontale (Y_{cam} constant), cf figure 5.9. Cette ligne de pixels étant parallèle à l'ombre du fil (dans la géométrie idéale) et de petite taille, les profils d'intensité pour chacun des pixels sont très similaires ; on peut donc raisonnablement calculer une intensité moyenne. Le profil alors obtenu est montré sur la figure 5.10. On remarque que la chute d'intensité est d'environ un facteur 10, lors du passage du fil.

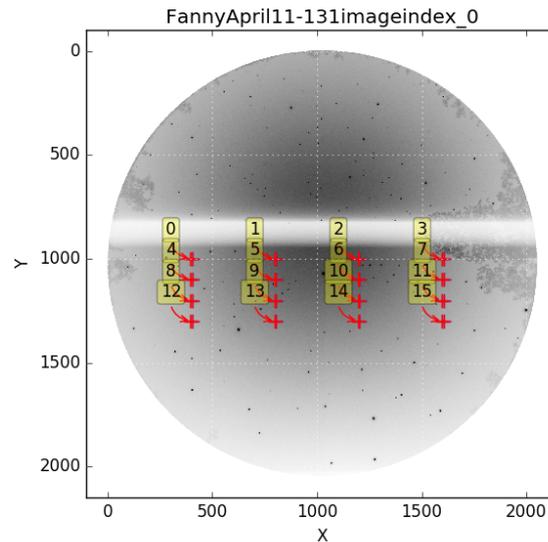


FIGURE 5.7 – Position des 16 points de calibration utilisés pour la calibration du montage de DAXM. Ces points se situent dans la partie centrale du détecteur car le scan de fil n'avait couvert que cette partie du détecteur (volonté de séparer les pics provenant des trois sources).

Avant de lancer la procédure de minimisation pour identifier les paramètres de calibration, il est important d'obtenir un premier jeu de paramètres qui permette d'avoir une première ressemblance entre les profils expérimentaux S_e et les profils calculés S_m . Ces valeurs initiales sont obtenues 'à la main', à l'aide des valeurs nominales de la géométrie du montage. Pour cet exemple, elles sont données dans le tableau 5.2. La valeur la plus critique à obtenir est celle de p_{w0} , puisqu'elle est uniquement liée à l'offset sur le moteur de translation du fil ; une erreur sur sa valeur décale d'autant tous les profils. Pour visualiser l'accord modèle-expérience, on trace le profil d'intensité en fonction du numéro de l'image, pour les 16 pixels considérés. La figure 5.10 montre ces profils ; en tournant de 90° dans le sens horaire cette figure, la position de ces 16 courbes devient similaire à celle des 16 pixels sur la figure 5.7⁹. On remarque que l'accord avec les données expérimentale est déjà très raisonnable lorsque S_m est calculé à partir des valeurs nominales.

9. Ainsi, sur la figure 5.10 non-tournée, le pixel 0 correspond à la courbe en bas à gauche, et le pixel 3 en haut à gauche. Cette convention a été choisie afin que l'abscisse des courbes varie dans le même sens que le déplacement du fil. On peut ainsi vérifier aisément que les minimas des courbes sont alignés, ce qui doit être le cas pour un fil rectiligne. Cette convention sera utilisée tout au long du manuscrit.

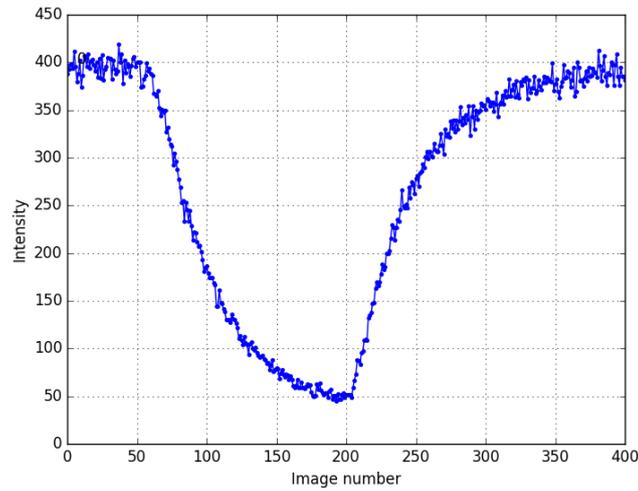


FIGURE 5.8 – Profil de l'intensité mesurée S_e au point 0 de la figure 5.7, en fonction du numéro d'image.

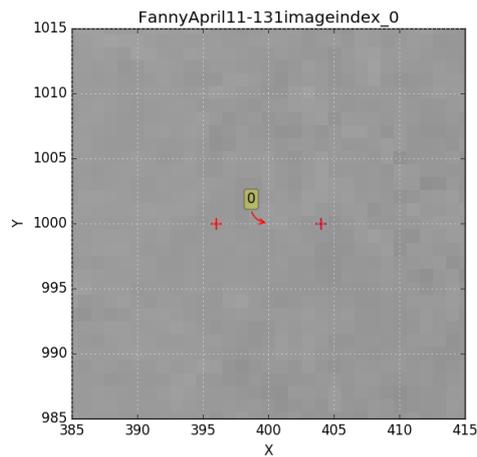


FIGURE 5.9 – Zoom sur le point de calibration numéro 0 de la figure 5.7. Les pixels utilisés pour déterminer S_e sont ceux situés entre les croix rouges, ici 5 pixels de part et d'autre du point 0.

Paramètre	Valeur initiale	Valeur identifiée
R [μm]	25	24.54
H [mm]	0.3	0.2818
κ [$^\circ$]	0.0	0.1275
δ [$^\circ$]	0.0	-0.6527
ζ [$^\circ$]	0.0	0.0
η [$^\circ$]	40.0	42.0523
p_{w0} [mm]	-0.7870	-0.7860
k_m	0	0
$1/\mu$ [μm]	50	37.10

TABLE 5.2 – Valeurs initiales utilisée pour la calibration de la DAXM, et valeurs identifiées après minimisation de l'écart avec les données. La valeur de ζ n'a pas été identifiée car peu dépendante des données utilisées et fortement couplée à H . La valeur $k_m = 0$ a été considérée car elle produit des résultats en bon accord avec l'expérience.

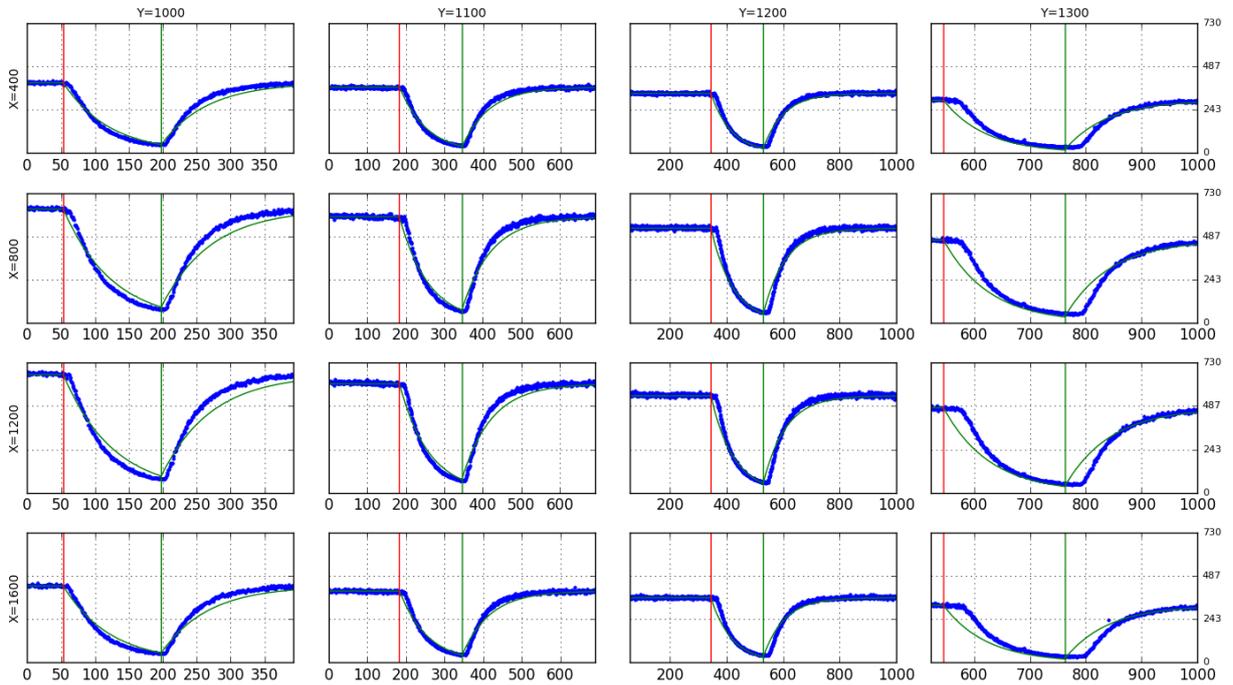


FIGURE 5.10 – Intensité sur les 16 pixels servant à la calibration du montage de DAXM, lors du passage du fil, en fonction du numéro de l'image. Les points bleus sont les données expérimentales (S_e). La courbe verte est le modèle de calibration (S_m), avant ajustement des paramètres. Les traits verticaux verts et rouges indiquent les deux positions limites du fil entre lesquelles une source située à la surface de l'échantillon est écartée, i.e. p_{wfi} et p_{wbi} .

Les paramètres de DAXM identifiés par la minimisation de la fonction coût sont indiqués dans le tableau 5.2. La comparaison des profils expérimentaux avec le modèle est montrée sur la figure 5.11. L'accord est visuellement très bon, notamment au vu des simplifications importantes introduites dans le modèle de calibration, décrites dans la section 5.2.2. D'autres résultats de calibration seront présentés dans les chapitres suivants, sur un acier inoxydable 316L et un oxyde d'uranium implanté.

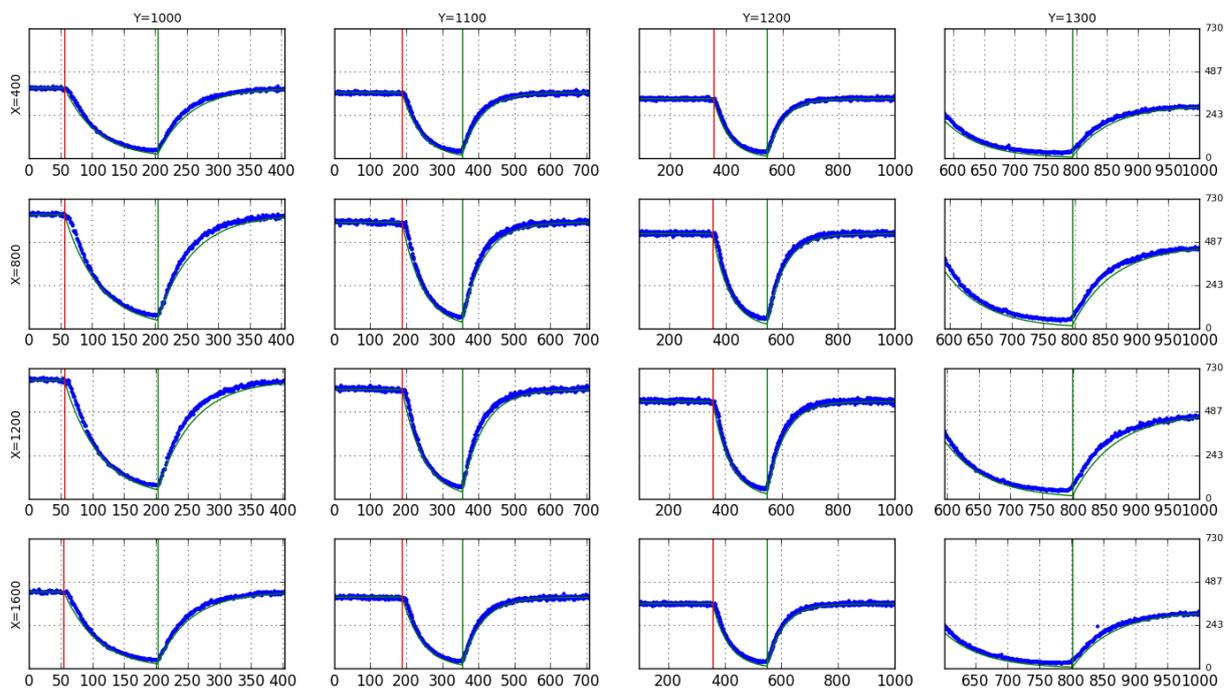


FIGURE 5.11 – Même légende que la figure 5.10, mais la courbe verte montre maintenant le résultat du modèle après identification des paramètres de DAXM.

5.3.3 Sensibilité de la calibration aux pixels choisis

On peut maintenant se poser la question de l'influence du choix du nombre de pixels utilisés et de leur répartition spatiale sur les paramètres de calibration obtenus et sur la robustesse de la minimisation. En d'autres termes, d'autres valeurs de paramètres pourraient-elles donner une même valeur de la fonction coût ? Dans l'exemple précédent, 16 pixels répartis régulièrement sur le détecteur ont été utilisés (figure 5.7). On peut noter que Ibrahim [2015], dans la section 4.4 et l'annexe C de sa thèse, donne des mesures statistiques (conditionnement des points expérimentaux, influence de points isolés, données aberrantes, ...) permettant de guider le choix des points expérimentaux pour limiter l'incertitude sur les paramètres géométriques identifiés. Dans ce travail, nous ne sommes pas allés aussi loin dans l'analyse¹⁰, et nous nous limitons à une

10. Il s'agit d'une étude qui mériterait d'y passer un peu de temps

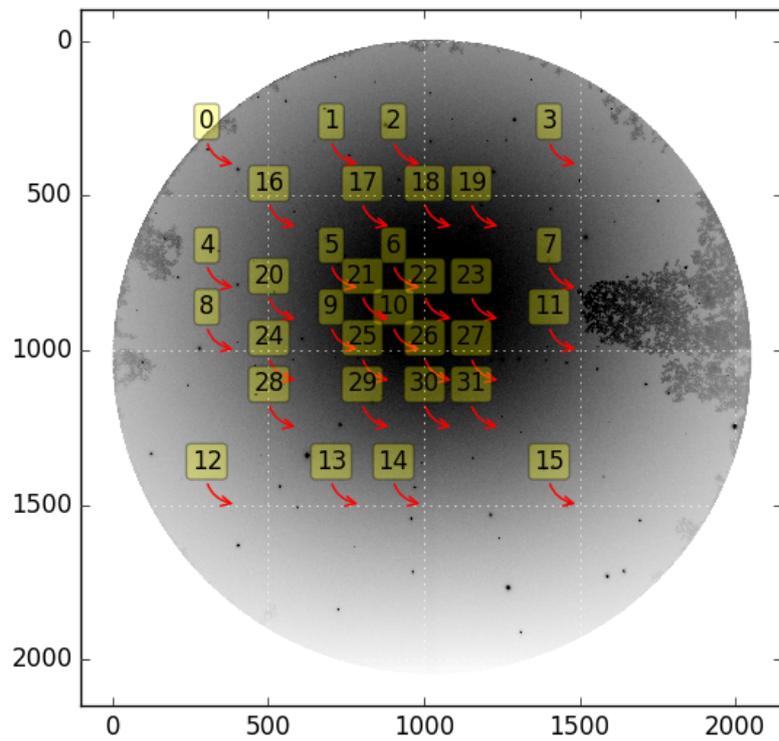


FIGURE 5.12 – Position des 32 points de calibration. Une partie de ces 32 points est utilisés pour tester la sensibilité du nombre de points et de leur position sur les paramètres de calibration identifiés.

analyse classique. Nous allons regarder comment varient les paramètres identifiés en fonction du nombre de pixels utilisés. Pour cela :

1. Nous commençons par choisir 32 points de calibration (i.e. 32 pixels) sur l'image de Laue (figure 5.12), et nous lançons la procédure de calibration en utilisant le profil d'intensité de ces 32 points. Le résidu de l'identification, calculé comme la moyenne sur les 32 points des valeurs de la fonction coût, est indiqué dans la première colonne du tableau 5.3.
2. Puis, nous refaisons la calibration en utilisant seulement une partie de ces 32 points (entre 8 et 24 points). Une fois les paramètres géométriques identifiés, nous recalculons les 32 profils, et le résidu est calculé sur ces 32 profils afin de pouvoir être comparé à celui calculé auparavant avec 32 points de calibration. Les résultats sont indiqués dans le tableau 5.3.

Numéro des points	0-31 (réf.)	0-7	4-11	8-15	12-19	16-23	20-27	24-31	0-11
Nombre de points	32	8	8	8	8	8	8	8	12
Résidu	5.75	5.82	5.93	5.97	5.84	5.94	5.87	5.89	5.82
Différence	0.00	0.07	0.17	0.22	0.09	0.19	0.12	0.14	0.07
Numéro des points	12-23	24-31	8-23	0-15	16-31	0-23	12-31		
Nombre de points	12	12	16	16	16	24	24		
Résidu	5.81	5.89	5.78	5.86	5.81	5.76	5.80		
Différence	0.06	0.14	0.02	0.11	0.05	0.01	0.05		

TABLE 5.3 – Sensibilité de la calibration en fonction des pixels utilisés. Le numéro des points considérés (cf. figure 5.12) et leur nombre sont indiqués, ainsi que la valeur du résidu d'identification et la différence de ce résidu avec la valeur de référence (notée 'réf.', colonne 2) obtenue lorsque l'ensemble des 32 points a été considéré.

On obtient une différence par rapport à la référence moyenne (résidu) de valeur 0.14 pour 8 points de calibration, 0.09 pour 12 points, 0.06 pour 16 points, et 0.03 pour 24 points. La valeur du résidu diminue donc légèrement quand le nombre de points utilisés augmente, mais cette diminution est légère et la valeur du résidu (~ 5.8) reste faible dans tous les cas. Ainsi, pour les expériences suivantes, nous avons choisi d'utiliser 16 points répartis sur la surface du détecteur.

5.3.4 Limites de l'approche, et solutions possibles

La procédure de calibration proposée dans ce travail donne généralement de bons résultats dans le cas de matériaux simples (monophasés, ...). Nous avons eu cependant quelques difficultés dans certains cas.

En effet, certains matériaux (entre autres Al et Si) ne produisent pas de rayonnement de fluorescence dans le spectre d'énergie utilisé¹¹. D'autres échantillons ne sont pas de composition homogène. C'est par exemple le cas des revêtements. Cela implique un profil de fluorescence plus complexe que celui considéré ici, considéré homogène dans l'épaisseur.

¹¹. Ils émettent un rayonnement de fluorescence mais à de très basses énergies qui sont rapidement atténuées par l'air et qui se situent en dessous des seuils de détection du détecteur

Pour ces deux cas typiques, nous avons tenté d'utiliser un petit bout de Ge collé à côté ou sur l'échantillon. On utilise la fluorescence du Ge pour calibrer le montage de DAXM, et les paramètres obtenus sont ensuite utilisés pour l'analyse de l'échantillon. La méthode permet une première analyse, mais elle est limitée par l'incertitude sur la position relative du bout de Ge par rapport à la surface de l'échantillon. Nous avons également utilisé cette méthode pour la mesure de gradients de contrainte en profondeur dans un monocristal d'Al déformé en flexion 4-points (expérience dont l'analyse n'est pas terminée).

Il y a donc à l'avenir la possibilité d'améliorations.

- Pour les échantillons de composition inhomogène, comme les revêtements, nous pensons qu'il faut mettre l'effort sur l'enrichissement du modèle de calibration par une fluorescence multi-couche, prenant en compte une longueur d'onde émise différente pour chaque couche. Cela rajoute des paramètres à identifier, mais le nombre de pixels utilisés pour la calibration peut lui aussi être augmenté de manière significative, et, si besoin, on peut aussi imaginer l'acquisition de données avec plusieurs distances H afin d'enrichir la base expérimentale.
- Pour les échantillons non-fluorescents, une voie possible d'amélioration est le dépôt d'une couche fine fluorescente (ex. $0.1 \mu\text{m}$ de Cu ou Au) sur une zone proche de la zone à analyser sur l'échantillon. Cela réduirait un peu la profondeur d'analyse possible mais cette limitation ne nous paraît pas critique au regard de l'amélioration que ça devrait apporter dans la calibration.

5.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons mis en place un modèle de calibration basé sur la fluorescence de l'échantillon. Le choix de la fluorescence est motivé par l'indépendance de l'intensité émise par l'échantillon vis-à-vis de la microstructure de l'échantillon. Le modèle, dans sa formulation actuelle, suppose une homogénéité de la composition de l'échantillon selon la profondeur, et il est basé sur un coefficient d'absorption unique (ou effectif) des rayons X. La forme des courbes de calibration et la sensibilité aux paramètres géométriques du montage et aux paramètres matériaux ont été détaillées. Cette analyse permettra aux futurs utilisateurs d'optimiser la géométrie du montage utilisé en fonction des résultats recherchés. Ce modèle permet l'identification des différents paramètres expérimentaux (H , η , R , ...).

On montre comment la longueur de la source secondaire, en profondeur dans l'échantillon, peut être estimée avec déjà une bonne précision à partir de la forme des profils d'intensité mesurés, et en particulier la longueur des fronts descendant et ascendant, et la longueur du plateau. La méthode proposée a ensuite été validée par l'expérience de F.Grennerat sur les nano-fils de GaN déposés sur un substrat monocristallin de Ge (cf. annexe C), puis par les expériences sur la macule d'acier inoxydable (chapitre 6) et l'UO₂ implanté (chapitre 7). Le modèle permet une reproduction fidèle des profils d'intensité expérimentaux, sur l'ensemble des pixels utilisés pour la calibration; on obtient un résidu d'environ 6, pour une intensité par pixel de l'ordre de 200 à 500. Le coefficient d'absorption identifié est en accord avec l'absorption moyenne du matériau pour le spectre d'énergie utilisé.

Enfin, des pistes d'amélioration du modèle et de la procédure expérimentale ont été proposées pour les cas pouvant poser problème, notamment pour des échantillons de composition hétérogène

et des échantillons n'émettant pas de fluorescence dans les conditions expérimentales standards. On verra également dans le chapitre 7, à partir de difficultés rencontrées dans la reconstruction des images de Laue en profondeur, qu'il va falloir enrichir ce modèle par une prise en compte plus fine de l'effet du fil.

CHAPITRE 6

Analyse de la position d'une interface : cas d'une macle d'un acier 316L

Sommaire

6.1	Introduction	99
6.2	Matériau d'étude	100
6.3	Analyse en Laue classique	103
6.3.1	Conditions expérimentales	103
6.3.2	Orientation du plan de macle à partir des images de Laue	103
6.4	Mise en oeuvre de la DAXM	105
6.4.1	Conditions expérimentales	105
6.4.2	Analyse brute des profils d'intensité	107
6.5	Calibration précise du montage de DAXM	110
6.6	Reconstruction de I_s pour un pixel P	115
6.6.1	Utilisation du bord avant	115
6.6.2	Généralisation : reconstruction aux profondeurs supérieures au diamètre du fil	116
6.6.3	Résultats	117
6.7	Reconstruction de I_s pour plusieurs pixels voisins	120
6.8	Conclusion	123

6.1 Introduction

Dans ce chapitre, et comme première application, nous étudions la capacité de la DAXM à reconstruire une microstructure en profondeur. Etant donné que cette démarche devait nous servir à valider l'approche et à en estimer les difficultés potentielles, nous avons souhaité nous placer dans un cas le plus simple possible, celui pour lequel nous avons a priori une bonne connaissance de la microstructure 3D de l'échantillon, et ceci sans avoir à détruire l'échantillon ex. à l'aide de polissages successifs (qui entraînent d'autres difficultés expérimentales). Nous avons donc choisi de travailler sur un matériau métallique présentant peu de défauts (état recristallisé), avec une taille de grain grande devant la longueur d'atténuation des rayons X, et une morphologie de joints de grains en profondeur connue à l'avance. Pour ces raisons, nous avons cherché à localiser un plan de macle dans un acier inoxydable (316L).

Après la description du matériau et des conditions expérimentales, nous commençons par présenter dans ce chapitre une première analyse simple des données, qui permet une localisation grossière de l'interface – la macle. Cette analyse simple permet d'obtenir un résultat directement

sur les données brutes. Puis, nous mettons en oeuvre la procédure de calibration précise décrite dans le chapitre 5, ce qui nous permettra de reconstruire les profils d'intensité en profondeur pour un pixel détecteur donné, puis les imagerie sur le détecteur autour d'un spot de Laue à différentes profondeurs. Ces imagerie peuvent être combinées pour reconstituer un diagramme de Laue complet.

En fin de chapitre et dans l'annexe C, nous présentons une autre expérience de validation sur une géométrie simple, obtenue sur des nanofils de GaN déposés sur un substrat de Ge monocristallin, une étude dont les données ont été analysées par F. Grennerat lors de son post-doctorat.

6.2 Matériau d'étude

L'échantillon d'acier 316L sur lequel nous avons travaillé a été élaboré à l'Ecole des Mines de Saint-Etienne. Il nous a été fourni par E. Plancher qui en donne une description détaillée dans sa thèse [Plancher, 2015]. Il s'agit d'un acier bas carbone, inoxydable, de structure cristalline cubique à face centrés (CFC). La composition chimique est rappelée dans le tableau 6.1 ; il est principalement constitué de Fe, Cr, Ni. En fin de cycle industriel d'élaboration, le matériau est soumis à un traitement d'hypertrempe à 1050 °C permettant la mise en solution solide du carbone et l'homogénéisation de la solution solide de substitution des éléments d'addition (Cr, Ni, Mo, Mn). La descente en température rapide limite les processus de diffusion, permet de figer la phase austénitique, et limite la formation de carbures et de ferrite résiduelle. La phase ferritique résiduelle représente alors moins de 1% massique. En laboratoire, un traitement thermique additionnel à 1200 °C sous argon, en deux temps (6 h + 277 h), a été réalisé afin d'activer la croissance des grains. Il en résulte une microstructure présentant de nombreuses macles, et une taille de grain moyenne de $\sim 350 \mu\text{m}$. L'épaisseur des macles est souvent de $\sim 100 \mu\text{m}$ (figure 6.1a,b).

Cr	Ni	Mo	Mn	C	N	S	P	Si	Cu
16–19	10 – 14	2.25 – 2.78	< 2	< 0.03	< 0.06	< 0.03	< 0.04	< 1	< 1

TABLE 6.1 – Composition chimique (en % massique) de l'échantillon en acier 316L [Plancher, 2015].

Concernant la préparation de surface de l'éprouvette, nous avons utilisé le même protocole que celui mis au point par Plancher [2015], qui était particulièrement soigné puisque celui-ci réalisait des analyses en EBSD Haute Résolution, qui sont extrêmement sensibles aux défauts de surface. Il en résulte des défauts de planéité de surface inférieurs au micromètre (figure 6.1c). La cartographie des orientations cristallographiques (EBSD) indique de très faibles désorientations intragranulaire dans les grains (figure 6.1b). Enfin, pour pouvoir localiser précisément le faisceau de rayons X sur la surface de l'éprouvette, et retrouver sur BM32 la zone cartographiée par EBSD, quatre petits trous borgnes (diamètre 8 μm , profondeur 30 μm , figure 6.1d) ont été percés dans l'éprouvette en faisceau d'ions (FIB-SEM)¹. Ces trous sont inclinés de 40° par rapport à la

1. Le perçage d'un trou a duré ~ 8 min dans les conditions 30 kV, 21 nA. Cette opération a été réalisé par

surface de l'échantillon de façon à être parallèles au faisceau de rayons X incident sur la ligne BM32. Un exemple d'imagerie de ces trous, utilisant la fluorescence de l'échantillon sur BM32, est donnée en figure 3.12.

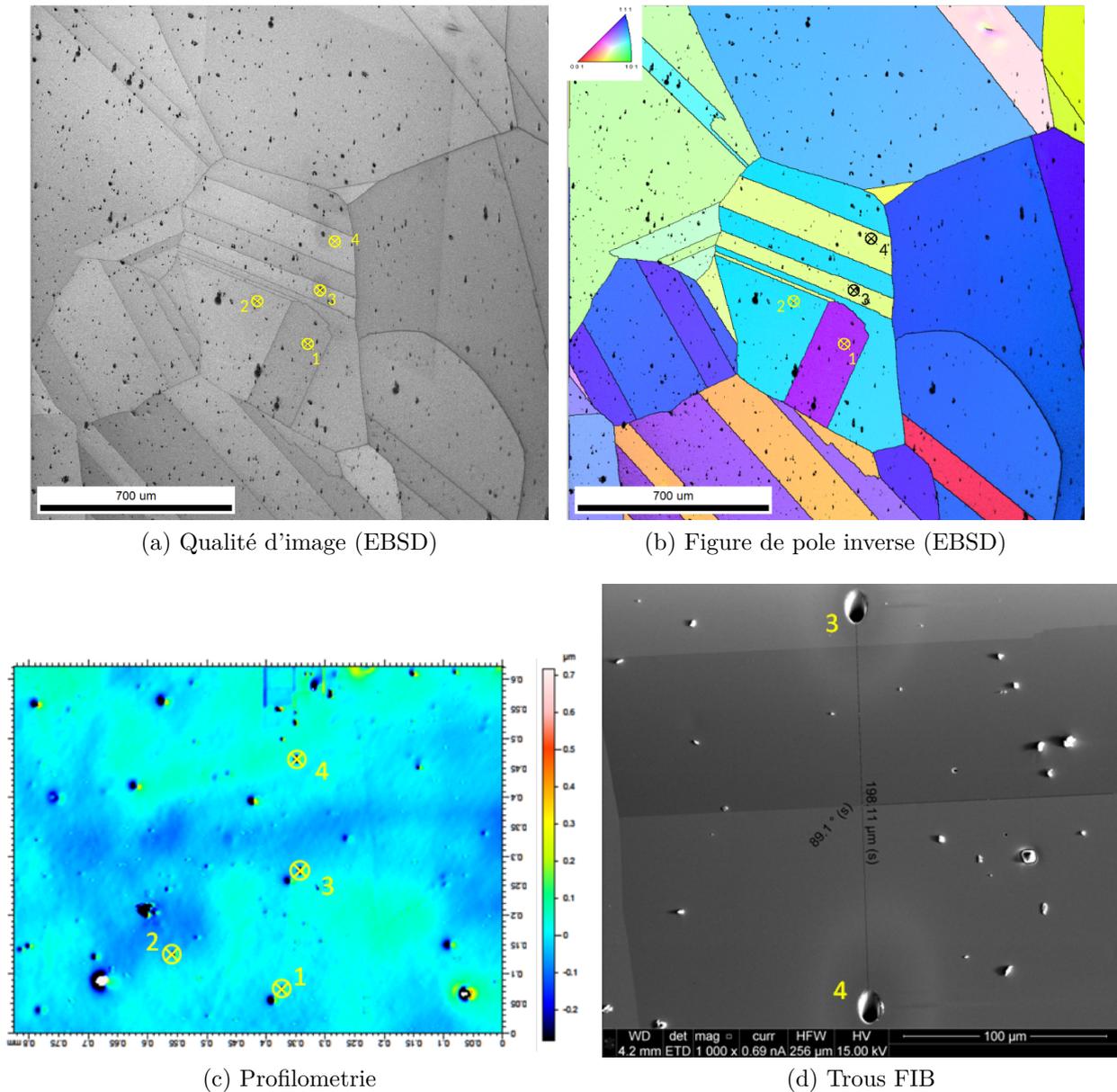


FIGURE 6.1 – Microstructure de l'échantillon en acier 316L. (a) Cartographie de la qualité des clichés EBSD. (b) Cartographie des orientations cristallines (figure de pole inverse). (c) Profilométrie. (d) Image MEB des trous FIB 3 et 4, distants de $198\ \mu\text{m}$. Les points numérotés de 1 à 4 sont des trous FIB. Le joint de macle étudié est celui se situant au milieu entre les points 3 et 4.

Enfin, puisque nous allons utiliser la fluorescence de l'échantillon pour la calibration de la DAXM, et la pénétration du faisceau pour la reconstruction de la microstructure, nous avons tracé la longueur d'atténuation des quatre éléments majoritaires (Fe, Cr, Ni, et, dans une moindre mesure, Mo) sur la figure 6.2. Dans le spectre d'énergie de BM32 (5–22 keV), la longueur d'atténuation de ces éléments est globalement comprise entre 5 μm et 100 μm . Le rayonnement de fluorescence sera polychromatique, avec 3 énergies dominantes entre 5 et 9 keV. La raie du Mo, autour de 20 keV sera moins intense en raison de la faible fraction volumique de cet élément. L'étude qui suit suppose que le rayonnement de fluorescence a un spectre d'énergie constant quelque soit la profondeur de la source. Cela suppose une homogénéité de la composition chimique de l'acier, pour l'échelle d'observation.

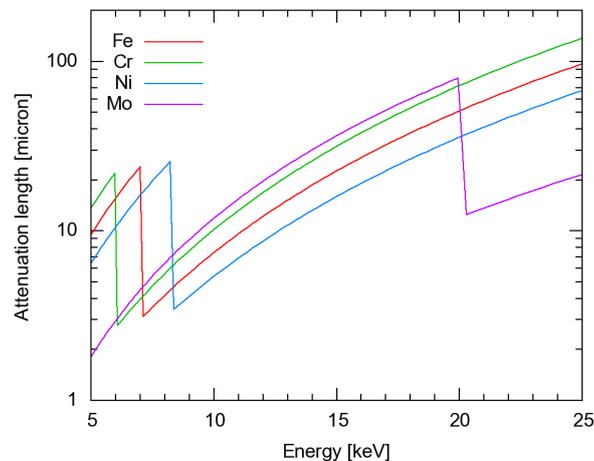


FIGURE 6.2 – Longueur d'atténuation pour les quatre éléments majoritaires de l'acier 316L. Courbes calculées via le site du Center for X-Ray Optics (<http://cxro.lbl.gov/>).

Pour finir, nous rappelons quelques éléments de cristallographie. Une macle est l'image d'un grain parent par la symétrie miroir par rapport au plan de macle. Le joint de macle, dont on observe la trace sur les cartographies EBSD, est ce plan miroir, cf. par exemple François et al. [2012]. Une macle est aussi caractérisée par une direction de maclage, qui correspond à la direction du cisaillement du grain parent. Pour les structures CFC, le plan de macle est un plan d'indices $\{111\}$, et la direction de maclage est $\langle 11\bar{2} \rangle$. Ainsi, le grain parent et la macle partagent un plan d'indice $\{111\}$. La désorientation entre ces deux cristaux est de 70.53° , qui correspond à l'angle entre deux plans de type $\{111\}$ dans un cristal CFC. Cette désorientation est autour d'une direction $\langle 110 \rangle$, qui est la direction appartenant au plan de macle et perpendiculaire à la direction de maclage (figure 6.3).

En résumé, l'échantillon d'acier 316L présente les caractéristiques intéressantes suivantes :

- en raison de la faible désorientation intragranulaire, les taches de Laue seront peu étalées sur le détecteur,
- la taille de grains est significativement plus grande que la longueur d'atténuation du faisceau X, et donc les images contiendront essentiellement le cliché de Laue du grain de surface, avec éventuellement le cliché d'un deuxième grain sous la surface si le joint de grain entre les deux est situé à une faible profondeur,

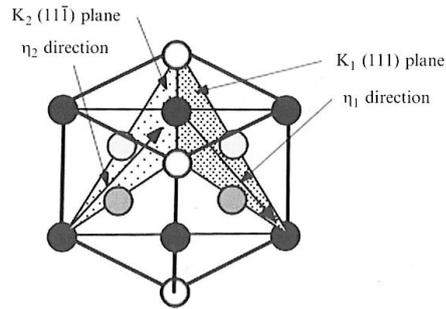


FIGURE 6.3 – Maillage d’un cristal CFC. Le plan de macle K_1 est (111) , et la direction de maillage η_1 est $[11\bar{2}]$. Tiré de François et al. [2012].

- la cartographie EBSD montre que les traces de tous les plans de macle sont parfaitement linéaires, ce qui valide l’hypothèse de joints de grains plans en profondeur dans le matériau. A partir de la mesure des orientations cristallographiques et de l’orientation de la trace du plan de macle, les indices $[uvw]$ de la normale au plan de macle peuvent être calculés, et l’orientation de ce plan par rapport à l’échantillon peut être déterminé. Ainsi, la cartographie EBSD suffit pour caractériser entièrement le plan de macle. Dans ce travail, nous allons vérifier si la DAXM permet de retrouver l’orientation et la position du joint de macle en profondeur. Le joint de macle étudié est celui qui se situe à égale distance des trous 3 et 4 sur la figure 6.1.

6.3 Analyse en Laue classique

Avant de mettre en oeuvre la DAXM, nous allons utiliser les images de Laue classiques pour caractériser le plan de macle.

6.3.1 Conditions expérimentales

L’acquisition des images de Laue a été réalisée avec une configuration standard du montage. Nous avons utilisé le détecteur MARCCD, comportant 2048×2048 pixels de taille $\ell_p = 79.142 \mu\text{m}$. L’échantillon était incliné de 40° (\approx angle α) par rapport au faisceau incident. Les paramètres de calibration du montage, obtenus à l’aide d’un cristal de Ge (cf. section 3.2.5), sont indiqués dans le tableau 6.2.

Concernant la localisation du faisceau sur l’échantillon, nous avons utilisé la cartographie EBSD et les images MEB pour localiser la trace du joint de macle à la surface de l’éprouvette par rapport aux trous de FIB 3 et 4. Nous avons ensuite localisé ces trous sur la ligne BM32 à l’aide du microscope optique de la ligne, ce qui nous permet de connaître précisément (au \sim micron près) la position du faisceau X par rapport à la trace du joint de macle.

6.3.2 Orientation du plan de macle à partir des images de Laue

La figure 6.4a présente un cliché de Laue typique, obtenu lorsque le faisceau incident est proche de la trace du joint de macle (point O_4 sur la figure 6.5). On observe la superposition

Paramètre	Valeur
X_{cen}	1018.11 pix.
Y_{cen}	912.19 pix.
D	63.060 mm
β	0.71°
γ	-0.085°

TABLE 6.2 – Valeurs des paramètres de calibration du montage de Laue pour les mesures sur l'acier 316L.

de deux orientations cristallographiques. Le logiciel LaueTools permet, sur un tel cliché, de regrouper les taches (hkl) appartenant à chacun des grains, de les indexer, puis de donner une mesure de l'orientation des deux grains. La figure 6.4b montre les taches de Bragg de chacun des deux grains. La macle et son grain parent ont en commun un certain nombre de pics. Ce sont ceux correspondant au plan de macle ou à tous les plans invariants par la déformation de cisaillement de la maille associée au maillage.

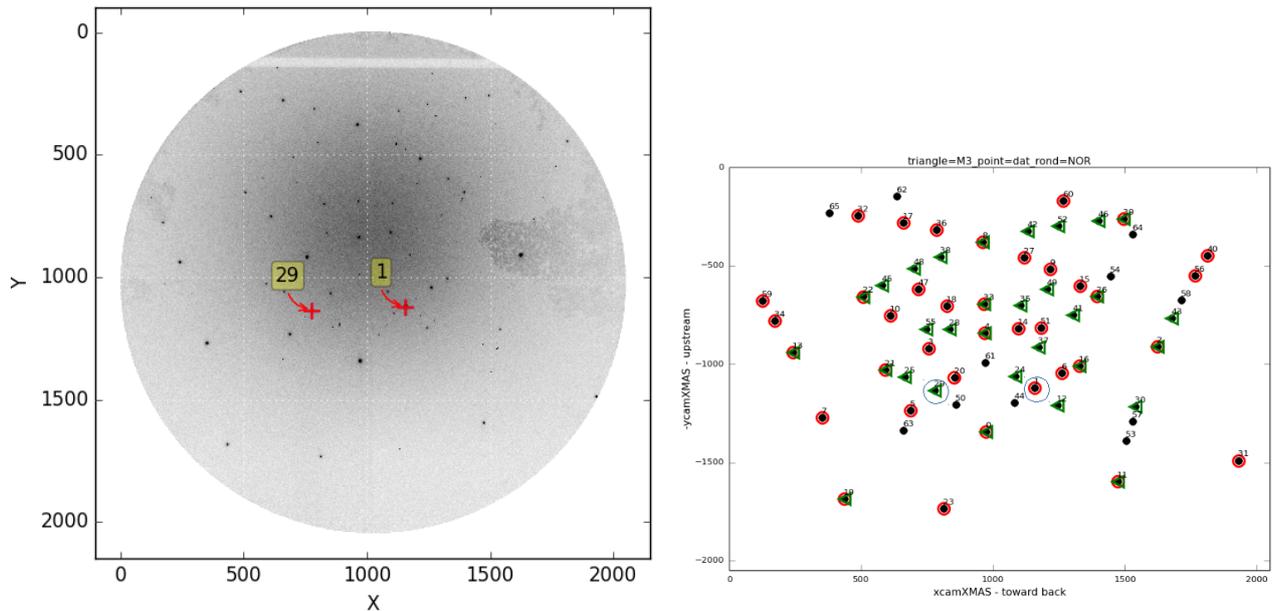


FIGURE 6.4 – (gauche) Cliché de Laue obtenu pour un faisceau incident positionné à $18\ \mu\text{m}$ du joint de macle (point O_4 sur la figure 6.5). On constate la superposition de deux clichés, correspondant à l'orientation du grain parent et de la macle. (droite) Indexation du cliché : les points noirs indiquent la position de tous les pics (hkl) sur le détecteur, les cercles rouges ceux appartenant au grain parent, et les triangles verts ceux de la macle. Les numéros correspondent au classement des pics par intensité décroissante.

Nous nous intéressons maintenant à l'orientation du plan de macle. L'analyse de Laue ci-dessus permet l'estimation de la matrice d'orientation de chacun des deux grains. Appelons \mathbf{P}_p

la matrice d'orientation du grain parent, et \mathbf{P}_m celle de la macle. Ces deux matrices permettent de passer du repère échantillon (indice s) à celui du grain (on lui attribut l'indice g), cf. annexe B. L'application d'une rotation \mathbf{P} à un grain dont l'orientation initiale est $\phi_1 = \Phi = \phi_2 = 0$ ² permet d'obtenir les coordonnées dans le repère s de la normale à un plan (hkl) pour le grain tourné. Ainsi, puisque le grain parent et la macle ont en commun un plan de type $\{111\}$, qui a pour normale une direction de type $\langle 111 \rangle$, alors le produit de \mathbf{P}_p avec cette direction, ou de \mathbf{P}_m avec cette même direction, doivent donner le même résultat. En d'autre terme, si \vec{n}_{hkl} est le vecteur normal au plan (hkl) pour l'orientation $\phi_1 = \Phi = \phi_2 = 0$, et si (hkl) est le plan de macle, alors on doit avoir

$$\mathbf{P}_p \cdot \vec{n}_{hkl} = \mathbf{P}_m \cdot \vec{n}_{hkl}. \quad (6.1)$$

A partir du cliché de la figure 6.4, on obtient

$$\mathbf{P}_p = \begin{bmatrix} 0.356 & -0.431 & 0.829 \\ 0.699 & -0.462 & -0.546 \\ 0.619 & 0.773 & 0.139 \end{bmatrix}, \quad \mathbf{P}_m = \begin{bmatrix} -0.385 & 0.457 & -0.802 \\ 0.439 & -0.675 & -0.594 \\ -0.814 & -0.578 & 0.057 \end{bmatrix}, \quad (6.2)$$

ce qui permet de montrer que la normale au plan de macle est une direction $[\bar{1}11]$ dans les repères utilisés puisque

$$\mathbf{P}_p \cdot \vec{n}_{[\bar{1}11]} = \mathbf{P}_m \cdot \vec{n}_{[\bar{1}11]} = \begin{bmatrix} 0.024 \\ -0.985 \\ 0.170 \end{bmatrix}. \quad (6.3)$$

On vérifie également que la désorientation entre le grain parent et la macle est de 70.5° , en accord avec la théorie. Finalement, la configuration de l'échantillon est indiquée sur la figure 6.5. L'intersection du plan de macle avec le plan (\vec{y}_s, \vec{z}_s) fait un angle de 80.21° ($= \arctan(0.985/0.170)$) avec la surface de l'échantillon.

6.4 Mise en oeuvre de la DAXM

6.4.1 Conditions expérimentales

L'échantillon d'acier 316L a été scanné par le faisceau incident. Les 13 points de mesures, O_1 à O_{13} , sont indiqués sur la figure 6.5. Il sont espacés de $3 \mu\text{m}$, et se situent sur une droite perpendiculaire à la trace du plan de macle en surface³. Le point O_{10} est proche de la position du plan de macle.

Le fil de tungstène, de rayon nominal $R = 25 \mu\text{m}$, a été positionné à une distance $H \simeq 1.5 \text{ mm}$ de l'échantillon. Le fil était \sim parallèle à \vec{x}_s , et sa direction de translation selon $\sim \vec{y}_b$ ($\eta \simeq 0^\circ$). Le pas de déplacement du fil était $\delta p_w = 5 \mu\text{m}$. Au total, 600 positions de fil ont été mesurées, ce qui correspond donc à un déplacement total de 3 mm.

La figure 6.6 montre la transmission I/I_0 des rayons X à travers $50 \mu\text{m}$ de W, qui est le diamètre du fil utilisé. Pour les énergies inférieures à $\sim 17 \text{ keV}$, la transmission est très faible, inférieure à 10^{-4} . Elle devient non-négligeable pour les énergies les plus importantes ; on devrait

2. Les angles d'Euler sont définis dans l'annexe B

3. L'échantillon était positionné de telle manière à ce que la trace du plan de macle \sim soit parallèle à l'axe \vec{x}_s .

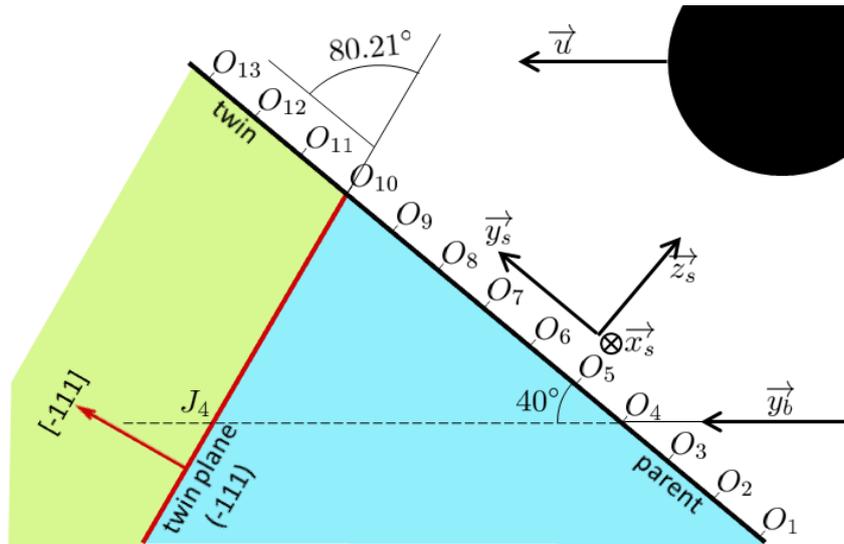


FIGURE 6.5 – La trace du plan de macle dans le plan (\vec{y}_s, \vec{z}_s) fait un angle de 80.21° avec la surface de l'échantillon. Les points O_1 à O_{13} indiquent la position du faisceau incident lors des mesures de DAXM. La distance entre ces points est de $3 \mu\text{m}$. Le plan de macle intercepte la surface de l'échantillon au point O_{10} . Le fil est également représenté. Les échelles ne sont pas respectées.

donc observer sur les images de Laue des pics de haute énergie qui traversent du fil. La figure 6.6 montre aussi la transmission pour des épaisseurs traversées plus faibles, correspondant par exemple aux faisceaux traversant les bords du fil. Entre $30 \mu\text{m}$ et $50 \mu\text{m}$ d'épaisseur traversée, la différence est très importante, par exemple un facteur 15 à 15 keV.

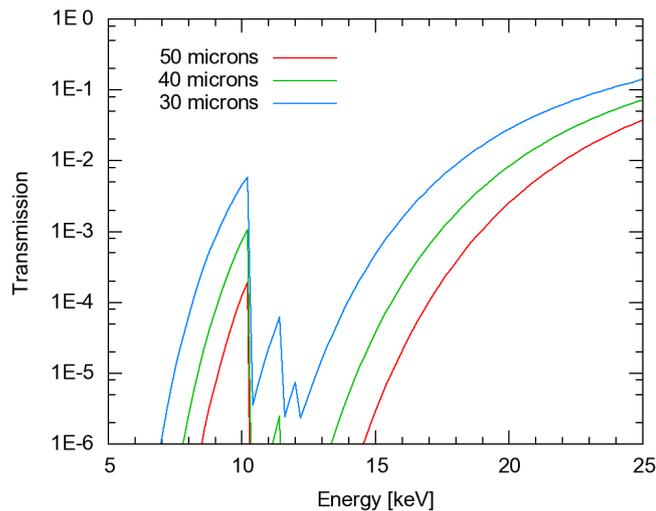


FIGURE 6.6 – Transmission des rayons X au travers de $30 \mu\text{m}$, $40 \mu\text{m}$, ou $50 \mu\text{m}$ de W.

6.4.2 Analyse brute des profils d'intensité

Dans cette section, nous allons effectuer une première analyse “à la main” des images de DAXM pour d'illustrer, sur cette première application, le contenu des données. Nous allons supposer que la géométrie du montage est suffisamment proche de la géométrie idéale décrite en section 4.3.4 afin de pouvoir nous affranchir, dans un premier temps, des corrections géométriques associées. Nous appliquons le modèle géométrique approché, développé en section 4.3.5. Nous traitons les données correspondant au cas où le faisceau est placé sur le point O_4 , situé à $18\ \mu\text{m}$ du point O_{10} .

Nous allons considérer seulement deux taches de Laue, celles numérotées 1 et 29 sur la figure 6.4. La tache 1 appartient au grain parent, alors que la tache 29 provient de la macle. Nous avons choisi ces deux taches car elles sont à peu près sur la même rangée de pixel du détecteur (i.e. coordonnées Y_{cam} voisines) ; elles seront donc masquées par le fil à peu près en même temps. Ces taches sont d'autre part positionnées proche du centre du détecteur ($Y_{cam} \approx Y_{cen}$). Les corrections géométriques associées aux valeurs de P_y ($\approx 0\ \text{mm}$) seront donc moindres, cf. équation (4.52). Quelques images brutes sont données sur la figure 6.7, pour plusieurs positions du fil. Le numéro de l'image est un indicatif de la position relative du fil : entre deux images, le fil s'est déplacé d'un pas, dont la valeur est donnée en section 6.4.1. On relève les points particuliers suivants, caractéristiques de la DAXM :

- les deux taches 1 et 29 apparaissent sur l'image 2779 au milieu de l'ombre du fil sur le détecteur ;
- puis, sur l'image 2789, la tache 29 n'a pas repris sa forme ni son intensité initiale, alors qu'elle est entièrement sortie de l'ombre.

Les deux points ci-dessus s'expliquent par la position et l'étendue de la source secondaire dans l'échantillon. La grande ombre horizontale du fil que l'on repère à l'oeil sur le détecteur est en fait l'ombre que fait le fil pour le rayonnement de fluorescence, qui est ici à une énergie faible ($< 9\ \text{keV}$, figure 6.2) et efficacement absorbé par l'échantillon et le fil (figure 6.6). Ce rayonnement provient essentiellement des quelques microns de matière proches de la surface. Le mécanisme est un peu différent pour les taches de Laue. On peut en effet anticiper que seule une partie de la source secondaire est masquée par le fil sur l'image 2779⁴. De manière un peu similaire, sur l'image 2789, on imagine que le fil écrante toujours une partie de la source dans la macle, qui est en profondeur dans l'échantillon, alors que l'ombre de la fluorescence est sortie du pixel correspondant à la tache 29.

Nous allons, à partir de la série d'images, déterminer la position du joint de macle en profondeur dans l'échantillon, c'est-à-dire la distance O_4J_4 (figure 6.5). Pour cela, nous considérons le niveau de gris de quatre pixels : deux pixels (on les appellera L_1 et L_{29}) situés au centre des taches de Laue 1 et 29, et deux autres pixels (on les appellera F_1 et F_{29}) situés à une distance de 20 pixels vers la droite sur l'image de ces derniers. Donc L_1 et F_1 , ainsi que L_{29} et F_{29} , ont deux-à-deux la même coordonnée Y_{cam} et 20 pixels d'écart pour X_{cam} . La position de ces pixels est indiquée sur la figure 6.7. Les pixels F étant en dehors de la tache de Laue, ils mesurent essentiellement la fluorescence de l'échantillon.

L'évolution du niveau de gris sur ces quatre pixels, en fonction du numéro d'image, est donnée

4. On ne peut cependant pas complètement écarter le fait qu'une partie de la tache provienne du faisceau transmis au travers du fil, malgré son diamètre élevé.

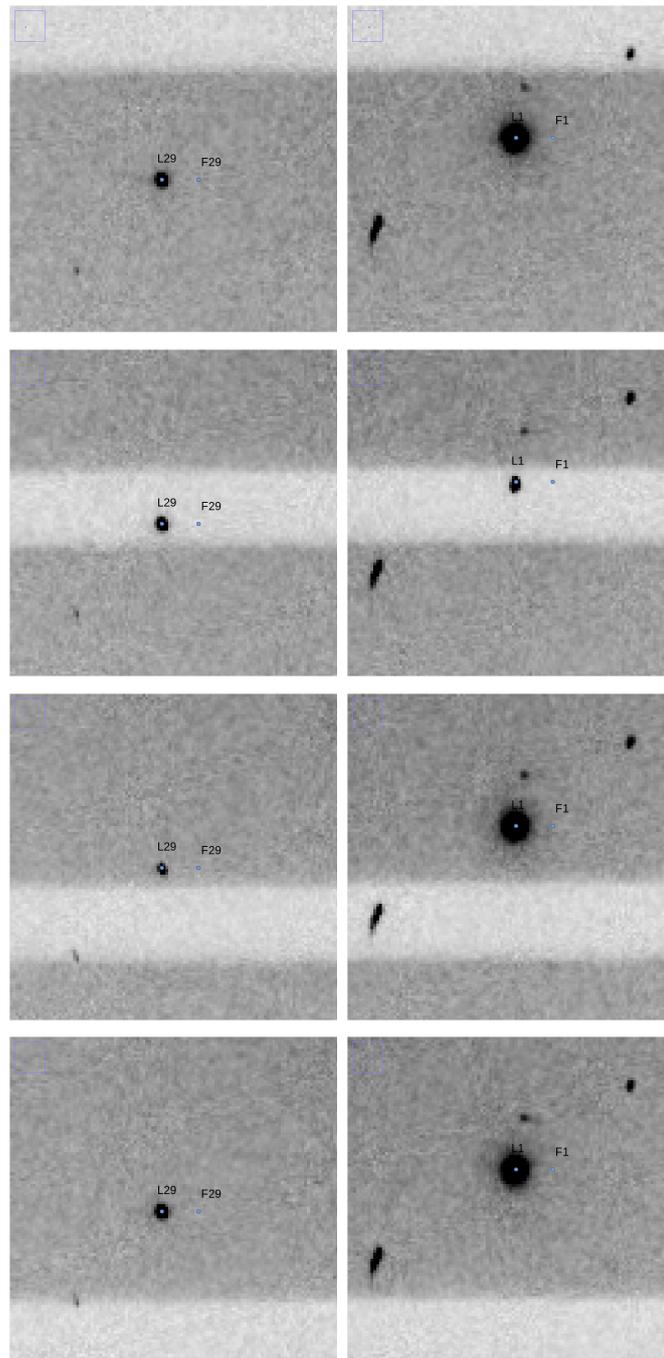


FIGURE 6.7 – Zoom sur (gauche) la tache 29 appartenant à la macle, et (droite) la tache 1 appartenant au grain parent, pour quatre positions du fil : (haut) image 2761, l'ombre du fil n'a pas encore écranté les taches, (2ème ligne) image 2779, les deux taches apparaissent dans l'ombre du fil, (3ème ligne) image 2789, la tache 29 est juste après la limite 'back' de l'ombre, et (bas) image 2799, les deux taches ont repris leur forme initiale, après passage de l'ombre.

L'incrément de position δp_w est positif entre deux images successives.

sur la figure 6.8. L'intensité des pixels de fluorescence F étant nettement plus faible que celle des pixels L des taches de Laue, elle est indiquée sur une échelle dilatée en figure 6.8b. Ces profils sont davantage bruités, en raison essentiellement du faible taux de comptage (bruit de photons). On peut relever les points suivants :

- L'intensité chute lors du passage du fil, pour les quatre profils.
- Les profils d'intensité ont des formes différentes. Le profil L_1 décroît jusqu'à une valeur minimale qui paraît constante avec la position du fil, pendant 6 images. Le profil L_{29} n'atteint par contre pas de valeur stable : on observe une décroissance continue jusqu'au point où l'intensité croît à nouveau (image 2788). Les deux profils F ont une forme similaire à celle de L_1 , avec une valeur stable de l'intensité minimale.
- Les chutes d'intensité sont décalées ; elles apparaissent à différentes positions du fil.

On peut exploiter ces données pour obtenir une première information sur les positions relatives du grain parent et de la macle, et sur leur taille.

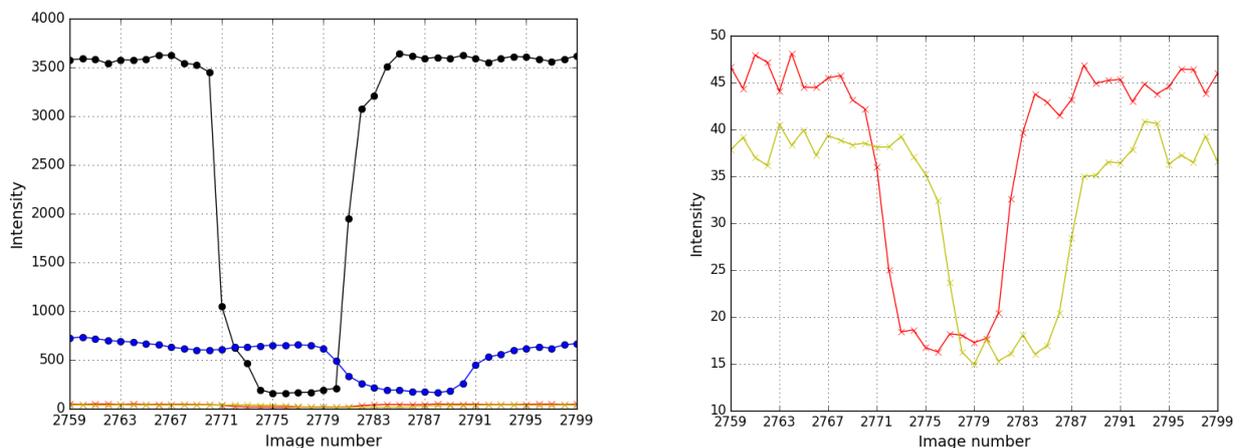


FIGURE 6.8 – Profils d'intensité mesurés sur les quatre pixels en fonction du numéro d'image. (gauche) Valeurs pour les pixels L_1 (points noirs), L_{29} (bleus) correspondant aux taches de Laue, et F_1 (rouges), F_{29} (orange) (fluorescence). (droite) Valeurs pour les pixels F_1 (rouges) et F_{29} (orange), sur une échelle dilatée.

Exploitions tout d'abord les profils de fluorescence F_1 et F_{29} . On observe que la décroissance du profil F_1 commence 4 images avant celle de F_{29} . Ce décalage est directement associé à la différence de position de ces pixels sur le détecteur, selon \vec{y}_s (coordonnée Y_{cam}), ainsi qu'à l'orientation \vec{f} du fil qui n'est sans doute pas exactement parallèle à \vec{y}_s .

Les deux profils L sont quant à eux décalés de 9 images. Ce décalage est lié au décalage géométrique de position de pixels et d'orientation du fil, comme pour F , et d'un décalage dans la position des sources associées au grain parent et à la macle. En supposant que le fil soit parallèle à la rangée de pixel du détecteur (\vec{x}_s), on peut utiliser le décalage des profils F pour corriger la part géométrique de L . Il reste donc $9 - 4 = 5$ images de décalage entre les deux sources interne dans l'échantillon.

L'intensité des profils L chute lorsque le bord avant du fil commence à écranter la source,

pour le pixel considéré. En se basant sur la relation approchée (4.52) avec $\eta = 0^\circ$, on voit qu'un incrément de déplacement du fil δp_w correspond au même incrément $\delta \xi_f \simeq \delta p_w$ de déplacement de la source. Le pas du fil entre deux images étant de $5 \mu\text{m}$, on obtient donc un décalage de $\sim 5 \times 5 \mu\text{m} = 25 \mu\text{m}$ ($= O_4 J_4$) entre le début de la source X du grain parent (point O_4) et le début de la source X de la macle (point J_4 , cf. figure 6.5). On connaît d'autre part la distance $O_4 O_{10}$, qui est de $\sim 18 \mu\text{m}$ ⁵. On en déduit alors une estimation de la distance théorique, $O_4 J_4 \simeq 20.5 \mu\text{m}$. L'accord entre la mesure et la valeur théorique est donc tout à fait satisfaisant, dans la mesure où le décalage entre les profils et les chutes d'intensité n'ont été repérés qu'à une image près, et étant donné l'incertitude sur la position de O_{10} .

On peut aussi tirer profit de la forme des profils L .

- D'après la figure 6.8a, il faut 4 ou 5 images pour que l'intensité du profil L_1 chute de sa valeur maximale à sa valeur minimale stabilisée, ce qui correspond à un déplacement du fil $\delta p_w \simeq 20\text{--}25 \mu\text{m}$. D'après le chapitre 5.2, cette distance correspond à la taille de la source secondaire, puisque le profil d'intensité de L_1 garde ensuite une valeur stable. Cette valeur est tout à fait comparable à l'estimation de la distance $O_4 J_4$ ($25 \mu\text{m}$) faite ci-dessus.
- De manière similaire, la longueur de la remontée de l'intensité sur les profils est aussi une mesure de la longueur de la source. On retrouve également 5 images, soit $25 \mu\text{m}$.
- La longueur du plateau bas du profil L_1 est d'environ $25 \mu\text{m}$ (5 images). Ce plateau correspond à toutes les positions du fil pour lesquelles le fil écrante complètement la source secondaire. Avec cette donnée, on peut avoir une nouvelle estimation de la longueur de la source, qui est égale au diamètre du fil moins la longueur du plateau, soit $50 - 25 = 25 \mu\text{m}$. On retrouve une fois de plus la même valeur que ci-dessus.
- Enfin, concernant le profil L_{29} , nous avons remarqué l'absence de valeur minimale stabilisée. Cette observation est compatible avec l'épaisseur de la macle ($\sim 130 \mu\text{m}$, cf. figure 6.1), qui est bien plus grande que le diamètre du fil.

En conclusion, il apparaît que cette analyse rustique, qui n'utilise que 4 pixels du détecteur, qui ne tient pas compte des défauts de géométrie, qui est basée sur un modèle approché, et qui ne considère que l'instant où l'intensité chute à une image près, permet déjà une reconstruction fidèle de la microstructure sous-surface avec une résolution de quelques microns.

6.5 Calibration précise du montage de DAXM

Pour aller plus loin dans l'analyse, nous avons besoin de tenir compte précisément de la géométrie du montage, et en particulier de tous les écarts à la géométrie idéale définis en section 4.3.4. Nous présentons dans cette section le résultat de l'étape de calibration du montage de DAXM.

Pour la calibration du montage, nous avons utilisé 16 pixels répartis à peu près uniformément sur la surface du détecteur. Ils sont positionnés selon une grille correspondant aux valeurs $X_{cam} =$

5. La mesure expérimentale de la distance $O_4 O_{10}$ n'est pas très précise, car le joint de macle n'était pas visible avec le microscope optique du montage de microLaue. La position du point O_{10} n'a été estimée qu'a posteriori, à partir des images de Laue – on repère l'image à partir de laquelle les pics de la macle disparaissent. L'incertitude est donc de l'ordre de δp_w , soit $\sim 5 \mu\text{m}$.

400, 900, 1148, et 1648 pixels et $Y_{cam} = 400, 800, 1000, \text{ et } 1200$ pixels, cf. figure 6.9. La figure 6.10 indique l'intensité mesurée sur ces pixels lors du passage du fil, en fonction du numéro de l'image. Comme pour la figure 6.8, on notera le faible niveau de l'intensité mesurée puisque les pixels ne sont pas positionnés sur des taches de Laue. La courbe verte indique les résultats du modèle de calibration (cf. équation 5.13) obtenus avec la valeur nominale des paramètres géométriques, qui sont données dans le tableau 6.3. On remarque que le modèle ne reproduit que très grossièrement les données.

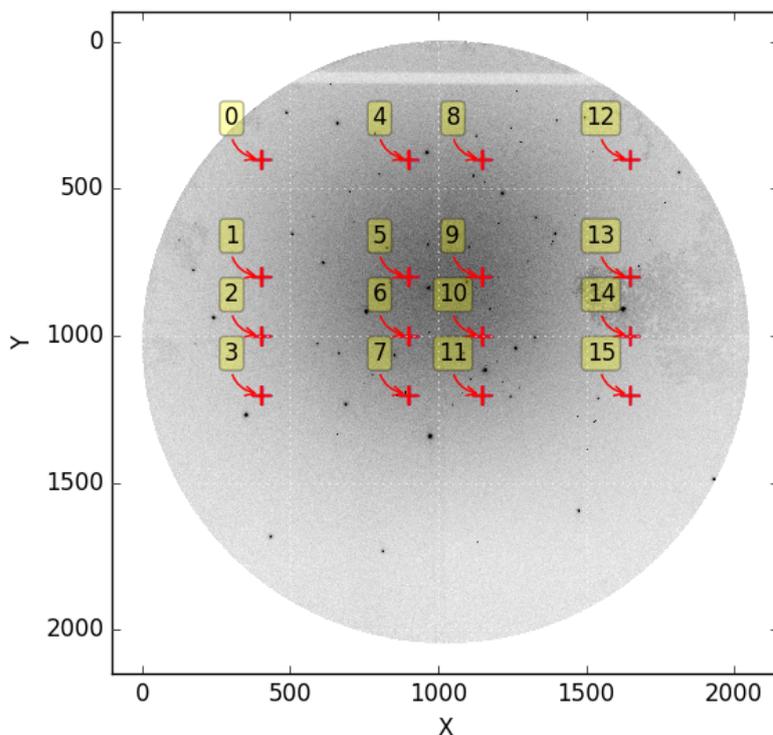


FIGURE 6.9 – Position des 16 pixels utilisés pour la calibration de la DAXM.

Pour l'identification des paramètres géométriques, on utilise la méthode décrite en section 5.3.1 avec la fonction objective (5.14). Les paramètres obtenus sont indiqués en troisième colonne du tableau 6.3. L'identification de k_m et de $\tilde{\mu}$ est nécessaire pour l'ajustement du modèle de calibration, mais ces deux paramètres ne seront plus utilisés dans la suite pour la reconstruction des images de Laue. p_{w0} est quant à lui simplement un offset sur la valeur du moteur de translation du fil. Les six autres paramètres, R , H , κ , δ , ζ , et η , décrivent la géométrie du montage, et auront une influence forte sur la reconstruction des images de Laue.

La minimisation de la fonction objective \mathfrak{F} permet un très bon accord du modèle avec les données expérimentales (figure 6.11). Les angles κ , δ , et η sont tous de l'ordre du centième de degré, indiquant que la géométrie est vraiment proche de la géométrie idéale utilisée dans la section précédente. Les plus gros écarts entre valeurs nominales et identifiées portent sur la position du fil (H et p_{w0}), mais ces écarts restent faibles (dizaines de microns). On en conclut que la calibration est très sensible à la géométrie, puisque ces petits écarts induisent des différences assez importantes dans les courbes de calibration (comparaison des figures 6.10 et 6.11). Cette

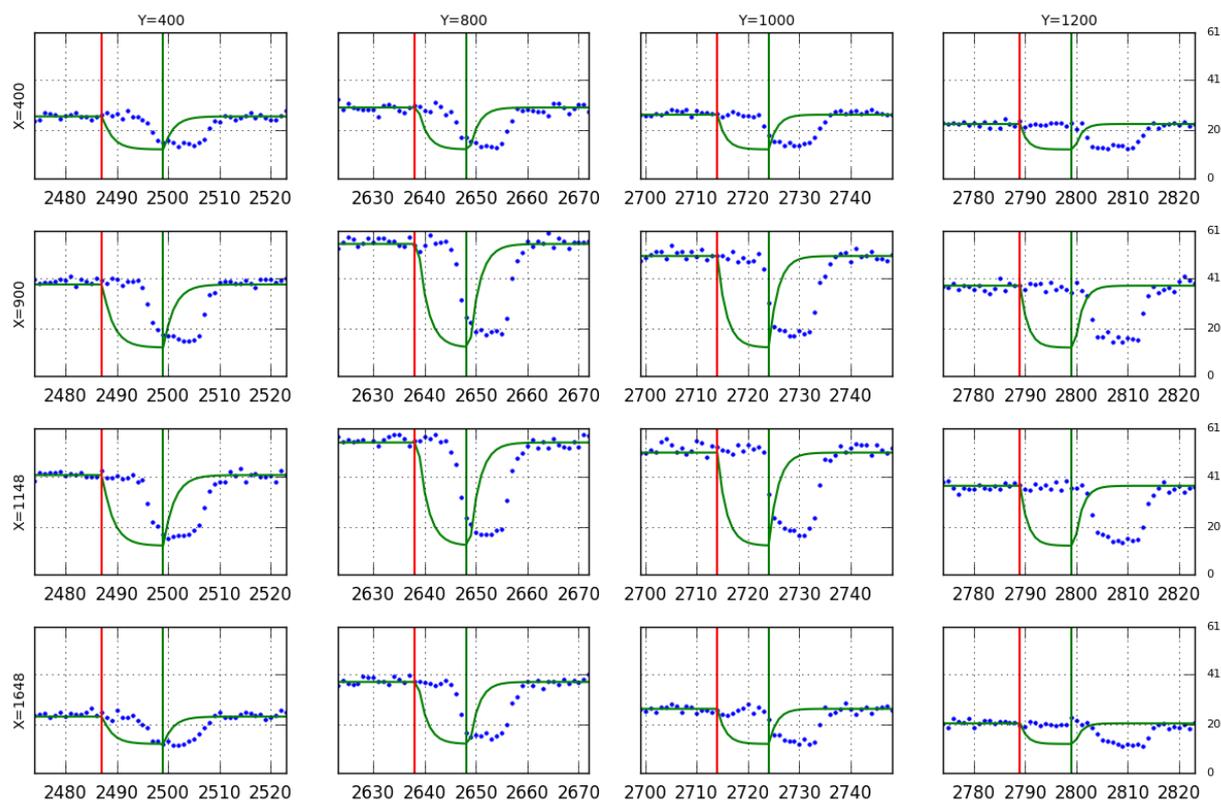


FIGURE 6.10 – Intensité sur les 16 pixels servant à la calibration du montage de DAXM, lors du passage du fil, en fonction du numéro de l'image. Les points bleus sont les données expérimentales. La courbe verte est le modèle de calibration, avant ajustement des paramètres. Les traits verticaux verts et rouges indiquent les deux positions limites du fil entre lesquelles une source située à la surface de l'échantillon est écrantée.

Paramètre	Valeur initiale	Valeur identifiée				
		point O_4	min	max	moy	écart-type
R [μm]	25	23.53	23.53	24.34	23.98	0.23
H [mm]	1.5	1.5429	1.5360	1.5484	1.5431	0.0042
κ [$^\circ$]	0.0	-0.0013	-0.0013	-0.0008	-0.0011	0.0002
δ [$^\circ$]	0.0	-0.0063	-0.0074	-0.0050	-0.0061	0.0007
ζ [$^\circ$]	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
η [$^\circ$]	0.0	0.0460	0.0443	0.0461	0.0454	0.0006
p_{w0} [mm]	3.8	3.8339	3.8258	3.8464	3.8369	0.0071
k_m	12	13.52	13.44	14.95	14.04	0.54
$1/\tilde{\mu}$ [μm]	17.48	16.45	15.43	18.11	16.65	0.83

TABLE 6.3 – Paramètres de calibration du montage de DAXM pour l’acier 316L. Les valeurs nominales sont utilisées comme condition initiale pour la minimisation. Les valeurs identifiées pour le point O_4 sont indiquées. Puis, les valeurs minimales, maximales, et moyennes, pour l’ensemble des point O_1 à O_8 sont données, ainsi que l’écart-type des distributions.

remarque ne s’applique cependant pas à l’angle ζ , qui n’est pas identifié. Une valeur non-nulle de ζ entraîne un déplacement latéral du fil, mais un tel déplacement latéral ne peut pas être repéré sur le détecteur car le fil est cylindrique, de section constante. L’angle ζ est cependant directement lié aux erreurs de perpendicularité dans le montage de translation du fil, et doit donc, par construction, être proche de 0. On remarquera également que le rayon du fil est considéré ici comme un paramètre ajustable, alors qu’il peut être mesuré indépendamment. La valeur obtenue (23.53 μm) est un peu plus faible que la valeur nominale (25 μm). Il s’agit en fait d’un rayon effectif, qui tient compte du fait que le fil n’absorbe pas complètement les faisceaux arrivant tangent à sa surface. Nous reviendrons sur la prise en compte de l’absorption par le fil dans les sections suivantes (7.3). Enfin, la valeur du coefficient d’absorption identifié est en accord avec la longueur d’atténuation ($= 1/\mu$) de l’échantillon, pour des énergies proches des seuils de fluorescence de l’échantillon (énergies de 5 à 9 keV), cf. figure 6.2.

Pour une analyse statistique de l’étape de calibration, nous reportons dans le tableau 6.3 des indications sur la distribution des valeurs identifiées, lorsque le faisceau est positionné sur les huit points O_1 à O_8 (cf. figure 6.5). On observe que la fluctuation des valeurs identifiées est très faible. L’écart-type sur les valeurs de H est de $\sim 4 \mu\text{m}$, celui sur R est de $\sim 0.2 \mu\text{m}$. Les quatre angles déterminant l’orientation du fil et sa direction de translation sont déterminés avec une précision du \sim millième de degré. La longueur d’atténuation $1/\tilde{\mu}$ est obtenue avec une précision micrométrique. La plus grande incertitude est probablement sur l’offset p_{w0} de position du fil, qui est de $\sim 7 \mu\text{m}$. Cette dernière valeur a un impact direct sur l’estimation de la profondeur ξ_f d’une source.

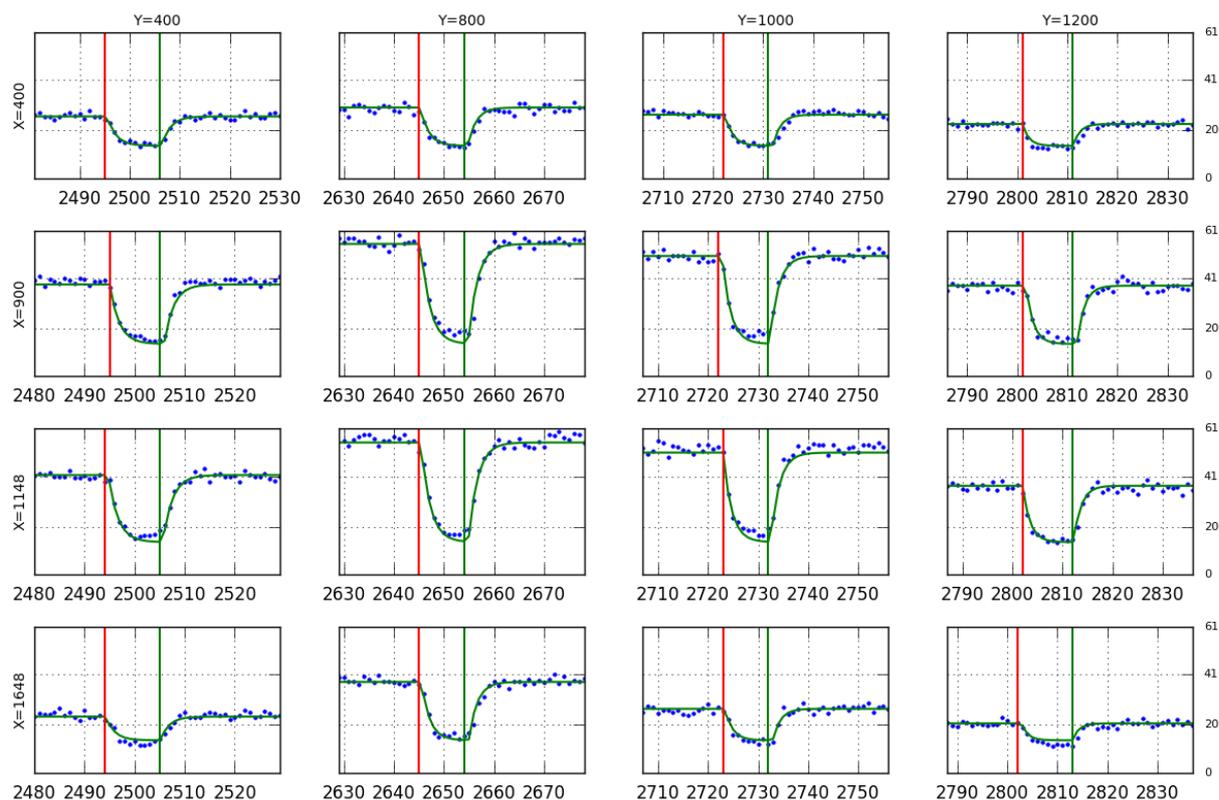


FIGURE 6.11 – Intensité sur les 16 pixels servant à la calibration du montage de DAXM, lors du passage du fil, en fonction du numéro de l'image. Les points bleus sont les données expérimentales. La courbe verte est le modèle de calibration, après ajustement des paramètres. Les traits verticaux verts et rouges indiquent les deux positions limites du fil entre lesquelles une source située à la surface de l'échantillon est écartée.

6.6 Reconstruction de I_s pour un pixel P

Nous allons maintenant utiliser le modèle général, avec la calibration précise du montage de DAXM, pour reconstruire l'intensité émise en profondeur dans l'échantillon en direction du détecteur. Dans cette section, nous allons faire la reconstruction pour un seul pixel P . Dans la section suivante, nous la ferons pour plusieurs pixels voisins. Nous donnons dans un premier temps le principe de la reconstruction. Nous faisons la distinction entre deux cas assez différents dans leur mise en oeuvre : (i) celui où seul le bord avant ('front') du fil est utilisé, c'est le cas de la figure 4.1b, et (ii) celui où la position du bord arrière ('back') doit être prise en compte, correspondant à la figure 4.1c.

6.6.1 Utilisation du bord avant

Nous nous intéressons tout d'abord au cas où la partie avant du fil masque la source, mais la partie arrière du fil n'est pas encore assez avancé pour l'écranter. On se place donc dans le cas $\xi_b < 0 < \xi_f$ dans les équations (4.3) ou (4.5).

On peut en fait aborder le problème de deux façons différentes, selon le résultat recherché. Considérons deux positions successives du fil, p_{w1} et p_{w2} (avec $p_{w1} < p_{w2}$), correspondant donc à deux images. La soustraction pixel-à-pixel de ces deux images s'écrit, d'après (4.3)

$$S(p_{w2}, P) - S(p_{w1}, P) = - \int_{\xi_f(p_{w1}, P)}^{\xi_f(p_{w2}, P)} I_s(\xi, P) d\xi \quad (6.4)$$

avec $\xi_f(p_{w1}, P)$ et $\xi_f(p_{w2}, P)$ les valeurs de ξ_f correspondants respectivement aux positions p_{w1} et p_{w2} du fil, pour le pixel P . Pour alléger les notations, on notera par la suite ξ_{f1} et ξ_{f2} ces deux valeurs,

$$\xi_{f1} = \xi_f(p_{w1}, P), \quad \xi_{f2} = \xi_f(p_{w2}, P). \quad (6.5)$$

L'expression ci-dessus est rigoureuse. Elle permet d'estimer l'intensité *intégrée* de la source, entre les profondeurs ξ_{f1} et ξ_{f2} , pour le pixel P . Cette approche pose cependant un problème. Nous avons vu dans le chapitre 4 que les bornes d'intégration ξ_{f1} et ξ_{f2} dépendent du pixel considéré, pour une même position p_w du fil. Ainsi, l'application de (6.4) à un autre pixel P' , pour les mêmes positions p_{w1} et p_{w2} du fil, donnera l'intensité moyenne d'une source de position et de taille différentes, correspondant à d'autres valeurs $\xi_{f'1}$ et $\xi_{f'2}$. La reconstruction de tous les pixels d'une image de Laue correspondant à une profondeur bien définie, que l'on souhaite ensuite pouvoir analyser avec les outils standards, ne sera pas immédiate.

L'autre approche possible consiste à repartir de l'équation (4.5) qui donne l'intensité I_s émise par une source secondaire à la profondeur ξ_f vers le pixel P , à partir de la dérivée du niveau de gris $S(p_w, P)$ du pixel P par rapport à la position p_w du fil. Jusque là, l'expression est rigoureuse, et comme l'information est obtenue pour une profondeur ξ_f bien définie, contrairement au cas précédent, on anticipe que cette approche permettra de générer des images à une profondeur définie, avec la même profondeur pour tous les pixels. Une difficulté persiste cependant, c'est le calcul de la dérivée des images. Dans ce travail, nous nous sommes limités à une procédure de dérivation la plus simple possible, par différences finies, qui revient simplement à soustraire deux images successives, se ramenant ainsi d'une certaine façon à l'approche précédente. Cette procédure de dérivation peut rapidement donner des résultats aberrants dès lors que le bruit

d'image devient trop important ; de nombreuses possibilités d'amélioration existent cependant, en considérant des différences finies d'ordre supérieur, ou plus généralement dans [Giovannelli and Idier, 2015] par exemple. En utilisant des différences finies d'ordre 1, on ré-écrit (4.5) sous une forme incrémentale

$$I_s(\xi_{f1-2}, P) \simeq -\frac{\delta S(p_w, P)}{\delta p_w} \frac{\partial p_w}{\partial \xi_f} \quad (6.6)$$

dans laquelle $\delta S(p_w, P) = S(p_{w2}, P) - S(p_{w1}, P)$ est la soustraction des niveaux de gris du pixel P pour les positions p_{w2} et p_{w1} du fil, $\delta p_w = p_{w2} - p_{w1}$ est le pas de déplacement du fil, et $\xi_{f1-2} = (\xi_{f1} + \xi_{f2})/2$ si l'on considère la différence centrale. La dérivée partielle $\partial p_w / \partial \xi_f$ peut en toute rigueur être estimée à partir de l'équation (4.23). D'après le modèle approché (4.52) basé sur une géométrie idéale, elle est proche de l'unité

$$\frac{\partial p_w}{\partial \xi_f} \simeq 1. \quad (6.7)$$

Dans ce travail, nous avons en fait, pour une image donnée, calculé la valeur de ξ_f pour chaque pixel P , et transformé ainsi les images $S(p_w, P)$ en $S(\xi_f, P)$. On a alors pu estimer directement (6.6), sous la forme

$$I_s(\xi_{f1-2}, P) \simeq -\frac{S(\xi_{f2}, P) - S(\xi_{f1}, P)}{\xi_{f2} - \xi_{f1}}. \quad (6.8)$$

Cette analyse suggère les commentaires suivants :

- Il y a un lien direct entre le pas en ξ et le pas δp_w . La réduction de δp_w entraîne en principe une meilleure résolution spatiale $\delta \xi$.
- On peut cependant anticiper que, en raison du bruit des images, un pas de translation δp_w trop petit entraînera une faible variation du niveau de gris, qui peut devenir inférieure au bruit d'image, ce qui peut considérablement dégrader l'estimation de la dérivée.
- Il doit exister un pas δp_w optimum, pas trop grand pour pouvoir garder une bonne résolution spatiale, mais pas trop petit pour avoir une bonne précision dans la dérivée (ou la différence) des images.
- La profondeur ξ_f est reliée à p_w par la relation (4.23), qui dépend de la position du pixel P . Ainsi, lors de la dérivation de l'image par différences finies, la profondeur ξ_{f1-2} de la source reconstruite sera différente pour chaque pixel, comme dans l'approche précédente. Cela complique la reconstruction d'une image de Laue complète pour une profondeur donnée.

6.6.2 Généralisation : reconstruction aux profondeurs supérieures au diamètre du fil

Si maintenant le fil avance davantage, on se retrouve dans la situation de la figure 4.1c : à chaque pas de déplacement du fil, le bord avant écrante une nouvelle partie de la source alors que le bord arrière laisse passer des rayons qui étaient auparavant écrantés. C'est le cas $0 < \xi_b < \xi_f$ des équations (4.4) et (4.6).

Comme pour la section précédente, deux approches sont possibles. Si l'on repart de l'équation (4.4) et que l'on soustrait deux images successives, on obtient

$$S(p_{w2}, P) - S(p_{w1}, P) = - \int_{\xi_{f1}}^{\xi_{f2}} I_s(\xi, P) d\xi + \int_{\xi_{b1}}^{\xi_{b2}} I_s(\xi, P) d\xi \quad (6.9)$$

qui est une expression rigoureuse. L'image formée par $S(p_{w2}, P) - S(p_{w1}, P)$ contient une information dont l'interprétation physique est complexe : il s'agit de la différence entre les intensités émises par les petites sources $[\xi_{f2}, \xi_{f1}]$ et $[\xi_{b2}, \xi_{b1}]$, qui sont de profondeur et de taille différentes. Pour la mise en oeuvre de (6.9), nous commençons l'analyse en considérant d'abord les images correspondant au cas $\xi_b < 0$, comme dans la section précédente. On en déduit alors l'intensité moyenne de sources situées à de faibles profondeurs. Puis, lorsque le fil avance et que l'on est dans le cas $0 < \xi_b < \xi_f$, le terme $\int_{\xi_{b1}}^{\xi_{b2}} I_s(\xi, P) d\xi$ peut en principe être estimé à partir de l'analyse précédente, car il correspond lui aussi à des sources de faible profondeur. On peut alors en déduire la nouvelle valeur de $\int_{\xi_{f1}}^{\xi_{f2}} I_s(\xi, P) d\xi$ pour les sources plus profondes. Il s'agit donc d'une approche itérative, par récurrence. Une difficulté non-triviale apparaît cependant. On a besoin d'estimer l'intensité moyenne de la source dans l'intervalle $[\xi_{b2}, \xi_{b1}]$ à partir de l'analyse antérieure pour laquelle les intervalles d'intégration étaient généralement différents.

Mais on peut aussi repartir de l'équation (4.6). Avec les mêmes approximations que la section précédente et en rajoutant $\partial \xi_b / \partial \xi_f \approx 1$ d'après (4.52), le modèle devient

$$I_s(\xi_{f1-2}, P) \simeq - \frac{S(\xi_{f2}, P) - S(\xi_{f1}, P)}{\xi_{f2} - \xi_{f1}} + I_s(\xi_{b1-2}, P). \quad (6.10)$$

La mise en oeuvre de cette approche requiert également la mise en place d'une procédure de récurrence. Les valeurs de I_s peuvent être calculées pour différentes valeurs de ξ , pour $\xi_b < 0$ et jusqu'à la position limite du fil pour laquelle $\xi_b = 0$. Lorsque p_w augmente encore, ξ_b devient positif. L'estimation de $I_s(\xi_{f1-2}, P)$ requiert l'ajout de la valeur $I_s(\xi_{b1-2}, P)$ calculée à partir des positions initiales du fil lorsque ξ_f était petit. Une difficulté vient du fait qu'en général, le ξ_{b1-2} dont on a besoin ne correspond pas aux valeurs que prenait ξ_{f1-2} pour les faibles p_w .

Avec les deux approches proposées, on remarquera que le traitement cumule les erreurs de reconstruction. Plus le fil avance et plus la reconstruction perd en précision. Jusqu'à présent, les résultats obtenus avec la procédure de récurrence n'ont pas été satisfaisants.

6.6.3 Résultats

On applique maintenant aux données sur la macule la méthode décrite en section 6.6.1. Nous choisissons ici les taches de Laue 12 et 14 (figure 6.12), qui sont aux énergies 18.319 keV et 6.628 keV et apparaissent aux angles de Bragg 2θ de 69.194° et 95.994° , respectivement. Sur la figure 6.4, les taches 12 et 14 sont situées autour de la tache 1 étudiée précédemment ; la tache 12 correspond à la macule, et la tache 14 au grain parent. Dans un premier temps, nous traitons les données pour lesquelles le faisceau est positionné sur le point O_4 . On cherche, comme dans la section 6.4.2, à retrouver la position de la macule en profondeur, mais en appliquant maintenant le modèle complet (cf. équation 6.8) et en prenant en compte la calibration précise du montage.

Les résultats sont indiqués sur la figure 6.13, lorsque diverses options sont utilisées. La figure 6.13 a montre le résultat brut, i.e. la valeur de la différence des intensités $S(\xi_{f2}, P) - S(\xi_{f1}, P)$,

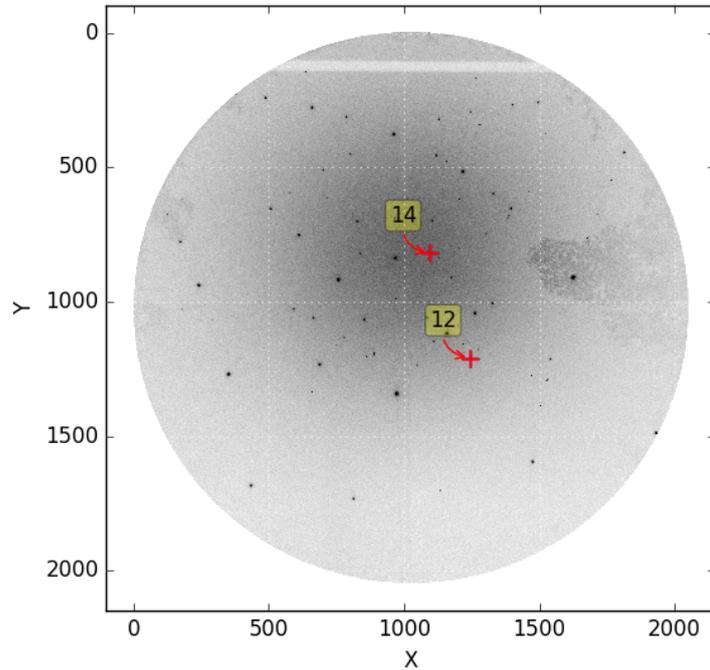


FIGURE 6.12 – Position des taches 12 et 14.

en fonction de ξ_{f1-2} , pour un pixel P situé au centre de chacune des taches. On retrouve que le grain parent est situé en surface, sur une profondeur de l'ordre de $20\ \mu\text{m}$, laissant ensuite la place à la macle. Cette distance est en bon accord avec la distance théorique $O_4J_4 \simeq 20.5\ \mu\text{m}$ évaluée précédemment. Certains points appellent l'attention :

- On remarque que l'intensité du grain parent n'est pas complètement nulle lorsque $\xi_{f1-2} < 0$.
- L'interface entre le grain parent et la macle paraît diffuse ; elle s'étale sur 5 à $10\ \mu\text{m}$.
- L'intensité dans le grain parent décroît de manière quasi-linéaire entre $5\ \mu\text{m}$ et $25\ \mu\text{m}$.
- On retrouve les remarques précédentes : les profondeurs ξ_{f1-2} à laquelle la macle et le grain parent sont reconstruits ne sont pas les mêmes.

La décroissance d'intensité du grain parent est liée à l'écrantage de la source ; elle devrait donc en principe commencer dès la surface $\xi_{f1-2} = 0\ \mu\text{m}$. L'intensité devrait ensuite devenir nulle dès la macle atteinte. Les courbes obtenues vont dans ce sens, mais la résolution spatiale est ici limitée par le pas de déplacement du fil ($5\ \mu\text{m}$).

La position du joint de macle est définie par la position à laquelle l'intensité de la macle augmente. L'intensité du signal devrait alors croître avec la profondeur et, à la même position, l'intensité du grain parent devrait devenir nulle. On observe cependant un certain recouvrement des données. L'intensité de la macle croît à partir de $\sim 14\ \mu\text{m}$, alors que celle du grain parent s'annule à $\sim 23\ \mu\text{m}$, soit un écart de près de $10\ \mu\text{m}$. Si l'on considère cependant que les points de la figure ne sont plus des valeurs à la position ξ_{f1-2} mais la valeur moyenne entre ξ_{f2} et ξ_{f1} comme exprimé par (6.4), alors l'interprétation de la figure 6.13a change légèrement puisque l'on en déduit une largeur de l'interface de l'ordre du pas de mesure, soit $\sim 5\ \mu\text{m}$.

La figure 6.13b indique le même type de résultats, mais maintenant l'intensité calculée est une moyenne sur une boîte de 11×11 pixels de coté, centrée sur les taches de Laue. On obtient ainsi un effet de moyenne, et on s'affranchit des artefacts possibles dus par exemple à un déplacement de la tache de Laue avec la profondeur. Les valeurs de la profondeur sont interpolées (ou sur-échantillonnées) avec un pas de $2.5 \mu\text{m}$. La procédure utilisée, simple, consiste à attribuer à une profondeur ξ donnée l'intensité I_s obtenue pour le ξ_{f1-2} le plus proche de ξ . L'intensité I_s est ensuite normalisée, de façon à avoir un maximum égal à 1. On observe des résultats très similaires à ceux de la figure 6.13a, vérifiant ainsi que la reconstruction sur un seul pixel est robuste. On observe par contre une amplification du pic de macle à une profondeur de $\sim 0 \mu\text{m}$, déjà visible sur la figure 6.13a. On reviendra sur cette observation dans la section suivante.

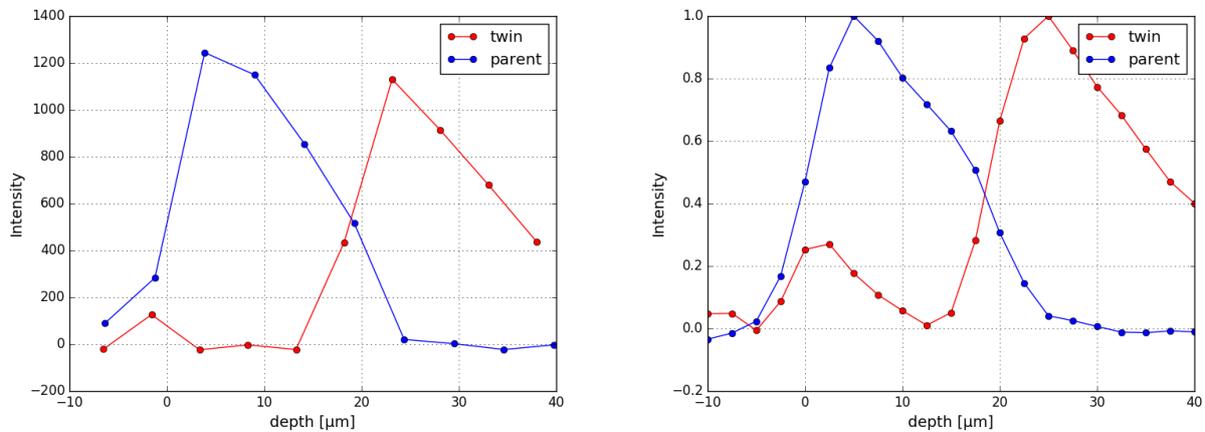


FIGURE 6.13 – Intensité $I_s(\xi_{f1-2})$ reconstruite, pour les taches 12 (macle) et 14 (grain parent). (a) Valeur de $S(\xi_{f2}, P) - S(\xi_{f1}, P)$, en fonction de ξ_{f1-2} , pour le pixel central de chacune des taches. (b) Valeur normalisée de $S(\xi_{f2}, P) - S(\xi_{f1}, P)$, moyennée sur une boîte de 11×11 pixels autour du pixel central de la tache, et sur-échantillonnée avec un pas de $2.5 \mu\text{m}$.

La procédure détaillée ci-dessus a ensuite été appliquée à tous les points O_1 à O_8 (figure 6.5), pour lesquels les images de Laue contiennent des taches de la macle bien visibles. Pour chaque position O_i , on évalue la profondeur du joint de macle par l'intersection des profils d'intensité du grain parent et de la macle, toujours pour les taches 12 et 14. Les résultats sont reportés sur la figure 6.14. Là encore, plusieurs cas sont comparés : la soustraction simple de deux images consécutives, la soustraction avec normalisation de l'intensité résultante, et la soustraction des intensités moyennées sur 11×11 pixels avec ou sans normalisation du résultat I_s . Les courbes sont comparées à la position théorique du plan de macle, obtenue à partir de l'analyse faite en section 6.3 ; nous avons pour cela pris en compte une incertitude de $\pm 2 \mu\text{m}$ sur la position du point O_{10} , donnant ainsi deux positions limites du plan. Les profils expérimentaux sont quasiment linéaires, et sont globalement en accord avec la position théorique du plan. On observe que les différents traitements donnent des résultats proches et cohérents ; ils influent essentiellement sur la position du plan de macle (léger décalage des courbes vers le haut, selon la méthode utilisée), de l'ordre de $2-3 \mu\text{m}$. Une mesure de la résolution de la méthode peut être obtenue par l'écart type entre la profondeur de chacun des points expérimentaux et la régression linéaire sur ces

profils expérimentaux. On obtient une valeur de $\sim 2 \mu\text{m}$, qui est inférieure de moitié au pas δp_w utilisé.

On montre ainsi, avec ce cas d'école, le potentiel de la DAXM à reproduire une microstructure 3D, sur une couche de surface dont l'épaisseur est de l'ordre de la profondeur de pénétration des rayons X. La résolution obtenue est de $2 \mu\text{m}$. Ces résultats, déjà très encourageants, ont été obtenus avec l'utilisation d'une information expérimentale assez pauvre, puisque seulement une tache de Laue par grain a été utilisée, voire même un seul pixel de l'image sur chacune des deux taches. On peut donc raisonnablement penser que des résultats plus précis seront obtenus lorsque l'information expérimentale sera enrichie, ce que nous tentons dans la section suivante et que nous développerons davantage dans le chapitre 7.

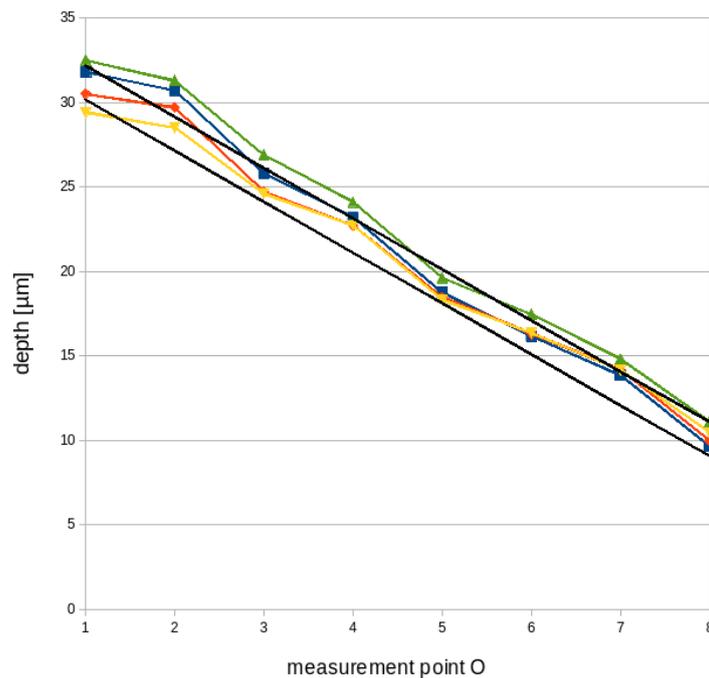


FIGURE 6.14 – Reconstruction de la profondeur du plan de macle à partir des taches 12 et 14, lorsque le faisceau est positionné sur les points O_1 à O_8 . (bleu) Soustraction de deux images consécutives, (rouge) soustraction de deux images consécutives et normalisation de l'intensité, (vert) soustraction des intensités moyennées sur 11×11 pixels, et (jaune) soustraction des intensités moyennées sur 11×11 pixels, et normalisation. Les droites noires indiquent les positions théoriques limites du plan de macle.

6.7 Reconstruction de I_s pour plusieurs pixels voisins

On termine ce chapitre par une première tentative de reconstruction d'une image de Laue à une profondeur ξ donnée. En effet, le but ultime de ce travail est de pouvoir traiter ensuite ces images reconstruites comme des images de Laue classiques, afin d'estimer la microstructure et

les contraintes en fonction de la profondeur dans l'échantillon, avec une résolution micrométrique. Avant de s'attaquer à ce problème complet (et complexe), nous nous focalisons ici sur la reconstruction de seulement deux taches de Laue, les taches 12 et 14 étudiées ci-dessus.

Nous avons appliqué la méthode exposée dans la section précédente à tous les pixels proches de ces taches. Autour du pic central, nous définissons une région de 11×11 pixels. L'intensité est reconstruite pour chacun de ces 121 pixels, en fonction de ξ_{f1-2} . Comme déjà discuté ci-dessus, les valeurs de ξ_{f1-2} obtenues ainsi sont différentes pour les différents pixels, avec notamment de gros écarts entre les valeurs de la macle et celles du grain parent puisque ces taches sont à des positions différentes sur le détecteur. La reconstruction d'une image à une profondeur donnée requiert donc l'utilisation d'une procédure d'interpolation des intensités (figure 6.15). Nous avons opté ici pour une interpolation linéaire (i.e. affine) de l'intensité entre deux positions ξ_f successives. A partir de 3 images (numérotées 1, 2, et 3), on reconstruit les intensités I_{1-2} et I_{2-3} aux profondeurs ξ_{f1-2} et ξ_{f2-3} . L'intensité I à une profondeur ξ comprise entre ξ_{f1-2} et ξ_{f2-3} est alors donnée par

$$\frac{I - I_{1-2}}{\xi - \xi_{f1-2}} = \frac{I_{2-3} - I_{1-2}}{\xi_{f2-3} - \xi_{f1-2}}. \quad (6.11)$$

On notera que, au moins pour des points régulièrement espacés, l'estimation de la dérivée locale à l'aide d'une combinaison de différences finies centrées et d'une interpolation linéaire des dérivées est identique à la dérivation de la fonction polynomiale passant par les trois points.

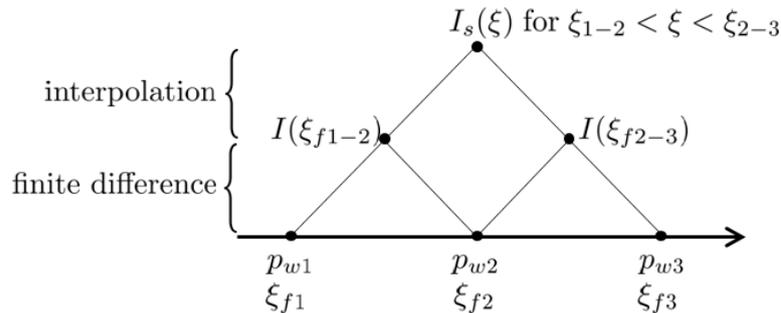


FIGURE 6.15 – Procédure générale de reconstruction de l'intensité de la source pour une profondeur ξ fixée, pour un pixel P donné. La démarche nécessite trois images (numérotées 1, 2, et 3), et deux étapes successives. 1/ La dérivation du niveau de gris par différence finie centrée fournit une estimation de l'intensité aux profondeurs ξ_{f1-2} et ξ_{f2-3} . 2/ L'interpolation linéaire des intensités permet la reconstruction à la profondeur voulue.

Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 6.16, pour un pas de reconstruction $\delta\xi = 2.5 \mu\text{m}$. On observe :

- Les images obtenues paraissent visuellement correctes. Les pics reconstruits ont une forme et une position similaire au pic initial de l'image de Laue (figure 6.16).
- La présence du grain parent en surface, et de la macle en profondeur apparait très clairement. L'interface est cependant diffuse. Le plan de macle reconstruit s'étale entre les profondeurs $17.5 \mu\text{m}$ et $22.5 \mu\text{m}$, qui est en accord avec la position théorique. La largeur de l'interface est de $5 \mu\text{m}$, et correspond au pas δp_w utilisé.

- La reconstruction semble encore tout à fait correcte à la profondeur de 40 μm , ce qui correspond à la longueur d'atténuation du faisceau dans Fe à $\sim 18\text{keV}$, malgré le fait que le trajet du faisceau dans l'échantillon soit ~ 2 fois plus long que la profondeur de reconstruction. On retiendra donc que le cliché de Laue peut être reconstruit jusqu'à des profondeurs au moins égale à la longueur d'atténuation.
- Les deux pics 12 et 14 semblent montrer une intensité faible mais non nulle pour les profondeurs négatives, ce qui n'a pas de sens physique. Lorsque ξ_f est négatif, le fil n'écrante pas la source. Deux images successives devraient donc, en principe, être identiques. Mais le bruit d'image intervient. Ce bruit suit une distribution de Poisson, il est proportionnel à $\sqrt{S_e}$, il est donc fort sur les pixels de forte intensité. La soustraction de deux images consécutives sera donc davantage bruitée pour les pixels positionnés dans la tache de Laue, d'où l'impression de ces taches parasites aux profondeurs négatives, déjà observés sur la figure 6.13. Si l'on zoome sur ces taches, on remarque d'ailleurs que la position du pixel d'intensité maximale est fluctuante avec la profondeur.
- D'autres phénomènes peuvent expliquer la largeur de l'interface reconstruite. La taille réelle du faisceau est supérieure à la taille nominale. Il a par exemple été observé après cette expérience que la diffusion du faisceau incident sur les fentes de la ligne élargissait beaucoup les pieds du pic (depuis, des fentes anti-diffusion ont été rajoutées).
- Enfin, on retrouve, comme sur la figure 6.13, une augmentation de l'intensité de la macle (12) aux faibles profondeurs, proches de 0 μm . Cela provient certainement de la fluorescence, dont l'intensité est plus forte à la surface de l'échantillon. Il s'agit d'une source de rayons X qui se mélange à la source due à la diffraction de la macle. L'approche mise en place ne permet pas de distinguer le signal de fluorescence de celui de diffraction, d'où le pic observé en surface. Ce pic est certainement aussi présent dans la tache du grain parent, mais il est noyé dans le pic de diffraction.

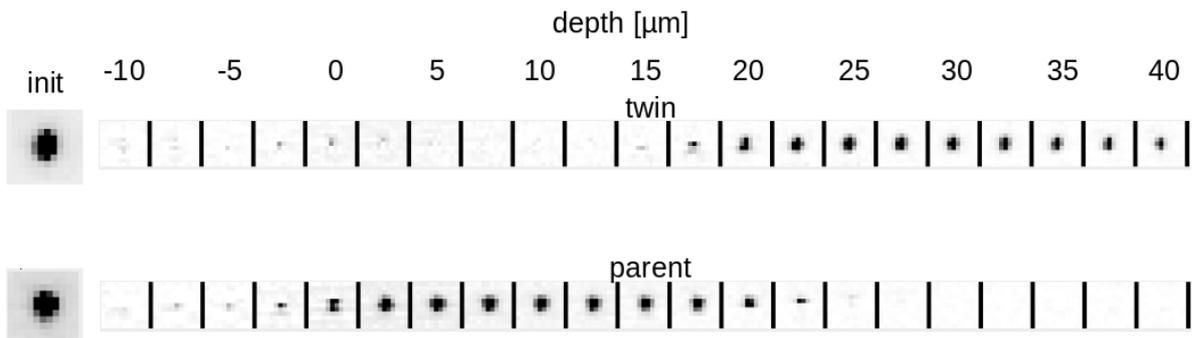


FIGURE 6.16 – Reconstruction des taches 12 (macle) et 14 (grain parent), à différentes profondeurs. Pour comparaison, les taches de l'image de Laue initiale (init) sont montrées, à gauche.

6.8 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons choisi un échantillon dont la microstructure est parfaitement connue pour appliquer la démarche présentée dans les chapitres 4 et 5. L'échantillon sélectionné, un acier inoxydable à gros grains, recristallisé, présente de nombreux joints de macles parfaitement plans, et nous avons étudié l'un de ces plans de macle. Après une caractérisation de la position et de l'orientation de la macle, en combinant l'imagerie MEB, les mesures EBSD, et l'exploitation des images de Laue classiques, nous avons appliqué la DAXM.

Une première analyse des données a été réalisée 'à la main', en supposant négligeables les défauts de géométrie. En choisissant correctement les taches à analyser, et en utilisant les profils de fluorescence pour corriger l'effet des écarts de position des pixels de l'image, nous avons montré que l'on obtient déjà une représentation assez précise de la position de la macle sous la surface. Ce type d'analyse très rapide, qui peut être fait en temps réel lors d'une expérience, permet donc une première inspection de la qualité des données.

Nous avons ensuite appliqué le modèle complet. Pour cela, nous avons dû identifier le modèle géométrique à l'aide de la procédure de calibration. Malgré le fait que l'échantillon contienne un taux non-négligeable de Cr et de Ni, induisant donc un rayonnement de fluorescence multi-longueur d'onde, le modèle de calibration, qui est basé sur un coefficient d'absorption effectif unique, fonctionne très bien. Seule la précision de la valeur de l'offset sur la position du fil, p_{w0} , qui est de l'ordre de $\sim 7\mu\text{m}$, semble de nature à limiter la résolution de l'analyse.

Nous avons ensuite précisé la démarche à adopter pour la reconstruction de l'intensité des sources en profondeur. A partir du modèle général, on peut soit reconstruire l'intensité intégrée sur une plage de profondeur, soit calculer l'intensité émise à une profondeur spécifique donnée. La première méthode ne requiert que la soustraction d'images successives, mais l'opérateur n'a aucune latitude quant à la profondeur de reconstruction. La seconde méthode permet en principe de choisir la profondeur de reconstruction, mais elle est basée sur la dérivation des images, qui reste une étape difficile en raison du bruit de la mesure qui a un impact d'autant plus grand que le pas de déplacement du fil est petit, et donc que la résolution spatiale est fine. Dans ce travail, nous nous sommes limité à une dérivation basée sur des différences finies. Les résultats obtenus sont en très bon accord avec la position théorique de la macle en profondeur, avec une erreur aléatoire sur la position de l'ordre de $2\mu\text{m}$. Ce résultat a été obtenu pour une information expérimentale volontairement dégradée, puisque seulement deux pixels de l'image ont été utilisés. Des résultats tout à fait similaires ont été obtenus en considérant une petite boîte de 11×11 pixels autour de la tache.

L'approche a ensuite été étendue à tous les pixels formant deux taches de Laue. Dans ce cas, nous avons montré que la reconstruction de l'image requiert l'utilisation d'une procédure d'interpolation de l'intensité reconstruite. Nous nous sommes limités à une interpolation linéaire. On reconstruit ainsi des taches en fonction de la profondeur. On retrouve clairement la présence du grain parent sur les $20\mu\text{m}$ de surface, et la macle ensuite. L'image a pu être reconstruite jusqu'à au moins $40\mu\text{m}$, qui est de l'ordre de grandeur de la longueur d'atténuation dans l'échantillon. La fluorescence, en tant que source, n'est pas distinguée de la diffraction dans l'approche mise en place. Elle est potentiellement responsable de l'apparition de taches parasites pour des profondeurs faibles, pour la macle. L'effet du bruit d'image a également été illustré, avec de légères taches parasites pour des profondeurs négatives ; mais ces taches peuvent aussi

provenir d'autres artefacts comme un étalement du faisceau, ou la procédure de dérivation utilisée qui tend à diluer les interfaces.

Enfin, la résolution spatiale en profondeur est environ la moitié du pas de déplacement du fil : l'écart-type obtenu sur la profondeur de la macle est de $\sim 2 \mu\text{m}$. C'est la résolution que l'on obtient lorsque seulement une tache de chaque grain est considérée dans l'analyse. On peut donc anticiper que la prise en compte de toutes les taches de Laue de l'image entraînera, par un effet statistique, un affinement de la résolution en profondeur. C'est ce que l'on regardera dans le chapitre suivant.

Une étude similaire, sur des fils de GaN déposés sur un substrat de Ge monocristallin, avait été menée avec Fanny Grennerat lors de son post-doctorat, pendant ma première année de thèse. Les résultats obtenus sur cet échantillon mènent à des conclusions similaires à celles obtenues avec l'acier 316L. Ils sont présentés dans l'annexe [C](#).

CHAPITRE 7

Analyse d'un gradient intragranulaire de contrainte : cas de l'UO₂ implanté

Sommaire

7.1	Introduction	125
7.2	Conditions expérimentales et reconstruction des images de Laue en profondeur	126
7.2.1	Echantillon	126
7.2.2	Acquisition des données et calibration du montage	127
7.2.3	Reconstruction	127
7.3	Analyse de la transmission dans le fil	131
7.3.1	Formulation	131
7.3.2	Calcul de la distance ℓ_w traversée par le faisceau	134
7.3.3	Comparaison à l'expérience (source quasi-ponctuelle)	136
7.4	Application à l'UO₂	138
7.5	Conclusion	140

7.1 Introduction

Dans ce dernier chapitre, nous allons nous intéresser à la reconstruction d'un gradient de contrainte dans l'épaisseur. Toujours dans le souci de progresser étape par étape et de pouvoir vérifier la réalité physique des estimations tirées de la DAXM, nous avons choisi de considérer le cas d'un échantillon de UO₂ implanté par des ions Kr. Il s'agit en effet d'un cas relativement simple car les tailles de grains sont grandes par rapport à la section du faisceau, et l'implantation des ions crée une couche contrainte en surface dont l'épaisseur est de quelques microns. On se retrouve donc avec une microstructure relativement simple (pour ce qui concerne notre étude), i.e. un cristal avec une couche de surface de même orientation cristallographique que le substrat mais fortement contrainte. Les données analysées ici sont celles obtenue par [Richard \[2012a\]](#) pendant de sa thèse ; il s'agissait d'un des tous premiers essais de DAXM réalisé sur la ligne BM32. Dans sa thèse, [Ibrahim \[2015\]](#) a ensuite étendu le travail initié par A. Richard, notamment à l'aide de simulations numériques de l'état des contraintes en fonction des conditions d'implantation.

7.2 Conditions expérimentales et reconstruction des images de Laue en profondeur

7.2.1 Echantillon

L'échantillon étudié, élaboré par l'équipe de H. Palancher au CEA-Cadarache, est un polycristal d'UO₂ qui a été bombardé par des ions Kr (figure 7.1). Il s'agit d'un échantillon préliminaire à d'autres études [Richard, 2012a, Ibrahim, 2015] pour lesquelles des ions He ont été implantés, mais ces derniers n'ont pas été mesurés par DAXM. L'implantation des ions crée des défauts ponctuels ou étendue dans le matériau, dont la densité et la distribution spatiale varient en fonction des conditions de bombardement. Elle simule en surface la création en volume de gaz rares dans le combustible nucléaire en cours de fonctionnement sous l'effet de la fission de l'uranium. Dans les conditions adoptées pour cet échantillon, la profondeur d'implantation est d'environ 1.2 μm . On s'attend ainsi à de forts gradients de déformation élastique et de contraintes sur une couche de quelques microns d'épaisseur, au voisinage de la surface de l'échantillon. Il s'agit donc de conditions idéales pour tester les potentialités de la DAXM. Dans ce type d'échantillon, la déformation de la maille cristalline dans la couche implantée peut être très grande, de l'ordre de quelques pourcents. Du fait de cette forte déformation, pour certains échantillons, les spots fins et intenses de l'UO₂ non-implanté peuvent être facilement séparés des spots voisins larges et peu intenses provenant de la couche implantée. Pour l'échantillon considéré ici, les deux familles de spots sont superposées, le spot de la couche se présentant comme un épaulement au pied du spot du substrat.

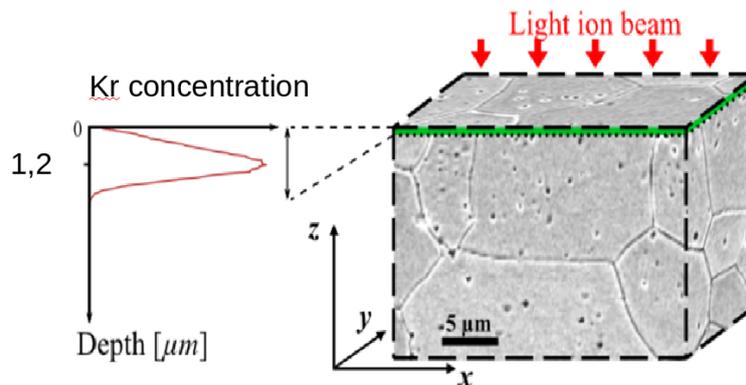


FIGURE 7.1 – L'échantillon d'UO₂ étudié a été implanté avec des ions Kr par le CEA-Cadarache, à une profondeur de $\sim 1.2 \mu\text{m}$. La taille de grain est de l'ordre de la dizaine de microns.

La taille de grains de cet échantillon était suffisamment grande (10 – 20 μm) pour que l'image de Laue ne contienne que le diagramme du grain de surface. En effet, la longueur d'atténuation dans l'UO₂ varie de 1 μm à 15 μm pour les énergies de BM32 (figure 7.2).

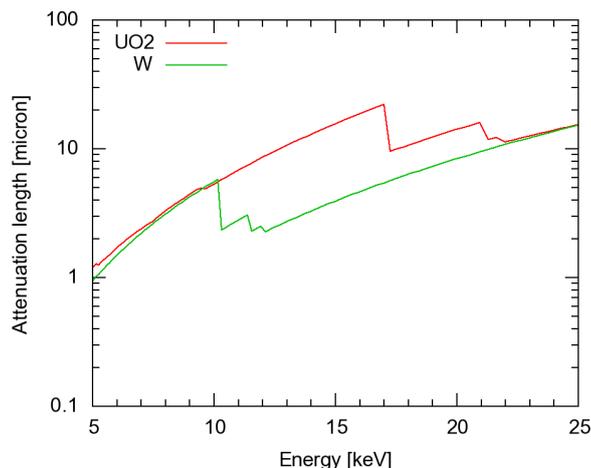


FIGURE 7.2 – Longueur d’atténuation dans UO2 et W pour le spectre d’énergie de BM32.

7.2.2 Acquisition des données et calibration du montage

L’acquisition des données de DAXM avait été réalisée en mars 2010 avec l’ancien setup de la ligne BM32, i.e. avant l’installation de la table anti-vibration et avant les nouvelles optiques de KB et la motorisation du détecteur. Le détecteur utilisé était la caméra Roper scientific (2048×2048 pixels de $77.3 \mu\text{m}$). La formulation actuelle du problème géométrique n’était pas encore disponible. Les mesures avaient été effectuées par A. Richard et H. Palanchar du CEA-Cadarache. La géométrie du montage était cependant globalement similaire aux conditions décrites dans les chapitres précédents. La translation du fil était dans une direction $\eta \simeq 40^\circ$, et avec un pas de déplacement variable de façon à ce que le pas du déplacement de l’ombre sur le détecteur soit constant (d’environ 5 pixels ici)¹. Ainsi, 400 pas sont nécessaires pour que l’ombre balaye toute la surface du détecteur. Les paramètres géométriques de l’expérience sont donnés dans le tableau 7.1

La calibration du montage a été réalisée selon la méthode présentée dans le chapitre 5. Les 19 points de calibration utilisés, répartis sur toute la surface du détecteur sont indiqués sur la figure 7.3. La comparaison des profils d’intensité sur ces pixels, en fonction de la position du fil, avec les résultats du modèle sont présentés sur la figure 7.3. On remarque une fois de plus une reproduction fidèle des données avec le modèle. Les paramètres de calibration correspondant, obtenus après minimisation de la fonction coût, sont donnés dans le tableau 7.1. Comme précédemment, le diamètre du fil identifié est légèrement inférieur au diamètre nominal, mesuré par ailleurs.

7.2.3 Reconstruction

A partir des données collectées, nous avons tenté une reconstruction des images de Laue pour différentes profondeurs dans l’échantillon, selon la méthode décrite dans le chapitre 6. La

1. Pour cela, un pseudo moteur ‘ycam’ avait été déclaré dans l’environnement de pilotage de la microdiffraction Laue, et le scan était réalisé avec la commande SPEC `ascan ycam 90 -80 400 0.3`.

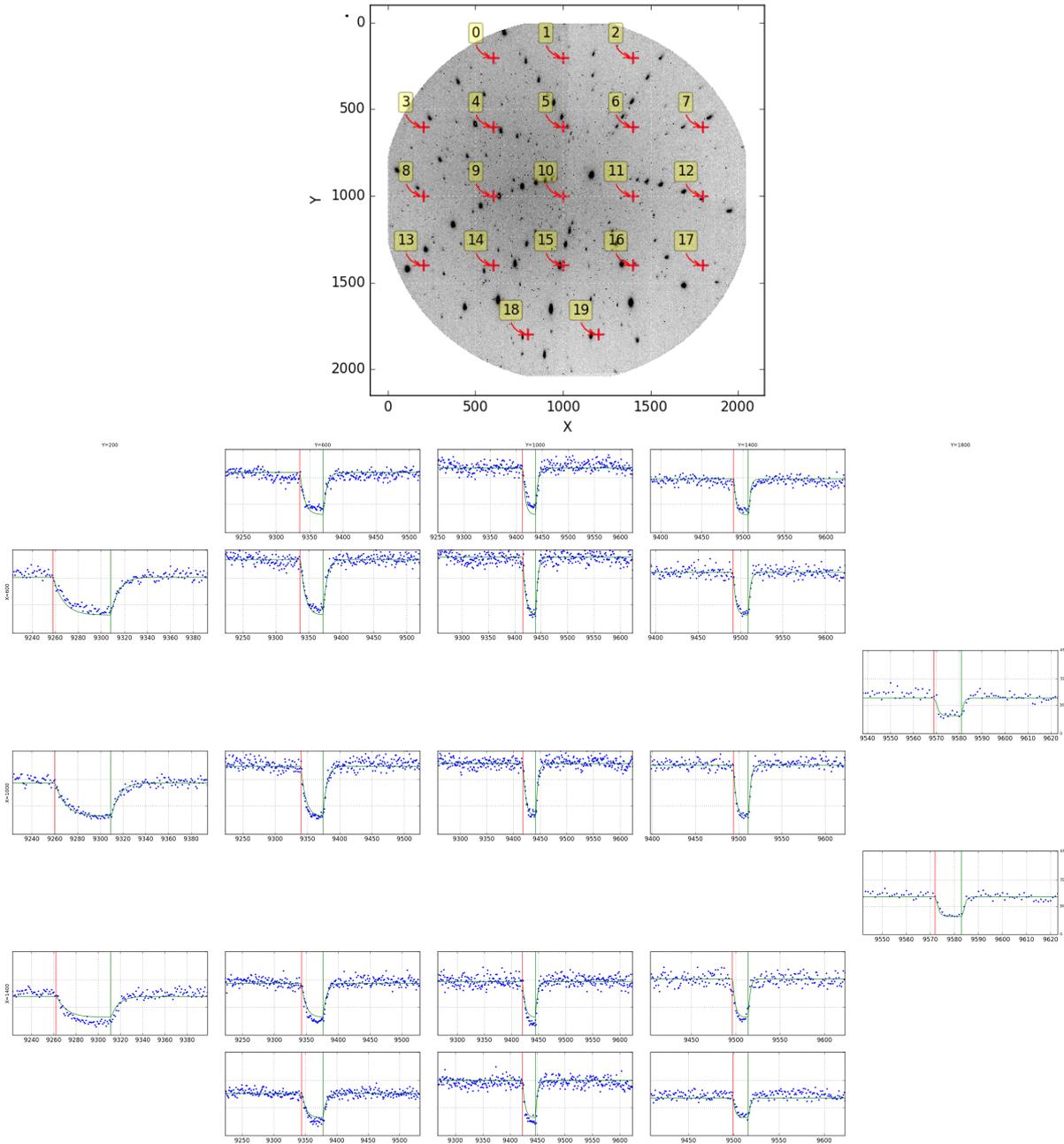


FIGURE 7.3 – Profils de calibration obtenus après minimisation de la fonction coût. La position des 19 pixels utilisés est indiquée sur l'image de Laue.

Paramètre	Valeur	Paramètre	Valeur
α	40°	H	$304.6 \mu\text{m}$
D	82.11 mm	R	$24.1 \mu\text{m}$
ℓ_p	$77.5 \mu\text{m}$	κ	-1.855°
X_{cen}	905.7 pix.	δ	-0.342°
Y_{cen}	1059.61 pix.	ζ	0°
		η	40.879°

TABLE 7.1 – Valeurs des paramètres géométriques utilisés pour cette expérience, déterminées par la calibration du montage. Les deux colonnes de gauche indiquent les valeurs relatives à la microdiffraction Laue, et les deux colonnes de droite celles relatives à la DAXM. La valeur nominale du rayon du fil est $R = 25 \mu\text{m}$ (on note que la valeur identifiée est légèrement inférieure à la valeur nominale, cf. discussion section 7.3).

reconstruction du pic 5² (cf. figure 7.4), obtenue avec une interpolation tous les 5 μm selon la méthode exposée dans la section 6.7, est montrée sur le figure 7.5.

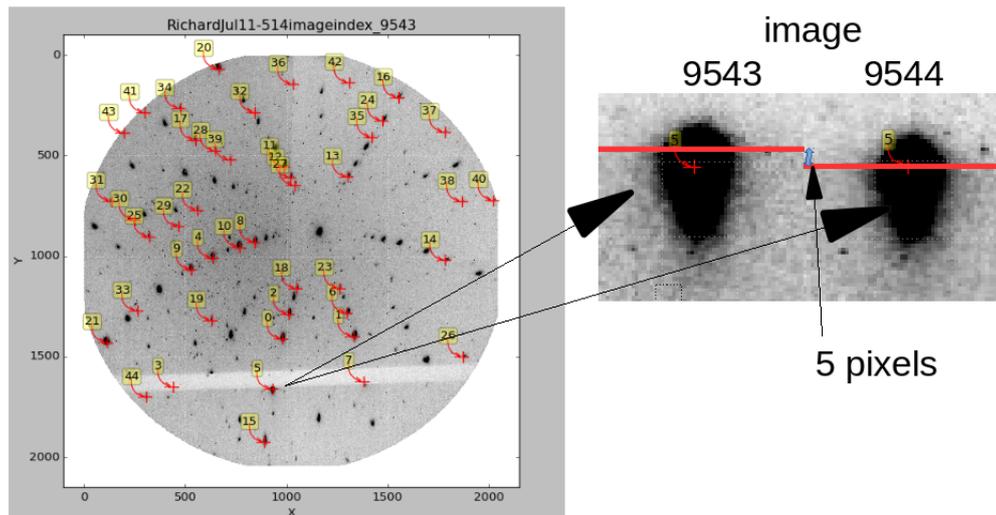


FIGURE 7.4 – Analyse du pas de déplacement de l'ombre sur le détecteur par pas de déplacement du fil. Ici, d'après les deux images miniatures correspondant à deux images successives, l'ombre (surlignée en rouge) a avancé de ~ 5 pixels entre les images 9543 et 9544.

On observe un résultat qualitativement différent de ceux observés dans le chapitre précédent. On voit maintenant clairement une structuration des taches de Laue reconstruites, avec des sauts d'intensité et des fluctuations manifestement artificielles de niveau de gris, discontinues, d'un pas de 5 pixels. On remarque que la fréquence de ces discontinuités correspond au pas de déplacement de l'ombre sur le détecteur.

2. d'une énergie d'environ 12 keV

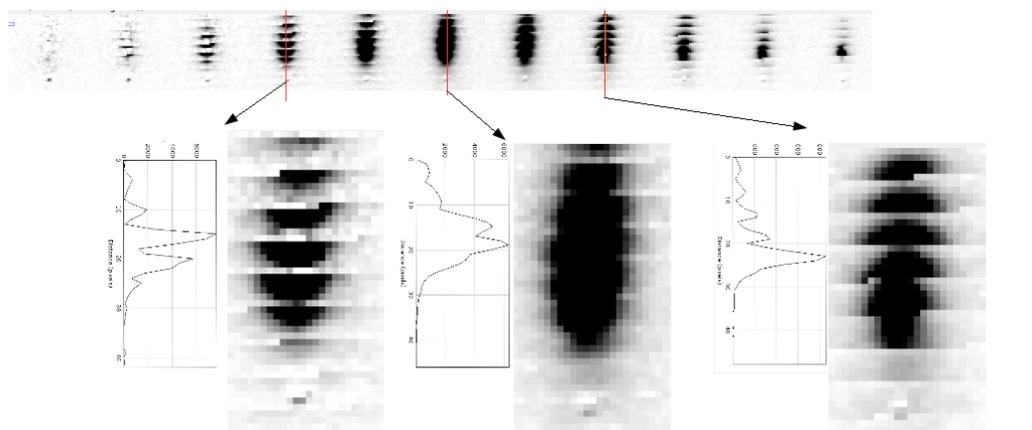


FIGURE 7.5 – Reconstruction classique (pas de $5\mu\text{m}$) du pic 5 à différentes profondeurs. La deuxième ligne est un zoom sur trois pics reconstruits. Les profils d'intensité dans la bande centrale de pixels (indiquée par la ligne rouge) sont indiqués.

Nous nous sommes donc intéressés plus en détails à la procédure utilisée pour la reconstruction. Nous avons reproduit sur la figure 7.6 un schéma des résultats montrés auparavant dans la figure 4.5, relatifs à la relation entre la profondeur ξ_f , la position du fil, et le pixel considéré. Sur cette figure, on indique en traits fins des isovaleurs de ξ_f , et en trait gras l'isovaleur de la profondeur ξ pour laquelle on souhaite faire la reconstruction (valeur cible). Les points noirs indiquent les trois images qu'il faudra utiliser, pour chaque pixel reconstruit, pour atteindre cette valeur de ξ en combinant dérivation par différence finie et interpolation, comme expliqué précédemment. Il apparaît clairement que pour un certain nombre de pixels voisins, la reconstruction sera faite avec la même série de 3 images. On doit donc s'attendre à des discontinuités de niveau de gris dans l'image reconstituée, lors du changement de série d'images ; c'est ce que l'on observe ici.

Pour cette expérience sur l'UO₂, qui est ancienne, le pas du déplacement du fil avait été choisi de telle manière à avoir un déplacement relativement grand de l'ombre par pas de fil (5 pixels). Dans ce cas, le pas en p_w étant grand devant la taille du pixel, l'échelle des abscisses de la figure 7.6 est contractée, et la pente des courbes isovaleur augmente (en valeur absolue). Avec ces conditions expérimentales, on trouve que chaque série de 3 images permet la reconstruction de 5 pixels voisins à une profondeur donnée, ce qui explique la structure de l'image 7.5. Nous avons vérifié, sur la courbe en haut à droite de la figure 7.7, que les discontinuités de niveaux de gris apparaissent lorsque l'on change de série d'images de référence.

De telles discontinuités de niveau de gris n'ont pas été observées dans le chapitre précédent lors de l'étude sur la macule. Cette différence est à attribuer aux conditions du scan. Il s'agit en effet d'une expérience plus récente, pour laquelle on avait choisi un pas de déplacement du fil bien plus petit, d'environ 2 pixels. L'échelle de la figure 7.6 est alors dilatée, diminuant le nombre de pixels reconstruits avec la même série d'image, et lissant ainsi les discontinuités.

En anticipation sur la suite du chapitre, on remarque que ces difficultés étaient prévisibles, dans la mesure où l'on cherche à reproduire un champ fortement non-linéaire (distribution de l'intensité sur les pixels en fonction de la profondeur dans l'échantillon) avec un petit nombre d'images et l'utilisation des procédures de dérivation et d'interpolation les plus simples (linéaires).

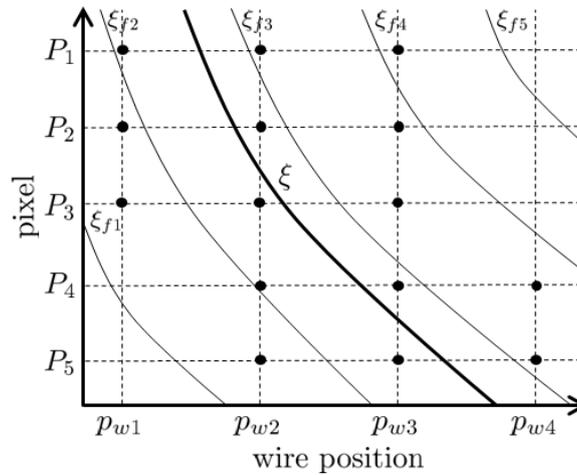


FIGURE 7.6 – Reproduction schématique de la figure 4.5, indiquant la profondeur ξ_f en fonction de la position du fil et du pixel considéré. Pour la reconstruction de l’intensité sur un pixel P_i à la profondeur ξ souhaitée (courbe en gras), on doit utiliser les 3 images marquées par les points.

Nous donnons dans la section suivante une voie de solution possible, basée sur la prise en compte de la transmission du faisceau au travers du fil absorbant.

7.3 Analyse de la transmission dans le fil

Nous avons cherché à quantifier l’effet de la transmission des rayons X au travers du fil sur les artefacts décrits ci-dessus. En effet, lorsque le faisceau diffracté est dans une position proche de la tangence au fil cylindrique, l’épaisseur de W traversée par le faisceau est faible, et donc potentiellement le fil n’absorbe pas entièrement le faisceau, contrairement aux hypothèses faites dans le modèle de DAXM (figure 7.8). On peut donc penser que la prise en compte de la transmission du faisceau au travers du fil pourrait améliorer la reconstruction, puisque le passage du fil réduit de manière progressive, et non abrupte, l’intensité mesurée. Dans un premier temps, nous formulons l’effet de l’absorption par le fil. Le modèle obtenu est ensuite comparé aux résultats d’une expérience dédiée. Nous reviendrons sur le cas de l’UO2 dans la section suivante.

7.3.1 Formulation

Afin de prendre en compte l’effet de la transmission du faisceau diffracté au travers du fil absorbant, nous allons avoir besoin d’exprimer la longueur de matière traversée par le faisceau. Nous appelons ℓ_w cette longueur. Son expression sera détaillée dans la section suivante (7.3.2), dans le cas d’une géométrie quelconque. La géométrie du problème est illustrée par la figure 7.9. On remarque simplement pour l’instant que ℓ_w dépend de la position ξ de la source, du pixel considéré P , et de la position p_w du fil absorbant. Nous nous plaçons dans le cas où le faisceau est de section négligeable, et que la rugosité de surface du fil est nulle³.

3. Il reste à quantifier l’impact de ces hypothèses.

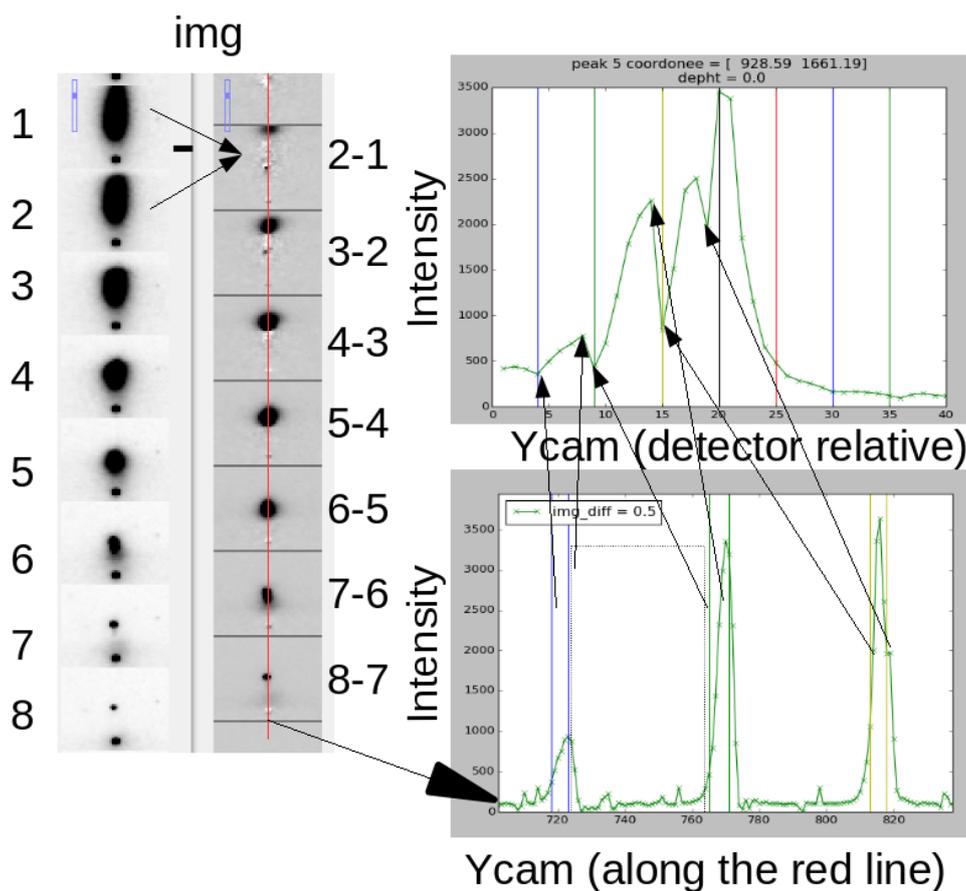


FIGURE 7.7 – Décomposition de la reconstruction d’une ligne de pixels. La colonne de gauche montre, pour 8 images successives, un agrandissement de l’image de Laue autour de la tache 5, lors du passage du fil. La colonne suivante montre le résultat de la soustraction de deux images successives. La courbe en bas à droite est le profil d’intensité obtenu pour la ligne centrale de pixels (ligne rouge) des différences d’images (pour les trois premières soustractions). La courbe en haut à droite montre le profil d’intensité reconstruit.

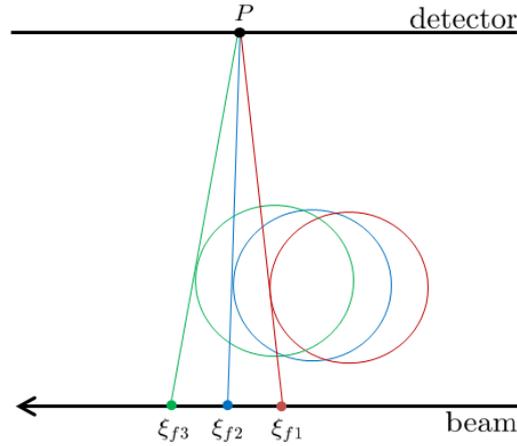


FIGURE 7.8 – Illustration de la transmission du faisceau au travers du fil absorbant. Lorsque le fil est à la position p_{w2} correspondant à la profondeur ξ_{f2} pour le pixel P , la partie transmise des faisceaux émis entre les profondeurs ξ_{f1} et ξ_{f2} est mesurée par ce pixel.

Dans cette section, nous montrons comment les équations (4.5-4.6) doivent être modifiées pour rendre compte de cette absorption. Cela permettra d'améliorer l'algorithme de reconstruction proposé en section 6.6.1.

L'intensité reçue par un pixel P est affectée par l'absorption du fil, selon la loi de Beer-Lambert. Pour quantifier cet effet, nous avons besoin de connaître, en plus de ℓ_w , la longueur d'onde du faisceau. Deux cas sont à considérer :

- Lorsqu'il s'agit de calibrer le montage expérimental, c'est le rayonnement de fluorescence qui est utilisé. Comme nous l'avons vu, l'échantillon émet plusieurs longueurs d'onde caractéristiques, les raies K_α étant les plus intenses. Dans l'analyse, il faudrait combiner l'absorption de chaque énergie.
- Lorsqu'il s'agit de reconstruire les images de Laue, c'est l'énergie de chaque tache de Laue qu'il faut considérer. Cette énergie est accessible via l'indexation des diagrammes de Laue (aux harmoniques près), lors de l'analyse standard des images. Pour les cas où le pics de Laue est très étalé sur le détecteur (par ex. pour un échantillon ayant subi une forte déformation plastique), on pourra envisager une reconstruction itérative sans puis avec prise en compte de l'absorption du fil (solution qu'il reste à tester).

Dans ce travail, on se limite au cas pour lequel la longueur d'onde λ du faisceau émis ou diffracté par l'échantillon est unique, et connue. La proportion de l'intensité absorbée par le fil (notée a_w) sera donc

$$a_w(\xi, P, p_w) = 1 - \exp(-\mu_\lambda \ell_w) \quad \text{si } \ell_w \geq 0 \quad (7.1)$$

où l'on utilise la notation $a_w(\xi, P, p_w)$ pour relever le fait que cette absorption dépend, tout comme ℓ_w , de la position de la source dans l'échantillon, de la position du pixel considéré, et de la position du fil.

Nous reprenons la formulation générale proposée dans le chapitre 4, dans laquelle la transmission dans le fil avait été négligée, i.e. considérant $a_w = 1$ pour tout $\ell_w > 0$. Nous considérons maintenant l'effet de $a_w \neq 1$ donné par l'équation (7.1). Si on se limite, par simplicité, au cas

pour lequel $\xi_b < 0 < \xi_f$, la relation (4.3) s'écrit

$$S(p_w, P) = \int_0^{\xi_f} [1 - a_w(\xi, P, p_w)] I_s(\xi, P) d\xi + \int_{\xi_f}^{+\infty} I_s(\xi, P) d\xi. \quad (7.2)$$

La dérivée de cette équation par rapport à la position du fil p_w est un peu plus compliquée que l'expression (4.5) dans la mesure où l'absorption a_w et la borne d'intégration ξ_f dépendent tous les deux de p_w . Le problème est en fait celui de la dérivation d'une intégrale paramétrique⁴. Après quelques calculs, et en notant que $a_w(\xi_f, P, p_w) = 0$ car cette valeur de a_w correspond au cas d'un faisceau tangent au fil et donc nullement absorbé (cf. section 4.3.3.1), on obtient l'expression

$$\frac{\partial S(p_w, P)}{\partial p_w} = - \int_0^{\xi_f} \frac{\partial a_w(\xi, P, p_w)}{\partial p_w} I_s(\xi, P) d\xi. \quad (7.3)$$

On peut noter les remarques suivantes :

- A partir de cette dernière expression, on retrouve l'équation (4.5) correspondant au cas d'une absorption totale par le fil, en remarquant que, dans ce cas, a_w est constant par morceau (fonction de Heaviside) et sa dérivée devient un Dirac centré en ξ_f .
- La relation (7.3) montre que l'absorption du fil a un effet sur la reconstruction de l'intensité I_s . Plus précisément, c'est la dérivée $\partial a_w / \partial p_w$ qui est importante.
- On voit par contre que l'on n'obtient pas directement l'intensité de la source à la profondeur ξ_f comme dans (4.5), mais seulement une intégrale de celle-ci depuis la surface de l'échantillon jusqu'à ξ_f , pondérée par la dérivée de a_w . On note que les dérivées secondes de (7.3), $\partial^2 S / \partial p_w^2$ ou $\partial^2 S / \partial p_w \partial \xi_f$, ne permettent pas de remonter à la fonction $I_s(\xi_f)$ puisque ξ_f est une fonction de p_w . L'analyse devient donc complexe.
- L'équation (7.3) montre enfin que l'information est maintenant diluée depuis la surface jusqu'à la profondeur ξ_f . Etant données les difficultés pressenties, il est clairement bénéfique d'avoir un dispositif expérimental concentrant les fortes valeurs de $\partial a_w / \partial p_w$ pour les profondeurs proches de ξ_f , et avec des valeurs nulles ailleurs. Une solution serait d'utiliser des fils les plus épais et les plus absorbants possibles. Des diamètres supérieurs à celui considéré dans cette thèse doivent pouvoir être utilisés. D'un autre côté, les solutions multi-fils à base de grille de MET, qui sont fines (épaisseur $\sim 20\mu\text{m}$, cf. section 3.3.3), risquent de poser problèmes, mais cette solution reste à tester expérimentalement.

L'expression (7.3) montre que la reconstruction de l'intensité I_s de la source dans l'échantillon est entachée d'une erreur significative si la longueur ξ sur laquelle la dérivée $\partial a_w(\xi, P, p_w) / \partial p_w$ montre une variation significative n'est pas négligeable devant ξ_f .

7.3.2 Calcul de la distance ℓ_w traversée par le faisceau

Nous poursuivons maintenant l'analyse avec l'expression de la longueur traversée par le faisceau dans le fil. Il s'agit de trouver la distance ℓ_w entre les deux points M_1 et M_2 , intersection du faisceau diffracté avec la surface du fil (figure 7.9). En reprenant les notations introduites précédemment, on note \vec{y}_f la direction du faisceau diffracté, Y le point source considéré le long

4. La dérivée par rapport à x de la fonction $F(x) = \int_{a(x)}^{b(x)} f(x, y) dy$ est donnée par la relation $F'(x) = f(x, b(x))b'(x) - f(x, a(x))a'(x) + \int_{a(x)}^{b(x)} \frac{\partial f}{\partial x}(x, y) dy$.

du faisceau incident, P le pixel sur le détecteur, O_W un point de l'axe du fil, et \vec{f} le vecteur donnant l'orientation du fil.

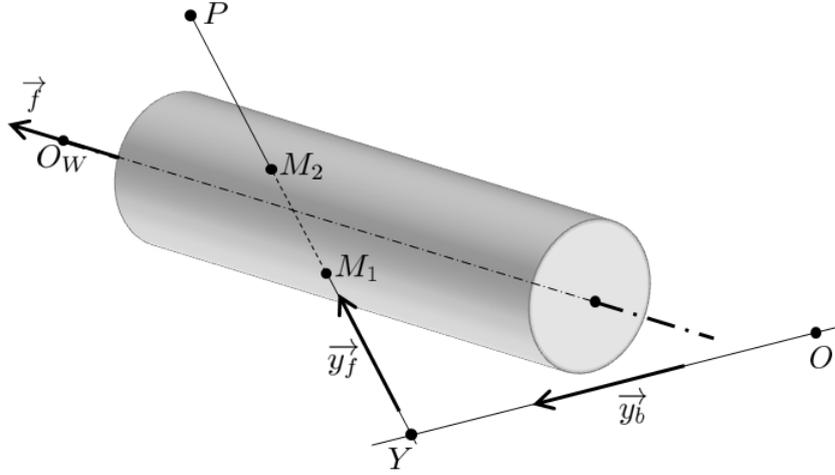


FIGURE 7.9 – Un faisceau, de direction \vec{y}_f , émis au point Y à l'intérieur de l'échantillon, et atteignant le pixel P , doit traverser la longueur $\ell_w = M_1M_2$ dans le fil de W . La position du fil est déterminée par le point O_W situé sur son axe et le vecteur directeur \vec{f} .

Soit M un point géométrique situé sur le trajet du faisceau diffracté. Si l'on appelle ξ' sa distance au point Y , l'équation de la droite formée par le faisceau diffracté est

$$\overrightarrow{O_W M} = \overrightarrow{O_W Y} + \xi' \vec{y}_f, \quad (7.4)$$

et l'équation de la surface cylindrique du fil de rayon R est

$$\|\overrightarrow{O_W M} - (\overrightarrow{O_W M} \cdot \vec{f}) \vec{f}\| = R. \quad (7.5)$$

En combinant ces deux équations, on obtient une équation du second degré en ξ'

$$(1 - D^2)\xi'^2 + 2(B - CD)\xi' + A - C^2 - R^2 = 0 \quad (7.6)$$

avec

$$A = \overrightarrow{O_W Y} \cdot \overrightarrow{O_W Y}, \quad B = \overrightarrow{O_W Y} \cdot \vec{y}_f, \quad C = \overrightarrow{O_W Y} \cdot \vec{f}, \quad D = \vec{y}_f \cdot \vec{f}.$$

On s'intéresse aux cas où cette équation admet deux racines, ξ'_1 et ξ'_2 , qui correspondent aux deux points d'intersection M_1 et M_2 . On en déduit la longueur traversée par le faisceau dans le fil absorbant, $\ell_w = |\xi'_1 - \xi'_2|$, qui vaut

$$\ell_w = 2 \frac{\sqrt{(B - CD)^2 - (1 - D^2)(A - C^2 - R^2)}}{1 - D^2} \quad (7.7)$$

si $(B - CD)^2 - (1 - D^2)(A - C^2 - R^2) \geq 0$, et bien sûr $\ell_w = 0$ si $(B - CD)^2 - (1 - D^2)(A - C^2 - R^2) < 0$.

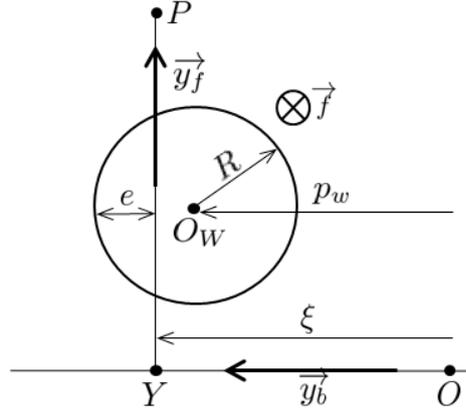


FIGURE 7.10 – Géométrie idéale utilisée pour l'expression (7.9).

Pour fixer les idées, on peut exprimer la longueur ℓ_w dans le cas de la géométrie idéale introduite à la section 4.3.4 : le fil est perpendiculaire au faisceau incident, parallèle au détecteur, et on considère un pixel P placé à la verticale de la source Y (cf. figure 7.10), de sorte que la direction du faisceau diffracté $\vec{y}_f \perp \vec{y}_b$ et $\vec{y}_f \perp \vec{f}$, i.e. dans le repère $(O, \vec{x}_d, \vec{y}_d, \vec{z}_d)$:

$$\vec{f} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \vec{y}_b = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad O_w = \begin{pmatrix} 0 \\ p_w \\ H \end{pmatrix}, \quad Y = \begin{pmatrix} 0 \\ \xi \\ 0 \end{pmatrix}, \quad P = \begin{pmatrix} 0 \\ \xi \\ D \end{pmatrix}. \quad (7.8)$$

La longueur ℓ_w devient alors simplement

$$\ell_w = 2\sqrt{R^2 - (\xi - p_w)^2} = 2\sqrt{2Re - e^2} \quad (7.9)$$

avec $e = R + p_w - \xi$ la distance entre la surface du fil et le faisceau. La dérivée de l'absorption s'écrit

$$\frac{\partial a_w}{\partial p_w} = 4\mu\lambda \frac{R - e}{\ell_w} \exp(-\mu\lambda\ell_w). \quad (7.10)$$

Les évolutions de ℓ_w , a_w , et $\partial a_w / \partial p_w$ sont données en figure 7.11 dans le cas du rayonnement de fluorescence de Ge ($E = 9.886\text{keV}$) et des fils de W de diamètre $20\ \mu\text{m}$, $50\ \mu\text{m}$, ou $200\ \mu\text{m}$. Malgré des différences notables dans les longueurs traversées pour les trois diamètres, on remarque que $\partial a_w / \partial p_w$ est quasi-nulle au delà de $e \sim 0.5$ à $1\ \mu\text{m}$. Pour le fil utilisé dans ce travail ($R = 25\ \mu\text{m}$), la valeur de a_w est supérieure à 0.9 pour des valeurs de $e > 1\ \mu\text{m}$. Cette valeur est en accord avec l'écart observé systématiquement entre le rayon réel du fil et la valeur identifiée par la procédure de calibration : par exemple dans le tableau 7.1, la valeur identifiée de R est inférieure de $0.9\ \mu\text{m}$ à la valeur nominale.

7.3.3 Comparaison à l'expérience (source quasi-ponctuelle)

Afin de valider expérimentalement l'effet de la transmission des faisceaux diffractés au travers du fil, nous avons fait des mesures dédiées à l'aide d'une source quasi-ponctuelle. Nous avons pour

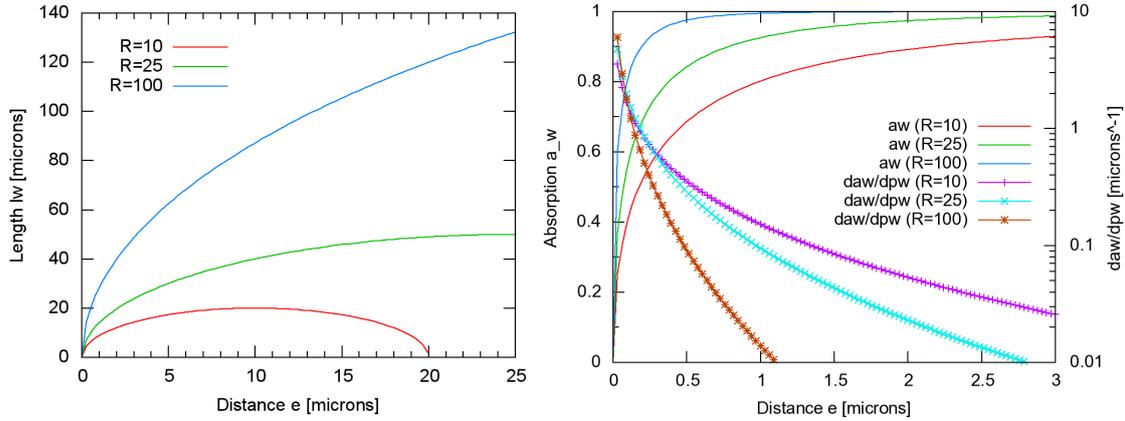


FIGURE 7.11 – (gauche) Distance ℓ_w , et (droite) coefficient d'absorption a_w et sa dérivée $\partial a_w / \partial p_w$, en fonction de la distance e , dans le cas de la géométrie idéale illustrée sur la figure 7.10. Calcul pour un fil de W de rayon $R = 10 \mu\text{m}$, $R = 25 \mu\text{m}$, ou $R = 100 \mu\text{m}$, et la longueur d'onde $K_{\alpha 1}$ du Ge ($E = 9.886 \text{keV}$, $\mu_\lambda = 1/5.39 \mu\text{m}^{-1}$).

cela utilisé un échantillon constitué d'un substrat de Si sur lequel a été déposé une fine couche de Ge (épaisseur $0.8 \mu\text{m}$) épitaxiée avec Si⁵. Dans les conditions de l'expérience, le Silicium ne produit pas de rayonnement fluorescence ; on a donc uniquement la fluorescence produite par le Germanium. Comme ce dernier est très fin, on peut considérer que la source de fluorescence est quasi-ponctuelle.

On compare deux images, l'une avec le fil de W à une position donnée pour laquelle l'ombre se projette au niveau du pixel 0 sur l'image 7.12a, et l'autre sans fil. La figure 7.12b donne le profil d'intensité mesuré sur une ligne de 200 pixels, perpendiculaire à l'ombre du fil et centrée autour du pixel 0. En soustrayant l'image obtenue avec le fil à celle obtenue sans fil, on obtient une mesure de la transmission du faisceau dans le fil. Sur la figure, on obtient un profil en forme de créneau, mais les flancs du créneau ne sont clairement pas abrupts, ils ont une épaisseur de 5 – 6 pixels. Comme la source est quasi-ponctuelle, ce profil d'intensité est à attribuer essentiellement à la transmission au travers du fil. Cette épaisseur de 5 – 6 pixels (soit $\sim 400 - 500 \mu\text{m}$) est largement supérieure à la distance e pour laquelle l'absorption a_w est significativement inférieure à 1, obtenue dans la section précédente. Cela provient d'un effet d'amplification lié à une distance détecteur-échantillon très supérieure (~ 2 ordres de grandeur) à la distance fil-échantillon.

Nous avons ensuite cherché à comparer la formulation générale (7.1) à ces données. Nous avons pour cela écrit un code de calcul permettant de modéliser le trajet du faisceau et son interaction avec le fil. Afin de nous affranchir de l'effet potentiel de la taille finie de la source, malgré ses dimensions réduites, nous l'avons modélisée par un volume de $0.8 \mu\text{m}$ le long du faisceau, correspondant à l'épaisseur du dépôt de Ge, et de dimensions transversales $1 \mu\text{m} \times 1 \mu\text{m}$, correspondant à la section du faisceau. Dans la simulation, ce petit volume parallépipédique est discrétisé par pas de $0.1 \mu\text{m}$ selon les trois directions de l'espace, et la contribution de chacun de ces sous-volumes a été cumulée sur le pixel d'intérêt. De la même manière, afin de tenir compte

5. Echantillon fourni par Samuel Tardif et fabriqué par Alban Gassenq, CEA Grenoble.

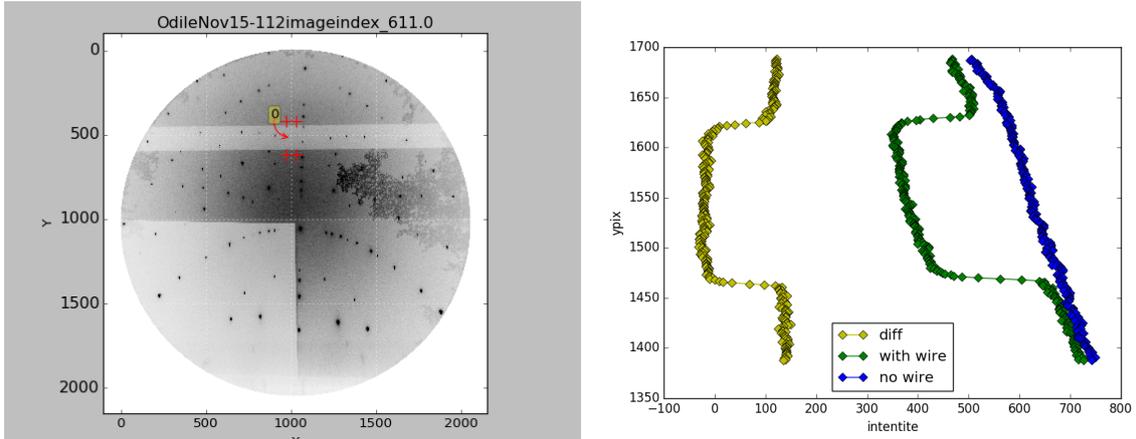


FIGURE 7.12 – (gauche) Image de Laue de la fine couche ($0.8 \mu\text{m}$) de Ge, avec l'ombre du fil W. (droite) Niveaux de gris des 200 pixels situés entre les croix rouges, au niveau du pixel marqué 0 sur l'image de Laue. Bleu : en l'absence du fil ; vert foncé : en présence du fil ; vert clair : différence des deux images.

de la variation de a_w avec la position P sur le détecteur, nous avons découpé chaque pixel en 3 sous-pixels selon la direction \vec{y}_d ⁶. On calcule donc l'absorption a_w du faisceau par le fil, pour chaque petit voxel de la source et chaque sous-pixel du détecteur, pour la longueur d'onde de fluorescence du Ge. On fait ensuite la moyenne sur le volume de la source et par pixel, ce qui nous donne un profil d'absorption simulé sur la surface du détecteur.

Les résultats sont indiqués sur la figure 7.13, pour trois positions différentes sur le détecteur. On observe déjà que le modèle reproduit la largeur des profils, selon la position sur le détecteur. Mais plus important ici, on voit que la pente des flancs montant et descendant est correctement captée. La pente expérimentale est cependant légèrement plus douce que celle calculée. Cela pourrait être dû à un effet de surface du fil ; par exemple, une rugosité du fil, même très faible ($\sim 100 \text{ nm}$) conduirait à une diminution du coefficient d'absorption apparent, et donc à étaler la transition. Ainsi, on observe que l'effet de la transmission au travers du fil, même s'il est concentré sur des profondeurs microniques (figure 7.11), s'étale sur plusieurs pixels au niveau du détecteur. Cette amplification est due à l'effet de démagnification, qui est directement lié au rapport des distances H/D ($\simeq 260$) : pour une source ponctuelle, un coefficient d'absorption variant sur une distance e au niveau du fil sera visible sur une distance He/D au niveau du détecteur. Les courbes 7.13 s'expliquent donc à la fois par l'effet de la transmission dans le fil, mais aussi par l'effet de la taille finie de la source.

7.4 Application à l'UO2

Pour terminer ce travail, nous avons tenté une première application de l'effet de la transmission dans le fil pour l'échantillon d'UO2 présenté ci-dessus. La démarche adoptée consiste à calculer, à

6. L'ombre du fil étant quasiment parallèle à la direction \vec{x}_d du détecteur, il n'a pas été nécessaire de définir des sous-pixels selon cette direction.

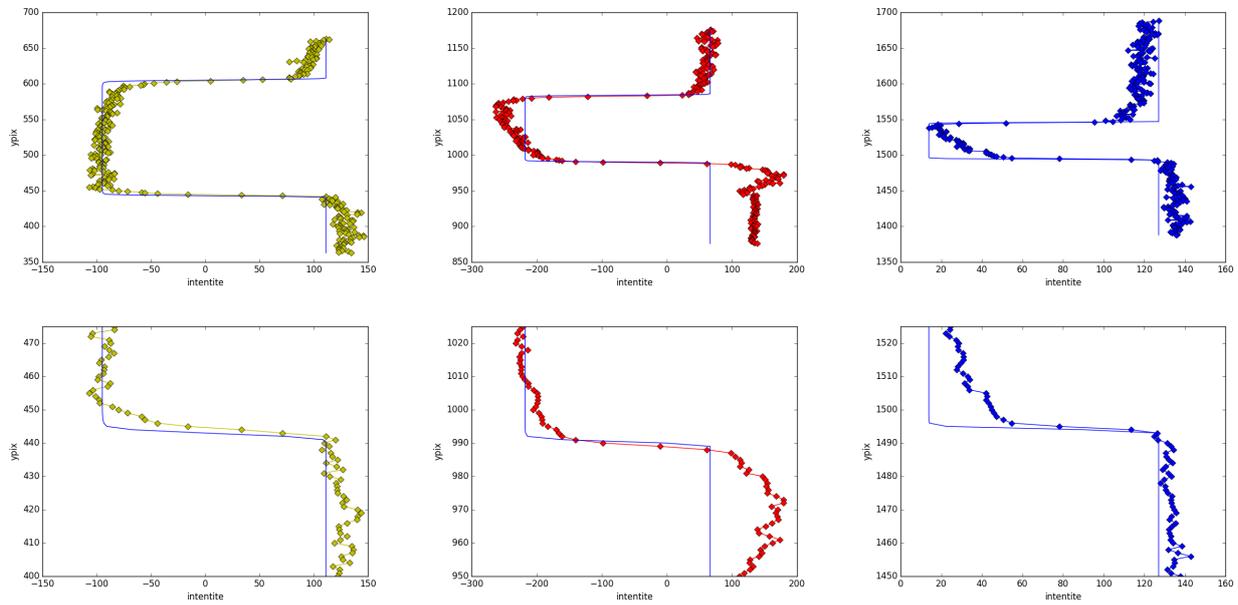


FIGURE 7.13 – Superposition des profils d'intensité calculés avec ceux mesurés sur la fine couche de Ge, pour une ligne de pixels centrée autour des trois pixels numérotés (de gauche à droite) 1, 4, et 7 sur la figure 7.14. Les trois figures du bas sont des zooms sur les flancs des profils.

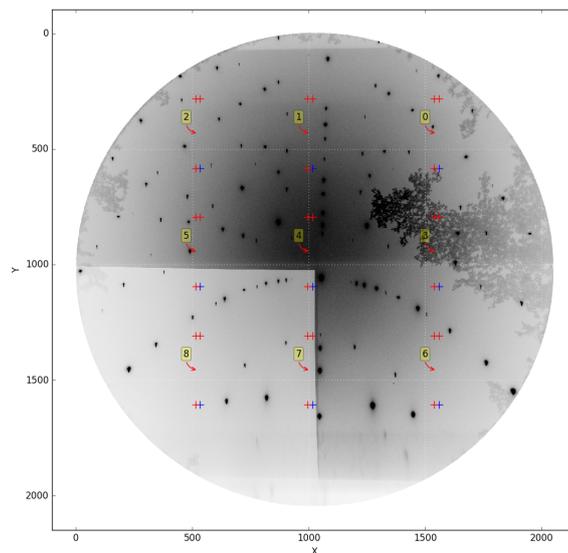


FIGURE 7.14 – Position des pixels utilisés dans la figure 7.13.

partir des trois images, et pour chacune des profondeurs ξ_{f1-2} et ξ_{f2-3} , le coefficient d'absorption a_w correspondant aux positions de fil p_{w1} , p_{w2} , et p_{w3} . Ces coefficients sont ensuite utilisés pour pondérer les intensités I_{1-2} et I_{2-3} calculées en ξ_{f1-2} et ξ_{f2-3} , de façon à prendre en compte, de manière simple, la transmission dans le fil.

Les résultats sont indiqués sur la figure 7.15 pour un pic à deux profondeurs différentes, et sur laquelle les deux figures du haut sont celles obtenues sans tenir compte de la transmission, et celle du bas en tiennent compte. Le résultat obtenu n'est pas parfait, et n'est probablement pas encore assez bon pour pouvoir espérer faire une analyse précise des déformations élastiques dans la maille cristalline. On note cependant une amélioration lorsque la transmission est prise en compte, car les profils obtenus sont plus lisses qu'auparavant. Cette amélioration est obtenue au détriment du temps de traitement numérique (20 minutes, contre 1 minute dans le cas du traitement simple).

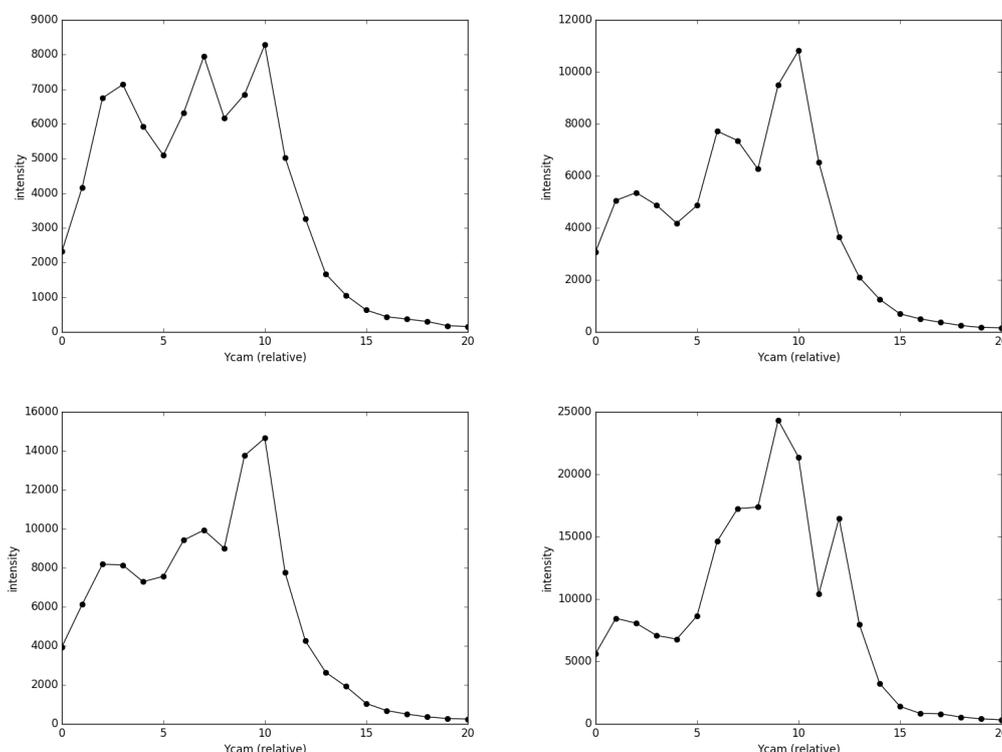


FIGURE 7.15 – Profils reconstruits du pic 5 à deux profondeurs différentes : (gauche) proche de la surface, (droite) un micron plus profond. Les figures du haut sont reconstruites sans considérer la transmission par le fil, les figures du bas tiennent compte de la transmission.

7.5 Conclusion

Ce dernier chapitre était une première tentative d'analyse des déformations élastiques en volume. Nous avons pour cela considéré un échantillon d'UO2 implanté, qui présente une couche

de surface micrométrique fortement contrainte. L'analyse brute des données montre une structuration artificielle des taches de Bragg reconstituées, avec des discontinuités périodiques du niveau de gris. La source principale de ces artefacts est le pas du déplacement du fil, choisi (trop) grand dans cette expérience. Il en résulte que la même série de trois images est utilisée pour reconstruire un ensemble de pixel voisin, et donc des discontinuités apparaissent lorsque l'on change de série. Pour tenter d'améliorer la situation, nous nous sommes penchés sur le rôle potentiel de la transmission du faisceau au travers du fil de W. Le problème a été formulé dans le cas d'une géométrie quelconque. Nous montrons que la reconstruction devient complexe, car la dérivée des images fait intervenir l'intensité de l'ensemble des sources, depuis la surface de l'échantillon. Avec les fils utilisés, l'absorption est cependant suffisamment efficace pour concentrer l'information sur une dimension micrométrique autour de ξ_f . Le modèle obtenu a été comparé avec succès à une expérience dédiée sur une couche de Ge d'épaisseur sub-micrométrique, générant ainsi une source quasi-ponctuelle. L'analyse met aussi en évidence l'effet de démagnification, lié au rapport des distances échantillon-fil-détecteur. Pour finir, la transmission dans W améliore le traitement des pics de l'échantillon d'UO₂, mais ne résout pas entièrement le problème. Il n'a donc pas été possible de pousser l'analyse jusqu'à l'estimation du gradient en profondeur des déformations élastiques. Pour terminer, on notera que dès que l'on veut prendre en compte la transmission réelle du fil, il faut introduire dans le calcul le coefficient d'absorption du tungstène, qui n'est pas connu a priori car il dépend de l'énergie des photons, et les énergies des spots de Laue varient d'un spot à l'autre, avec en plus certains spots multi-énergie du fait des harmoniques.

CHAPITRE 8

Conclusion et perspectives

Ce travail est une contribution au développement de la DAXM sur la ligne CRG BM32 installée à l'ESRF, et a été réalisé dans le cadre du projet ANR MICROSTRESS. Nous nous sommes essentiellement attaché à mettre en place un modèle de reconstruction 3D et à valider ce modèle à l'aide d'expériences sur des échantillons relativement simples pour lesquels la microstructure et/ou le champ des déformations élastiques sont connus à l'avance, dans l'optique d'identifier les facteurs limitant et d'estimer la résolution de la technique.

D'un point de vue expérimental, nous avons mis en place un support permettant d'accepter plusieurs fils absorbant. Nous avons également développé une machine de flexion in-situ permettant de coupler les mesures en microdiffraction Laue et en DAXM avec des analyses en EBSD-HR. Cette machine a été centrale dans les travaux de thèse de Zhang [2015] et Plancher [2015]. Nous l'avons utilisé pour la DAXM (ex. flexion de monocristaux d'Al), mais l'exploitation des résultats n'est pas terminée. Cette thèse a bénéficié de l'upgrade du montage de microdiffraction Laue (motorisation du détecteur, table anti-vibration active, nouvelles optiques, ...) qui a été mis en place au tout début de ce travail, et pris en main progressivement.

Concernant le traitement des données, nous avons formulé le problème dans le cadre d'une géométrie quelconque, pour un fil cylindrique complètement opaque aux faisceaux X. Nous fournissons également des solutions approchées permettant de guider le choix d'une géométrie selon la résolution souhaitée par l'utilisateur. Nous avons effectué une étude de sensibilité aux paramètres géométriques du montage. En particulier, l'angle de translation du fil, η , a une forte implication sur la stratégie de mesure ; une translation parallèle à la surface à l'échantillon induit une forte évolution de la résolution au cours du déplacement du fil, un artefact qui disparaît si la translation est parallèle au faisceau incident.

La reconstruction de diagrammes de Laue résolus en profondeur nécessite la dérivation du niveau de gris des images en fonction de la position du fil. Nous avons utilisé pour cela une méthode simple de différences finies centrées. L'étape de calibration du montage, qui permet la détermination précise de tous les paramètres géométriques, est cruciale ; nous proposons une méthode utilisant la fluorescence de l'échantillon. Le modèle utilisé est simple devant la complexité physique en jeu, dans la mesure où (entre autre) un coefficient d'absorption unique est utilisé. Il n'en est pas moins efficace, et a permis une reproduction fidèle, sur toute la surface du détecteur, des données expérimentales obtenues sur plusieurs matériaux.

Concernant la reconstruction de la microstructure 3D, nous avons utilisé deux échantillons témoins, un polycristal maclé et un empilement de nano-fils sur un substrat Ge. On montre qu'un traitement simple des images de DAXM, uniquement basé sur l'observation des niveaux de gris sur un petit nombre de pixels, permet déjà une estimation assez réaliste de la microstructure. L'utilisation du modèle complet, après calibration du montage, permet de retrouver avec une résolution d'environ $2\ \mu\text{m}$ la position du plan de macle jusqu'à une profondeur de $40\ \mu\text{m}$. Une procédure d'interpolation doit être appliquée pour reconstruire les diagrammes de Laue résolus en profondeur ; nous avons appliqué la méthode à un petit nombre de pixel autour de taches

de Bragg de l'échantillon maclé. On observe une diffusion du plan de macle dans les images reconstruites sur une distance ($\sim 5 \mu\text{m}$), qui est directement liée au pas de mesure utilisé. La reconstruction à des profondeurs supérieures au diamètre du fil est plus compliquée car elle demande un traitement par récurrence, dans lequel les erreurs de reconstruction se cumulent ; nos efforts sur cette partie du travail n'ont pour l'instant pas été concluants. Une solution simple consisterait à prendre un fil d'un diamètre suffisant pour s'affranchir de cette difficulté supplémentaire.

Pour finir, nous avons tenté la reconstruction d'un champ de déformation élastique sur un échantillon d'UO₂ présentant une couche de surface fortement contrainte. Le jeu de données, relativement ancien, avait été obtenu avec un grand pas de déplacement du fil. Il en résulte des artefacts dans la reconstruction avec des discontinuités artificielles du niveau de gris, liés aux sauts dans les dérivées de niveau de gris lorsqu'on change la série de 3 images utilisées pour la reconstruction. Nous avons tenté de résoudre cette difficulté en améliorant la physique prise en compte dans le modèle, i.e. en considérant la transparence du fil. Le problème a été formulé, et on montre l'intérêt d'avoir un fil le plus absorbant possible (ex. de gros diamètre) afin de récupérer l'intensité de la source sur la plus petite plage de profondeurs possible. L'application à l'UO₂ montre une certaine amélioration mais n'est pas encore totalement satisfaisante.

Ce travail a donc contribué à rendre la DAXM disponible aux utilisateurs sur la ligne CRG-IF. Il reste cependant un certain nombre d'axes de développement qu'il faudrait poursuivre à l'avenir.

- Ce travail nous a permis de tester un grand nombre de méthodes et d'hypothèses pour le traitement des données. Je pense qu'il faudrait maintenant re-écrire complètement le code numérique utilisé jusque là, en s'appuyant sur la formulation décrite dans ce manuscrit, et en l'organisant pour pouvoir y brancher les voies d'amélioration discutées. Il est important que ce nouveau code soit facilement compréhensible par les utilisateurs de BM32.
- Concernant le traitement des images, nous nous sommes limités à une dérivation des niveaux de gris par différences finies centrées, et une interpolation linéaire des profondeurs. Cette procédure peut donner des résultats erronés quand le pas du fil est trop petit et/ou que le bruit d'image est important. Ce point peut très probablement être amélioré en appliquant les méthodes (à définir) développées par les laboratoires spécialistes en traitement de signaux bruités. Ce serait aussi l'occasion de propager au diagramme de Laue reconstruit l'erreur sur la dérivation et d'en déduire ainsi une incertitude sur la microstructure ou la déformation élastique résolue en profondeur.
- Nous avons mis en place la formulation pour la prise en compte de la transmission du faisceau au travers du fil. Nous avons montré que cela devrait permettre une amélioration de la reconstruction. Il faudrait tester le modèle sur des données obtenues avec différents diamètres de fils et/ou des fils constitués de matériaux différents, et intégrer la prise en compte automatique de la longueur d'onde diffractée dans le code de calcul.
- La procédure de calibration de la DAXM pourrait également être améliorée, malgré les bons résultats obtenus. Le modèle actuel se base sur un coefficient d'absorption unique (effectif). Le cas des échantillons de composition hétérogène et de ceux n'émettant pas de fluorescence dans les conditions expérimentales standards pose problème. (i) Pour les échantillons de composition inhomogène, comme les revêtements, il faut sans doute enrichir le modèle par une fluorescence multi-couche. Cela rajouterait des paramètres à

identifier, mais le nombre de pixels utilisés pour la calibration peut être augmenté de manière significative, et, si besoin, on peut aussi imaginer l'acquisition de données avec plusieurs distance H afin d'augmenter la base expérimentale. (ii) Pour les échantillons non-fluorescents, une voie possible d'amélioration est le dépôt d'une couche fine fluorescente (ex. $0.1 \mu\text{m}$ de Cu ou Au) sur une zone proche de la zone à analyser sur l'échantillon. Cela réduirait un peu la profondeur d'analyse possible mais cette limitation ne nous paraît pas critique au regard de l'amélioration que ça devrait apporter dans la calibration. Enfin, de manière générale, il serait intéressant de vérifier si l'utilisation de plusieurs coefficients d'absorption, au lieu d'un seul actuellement, améliore les résultats.

- Du point de vue expérimental, il est important de pouvoir accélérer l'acquisition des images. Le nouveau détecteur en cours d'installation sur BM32, avec une fréquence affichée de $\sim 10\text{Hz}$ devrait déjà apporter des améliorations significatives. L'utilisation de la technique multi-fil pourrait encore accélérer les acquisitions. Il faudrait commencer par mettre en place le traitement en utilisant un petit nombre de fils de gros diamètre, avant de tester l'utilisation de grilles de MET pour lesquelles se poseront les problèmes liés à la transmission.

Malgré les développements listés ci-dessus qu'il faudrait faire pour aboutir à une solution robuste, le travail présenté dans ce manuscrit permet d'envisager la reconstruction 3D du champ élastique pour des échantillons adaptés; une première application est donnée en annexe sur la croissance de whiskers d'étain (collaboration avec l'équipe de Matti Ristinmaa, Université de Lund, Suède). La DAXM pourrait aussi être utilisée pour mieux comprendre l'interaction rayons X - matière, et notamment pour mieux connaître la profondeur de pénétration du faisceau X lorsque le cristal est en condition de Bragg. Le développement de la DAXM sur la ligne BM32 se poursuit actuellement avec (entre autre) le projet ANR XMicroFatigue porté par Jean-Sébastien Micha.

ANNEXE A

Notations

Dans ce document, les variables scalaires sont notées en italique (ex. a), les vecteurs en lettre minuscule gras ou surmontée d'une flèche (ex. \mathbf{a} ou \vec{a}). On utilise une lettre minuscule gras pour les tenseurs du premier ou second ordre (ex. \mathbf{a}) et une lettre majuscule gras pour les tenseurs du quatrième ordre (\mathbf{A}). Le produit scalaire s'écrit avec un point (\cdot), le produit vectoriel avec un chapeau (\wedge), le produit doublement contracté avec deux points ($:$), le produit tensoriel avec un signe multiplié cerclé (\otimes).

Le tableau [A.1](#) résume les principaux symboles utilisés dans ce manuscrit, leur désignation, ainsi que le numéro de l'équation ou de la figure dans laquelle le symbole est défini.

Symbole	Signification	Référence
$\vec{x}_d, \vec{y}_d, \vec{z}_d$	Vecteurs unitaires du repère détecteur	fig. 3.5
\vec{y}_b, β, γ	Direction de propagation du faisceau incident	équ. (3.1)
O	Point intersection du faisceau incident avec la surface de l'échantillon	fig. 3.5
O_d	Point projection de O sur la surface du détecteur suivant \vec{z}_d	fig. 3.5
D	Distance échantillon – détecteur	équ. (3.2)
X_{cen}, Y_{cen}	Coordonnées (exprimée en pixel) de O_d suivant \vec{x}_d, \vec{y}_d	équ. (3.3)
ℓ_p	taille du pixel détecteur	3.3
α	Angle entre la normale à la surface de l'échantillon et la normale au détecteur \vec{z}_d	fig. 3.8
\vec{f}, κ, δ	Orientation du fil	équ. (3.6)
\vec{u}, η, ζ	Direction de translation du fil	équ. (3.7)
O_w	Un point particulier situé sur l'axe du fil	équ. (3.4)
H	Distance échantillon – fil mesurée selon \vec{z}_d lorsque $p_w = p_{w0}$	équ. (3.4)
p_w, p_{w0}	Position du fil selon \vec{u} , et offset sur les coordonnées moteur	équ. (3.4)
Y	Un point de la source secondaire	fig. 4.2
Y_f, Y_b	Points limites avant ('front') et arrière ('back') de la zone écrantée du faisceau incident	fig. 4.2
ξ, ξ_f, ξ_b	Distance entre le point O et les points Y, Y_f, Y_b	équ. (4.12)
P	Un pixel du détecteur	fig. 4.3
P_f, P_b	Deux points situés sur les droites limites 'front' et 'back' de l'ombre du fil sur le détecteur, pour un point source donné	fig. 4.3
$\vartheta, \vartheta_f, \vartheta_b$	Distance entre le point O_d et les points P, P_f, P_b	équ. (4.27)
$I_s(\xi, P)$	Densité d'intensité émise par une source ponctuelle à la position ξ vers le pixel P	équ.(4.2–4.4)
$S(p_w, P)$	Intensité totale reçue par le pixel P pour la position p_w du fil	équ.(4.2–4.4)
$S(\xi_1, \xi_2, P)$	Intensité reçue par le pixel P pour une source s'étendant de ξ_1 à ξ_2	équ.(6.4)
S_m	Intensité totale reçue par un pixel : valeur calculée par le modèle	équ. (5.13)
S_e	Intensité totale reçue par un pixel : valeur expérimentale	équ. (5.14)
ℓ_w	Longueur traversée dans le fil	équ. (7.7)
a_w	Absorption du faisceau diffracté par le fil	équ. (7.1)

TABLE A.1 – Signification des principales variables.

ANNEXE B

Rotations et changements de repère

B.1 Définition des repères

Soient deux bases orthonormées.

- $\vec{e}_i^{(1)}$ sont les vecteurs unitaires de l'ancienne base (1), et
- $\vec{e}_i^{(2)}$ les vecteurs unitaires la nouvelle base (2).

Ici, i représente le numero du vecteur de base, e.g. $\vec{e}_1^{(1)}$ est le vecteur unitaire selon l'axe des x de la base (1), $\vec{e}_2^{(1)}$ le vecteur unitaire selon l'axe des y , etc.

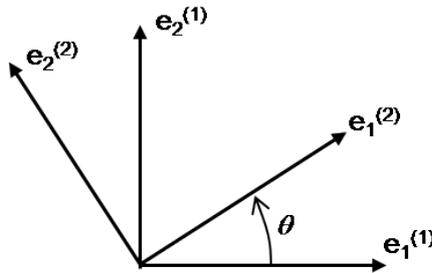


FIGURE B.1 – La rotation d'angle θ permet de passer de l'ancienne base (1) à la nouvelle base (2).

On définit les matrices de passages (ou de rotation) $[\mathbf{P}]$ et $[\mathbf{Q}]$, de composantes P_{ij} et Q_{ij} respectivement :

- $[\mathbf{P}]$ a pour *colonnes* les composantes des vecteurs unitaires de la nouvelle base $\{\vec{e}_i^{(2)}\}$ dans l'ancienne base $\{\vec{e}_i^{(1)}\}$, i.e. $P_{ij} = \vec{e}_j^{(2)} \cdot \vec{e}_i^{(1)}$,
- $[\mathbf{Q}]$ a pour *colonnes* les composantes des vecteurs unitaires de l'ancienne base $\{\vec{e}_i^{(1)}\}$ dans la nouvelle base $\{\vec{e}_i^{(2)}\}$, i.e. $Q_{ij} = \vec{e}_j^{(1)} \cdot \vec{e}_i^{(2)}$.

Si les repères sont *orthonormés*, alors $[\mathbf{P}]$ et $[\mathbf{Q}]$ sont des matrices orthogonales : $[\mathbf{P}]$ est la matrice transposée de $[\mathbf{Q}]$ (et vice versa), et la transposée de $[\mathbf{P}]$ est égale à l'inverse de $[\mathbf{P}]$ (et même chose pour $[\mathbf{Q}]$)

$$P_{ij} = Q_{ji}, \quad [\mathbf{P}]^{-1} = [\mathbf{P}]^T, \quad [\mathbf{Q}]^{-1} = [\mathbf{Q}]^T. \quad (\text{B.1})$$

Ainsi, dans l'exemple de la figure B.1, les matrices $[\mathbf{P}]$ et $[\mathbf{Q}]$ s'écrivent

$$[\mathbf{P}] = \begin{bmatrix} \cos \theta & -\sin \theta & 0 \\ \sin \theta & \cos \theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}, \quad [\mathbf{Q}] = \begin{bmatrix} \cos \theta & \sin \theta & 0 \\ -\sin \theta & \cos \theta & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}. \quad (\text{B.2})$$

Les vecteurs unitaires $\vec{e}_i^{(1)}$ et $\vec{e}_i^{(2)}$ sont donc liés par les relations

$$\vec{e}_j^{(2)} = P_{ij} \vec{e}_i^{(1)}, \quad \vec{e}_j^{(1)} = Q_{ij} \vec{e}_i^{(2)}, \quad (\text{B.3})$$

où l'on utilise la convention de sommation implicite sur les indices répétés (ex. ici sommation sur i). Attention à l'ordre des indices dans les relations précédentes, il ne s'agit pas d'un produit scalaire. Il s'agit de relations vectorielles, qui expriment par exemple le vecteur $\vec{e}_1^{(2)}$ comme une combinaison linéaire de $\vec{e}_1^{(1)}$, $\vec{e}_2^{(1)}$, et $\vec{e}_3^{(1)}$. Etant données les propriétés énoncées ci-dessus, ces relations s'écrivent aussi

$$\vec{e}_j^{(2)} = Q_{ji} \vec{e}_i^{(1)}, \quad \vec{e}_j^{(1)} = P_{ji} \vec{e}_i^{(2)}. \quad (\text{B.4})$$

B.2 Angles d'Euler (convention de Bunge)

Les angles d'Euler ϕ_1, Φ, ϕ_2 (convention "Bunge") sont définis comme suit : pour passer du repère (1) au repère (2), on effectue, dans l'ordre, les trois rotations suivantes :

1. une rotation d'angle ϕ_1 autour de l'axe $\vec{e}_3^{(1)}$, ce qui donne le nouveau repère $\{\vec{e}'_i^{(1)}\}$
2. une rotation d'angle Φ autour de $\vec{e}'_1^{(1)}$, ce qui donne le nouveau repère $\{\vec{e}''_i^{(1)}\}$
3. et enfin une rotation d'angle ϕ_2 autour de $\vec{e}''_3^{(1)}$, ce qui donne le nouveau repère $\{\vec{e}_i^{(2)}\}$.

La matrice de changement de base correspondante s'écrit

$$[\mathbf{Q}_{\text{Bunge}}] = \begin{bmatrix} \cos \phi_1 \cos \phi_2 - \sin \phi_1 \cos \Phi \sin \phi_2 & \sin \phi_1 \cos \phi_2 + \cos \phi_1 \cos \Phi \sin \phi_2 & \sin \Phi \sin \phi_2 \\ -\cos \phi_1 \sin \phi_2 - \sin \phi_1 \cos \Phi \cos \phi_2 & -\sin \phi_1 \sin \phi_2 + \cos \phi_1 \cos \Phi \cos \phi_2 & \sin \Phi \cos \phi_2 \\ \sin \phi_1 \sin \Phi & -\cos \phi_1 \sin \Phi & \cos \Phi \end{bmatrix}. \quad (\text{B.5})$$

B.3 Vecteurs

Soit un vecteur \vec{v} , qui peut s'exprimer indépendamment dans les deux bases

$$\vec{v} = v_i^{(1)} \vec{e}_i^{(1)} = v_j^{(2)} \vec{e}_j^{(2)} \quad (\text{B.6})$$

(toujours avec sommation sur i et j), $v_i^{(1)}$ et $v_i^{(2)}$ étant les coordonnées du vecteur \vec{v} dans les bases (1) et (2) respectivement. En utilisant les relations (B.4), on montre aisément que

$$v_i^{(1)} = P_{ij} v_j^{(2)}, \quad v_i^{(2)} = Q_{ij} v_j^{(1)} \quad (\text{B.7})$$

ou, sous forme matricielle, en notant $[\vec{v}^{(1)}]$ et $[\vec{v}^{(2)}]$ les colonnes des composantes de \vec{v} dans les bases (1) et (2),

$$[\vec{v}^{(1)}] = [\mathbf{P}][\vec{v}^{(2)}], \quad [\vec{v}^{(2)}] = [\mathbf{Q}][\vec{v}^{(1)}]. \quad (\text{B.8})$$

Considérons maintenant non plus l'expression des composantes d'un même vecteur dans deux bases différentes, mais la *rotation* d'un vecteur. Soit \vec{u} l'image du vecteur \vec{v} par la rotation $[\mathbf{P}]$, de coordonnées $u_i^{(1)}$ dans la base (1). Son expression est alors

$$\vec{u} = u_i^{(1)} \vec{e}_i^{(1)} = v_i^{(1)} \vec{e}_i^{(2)}. \quad (\text{B.9})$$

On montre alors aisément que les coordonnées de \vec{u} sont données par

$$u_i^{(1)} = Q_{ji} v_j^{(1)} = P_{ij} v_j^{(1)}. \quad (\text{B.10})$$

B.4 Tenseurs

Un tenseur \mathbf{a} d'ordre 2 (par ex. le tenseur des contraintes) peut s'exprimer dans les deux bases

$$\mathbf{a} = a_{ij}^{(1)} \vec{e}_i^{(1)} \otimes \vec{e}_j^{(1)} = a_{ij}^{(2)} \vec{e}_i^{(2)} \otimes \vec{e}_j^{(2)} \quad (\text{B.11})$$

avec $a_{ij}^{(1)}$ et $a_{ij}^{(2)}$ les composantes de \mathbf{a} dans les bases (1) et (2). De la même façon que pour les vecteurs, on montre aisément que ses composantes sont reliées par les relations suivantes

$$a_{ij}^{(1)} = P_{im} P_{jn} a_{mn}^{(2)}, \quad a_{ij}^{(2)} = Q_{im} Q_{jn} a_{mn}^{(1)}. \quad (\text{B.12})$$

Il en va de même pour les tenseurs d'ordre 4 (par exemple pour le tenseur des modules élastiques). Les composantes dans les deux bases sont reliées par les relations

$$C_{ijkl}^{(1)} = P_{im} P_{jn} P_{ko} P_{lp} C_{mnop}^{(2)}, \quad C_{ijkl}^{(2)} = Q_{im} Q_{jn} Q_{ko} Q_{lp} C_{mnop}^{(1)}. \quad (\text{B.13})$$

ANNEXE C

Empilement de microfils de GaN sur substrat Ge

On profite de cette thèse pour mettre en forme le travail d'analyse réalisé par Fanny Grennerat lors de son post-doctorat sur la ligne CRG-IF-BM32, dans le cadre du projet MICROSTRESS, en parallèle à ma première année de thèse. Les figures sont directement tirées du brouillon de l'article rédigé par Fanny (mais pas encore soumis), et n'ont pas été re-analysées, de même que les valeurs de FWHM des profils utilisées pour calculer les valeurs indiquées dans (C.3).

Cette expérience a été utile pour que F. Grennerat commence à mettre en place la méthode d'analyse et le code numérique (écrit en Python) correspondant. Nous avons besoin pour cela d'un jeu de données sur un échantillon le plus simple possible, de microstructure 3D micrométrique et facilement mesurable par des techniques autres que la DAXM.

Nous avons créé une telle microstructure 3D en déposant sur un monocristal de Ge des fils monocristallins de GaN d'un diamètre de l'ordre du micromètre. Cette structure possède plusieurs avantages :

- les fils sont clairement visibles en microscopie optique (figure C.1a),
- ils sont de forme régulière, cylindrique, ce qui permet de mesurer avec une bonne précision leur position relative, en microscopie optique,

A l'aide de l'image en microscopie optique, nous avons déterminé les diamètres suivants pour les deux fils :

$$\phi_h = 1\mu\text{m} , \quad \phi_v = 1.5\mu\text{m} . \quad (\text{C.1})$$

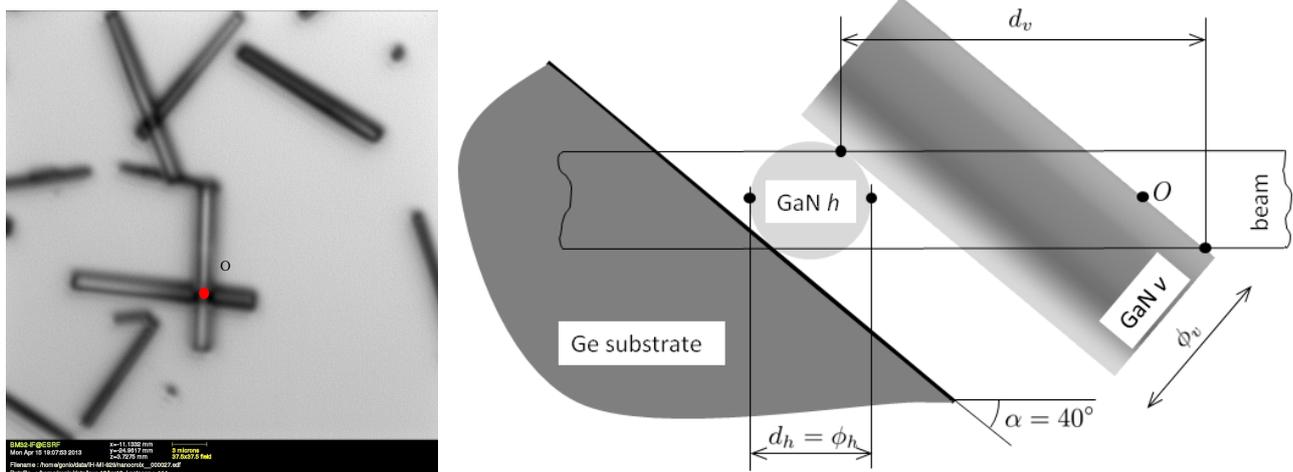


FIGURE C.1 – (gauche) Image de l'échantillon obtenue avec le microscope optique de la ligne BM32. (droite) Schéma de la position relative des fils de GaN sur le substrat Ge.

Parmi les points de mesure possibles, nous avons choisi le point noté O sur la figure C.1. Ce point est situé à l'endroit où deux fils se superposent. L'expérience de DAXM a été réalisée avec un faisceau de section $0.8 \mu\text{m}$, un échantillon incliné d'un angle $\alpha \simeq 40^\circ$ et un scan de fil de 1000 points pour balayer 400 pixels environ avec $\eta \simeq 40^\circ$. Le diagramme de Laue au point O (figure C.2) est constitué des taches de diffraction de trois cristaux : le substrat de Ge, le fil de GaN posé sur le substrat (noté avec l'indice h pour horizontal), et le fil de GaN du dessus (indice v pour vertical). L'expérience avait été réalisée avec un balayage limité du fil. L'ombre de celui-ci a parcouru la zone indiquée par le rectangle bleu sur l'image de Laue. Cette zone spécifique avait été choisie car on y reconnaît trois séries de pics de Laue, que l'on a identifié comme appartenant aux deux fils de GaN et au substrat Ge. L'attribution des taches de Laue à Ge, GaN _{h} , et GaN _{v} a été obtenue au cours de l'expérience en déplaçant le faisceau incident sur le substrat uniquement ou sur un seul des deux fils, ce qui a été confirmé par l'indexation des clichés de Laue et les résultats de l'analyse DAXM suivante.

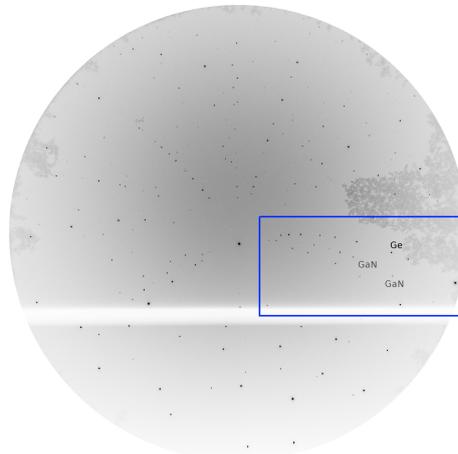


FIGURE C.2 – Image de Laue au point de mesure O . Le rectangle bleu indique la zone dans laquelle les pics ont été reconstruits.

La recherche des pics de Laue a été réalisée avec la procédure classique (peak search) du logiciel LaueTools. Cette procédure retourne la position du "centre" du pic de Laue, après le fit d'une fonction analytique (type gaussienne) sur les données. La figure C.3 montre les taches trouvées.

La calibration du montage a été réalisée selon la procédure décrite dans le chapitre 5. Cette expérience était l'une des toutes premières expériences de DAXM sur BM32, on utilisait donc encore $\eta = 40^\circ$. De plus on souhaitait juste estimer les capacités de séparation géométrique de la technique. On a donc choisi de réduire le temps d'acquisition en ne scannant qu'une partie du détecteur, et d'augmenter le nombre de pas de fil pour augmenter la résolution de la reconstruction. Pour déterminer les paramètres de calibration, nous avons donc été obligés de choisir des pixels relativement regroupés sur l'image de Laue ; les 16 points utilisés sont indiqués sur la figure 5.7¹. L'identification du modèle de calibration a déjà été montrée dans le chapitre

1. Actuellement, avec notre meilleure compréhension de la calibration, on favoriserait une plus grande zone de balayage du détecteur.

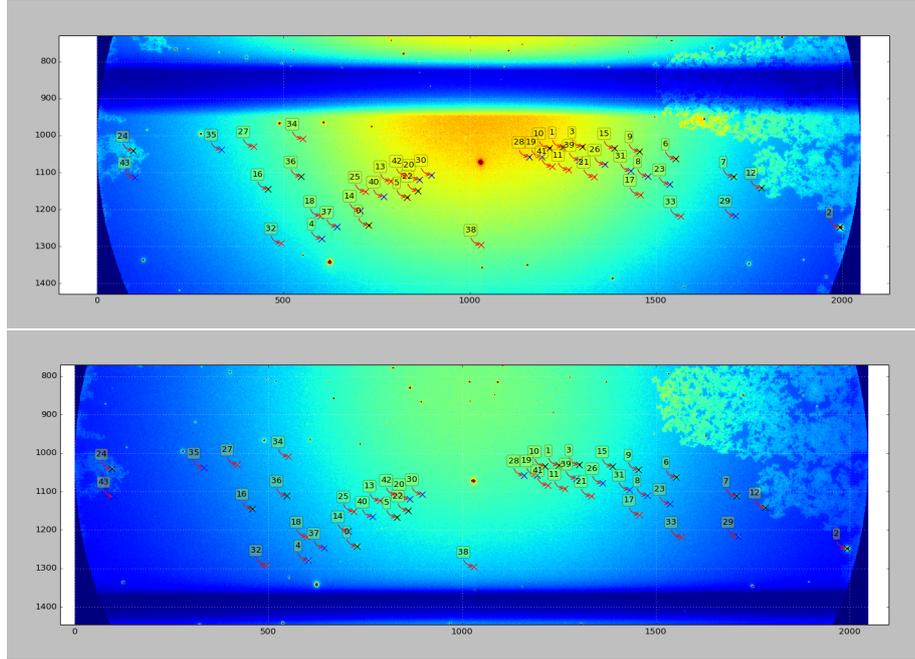


FIGURE C.3 – Images de Laue indiquant les taches trouvées dans la zone d'étude de l'image. Les images du haut et du bas correspondent aux positions extrêmes du fil.

5, cf. figure 5.11, et les paramètres de calibration obtenus sont indiqués dans le tableau 5.2.

Pour la reconstruction des profils d'intensité en fonction de la profondeur de la source, nous avons procédé selon la méthode décrite dans la section 6.6.1, par simple différence de deux images successives, pixel par pixel (lors de cette analyse le code ne contenait pas d'interpolation pour une reconstruction d'imagette). Cela correspond aussi à une procédure de différence finie d'ordre 1. On obtient ainsi l'intensité émise par une source à la profondeur donnée par la moyenne des profondeurs ξ_f (4.12) des deux images. Les profils d'intensité obtenus sont montrés sur la figure C.4. Les 23 courbes obtenues correspondent aux 23 pixels indiqués sur la moitié droite de la figure C.3. On remarque sur cette figure un décalage net des intensités provenant du substrat Ge et des deux fils GaN-h et GaN-v. Les intensités correspondant au Ge s'arrêtent à la surface de l'échantillon, i.e. à la profondeur $0 \mu\text{m}$. Celles de GaN-h s'étalent entre $\sim 0 \mu\text{m}$ et $-2 \mu\text{m}$ de profondeur, et celles de GaN-v entre $\sim 0 \mu\text{m}$ et $-3.5 \mu\text{m}$, soit une longueur de source de $\sim 2 \mu\text{m}$ pour GaN-h et $\sim 3.5 \mu\text{m}$ pour GaN-v.

Pour comprendre les résultats obtenus, il est nécessaire de revenir à la géométrie particulière de cet échantillon. Sur la figure C.1, on voit que la longueur de la source (notée d_h) correspondant à GaN-h est égale au diamètre du fil ϕ_h . Par contre, pour le fil de surface GaN-v, la longueur de source (notée d_v) est plus étendue, en raison de l'inclinaison du fil mais aussi de la section du faisceau incident. Pour cette expérience, on peut alors calculer, à partir des valeurs des dimensions et des positions estimées en microscopie optique

$$d_h = 1 \mu\text{m} , \quad d_v \simeq 2.91 \mu\text{m} . \quad (\text{C.2})$$

L'étendue des sources obtenues par DAXM ($\sim 2 \mu\text{m}$ et $\sim 3.5 \mu\text{m}$) est donc en bon accord avec

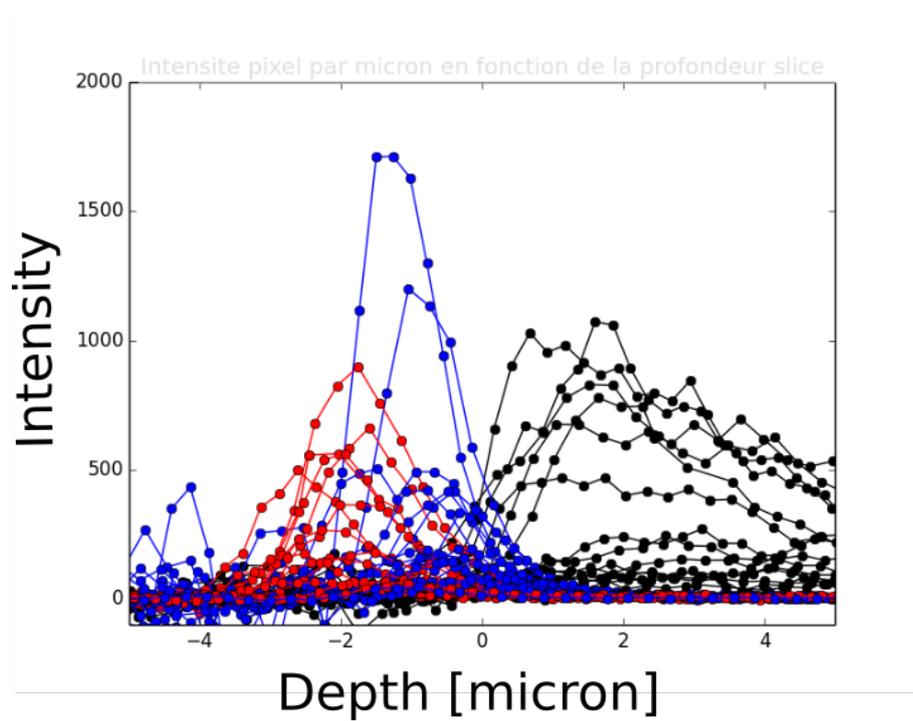


FIGURE C.4 – Reconstruction de l'intensité de la source selon la profondeur d'analyse, pour les 23 pixels indiqués sur la moitié droite de la figure C.3, correspondant à (noir) substrat, (bleu) GaN-h, et (rouge) GaN-v.

ces estimations.

A partir des données de DAXM, en prenant la moyenne des largeurs (FWHM) des profils obtenus pour chaque pixel (et non plus l'étalement total des profils comme ci-dessus), on peut aussi recalculer une estimation des diamètres des fils, et on obtient

$$\phi_h(\text{DAXM}) \simeq 1.2 \text{ } \mu\text{m} , \quad \phi_v(\text{DAXM}) \simeq 2.5 \text{ } \mu\text{m} . \quad (\text{C.3})$$

ce qui est en très bon accord avec les diamètres mesurés en microscopie optique. Enfin, on remarque sur la figure C.1, qu'il doit y avoir un chevauchement des sources de GaN-h et GaN-v pour des profondeurs de l'ordre de $-\phi_h$; on retrouve également ce résultat sur les courbes C.4. Cette analyse nous convenait en octobre 2013 mais avec l'évolution de nos travaux on pourrait essayer d'appliquer le modèle de transparence du fil (section 7.3) pour réduire le chevauchement des phases.

En résumé, cette expérience nous a permis de développer la méthode de calibration présentée dans ce travail. Elle nous a également permis une première estimation de la précision spatiale des reconstructions. Ici, le traitement des données est resté simple, mais on voit déjà que l'on est capable de retrouver les détails d'une microstructure de dimensions micrométriques, avec une précision de l'ordre du micromètre.

ANNEXE D

Mesure 3D des déformations élastiques au pied d'un fil d'étain

Dans le cadre de ma thèse, une collaboration a été engagée avec la Division of Solid Mechanics de l'Université de Lund (Suède). La thèse en cours de Johan Hektor, encadrée par Matti Ristinmaa, Stephen Hall, Håkan Hallberg, et Srinivasan Iyengar, a pour but l'étude de la croissance spontanée de whiskers lors de dépôts d'un revêtement d'étain sur un substrat massif de cuivre.

En effet, avec la volonté de réduire l'emploi de Pb, les alliages Sn-Pb utilisés dans les soudures pour la microélectronique doivent être remplacés par Sn. Or, lorsqu'une fine couche (quelques microns) de Sn est déposée sur un substrat massif de cuivre, des micro-fils de Sn croissent spontanément. Ces fils ont un diamètre micrométrique, et leur longueur peut atteindre un millimètre, ce qui pose évidemment un risque sérieux de court-circuit. Dans sa thèse, Johan Hektor souhaite estimer la répartition 3D des contraintes en pied de fil afin de comprendre les mécanismes à l'oeuvre et de valider le modèle mécano-chimique qu'il développe. Ma contribution dans ce travail a été d'apporter une expertise dans la mise en place et la conduite des expériences de DAXM, et de guider Johan Hektor dans l'utilisation du code de reconstruction pour en extraire les diagrammes de Laue résolus en profondeur.

La suite de cette annexe est une copie d'un article de la revue *Scripta Materialia* issue de cette collaboration.



Regular Article

Evidence of 3D strain gradients associated with tin whisker growth



Johan Hektor^{a,*}, Jean-Baptiste Marijon^b, Matti Ristinmaa^a, Stephen A. Hall^a, Håkan Hallberg^a, Srinivasan Iyengar^c, Jean-Sébastien Micha^{d,e}, Odile Robach^{d,f}, Fanny Grennerat^g, Olivier Castelnau^b

^a Division of Solid Mechanics, Lund University, Box 118, Lund 221 00, Sweden

^b Laboratory PiMM, UMR CNRS 8006, Arts & Métiers ParisTech – CNAM, Paris, France

^c Division of Materials Engineering, Lund University, Box 118, Lund 221 00, Sweden

^d CEA-CNRS CRG-IF BM32 Beamline at ESRF, Grenoble, France

^e Université Grenoble Alpes, INAC-SPrAM and CNRS, SPrAM and CEA, INAC-SPrAM, PCI, Grenoble, France

^f Université Grenoble Alpes, INAC-SP2M and CEA, INAC-SP2M, NRS, Grenoble, France

^g LGT Argouges, Éducation Nationale, Grenoble, France

ARTICLE INFO

Article history:

Received 18 August 2017

Received in revised form 18 September 2017

Accepted 18 September 2017

Available online 23 September 2017

Keywords:

Whiskers

Intermetallic compounds

Lead-free solder

X-ray diffraction

ABSTRACT

We have used Differential Aperture X-ray Microscopy (DAXM) to measure grain orientations and deviatoric elastic strains in 3D around a tin whisker. The results show strain gradients through the depth of the tin coating, revealing a higher strain deeper in the Sn layer. These higher strains are explained by the volume change occurring during growth of the intermetallic phase Cu_6Sn_5 at the interface between the Cu substrate and the Sn coating and at grain boundaries between Sn grains.

© 2017 Acta Materialia Inc. Published by Elsevier Ltd. This is an open access article under the CC BY-NC-ND license (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/>).

Tin whiskers are filamentary tin grains, only a few micrometers wide, but capable of growing to several millimeters in length. Whiskers grow spontaneously from tin coated surfaces and are electrically conducting. This may cause issues due to short-circuiting between components of electronic devices. A number of failures of electronic products due to short circuiting caused by whisker growth have been reported [1]. Until recently, the problem of whisker growth was effectively solved by using Pb–Sn alloys rather than pure Sn. However, due to environmental concerns this solution is no longer available. The ban on the use of lead in electronic devices and components, combined with the current trend of miniaturization, can be envisaged to increase the problems caused by whisker growth in the near future.

Tin whiskers have been an active area of research for over 60 years [2]. Despite this, several questions remain to be resolved regarding the mechanisms causing the whiskers to form and grow. The main hypothesis is that whiskers grow to relax stresses in the tin layer [2–5]. In the case of tin coatings on copper substrates, which is the system studied in this work, the stress is often associated

with the volume change caused by the formation and growth of the intermetallic phase Cu_6Sn_5 . It has been shown both experimentally [6–9] and by numerical simulations [10,11] that the growth of Cu_6Sn_5 at the interface between the Sn layer and the Cu substrate and at grain boundaries between Sn grains generates compressive stress in the tin layer. However, formation of intermetallic phases is not a necessary condition for whisker growth. Williams et al. [12] report whisker growth on Sn–W samples not forming intermetallic phases. Sobiech et al. [13,14] and Sun et al. [15] claim that the state of stress (tensile or compressive) is unimportant for whisker growth. Instead, they argue that whisker growth is driven by negative strain gradients in the tin layer, i.e. that the strain at the root of the whisker should be more tensile/less compressive than in the surrounding microstructure.

Previous X-ray diffraction studies of tin whiskers have used techniques that only provide spatial resolution in the two dimensions parallel to the Sn coating [4,14,16–18]. This means that the results are averaged over the penetration depth of the X-rays, which is typically on the order of 10 μm . By using Differential Aperture X-ray Microscopy (DAXM) [19–21] diffraction patterns from different depths in a sample can be reconstructed, thus obtaining spatial resolution in three dimensions. This makes it possible to study the grain structure and the strain field around whiskers in greater detail.

* Corresponding author.

E-mail address: johan.hektor@solid.lth.se (J. Hektor).

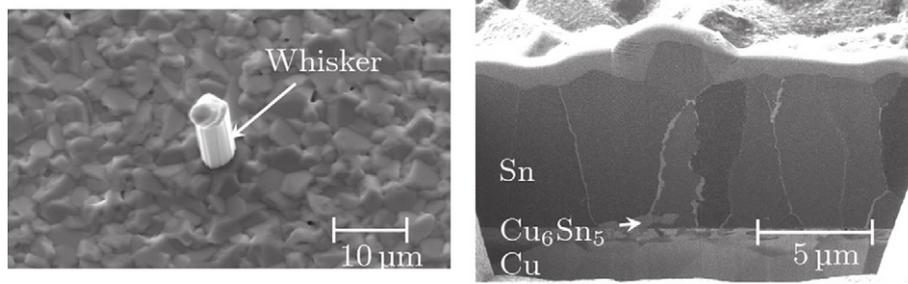


Fig. 1. Left: SEM image of the tin whisker selected for the microdiffraction measurements. Right: FIB cross section showing the columnar grain structure of the Sn layer and the formation of Cu_6Sn_5 at the Cu–Sn interface and at grain boundaries between Sn grains.

In the present work, tin coatings with a thickness of approximately $6.5 \mu\text{m}$ were deposited on polished 1 mm thick Cu sheets by means of electron beam evaporation. The microstructure of the Sn layer consists of columnar grains, typical for Sn coatings [7,22,23], see Fig. 1. After deposition, the samples were left to age for four months under ambient conditions during which whisker formation took place. Prior to the X-ray experiment, a suitable whisker was located using a scanning electron microscope, see Fig. 1.

The X-ray measurements were performed using the Laue microdiffraction setup on the CRG-IF BM32 beamline at the European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) [24]. A polychromatic X-ray beam of 5–23 keV was focused to a spot of $0.7 \mu\text{m}$ size on the sample using a pair of Kirkpatrick-Baez (KB) mirrors. The sample was mounted at an angle of 40° with respect to the incoming beam and the diffracted X-rays were measured by a Mar CCD 2D detector comprising 2048×2048 pixels with a pixel size of about $80 \mu\text{m}$, placed at an angle of 90° with respect to the incident beam. This geometry allowed for measurements of reflections in the range $41^\circ \leq 2\theta \leq 139^\circ$.

Conventional Laue microdiffraction can provide information about the crystal structure, orientation, and deviatoric elastic strains of a sample. Due to the penetration depth of the X-rays, the measurements are averaged over the volume probed by the beam [18]. Furthermore, strain determination is less accurate for grains below the surface of the sample. To remedy these limitations, a wire acting as a ‘differential-aperture’ can be placed between the sample and the detector [19], the experimental setup for DAXM measurements is illustrated in Fig. 2. During the measurement the wire is moved in $1 \mu\text{m}$ steps parallel to the sample surface and a diffraction pattern is measured for each wire position. By comparing the differential intensity of given detector pixels between two successive wire positions, it is possible to determine the scattering contribution as a function of depth along the beam [20]. The resolution in depth is essentially governed by the distances between the wire, the incident beam and the detector, by the number of steps scanned with the wire, the scanning direction, and (an effect neglected here) by the non-zero transmission of the wire edges [21].

The measured diffraction patterns were analyzed using the Laue-Tools software [25], being developed at the BM32 synchrotron beamline. The depth-resolved diffraction patterns can be indexed to obtain the crystallographic orientation of each of the grains illuminated by the X-rays. For each reciprocal unit cell an orientation matrix describing the orientation of the unit cell is obtained. From the orientation matrix the direct, $(a, b, c, \alpha, \beta, \gamma)$, and reciprocal, $(a^*, b^*, c^*, \alpha^*, \beta^*, \gamma^*)$, lattice parameters of the deformed crystal can be extracted. Following Ice and Pang [26], the elastic strains, in a frame attached to the crystal lattice and assuming small deformations, can be calculated as

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \frac{1}{2} \left(\mathbf{A}\mathbf{A}_0^{-1} + (\mathbf{A}\mathbf{A}_0^{-1})^T \right) - \mathbf{I}, \quad (1)$$

with \mathbf{I} being the identity matrix and

$$\mathbf{A} = \begin{bmatrix} a & b \cos \gamma & c \cos \beta \\ 0 & b \sin \gamma & -c \sin \beta \cos \alpha^* \\ 0 & 0 & c \sin \beta \sin \alpha^* \end{bmatrix}. \quad (2)$$

the matrix \mathbf{A}_0 in Eq. (1) is constructed as in Eq. (2) but using the lattice parameters of an unstrained crystal. Unstrained Sn has a body-centered tetragonal structure with lattice parameters $a = b = 5.83 \text{ \AA}$, $c = 3.18 \text{ \AA}$ and $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$ [4]. Since each Laue spot is related to a unique family of lattice planes, variation of the angles between Laue spots directly corresponds to the strain of the unit cell. However, due to the polychromatic beam used in the experiment, it is not possible to determine the volume of the unit cell. For this reason only the deviatoric part of the elastic strain tensor can be determined,

$$\boldsymbol{\varepsilon}^{dev} = \boldsymbol{\varepsilon} - \frac{1}{3} \text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon})\mathbf{I}, \quad (3)$$

where $\text{tr}(\boldsymbol{\varepsilon})$ denotes the trace of the strain tensor. The effective strain, which is an invariant of the strain tensor, is defined by

$$\varepsilon_{eff} = \sqrt{\frac{2}{3} \boldsymbol{\varepsilon}^{dev} : \boldsymbol{\varepsilon}^{dev}}, \quad (4)$$

with $:$ denoting the double contraction operator.

Two orthogonal lines, $8 \mu\text{m}$ and $16 \mu\text{m}$ long, intersecting at the whisker root, were scanned at steps of $0.8 \mu\text{m}$ using DAXM. In Fig. 3, the reconstruction in depth of four diffraction peaks belonging to two different Sn grains is shown. The diffraction patterns were reconstructed with $1 \mu\text{m}$ resolution in depth. The first two rows of the figure show Laue spots coming from a grain at the surface of the sample, while the lower two rows show spots from a grain beneath the

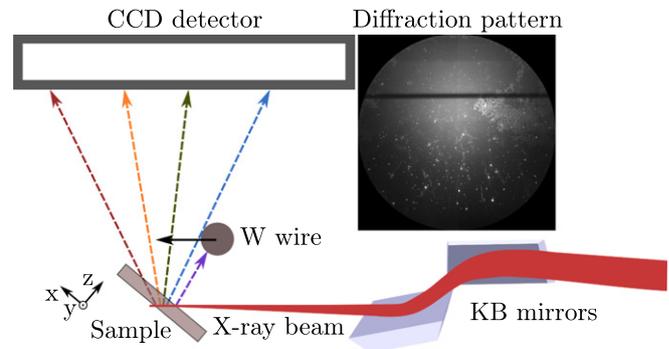


Fig. 2. Schematic view of the experimental setup for Laue microdiffraction. The W wire is only used during the 3D measurements. The wire is seen as a horizontal shadow on the diffraction pattern.

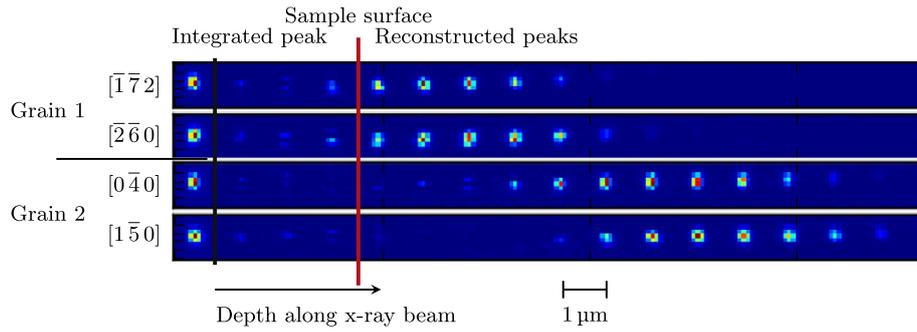


Fig. 3. Laue spots from two different Sn grains, reconstructed in depth along the X-ray beam. The red line indicates the sample surface. To the left the integrated peak is shown, i.e. the peak as measured by the detector when the W wire has been removed.

surface, positioned 5–10 μm below the surface along the incoming beam. Note that due to the 40° tilt of the sample, the depth along the beam is greater than the depth perpendicular to the surface. The slight vertical shift in peak position with increasing depth corresponds to an elongation of the integrated peak and is an indication of strain gradients or rotation within the grains.

In panels b and d in Fig. 4, 2D maps of the grain orientation and effective strain of the Sn grains in a region of 20 × 20 μm around the whisker are shown. The maps were obtained using conventional Laue microdiffraction, i.e. without depth resolution. The grains in the orientation map are color coded based on their Euler angles and it is assumed that the most intense diffraction spots come from the grains on the surface. From the orientation map we see that the grain size is about 3 μm with a few of the grains being elongated in one direction. This is in agreement with the SEM image in Fig. 1. The 2D map of the effective strain shows strain variations across grain boundaries. There are also some grains with strain gradients within the grain.

This could be an indication of Cu₆Sn₅ growing at the grain boundaries, thus deforming the region around the grain boundary more than the central part of the grain.

Fig. 4a shows 3D plots of the grain orientations in the Sn coating from the DAXM measurements. It is seen that the DAXM measurements define a columnar grain structure in the tin layer, similar to that obtained by FIB, on a different region of the sample, in Fig. 1. The grain structure is also similar to previous FIB observations published in the literature [27–29]. The whisker grain does not extend all the way through the tin layer, but rather seems to sit on top of another grain. It is also seen that the grain boundaries of the whisker grain are inclined approximately 50° with respect to the surface. This is in good agreement with the growth model proposed by Sarobol et al. [30] in which whiskers form from surface grains with oblique grain boundaries. Note that only a small part of the whisker was scanned using DAXM, as seen in Fig. 4b most of the whisker is located at x > 0.

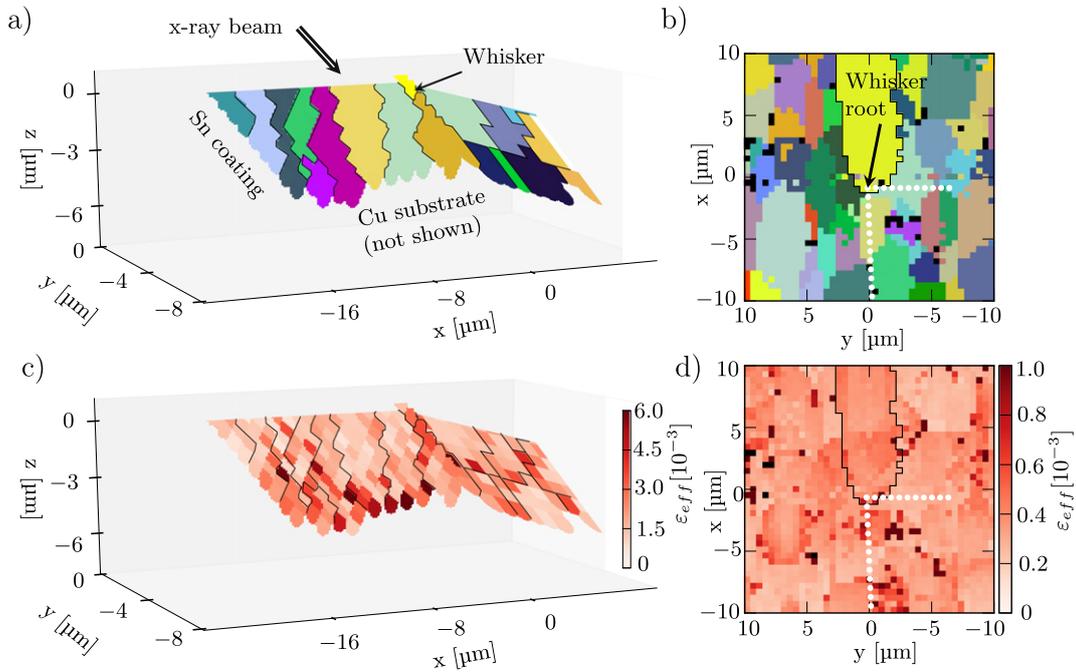


Fig. 4. a): 3D map showing the grain orientations in the Sn coating, obtained from the DAXM measurements. The grains are colored based on their Euler angles. The double lined arrow indicates the direction of the incoming X-ray beam. The coordinates are referring to the coordinate system in Fig. 2, with the origin placed in the whisker root. The surface of the sample is at z = 0. b): 2D map of the orientation of the Sn grains around the whisker, obtained by conventional Laue microdiffraction. The black pixels correspond to points where the indexing was not possible. The filled white circles indicate the positions scanned with DAXM. The yellow grain indicated by black lines is the whisker. c): 3D map of the effective strain in the Sn coating. d): 2D map of the effective strain in the region around the whisker.

By comparing the 2D surface map to the 3D map it is possible to identify the same grains in both maps. However, at some positions the 2D map shows a grain which is not located at the surface. For example, the pink grain in Fig. 4a is not found at the correct position in the 2D map in Fig. 4b. This is a consequence of the volume averaging of the diffraction pattern, as grains with a large probed volume will give intense diffraction spots even though they are located below the surface. This indicates that DAXM measurements are necessary even to get a correct representation of the grain structure at the surface. Depth resolution will also increase the credibility of the strain determination.

From the maps of the effective strain in Fig. 4c it is evident that the strain is low at the surface and higher deep in the sample, i.e. there exists a strain gradient in the depth direction. Again, due to the averaging over the probed volume, strain gradients through the depth of the coating can not be seen using conventional Laue microdiffraction. This observation further highlights the need for 3D spatial resolution. The high strain close to the bottom of the tin layer can be explained by the volume change due to formation of the intermetallic compound Cu_6Sn_5 , occurring by diffusion of Cu atoms into the Sn layer. Regions of higher strain around some grain boundaries are also present. It is also seen in Fig. 4c that the whisker is not completely strain free, the part of the whisker that is above the sample surface has very low strains, but there is some strain in the root and in the grain below the root. In Fig. 1, Cu_6Sn_5 is forming along grain boundaries between Sn grains, and a Cu_6Sn_5 precipitate is present just below the whisker. Similar formation of Cu_6Sn_5 in the region studied with DAXM could explain the strain in the whisker root and around grain boundaries. High effective strain can also be an indication of plastic deformation. In fact, previous TEM studies of Sn coatings [6,7] reveal dislocation movement from the region close to the intermetallic phase towards the surface of the Sn layer. Furthermore, dislocation pile-ups at the surface can lead to cracking of the surface oxide, which is believed to be a precursor for whisker growth [3,5].

Even though only a single whisker was investigated, the results are consistent with those from other studies and so can be considered to be representative for other whiskers growing from pure tin coatings of similar thickness deposited by e-beam evaporation. The mechanisms behind whisker growth and formation of Cu_6Sn_5 are considered to be the same even for coatings manufactured using other techniques, although additional driving forces, such as additional stress due to plating impurities in the case of electroplating, might be present.

In this work the first successful 3D characterization using DAXM of the grain orientations and deviatoric strain around a tin whisker has been presented. The predicted microstructure, columnar Sn grains with the whisker grain having oblique grain boundaries, corresponds well with FIB studies of a different region on the sample, both in terms of grain shape and grain size. The whisker having angular grain boundaries is also in agreement with theoretical models for whisker formation. Furthermore, the measurements confirm the existence of strain gradients in the depth direction. The strain gradients are believed to be caused by the volume change associated with growth of the intermetallic phase Cu_6Sn_5 . The high strain will lead to plastic deformation of the Sn layer and dislocations will pile up at the surface, leading to cracking of the surface oxide. Cracks in the surface oxide are believed to be potential nucleation sites for tin whiskers.

Acknowledgments

The authors would like to thank the company Evatec AG in Trübbach, Switzerland, for sample preparation. The funding provided by the Swedish Research Council (Vetenskapsrådet, VR) under grant nos. 2011-05512 and 2015-05390 is gratefully acknowledged. We are also grateful for the beamtime provided by the ESRF, beamline BM32.

References

- [1] D. Bunyan, M.A. Ashworth, G. Wilcox, R.L. Higginson, R. Heath, C. Liu, *Trans. Inst. Met. Finish.* 91 (2013) 249–259.
- [2] G.T. Galyon, *IEEE Trans. Electron. Packag. Manuf.* 28 (2005) 94–122.
- [3] B.-Z. Lee, D. Lee, *Acta Mater.* 46 (1998) 3701–3714. [https://doi.org/10.1016/S1359-6454\(98\)00045-7](https://doi.org/10.1016/S1359-6454(98)00045-7).
- [4] W. Choi, T. Lee, K. Tu, N. Tamura, R. Celestre, A. MacDowell, Y. Bong, L. Nguyen, *Acta Mater.* 51 (2003) 6253–6261.
- [5] K. Tu, J. Li, *Mater. Sci. Eng. A* 409 (2005) 131–139.
- [6] E. Chason, N. Jadhav, W. Chan, L. Reinbold, K. Kumar, *Appl. Phys. Lett.* 92 (2008) 171901.
- [7] K. Kumar, L. Reinbold, A. Bower, E. Chason, *J. Mater. Res.* 23 (2008) 2916–2934. <https://doi.org/10.1557/JMR.2008.0351>.
- [8] W. Boettinger, C. Johnson, L. Bendersky, K.-W. Moon, M. Williams, G. Stafford, *Acta Mater.* 53 (2005) 5033–5050.
- [9] G.T. Galyon, L. Palmer, *IEEE Trans. Electron. Packag. Manuf.* 28 (2005) 17–30.
- [10] J. Hektor, M. Ristinmaa, H. Hallberg, S.A. Hall, S. Iyengar, *Acta Mater.* 108 (2016) 98–109.
- [11] E. Buchovecky, N. Jadhav, A.F. Bower, E. Chason, *J. Electron. Mater.* 38 (2009) 2676–2684.
- [12] M. Williams, K.-W. Moon, W. Boettinger, D. Josell, A. Deal, *J. Electron. Mater.* 36 (2007) 214–219.
- [13] M. Sobiech, U. Welzel, E. Mittemeijer, W. Hügel, A. Seekamp, *Appl. Phys. Lett.* 93 (2008) 011906.
- [14] M. Sobiech, M. Wohlschlägel, U. Welzel, E. Mittemeijer, W. Hügel, A. Seekamp, W. Liu, G.E. Ice, *Appl. Phys. Lett.* 94 (2009) 221901.
- [15] Y. Sun, E.N. Hoffman, P.-S. Lam, X. Li, *Scr. Mater.* 65 (2011) 388–391.
- [16] P. Sarobol, W.-H. Chen, A.E. Pedigo, P. Su, J.E. Blendell, C.A. Handwerker, *J. Mater. Res.* 28 (2013) 747–756.
- [17] P. Sarobol, W.-H. Chen, A.E. Pedigo, P. Su, J.E. Blendell, C.A. Handwerker, *J. Mater. Res.* 28 (2013) 785.
- [18] F. Pei, N. Jadhav, E. Buchovecky, A.F. Bower, E. Chason, W. Liu, J.Z. Tischler, G.E. Ice, R. Xu, *J. Appl. Phys.* 119 (2016) 105302.
- [19] B. Larson, W. Yang, G. Ice, J. Budai, J. Tischler, *Nature* 415 (2002) 887–890.
- [20] B.C. Larson, L.E. Levine, *J. Appl. Crystallogr.* 46 (2013) 153–164.
- [21] J.-B. Marijon, (Ph.D. thesis), Ecole Nationale Supérieure d'Arts et Métiers, Paris, France, 2017.
- [22] L. Reinbold, N. Jadhav, E. Chason, K.S. Kumar, *J. Mater. Res.* 24 (2009) 3583–3589. <https://doi.org/10.1557/jmr.2009.0431>.
- [23] M.A. Ashworth, G.D. Wilcox, R.L. Higginson, R.J. Heath, C. Liu, R.J. Mortimer, *Microelectron. Reliab.* 55 (2015) 180–191. <https://doi.org/10.1016/j.microrel.2014.10.005>.
- [24] O. Ulrich, X. Biquard, P. Bleu, O. Geaymond, P. Gergaud, J. Micha, O. Robach, F. Rieutord, *Rev. Sci. Instrum.* 82 (2011) 033908. <https://doi.org/10.1063/1.3555068>.
- [25] J.-S. Micha, *LaueTools*, Open Source Python Packages for X-ray MicroLaue Diffraction Analysis, 2017, <https://sourceforge.net/projects/lauetools/>.
- [26] G.E. Ice, J.W. Pang, *Mater. Charact.* 60 (2009) 1191–1201.
- [27] G.T. Sheng, C. Hu, W. Choi, K. Tu, Y. Bong, L. Nguyen, *J. Appl. Phys.* 92 (2002) 64–69.
- [28] S.-K. Lin, Y. Yorikado, J. Jiang, K.-S. Kim, K. Suganuma, S.-W. Chen, M. Tsujimoto, I. Yanada, *J. Electron. Mater.* 36 (2007) 1732–1734.
- [29] K. Kim, C. Yu, S. Han, K. Yang, J. Kim, *Microelectron. Reliab.* 48 (2008) 111–118.
- [30] P. Sarobol, J. Blendell, C. Handwerker, *Acta Mater.* 61 (2013) 1991–2003.

ANNEXE E

Procédure expérimentale standard de DAXM

Cette annexe rassemble l'ensemble des actions à réaliser pour acquérir des données expérimentales classiques de DAXM sur la ligne CRG-BM32 à l'ESRF. Par classique, j'entends un montage monofil dans la configuration moteur dite 'de février 2016' (conçue par Odile Robach à partir des montages précédents), et un scan "à 0 deg", i.e. dans la direction $\eta = 0 \text{ deg}$ (cf. figure E.1).

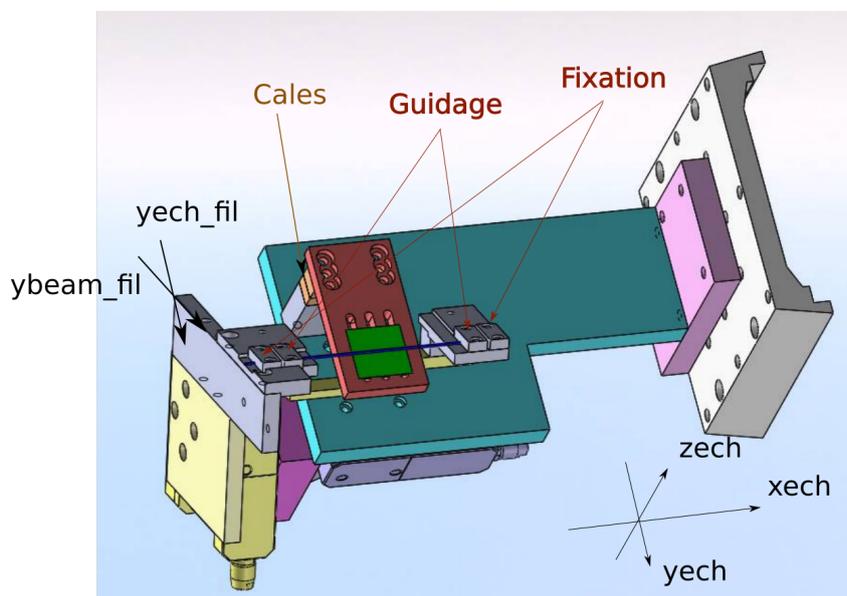


FIGURE E.1 – Montage DAXM dans la configuration 'février 2016'.

E.1 Mise en place de l'échantillon

On suppose que l'échantillon et le porte-échantillon ont été préparés auparavant. On suppose que le faisceau a été réglé et aligné.

On doit tout d'abord monter sur l'échantillon ou à proximité de celui-ci un monocristal de germanium (échantillon de calibration de la géométrie Laue) et l'échantillon de référence marqueur d'or (échantillon pour le repérage de la position du faisceau et la mesure de la taille du faisceau par fluorescence X). De manière pratique, il vaut mieux placer ces deux éléments en dessous de la zone de mesure (cf figure E.2), pour éviter les risques de collision avec le fil.

Ensuite on déplace le moteur `ybeam_fil` vers une position distante de l'échantillon, en amont du faisceau vers l'anneau de stockage.

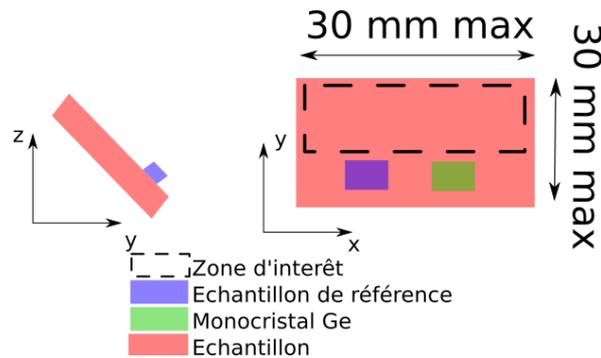


FIGURE E.2 – Exemple de positionnement relatif des échantillons de référence par rapport à l'échantillon.

On démonte la raquette (le porte-masque) puis on monte l'échantillon en ajustant le nombre de cales sous l'échantillon pour avoir la "bonne distance" échantillon-fil (typiquement deux cales de 6 mm pour un échantillon de 0.5 mm d'épaisseur), cf. figure E.1.

On effectue tous les repérage sur l'échantillon sans la raquette, afin d'éviter toute collision.

On monte la raquette sur le porte-raquette, et on vérifie que les positions repérées sur l'échantillon n'ont pas changé.

E.2 Relevé/préparation du scan

E.2.1 Distance H

On doit tout d'abord régler la distance H voulue pour l'expérience. Comme on est en configuration $\eta = 0$ deg, on prendra une distance H de l'ordre de 0.8 mm (si besoin on peut descendre un peu plus bas mais pas en dessous de 0.7 mm). On peut s'aider dans ce choix de la figure E.3.

On place le point de mesure sur l'échantillon dans le faisceau, au niveau du point focal des optiques de KB.

On définit dans SPEC un compteur (ex. `fluo_fil`) qui intègre le spectre de fluorescence sur une bande d'énergie (ROI) située autour du pic d'émission X caractéristique du matériau du fil. On oriente le détecteur de fluorescence vers l'aval de l'échantillon.

Puis on effectue un grand scan en `hfoc` sans prendre d'image (attention il faut avoir un pas de scan permettant d'avoir plusieurs points de mesure dans le fil, i.e. un pas inférieur à $25 \mu\text{m}$), le but étant de déterminer une première valeur grossière de H . Typiquement on utilisera le scan suivant ¹ :

```
dscan hfoc 0 5 400 0.2
```

1. Scan relatif du pseudo-moteur `hfoc` (combinaison de `yech` et `zech` pour translater l'échantillon verticalement) de 0 à 5 mm en 400 intervalles (401 points) avec un temps de d'acquisition de 0.2s par point.

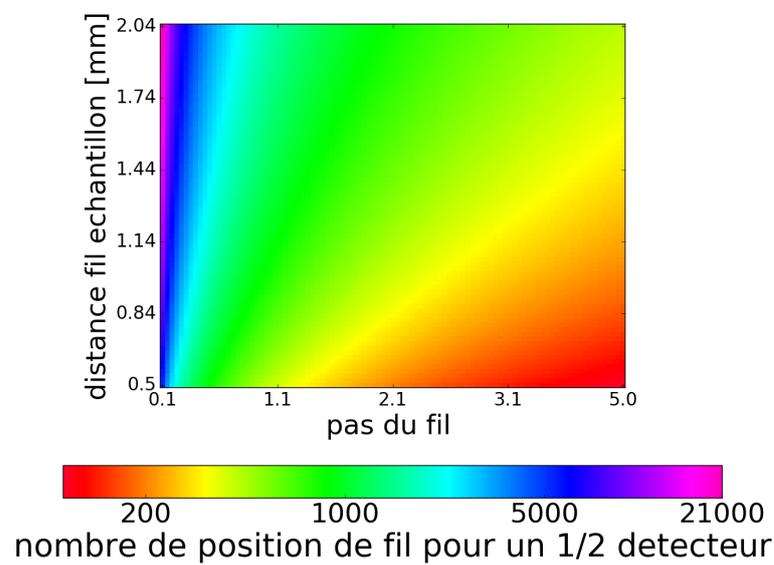


FIGURE E.3 – Carte en échelle logarithmique de l'évolution du nombre d'images nécessaires pour balayer un demi-détecteur pour un pas de fil et une distance fil-échantillon H donnés. Il est fortement conseillé de se placer à un nombre d'images équivalent au nombre de pixels balayés (environ 1024 pour un demi-détecteur).

Pendant ce scan, lorsque le faisceau incident tape sur le fil, le compteur `fluo_fil` augmente et `fluo_echantillon` (compteur réglé sur la fluorescence de l'échantillon) diminue.

Une fois ce repérage accompli, on effectue un scan plus fin autour de la position du fil pour repérer sa position plus précisément :

```
dscan hfoc A-2R A+2R 200 0.2
```

avec A la position du fil d'après le scan précédent et R le rayon du fil.

On utilise ensuite le moteur `yech_fil` pour réduire H de façon incrémentale tout en effectuant des scans de contrôle autour des positions supposées du fil (on n'est jamais à l'abri d'une erreur de calcul ou de saisie).

Une fois H réglé et vérifié, on effectue un dernier scan de localisation du fil. On relève le numéro de ce scan afin d'avoir une référence de la position initiale du fil qui pourra être utile pour contrôler le bon déroulement de l'expérience lors de l'analyse des données.

E.2.2 Positions extrêmes

Normalement à ce stade le moteur `ybeam_fil` est à sa position maximum. On va maintenant chercher les positions du fil correspondant à peu près aux images [E.4](#) et [E.5](#), qui déterminent les positions extrêmes du fil lors des scans qui seront menés, respectivement aux grandes et petites valeurs de 2θ .

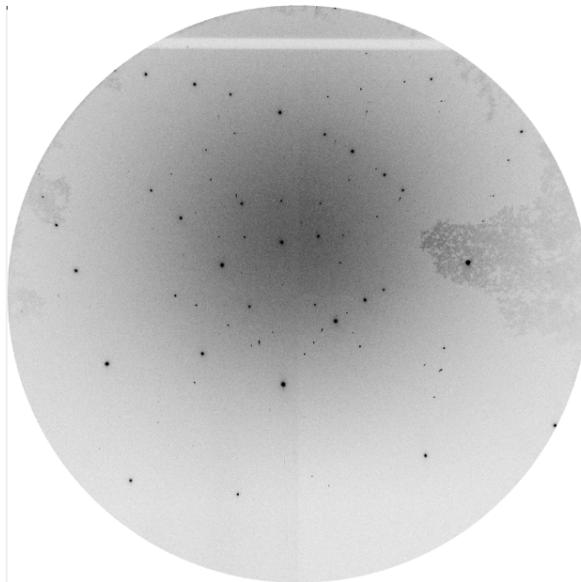


FIGURE E.4 – Cliché de diffraction lorsque le fil est en position initiale y_{fint} . L'ombre du fil se voit à peine aux grandes valeurs de 2θ . Les pics positionnés au delà de l'ombre (plus grandes valeurs de 2θ) dans cette représentation ne pourront pas être reconstruits.

On va donc utiliser le moteur `ybeam_fil` pour atteindre d'abord la position [E.4](#) puis la position [E.5](#).

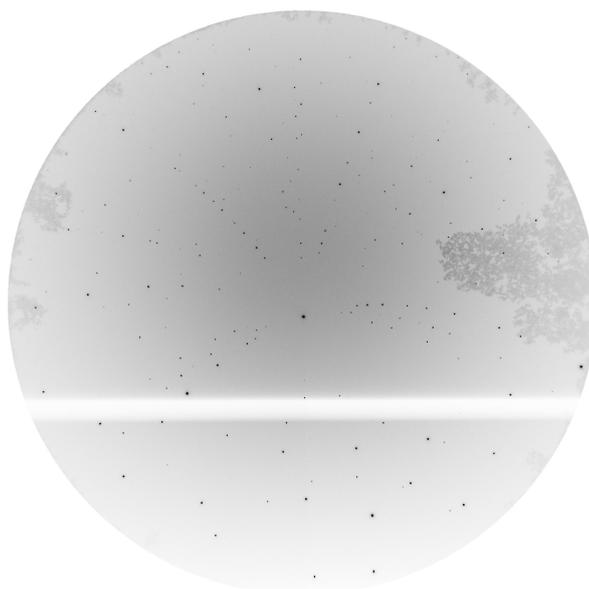


FIGURE E.5 – Cliché de diffraction lorsque le fil est en position finale y_{fin} . Le fil est maintenant au plus proche de la surface de l'échantillon. La zone à faible 2θ , située en dessous de l'ombre du fil dans cette image, ne sera pas explorée lors du scan : seuls les spots de grand 2θ vont pouvoir être masqués.

On va réaliser cette approche en 2 temps : on va tout d'abord faire une approche grossière pour laquelle il est prudent que l'un des expérimentateurs surveille de visu, dans la cabane expérimentale, qu'il n'y a pas collision entre le fil et le reste du montage expérimental. L'idée est d'éviter de tâtonner longtemps avant d'atteindre la position initiale.

On réalise ensuite une approche fine dans laquelle on va faire confiance à la position de l'ombre du fil sur les images de Laue. Pour cela on prend une image à chaque position. Deux cas sont possibles. (i) Si on voit l'ombre du fil sur le cliché de Laue, on va devoir avancer le fil pour trouver la position initiale E.4 (je conseille des pas de 0.1 mm maximum, soit environ $\frac{1}{16}$ de détecteur). (ii) Si on ne voit pas l'ombre du fil, on doit encore réduire la valeur du moteur `ybeam_fil`. Je conseille de faire des pas de 0.8 mm maximum (soit environ $\frac{1}{2}$ détecteur) jusqu'à arriver à la situation précédente.

Une fois la position initiale trouvée et sauvegardée, on va chercher la position finale. Attention il ne faut pas que l'ombre dépasse le 3^{ème} quart du détecteur car après il y a un risque de collision très fort (pour cette approche, je conseille des pas de 0.1 mm maximum soit environ $\frac{1}{16}$ de détecteur).

Une fois la position finale obtenue, la sauvegarder, puis réaliser l'acquisition des données.

E.3 Acquisition des données

On a déterminé plus tôt la distance H et les positions extrêmes du scan. Il faut maintenant choisir un nombre de pas de fil N_{pas} entre ces deux positions. Concrètement, ce qui nous intéresse

est la "résolution" de la reconstruction future de ce scan. Une approximation de cette résolution est le pas de déplacement du fil. On peut approcher le pas de déplacement par la formule suivante :

$$\delta y_f = \frac{y_{fint} - y_{ffin}}{N_{pas}}. \quad (\text{E.1})$$

De manière générale, il est conseillé d'avoir environ un pas par pixel balayé. On peut donc prendre la coordonnée en Y_{cam} du bord avant de l'ombre du fil en position y_{ffin} comme valeur minimale.

Lancer le scan et noter son numéro.

E.4 A la fin de l'acquisition

On déplace la raquette en position sécurisée (`ybeam_fil = y_{fint}`). Pour une autre mesure sur cet échantillon, reprendre la procédure décrite à la section [E.2](#).

Si on a fini l'analyse de cet échantillon, démonter la raquette puis l'échantillon.

Bibliographie

- S. Avril, M. Bonnet, A. S. Bretelle, M. Grédiac, F. Hild, P. Ienny, F. Latourte, D. Lemosse, S. Pagano, E. Pagnacco, and F. Pierron. Overview of identification methods of mechanical parameters based on full-field measurements. *Exp. Mech.*, 48(4) :381–402, 2008.
- H. A. Bale, J. C. Hanan, and N. Tamura. 4-d xrd for strain in many grains using triangulation. *Powder Diffraction*, 39(14), 2006.
- R. Barabash, G. E. Ice, B. C. Larson, G. M. Pharr, K.-S. Chung, and W. Yang. White microbeam diffraction from distorted crystals. *Appl. Phys. Lett.*, 79 :749–751, 2001.
- R. I. Barabash, G. E. Ice, W. Liu, and O. M. Barabash. Polychromatic microdiffraction characterization of defect gradients in severely deformed materials. *Micron*, 40(1) :28–36, 2009. doi : 10.1016/j.micron.2008.03.010.
- J.P. Boehler and A. Sawezuk. On yield of oriented solids. *Acta Mechanica*, 27 :185–206, 1977.
- D. Bouscaud, A. Morawiec, R. Pesci, S. Berveiller, and E. Patoor. Strain resolution of scanning electron microscopy based Kossel microdiffraction. *J. Appl. Cryst.*, 47 :1699–1707, 2014.
- T. Bretheau and O. Castelnau. *Rayons X et Matière (RX2006)*, chapter Les contraintes résiduelles : d’où viennent-elles ? Comment les caractériser ?, pages 123–154. Hermès, 2006.
- J. D. Budai, W. Yang, N. Tamura, J. S. Chung, J. Z. Tischler, B. C. Larson, G. E. Ice, C. Park, and D. P. Norton. X-ray microdiffraction study of growth modes and crystallographic tilts in oxide films on metal substrates. *Nature Materials*, 2(7) :487–492, 2003.
- J. D. Budai, W. Liu, J. Z. Tischler, Z. W. Pan, D. P. Norton, B. C. Larson, W. Yang, and G. E. Ice. Polychromatic X-ray micro- and nanodiffraction for spatially-resolved structural studies. *Thin Solid Films*, 516(22) :8013–8021, 2008. doi : 10.1016/j.tsf.2008.04.045.
- J. Chao, M. L. S. Fuller, N. Sherry, J. Qin, N. S. McIntyre, J. Ulaganathan, A. G. Carcea, R. C. Newman, and N. Tamura. Plastic and elastic strains in short and long cracks in alloy 600 studied by polychromatic x-ray microdiffraction and electron backscatter diffraction. *Acta Mater.*, 60(15) :5508–5515, 2012.
- J.-S. Chung and G. E. Ice. Automated indexing for texture and strain measurement with broad-bandpass x-ray microbeams. *J. Appl. Phys.*, 86 :5249–5255, 1999.
- J. S. Chung, S. Isa, V. Greene, O. Broadwater, W. Liu, and G. E. Ice. Multiple differential-aperture microscopy. *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.*, 582(1) :212–214, 2007. doi : 10.1016/j.nima.2007.08.110.
- G. Csiszar, K. Pantleon, H. Alimadadi, G. Ribarik, and T. Ungar. Dislocation density and burgers vector population in fiber-textured ni thin films determined by high-resolution x-ray line profile analysis. *J. Appl. Cryst.*, 45 :61–70, 2012.

- G. Daveau. *Interaction dislocations – joints de grains en déformation plastique mono- tone : étude expérimentale et modélisations numériques*. PhD thesis, École centrale Paris, septembre 2012.
- M. Dexet. *Méthode de couplage entre expérimentations et simulations numériques en vue de l'identification de lois de comportement intracristallin. Application aux alliages de zirconium*. PhD thesis, École Polytechnique, Palaiseau (France), 2006.
- T. O. Erinoshio and F. P. E. Dunne. Lattice strain distributions due to elastic distortions and grain development in polycrystals. *Scripta Mater.*, 67 :62–86, 2014.
- D. François, A. Pineau, and Zaoui A. *Mechanical Behaviour of Materials. Volume 1 : Micro- and Macroscopic Constitutive Behaviour*. Springer, 2012.
- J.F Giovannelli and J. Idier. *Regularization and Bayesian Methods for Inverse Problems in Signal and Image Processing*. Wiley-ISTE, 2015. ISBN 978-1-84821-637-2.
- J. E. Golstein, D.E. Newbury, D.C. Joy, C.E. Lyman, P. Echlin, E. Lifshin, L. Sawyer, and J.R. Michael. *Scanning electron Microscopy and X-Ray Microanalysis*. Plenum press, 1992. ISBN 0-306-44175-6.
- M. Grédiac and F. Hild. *Mesures de champs et identification en mécanique des solides*. 2011.
- I. Groma, D. Tuzes, and P.D. Ispanovity. Asymmetric x-ray line broadening caused by dislocation polarization induced by external load. *Scripta Mater.*, 68 :755–758, 2013.
- A. Guéry. *Développement d'une méthode de corrélation d'images numériques adaptée aux mesures cinématiques dans les polycristaux : application à l'identification de paramètres de lois de plasticité cristalline*. PhD thesis, Ecole Normale Supérieure, Cachan (France), 2006.
- Y. Guo, D. M. Collins, E. Tarleton, F. Hofmann, J. Tischler, W. Liu, R. Xu, A. J. Wilkinson, and T. B. Britton. Measurements of stress fields near a grain boundary : Exploring blocked arrays of dislocations in 3D. *Acta Mater.*, 96 :229–236, 2015. doi : 10.1016/j.actamat.2015.05.041.
- K. F. J. Heinrich. *Electron Beam X-Ray Microanalysis*. Van Nostrand Reinhold Company, 1981. ISBN 978-0442232863.
- E. Héripré. *Méthode de couplage multi-échelles entre simulations numériques polycristallines et mesures de champs pour l'identification des paramètres de lois de comportement et de fissuration des matériaux métalliques. Application à l'étude des alliages TiAl*. PhD thesis, École Polytechnique, Palaiseau (France), 2006.
- T. Hoc, J. Crépin, L. Gélébart, and A. Zaoui. A procedure for identifying the plastic behavior of single crystals from the local response of polycrystals. *Acta Mater.*, 51 :5477 – 5488, 2003.
- F. Hofmann, S. Eve, J. Belnoue, J.-S. Micha, and A. M. Korsunsky. Analysis of strain error sources in micro-beam laue diffraction. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A*, 660 :130 – 137, 2011.

- M. Ibrahim. *Etude du comportement mécanique d'UO₂ implanté en hélium par microdiffraction des rayons X et modélisation par éléments finis*. PhD thesis, Université Paris-Est, oct 2015.
- G. E. Ice. The future of spatially-resolved polychromatic neutron and X-ray microdiffraction. *Metall. Mater. Trans. A Phys. Metall. Mater. Sci.*, 39(13) :3058–3064, 2008. doi : 10.1007/s11661-008-9570-x.
- G. E. Ice, B. C. Larson, J. Z. Tischler, W. Liu, and W. Yang. X-ray microbeam measurements of subgrain stress distributions in polycrystalline materials. *Mater. Sci. Eng. A*, 399(1-2) : 43–48, 2005a. doi : 10.1016/j.msea.2005.02.035.
- G. E. Ice, B. C. Larson, W. Yang, J. D. Budai, J. Z. Tischler, J. W.L. Pang, R. I. Barabash, and W. Liu. Polychromatic X-ray microdiffraction studies of mesoscale structure and dynamics. *J. Synchrotron Radiat.*, 12(2) :155–162, 2005b. doi : 10.1107/S0909049504026949.
- G. E. Ice, J. W.L. Pang, R. I. Barabash, and Y. Puzyrev. Characterization of three-dimensional crystallographic distributions using polychromatic X-ray microdiffraction. *Scr. Mater.*, 55(1 SPEC. ISS.) :57–62, 2006a. doi : 10.1016/j.scriptamat.2006.02.046.
- G. E. Ice, J. D. Budai, and J. W. L. Pang. The Race to X-ray Microbeam and Nanobeam Science. *Science (80-.)*, 334(6060) :1234–1239, 2011. doi : 10.1126/science.1202366. URL <http://www.sciencemag.org/cgi/doi/10.1126/science.1202366>.
- G.E. Ice, J.W.L. Pang, R.I. Barabash, and Y. Puzyrev. Characterization of three-dimensional crystallographic distributions using polychromatic x-ray microdiffraction. *Scr. Mater.*, 55 :57 – 62, 2006b.
- M. E. Kassner, P. Geantil, L. E. Levine, and B. C. Larson. Long-range internal stresses in monotonically and cyclically deformed metallic single crystals. *Int. J. Mat. Res. (formerly Z. Metallkd.)*, 100(3) :333–339, 2009.
- C. Kirchlechner, D. Kiener, C. Motz, S. Labat, N. Vaxelaire, O. Perroud, J.-S. Micha, O. Ulrich, O. Thomas, G. Dehm, and J. Keckes. Dislocation storage in single slip-oriented cu micro-tensile samples : new insights via x-ray microdiffraction. *Philos. Mag.*, 91 :1256–1264, 2011.
- B. C. Larson and L. E. Levine. Submicrometre-resolution polychromatic three-dimensional x-ray microscopy. *Journal of Applied Crystallography*, 46(1) :153–164, 2013.
- B. C. Larson, Wenge Yang, G. E. Ice, J. D. Budai, and J. Z. Tischler. Three-dimensional X-ray structural microscopy with submicrometre resolution. *Nature*, 415(6874) :887–890, 2002. doi : 10.1038/415887a. URL <http://www.nature.com/doi/10.1038/415887a>.
- B. C. Larson, Wenge Yang, J. Z. Tischler, G. E. Ice, J. D. Budai, W. Liu, and H. Weiland. Micron-resolution 3-D measurement of local orientations near a grain-boundary in plane-strained aluminum using X-ray microbeams. *Int. J. Plast.*, 20(3) :543–560, 2004. doi : 10.1016/S0749-6419(03)00101-3.

- B. C. Larson, Anter El-Azab, Wenge Yang, J. Z. Tischler, Wenjun Liu, and G. E. Ice. Experimental characterization of the mesoscale dislocation density tensor. *Philos. Mag.*, 87 (8-9) :1327–1347, 2007. doi : 10.1080/14786430600943930. URL <http://www.tandfonline.com/doi/abs/10.1080/14786430600943930>.
- LaueTools. URL <http://sourceforge.net/projects/lauetools/>.
- C. Le Bourlot. *Caractérisation de l'hétérogénéité du champ des déformations élastiques dans les matériaux polycristallins par diffraction des rayons X et des neutrons - application à un acier duplex*. PhD thesis, Université Paris 13 (France), 2012.
- L. E. Levine, B. C. Larson, W. Yang, M. E. Kassner, J. Z. Tischler, M. A. Delos-Reyes, R. J. Fields, and W. Liu. X-ray microbeam measurements of individual dislocation cell elastic strains in deformed single-crystal copper. *Nat. Mater.*, 5(8) :619–622, 2006. doi : 10.1038/nmat1698. URL <http://www.nature.com/doi/finder/10.1038/nmat1698>.
- L. E. Levine, P. Geantil, B. C. Larson, J. Z. Tischler, M. E. Kassner, W. Liu, M. R. Stoudt, and F. Tavazza. Disordered long-range internal stresses in deformed copper and the mechanisms underlying plastic deformation. *Acta Mater.*, 59(14) :5803–5811, 2011. doi : 10.1016/j.actamat.2011.05.056. URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.actamat.2011.05.056>.
- L. E. Levine, P. Geantil, B. C. Larson, J. Z. Tischler, M. E. Kassner, and W. Liu. Validating classical line profile analyses using microbeam diffraction from individual dislocation cell walls and cell interiors. *J. Appl. Crystallogr.*, 45(2) :157–165, 2012. doi : 10.1107/S0021889812001616.
- W. Liu, G. E. Ice, B. C. Larson, W. Yang, and J. Z. Tischler. Nondestructive three-dimensional characterization of grain boundaries by X-ray crystal microscopy. *Ultramicroscopy*, 103(3) : 199–204, 2005. doi : 10.1016/j.ultramic.2004.11.022.
- A.A. MacDowell, R.S. Celestre, N. Tamura, R. Spolenak, B.C. Valek, W.L. Brown, J.C. Bravman, H.A. Padmore, B.W. Batterman, and J.R. Patel. Submicron x-ray diffraction. *Nucl. Instrum and Methods Phys. Res.*, 467-468(936-943), 2001.
- K.R. Magid, J.N. Florando, D.H. Lassila, M.M. LeBlanc, N. Tamura, and J.W. Morris. Mapping mesoscale heterogeneity in the plastic deformation of a copper single crystal. *Philos. Mag.*, 89 :77–107, 2009.
- R. Mass, D. Grolimund, S. Van Petegem, M. Willmann, M. Jensen, H. Van Swygenhoven, T. Lehnert, M. A. M. Gijs, C. A. Volkert, E. T. Lilleod, and R. Schwaiger. Defect structure in micropillars using x-ray microdiffraction. *Appl. Phys. Lett.*, 89(15) :151905, 2006.
- R. Mass, S. Van Petegem, D. Grolimund, H. Van Swygenhoven, and M. D. Uchic. A strong micropillar containing a low angle grain boundary. *Appl. Phys. Lett.*, 91(13) :131909–131909, 2007.

- R. Mass, S. Van Petegem, D. Grolimund, H. Van Swygenhoven, D. Kiener, and G. Dehm. Crystal rotation in cu single crystal micropillars : in situ laue and electronbackscatter diffraction. *Appl. Phys. Lett.*, 92(7) :071905, 2008.
- C. Maurice, J. H. Driver, and R. Fortunier. On solving the orientation gradient dependency of high angular resolution {EBSD}. *Ultramicrosc.*, 113 :171 – 181, 2012.
- Microstress. Hétérogénéités du champ de contraintes à l'échelle du (sub)-micromètre dans les polycristaux élasto-plastiques, 2011-2016. URL <http://pimm.paris.ensam.fr/fr/node/2963>. Projet de l'Agence nationale de la recherche, ANR-11-BS09-030.
- H. Mughrabi and T. Ungár. X-ray diffraction : close up on crystal plasticity. *Nat. Mater.*, 5(8) : 601–602, 2006. doi : 10.1038/nmat1706.
- R. D. Nylas, S. Franck, and R. Spolenak. Revealing plastic deformation mechanisms in polycrystalline thin films with synchrotron xrd. *J. Microscopy*, 62(12) :44–51, 2010.
- C. Okoro, L. E. Levine, R. Xu, K. Hummler, and Y. Obeng. Synchrotron-based measurement of the impact of thermal cycling on the evolution of stresses in Cu through-silicon vias. *J. Appl. Phys.*, 115(24), 2014. doi : 10.1063/1.4885461.
- T. Ors, J. M. Micha, N. Gey, V. Michel, O. Castelnau, and R. Guinebretière. Ebsd-assisted laue microdiffraction for microstrain analysis. *to be submitted*.
- J. W.L. Pang, W. Liu, J. D. Budai, and G. E. Ice. Inhomogeneous deformation behavior in intercrystalline regions in polycrystalline Ni. *Acta Mater.*, 65 :393–399, 2014. doi : 10.1016/j.actamat.2013.11.008. URL <http://dx.doi.org/10.1016/j.actamat.2013.11.008>.
- J. Petit, M. Bornert, F. Hofmann, O. Robach, J.S. Micha, O. Ulrich, C. Le Bourlot, D. Faurie, A.M. Korsunsky, and O. Castelnau. Combining laue microdiffraction and digital image correlation for improved measurements of the elastic strain field with micrometer spatial resolution. *Procedia IUTAM*, 45(5) :926–935,, 2012. IUTAM Symp. on Full field measurements and identification in Solids Mechanics.
- J. Petit, O. Castelnau, M. Bornert, F. Zhang, F. Hofmann, A.M. Korsunsky, D. Faurie, C. Le Bourlot, J.S. Micha, O. Robach, and O. Ulrich. Laue-dic : a new method for improved stress field measurements at the micron scale. *J. Synchr. Rad.*, 22 :980–994, 2015.
- E. Plancher. *Mesures de champs de déformations élastique et totale pour la détermination du comportement mécanique local de matériaux cristallins*. PhD thesis, Arts et Métiers ParisTech, dec. 2015.
- E. Plancher, J. Petit, C. Maurice, V. Favier, L. Saintoyant, D. Loiseau, N. Rupin, J.-B. Marijon, O. Ulrich, M. Bornert, J.-S. Micha, O. Robach, and O. Castelnau. On the accuracy of elastic strain field measurements by laue microdiffraction and high-resolution ebsd : a cross-validation experiment. *Exp. Mech.*, 56 :483–492, 2016.

- E. Plancher, V. Favier, C. Maurice, E. Bosso, N. Rupin, J. Stodolna, D. Loïsnard, J.-B. Marijon, J. Petit, J.-S. Micha, O. Robach, and O. Castelnau. Direct characterization of local constitutive relations, at the micron scale, in bulk metallic alloys. *J. Appl. Cryst.*, 2017a. in press.
- E. Plancher, V. Favier, C. Maurice, E. Bosso, N. Rupin and J. Stodolna, D. Loïsnard, J.-B. Marijon, J. Petit, J.-S. Micha, O. Robach, and O. Castelnau. Direct measurement of local constitutive relations, at the micrometre scale, in bulk metallic alloys. *Journal of Applied Crystallography*, 50 :940–948, 2017b.
- A. Poshadel, P. Dawson, and G. Johnson. Assessment of deviatoric lattice strain uncertainty for polychromatic X-ray microdiffraction experiments. *J. Synchrotron Rad.*, 19 :237–244, 2012.
- L. Renversade. *Analyse expérimentale et numérique de la plasticité des grains individuels dans un polycristal d'aluminium déformé en traction uniaxiale*. PhD thesis, Université de Lyon (France), 2016.
- A. Richard. *Etude par diffraction des rayons X des déformations induites par Irradiation/Implantation d'ions dans le dioxyde d'uranium*. PhD thesis, Université de Poitiers (France), 2012a.
- A. Richard. *Étude par diffraction des rayons X des déformations induites par irradiation/implantation d'ions dans le dioxyde d'uranium*. PhD thesis, Université de Poitiers, novembre 2012b.
- O. Robach, J.-S. Micha, O. Ulrich, and P. Gergaud. Full local elastic strain tensor from Laue microdiffraction : simultaneous Laue pattern and spot energy measurement. *J. Appl. Cryst.*, 44 :688–696, 2011a.
- O. Robach, J. S. Micha, O. Ulrich, and P. Gergaud. Full local elastic strain tensor from Laue microdiffraction : Simultaneous Laue pattern and spot energy measurement. *J. Appl. Crystallogr.*, 44(4) :688–696, 2011b. doi : 10.1107/S002188981102320X.
- O. Robach, J. S. Micha, O. Ulrich, O. Geaymond, O. Sicardy, J. Härtwig, and F. Rieutord. A tunable multicolour 'rainbow' filter for improved stress and dislocation density field mapping in polycrystals using X-ray Laue microdiffraction. *Acta Crystallogr. Sect. A Found. Crystallogr.*, 69(2) :164–170, 2013. ISSN 01087673. doi : 10.1107/S0108767313000172.
- O. Robach, C. Kirchlechner, J.S. Micha, O. Ulrich, X. Biquard, O. Geaymond, O. Castelnau, M. Bornert, J. Petit, S. Berveiller, O. Sicardy, J. Villanova, and F. Rieutord. *Strain and dislocation gradients from diffraction*, chapter Chapter 5 : Laue microdiffraction at ESRF, pages 156–204. Imperial College Press / World Scientific Publishing, 2014. ISBN 978-1-908979-62-9.
- O. Robach, J. S. Micha, O. Ulrich, B. Devincere, T. Hoc, G. Daveau, V. Consonni, and J. Petit. Analyse avancée des contraintes et des gradients d'orientation par microdiffraction Laue des rayons X 4.1. *Rayons X Matière*, pages 1–64, 2017.

- R. C. Rogan, N. Tamura, G. A. Swift, and E. Ustundag. Direct measurement of triaxial strain fields around ferroelectric domains using x-ray microdiffraction. *Nature Materials*, 2(6) :379–381, 2003.
- D. Ferreira Sanchez, J. Villanova, J. Laurencin, J.-S. Micha, A. Montani, P. Gergaud, and P. Bleuet. X-ray micro laue diffraction tomography analysis of a solid oxide fuel cell. *Journal of Applied Crystallography*, 48(2) :0–0, 2015.
- R. Spolenak, W. L. Brown, N. Tamura, A. A. MacDowell, R. S. Celestre, H. A. Padmore, B. Valek, J. C. Bravman, T. Marieb, and H. Fujimoto. Local plasticity of Al thin films as revealed by X-ray microdiffraction. *Phys. Rev. Lett.*, 90(9) :96102, 2003. ISSN 0031-9007. doi : 10.1103/PhysRevLett.90.096102.
- N. Tamura, R. S. Celestre, A. A. MacDowell, H. A. Padmore, R. Spolenak, B. C. Valek, N. Meier Chang, A. Manceau, and J. R. Patel. Submicron x-ray diffraction and its applications to problems in materials and environmental science. *Rev. Sci. Instrum.*, 73(3 II) :1369, 2002a. ISSN 00346748. doi : 10.1063/1.1436539.
- N. Tamura, A. A. MacDowell, R. S. Celestre, H. A. Padmore, B. Valek, J. C. Bravman, R. Spolenak, W. L. Brown, T. Marieb, H. Fujimoto, and B. W. Batterman. High spatial resolution grain orientation and strain mapping in thin films using polychromatic submicron x-ray diffraction. *Appl. Phys. Lett.*, 80(20) :3724–3726, 2002b.
- N. Tamura, H. A. Padmore, and J. R. Patel. High spatial resolution stress measurements using synchrotron based scanning x-ray microdiffraction with white or monochromatic beam. *Mater. Sci. Engin. A*, 399(1) :92–98, 2005.
- S. Tardif, A. Gassenq, K. Guillo, N. Pauc, G. Osvaldo Dias, J. M. Hartmann, J. Widiez, T. Zabel, E. Marin, H. Sigg, J. Faist, A. Chelnokov, V. Reboud, V. Calvo, J. S. Micha, O. Robach, and F. Rieutord. Lattice strain and tilt mapping in stressed Ge microstructures using X-ray Laue micro-diffraction and rainbow filtering. *J. Appl. Crystallogr.*, 49(5) :1402–1411, 2016. ISSN 16005767. doi : 10.1107/S1600576716010347.
- O. Ulrich, X. Biquard, P. Bleuet, O. Geaymond, P. Gergaud, J. S. Micha, O. Robach, and F. Rieutord. A new white beam x-ray microdiffraction setup on the BM32 beamline at the European Synchrotron Radiation Facility. *Rev. Sci. Instrum.*, 82(3), 2011. doi : 10.1063/1.3555068.
- T. Ungár, O. Castelnau, G. Ribárik, M. Drakopoulos, J. L. Béchade, T. Chauveau, A. Snigirev, I. Snigireva, and B. Bacroix C. Schroer and. Grain to grain activity in cold rolled zr determined by x-ray microdiffraction line profile analysis. *Acta Metall. Mater.*, 55 :1117–1127, 2007.
- J. Villanova, C. Maurice, J.-S. Micha, P. Bleuet, O. Sicardy, and R. Fortunier. Multiscale measurements of residual strains in a stabilized zirconia layer. *Journal of Applied Crystallography*, 4 :133–143, 2012.
- S. Villert, C. Maurice, C. Wyon, and R. Fortunier. Accuracy assessment of elastic strain measurement by ebsd. *J. Microsc.*, 233 :290–301, 2009.

- A. J. Wilkinson, G. Meaden, and D. J. Dingley. High-resolution elastic strain measurement from electron backscatter diffraction patterns : New levels of sensitivity. *Ultramicrosc.*, 106 :307 – 313, 2006.
- W. Yang, B. C. Larson, G. E. Ice, J. Z. Tischler, J. D. Budai, K. S. Chung, and W. P. Lowe. Spatially resolved poisson strain and anticlastic curvature measurements in Si under large deflection bending. *Appl. Phys. Lett.*, 82(22) :3856–3858, 2003. doi : 10.1063/1.1579857.
- W.G. Yang, B.C. Larson, J.Z. Tischler, G.E. Ice, J.D. Budai, and W. Liu. Differential-aperture x-ray structural microscopy : a submicron-resolution three-dimensional probe of local microstructure and strain. *Micron*, 35 :431–439, 2004.
- F. Zhang. *Détermination du champ de contraintes dans les matériaux cristallins par microdiffraction Laue*. PhD thesis, Arts et Métiers ParisTech, jul. 2015.
- F.G. Zhang, O. Castelnau, M. Bornert, J. Petit, J.B. Marijon, and E. Plancher. Determination of deviatoric elastic strain and lattice orientation by applying digital image correlation to laue microdiffraction images - the enhanced laue-dic method. *J. Appl. Cryst.*, 48 :1805–1817, 2015.
- F.G. Zhang, M. Bornert, J. Petit, and O. Castelnau. Accuracy and precision of stress measurement by laue microdiffraction (laue-dic method) : the influence of image noise, calibration errors, and spot number. *J. Synchr. Rad.*, page in press, 2017.

3D CHARACTERIZATION OF MICROSTRUCTURE AND ELASTIC STRAIN IN POLYCRYSTALS BY LAUE MICRODIFFRACTION

ABSTRACT: The characterization of the internal stresses present in structural or functional materials is essential for an optimization of their properties and their durability in service. This thesis work is a contribution to the development of the so-called "Differential Aperture X-ray Microscopy" (DAXM) technique, allowing 3D and non-destructive characterization of the microstructure of crystalline materials and internal stresses. This technique makes use of synchrotron radiation; we used the beamline CRG BM32 of the European synchrotron ESRF. The polychromatic and highly focused incident beam penetrates the sample, and the collected diffraction image is a superimposition of the Laue diagrams of all the crystals located along the path of the incident beam. The DAXM uses, in addition to the "conventional" Laue microdiffraction technique, a moving mask that absorbs part of the diffracted beams. The analysis of the evolution of the gray levels of the image pixels as a function of the position of the mask makes it possible not only to reconstruct the microstructure of the material at depth but also to access the 3D distribution of the elastic deformations (and associated stress). One of the advantages of the DAXM is its spatial resolution, of the order of a micrometer, which makes it possible to envisage the analysis of stress concentrations in polycrystalline materials, within the framework of experimental micromechanical approaches.

The work carried out in this thesis was aimed at improving the existing experimental system, to put in place the theoretical formulation of the problem, and to develop the numerical tools allowing the processing of the data.

From an experimental point of view, we have developed an in-situ mechanical test device (4-point bending) adapted to BM32, and we propose a multi-wire mask to significantly reduce the data acquisition time. We have established the geometric equations of the problem. It is thus shown that the 3D reconstruction requires a gray scale derivation procedure. This work is limited to the use of a finite difference derivation method of order 1, which remains sensitive to image noise. These equations show the need to determine the geometry of the setup with great precision. For this purpose, the use of the fluorescence of the sample is proposed, coupled with a simplified description of the beam attenuation by the sample taking into account only a single absorption coefficient. The calibration model is tested on several materials, with very good results. The capacity of the DAXM to reconstruct a microstructure is tested on model samples for which the 3D geometry of the microstructure is perfectly known: a stack of GaN wires on a substrate, and a twin plane in a stainless steel polycrystal. It is shown that the resolution of the DAXM is variable from one pixel to the other of the detector; the microstructure can however be reconstructed with an accuracy of the order of one micrometer. The DAXM is then tested on a sample of UO₂ implanted by Kr ions, creating a highly deformed surface layer with micrometric thickness (collaboration with CEA-Cadarache). It is found that the proposed reconstruction method is affected by the variable transmission of the diffracted beams in the mask. We propose a formulation that takes this effect into account.

Keywords : Laue microdiffraction, plasticity, polycrystals, synchrotron radiation, microstructure

CARACTERISATION 3D DE LA MICROSTRUCTURE ET DES DEFORMATIONS ELASTIQUES DES POLYCRISTAUX PAR MICRODIFFRACTION LAUE

RESUME : La caractérisation des contraintes internes présentes dans les matériaux de structure ou fonctionnels est primordiale pour une optimisation de leurs propriétés et de leur tenue en service. Ce travail de thèse est une contribution au développement d'une technique de microscopie par diffraction des rayons X, appelée "Differential Aperture X-ray Microscopy" (DAXM), permettant la caractérisation 3D et non-destructive de la microstructure de matériaux cristallins et des contraintes internes. Cette technique est basée sur l'utilisation du rayonnement synchrotron; nous avons utilisé la ligne CRG BM32 du synchrotron européen ESRF. Le faisceau de rayons incident, polychromatique et fortement focalisé, pénètre dans l'échantillon, et l'image de diffraction collectée est une superposition des diagrammes de Laue de tous les cristaux situés sur le trajet du faisceau incident. La DAXM utilise, en supplément de la microdiffraction Laue "classique", un masque mobile qui absorbe une partie des faisceaux diffractés. L'analyse de l'évolution des niveaux de gris des pixels de l'image en fonction de la position du masque permet non seulement de reconstruire la microstructure du matériau en profondeur mais aussi d'accéder à la distribution 3D des déformations élastiques (et des contraintes associées). L'un des avantages de la DAXM est sa résolution spatiale, de l'ordre du micromètre, qui permet d'envisager l'analyse des concentrations de contraintes dans les matériaux polycristallins, dans le cadre des approches micromécaniques expérimentales.

Le travail mené dans cette thèse avait pour but d'améliorer le dispositif expérimental existant, de mettre en place la formulation théorique du problème, et de développer les outils numériques permettant le traitement des données.

Du point de vue expérimental, nous avons notamment développé une machine d'essai mécanique in-situ (flexion 4-points) adaptée à la ligne BM32, et nous proposons un masque multi-fil pour réduire significativement la durée de l'acquisition des données.

Nous avons établi les équations géométriques du problème. On montre ainsi que la reconstruction 3D nécessite une procédure de dérivation des niveaux de gris; nous nous sommes limités ici à une dérivation par différence finie d'ordre 1, qui reste sensible au bruit d'image. Ces équations font apparaître la nécessité de déterminer la géométrie du montage avec grande précision. On propose pour cela l'utilisation de la fluorescence de l'échantillon, couplée à une description simplifiée de l'atténuation du faisceau par l'échantillon ne prenant en compte qu'un coefficient d'absorption unique. Le modèle de calibration est testé sur plusieurs matériaux, avec de très bons résultats.

La capacité de la DAXM à reconstruire une microstructure est testée sur des échantillons modèles pour lesquels la géométrie 3D de la microstructure est parfaitement connue : empilement de fils de GaN sur un substrat, et plan de macles dans un polycristal d'acier inoxydable. On montre que la résolution de la DAXM est variable d'un pixel à l'autre du détecteur; la microstructure peut cependant être reconstruite avec une précision de l'ordre du micromètre.

La DAXM est ensuite testée sur un échantillon d'UO₂ implanté d'ions Kr, créant une couche de surface d'épaisseur micrométrique fortement déformée (collaboration CEA-Cadarache). On constate que la méthode de reconstruction proposée est affectée par la transmission variable des faisceaux diffractés dans le masque. Nous mettons en place une formulation permettant de prendre en compte cet effet.

Mots clés : microdiffraction Laue, plasticité, polycristaux, rayonnement synchrotron, microstructure