



## AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : [ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr](mailto:ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr)

## LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

[http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg\\_droi.php](http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

# THÈSE

Pour l'obtention du titre de :

DOCTEUR de L'UNIVERSITÉ DE LORRAINE

Spécialité : Science des Matériaux

Présentée par :

**Haithem Mansour**

---

**Caractérisation des défauts cristallins au MEB par  
Canalisation d'Électrons assistée par diagrammes pseudo-  
Kikuchi haute résolution :  
Application à l'acier IF,  $UO_2$  et TiAl**

---

Thèse soutenue publiquement le 8 décembre 2016 à Metz devant le jury composé de :

<b>Pascal Jacques</b>	Professeur, Université catholique de Louvain	Rapporteur
<b>Mohamed Kechouane</b>	Professeur, Université USTHB d'Alger	Rapporteur
<b>Nathalie Gey</b>	Chargée de recherche CNRS, Université de Lorraine	Examinatrice
<b>Xavière Iltis</b>	Ingénieur de recherche, CEA Cadarache	Examinatrice
<b>Anne Joulain</b>	Professeure, Université de Poitiers	Examinatrice
<b>Bernard Viguier</b>	Professeur, Université de Toulouse	Examineur
<b>Nabila Maloufi</b>	Maitre de conférences HDR, Université de Lorraine	Directrice
<b>Benoit Beausir</b>	Maitre de conférences, LEM3, Université de Lorraine	Co-directeur
<b>Martin Crimp</b>	Professeur, Michigan State University	Invité

LEM3, UMR 7239 CNRS, Équipe 3TAM,  
Ile de Saulcy, 57045, Metz, France  
Université de Lorraine



# *Remerciements*

Mes travaux de thèse ont été réalisés au sein du Laboratoire d'Étude des Microstructures et de Mécanique des Matériaux (LEM3) de l'Université de Lorraine. Je tiens à exprimer ma sincère gratitude à monsieur Mikhail LEBEDKIN, directeur du laboratoire, de m'avoir accueilli au sein du LEM3 pendant mes trois années de thèse. Je remercie également le ministère français de l'Éducation nationale, de l'Enseignement supérieur et de la Recherche d'avoir financé ces travaux.

Je veux exprimer toute ma gratitude à l'ensemble des membres du jury. Je remercie messieurs Mohamed Kechouane et Pascal Jacques pour avoir accepté d'être rapporteurs de cette thèse. Je remercie également mesdames et messieurs, Anne Joulain, Bernard Viguier, Nathalie Gey et Xavière Iltis en leur qualité d'examineur.

Ma profonde reconnaissance et mes remerciements vont à ma directrice de thèse Nabila Maloufi ainsi qu'à mon co-directeur Benoit Beausir.

Je remercie Benoit Beausir pour son aide précieuse, ses compétences en programmation, pour sa bonne humeur permanente et son encadrement.

En particulier, je remercie Nabila Maloufi pour la qualité de son encadrement scientifique et humain, pour ses conseils avisés, sa disponibilité et sa confiance, merci d'avoir contribué à ce que mes travaux se déroulent dans de bonnes conditions. Ce fut une aventure inoubliable pour moi !

J'exprime ma reconnaissance à Martin Crimp, professeur au Michigan State University, pour sa collaboration, son expertise précieuse en ECCI, analyse des dislocations, cyclisme et natation ! J'ai beaucoup appris pendant les quelques mois de sa visite au LEM3 sur tous les plans (scientifique, sportif, humain...). Sans lui ce travail ne serait pas le même. Je remercie aussi Xavière Iltis, ingénieure de recherche au CEA, pour sa collaboration qui m'a permis d'apprendre beaucoup de choses sur l'UO<sub>2</sub>.

Je tiens à remercier l'ensemble des membres du LEM3, qui un jour ou l'autre, m'ont apporté leur aide, savoir, soutien et qui ont participé de près ou de loin à ces travaux, en particulier : Jean-Jacques Funderberger, Nathalie (s), Lionel Germain, Luc Morhain. Ainsi je remercie Nathalie Gey pour sa disponibilité, aide précieuse et ses conseils avisés en EBSD et microscopie électronique. Merci à Alain Hazotte pour son soutien, sa confiance et de m'avoir donné l'occasion d'enseigner à ses côtés à l'Université de Lorraine. Un grand merci à Auriane Mandrelli pour les préparations d'échantillons, Jérôme Slowensky qui m'a formé en microscopie électronique à balayage, à Yudong Zhang pour la microscopie en transmission. J'exprime ma grande reconnaissance à Eric Fleury pour sa grande disponibilité qui a laissé sa porte ouverte à n'importe quel moment, et pour les discussions enrichissantes. Je remercie Emmanuel Bouzy pour sa disponibilité, son expertise précieuse en TiAl et microscopie en transmission et pour sa bonne humeur. Une pensée à Bernard Bolle, merci pour avoir été toujours là pour tous les étudiants, pour tes conseils et soutien.

Par ces remerciements, je ne saurais oublier mes compatriotes, colocataires de l'étage des doctorants, dont la plupart ont déjà soutenu leurs thèses. En particulier, Cécile, Alban, Youssef, Julien, Élodie, Maxime, Moustapha, Rita, Cai, Hana, les deux Mariem, merci pour tous les beaux moments passés ensemble, je vous souhaite tous beaucoup de succès par la suite...

Je remercie toute ma famille et mes amis pour leur soutien. Je dédie ce travail à mes parents, les mots ne peuvent pas exprimer combien je vous suis reconnaissant... Merci à mes sœurs Hela et Henda, et à mon frère Ahmed, merci pour votre soutien. Je remercie ma chère épouse Laura pour sa patience et son soutien, mon fils Adam aussi de m'avoir aidé, à sa manière, à rester éveillé et travailler pendant la nuit.

Que ce modeste travail participe de près ou de loin à un monde meilleur.

Haithem Mansour

# *Table des matières*

Remerciements .....	3
Table des matières .....	5
Nomenclature .....	8
Introduction générale.....	10
Chapitre I Bibliographie .....	14
I.1 Historique .....	15
I.2 Principe de la canalisation d'électrons .....	17
I.2.1 Approche particule .....	17
I.2.2 Approche ondes de Bloch .....	18
I.3 Paramètre de déviation $s$ et condition de canalisation .....	21
I.4 Configuration expérimentale de l'ECCI : <i>High tilt</i> et <i>Low tilt</i> .....	22
I.5 Établissement des conditions de canalisation d'électrons.....	25
I.5.1 Electron Channeling Patterns (ECP) .....	26
I.5.2 Selected Area Channeling Patterns (SACP).....	27
I.5.3 Electron BackScattered Diffraction (EBSD).....	31
I.6 Imagerie des défauts cristallins par ECCI .....	34
I.7 Préparation d'échantillon .....	40
I.8 Conclusion .....	40
I.9 Références bibliographiques.....	42
Chapitre II Techniques expérimentales : Rocking Beam et A-ECCI.....	46
II.1 Introduction .....	47
II.2 Développement du mode de balayage Rocking Beam .....	48
II.2.1 Méthodologie .....	48
II.2.2 Mode de fonctionnement conventionnel de la colonne GEMINI I.....	49
II.2.3 Mode de fonctionnement de la précession -Rocking Beam.....	51

---

II.2.4	Collection des clichés SACP .....	53
II.3	Application et résultats .....	55
II.3.1	Procédure expérimentale .....	55
II.3.2	Caractéristiques des clichés HR-SACP .....	58
II.4	Accurate Electron Channeling Contrast Imaging (A-ECCI).....	68
II.4.1	Configuration expérimentale.....	68
II.4.2	Détermination de l'orientation cristallographique .....	70
II.4.3	Établissement des conditions de canalisation.....	70
II.5	Conclusion et discussion .....	73
Chapitre III	Analyse des défauts cristallins par imagerie de contraste de canalisation des électrons (A-ECCI): application à l'acier IF .....	77
III.1	Introduction.....	78
III.2	Matériau .....	78
III.2.1	Préparation métallographique de l'acier IF.....	79
III.3	Résultats.....	79
III.3.1	Caractérisation des dislocations vis, coins et mixtes.....	80
III.3.2	Étude d'un sous joint de grain tilt de très faible désorientation.....	85
III.4	Discussion et conclusions: .....	96
III.5	Références bibliographiques .....	98
Chapitre IV	Analyse par EBSD et A-ECCI de la sous-structure de déformation par fluage dans UO <sub>2</sub> .....	99
IV.1	Introduction.....	100
IV.2	Matériaux .....	101
IV.2.1	Structure cristallographique fluorine UO <sub>2</sub> .....	101
IV.2.2	Systèmes de glissement et dislocations dans UO <sub>2</sub> .....	102
IV.3	Description des sous joints de grain et des dislocations observés par A-ECCI... 104	
IV.4	Analyse d'un SJG par A-ECCI et HR-SACP.....	111
IV.4.1	Analyse des dislocations formant le SJG par A-ECCI.....	111

---

IV.4.2	Mesure de la désorientation du SJG par A-ECCL, HR-SACP et EBSD haute précision .....	120
IV.5	Discussion et conclusions .....	124
IV.6	Références bibliographiques .....	125
Chapitre V	Étude des familles de macles et domaines d'ordres dans $\gamma$ -TiAl.....	126
V.1	Introduction .....	127
V.1.1	Intermétalliques à base de TiAl.....	127
V.1.2	$\gamma$ -TiAl .....	127
V.1.3	Identification des DO dans $\gamma$ -TiAl .....	130
V.2	Résultats.....	133
V.2.1	Configuration expérimentale.....	133
V.2.2	Étude comparative entre l'imagerie BSD et FSD .....	135
V.2.3	EBSD haute résolution .....	142
V.2.4	Identification des familles de macles $\gamma$ et $\gamma^T$ dans la phase $\gamma$ -TiAl .....	143
V.2.5	Étude des domaines d'ordre dans $\gamma$ -TiAl par canalisation des électrons.....	145
V.3	Conclusion et discussion .....	155
V.4	Références Bibliographiques .....	158
	Conclusion générale et perspectives.....	160
	Annexe I Interprétation du contraste de canalisation d'électron.....	165
	Annexe II : Spécificités des bandes de Kikuchi dans $UO_2$ .....	167
	Production scientifique et distinctions .....	168

# *Nomenclature*

A-ECCI : Accurate Electron Channeling Contrast Imaging

ApC : Aperture alignment Coil ; bobines d'alignement de diaphragme

API : Application Programming Interface ; Interface de programmation applicative

$b$  : vecteur de Burgers

BSD: BackScattered electron Detector ; Détecteur des électrons rétrodiffusés

BSE: BackScattered Electron ; Électrons rétrodiffusés

C3 : ensemble Lentille Objectif

$d_{hkl}$  : distance interréticulaire du plan (hkl)

DO : Domaine d'ordre

$e$  : Charge d'un électron

$E$  : Énergie d'un électron accéléré

EBSD : Electron BackScattered Diffraction ; Diffraction des électrons rétrodiffusés

EBSP: Electron BackScattered diffraction Patterns ; Clichés de diffraction des électrons rétrodiffusés

ECCI: Electron Channeling Contrast Imaging ; Imagerie par contraste de canalisation d'électrons

ECP : Electron Channeling Pattern ; Cliché de canalisation d'électrons

FB : Faisceau Bragg

FC : Faisceau Central

FEG-SEM : Field Emission Gun- Scanning Electron Microscope ; Microscope Electronique à balayage à émission de champ.

FIB : Focused Ion Beam ; Sonde Ionique Focalisée.

FSD : ForeScattered Electrons Detector ; Détecteur des électrons diffusés.

FSE : ForeScattered Electrons ; Électrons diffusés.

GC : Gun alignment Coil ; bobines d'alignement du canon

$g_{hkl}$  : Condition de canalisation / diffraction pour une famille de plan (hkl).

GND : Geometrically Necessary Dislocations ; Dislocations Géométriquement Nécessaires

$h$  : Constance de Planck

HR-SACP : High Resolution Selected Area Channeling Pattern

IF : Interstitial Free ; sans éléments interstitiels

m : Masse d'un électron

MA : Multihole Aperture ; Diaphragme Multi-trous

MEB : Microscope Electronique à Balayage

MET : Microscope Electronique à Transmission

N : Normale de l'échantillon

p : Quantité de mouvement

PC : Pattern Center ; Centre du cliché

RB : Rocking Beam; Précession du faisceau

s : parameter de deviation

SACP : Selected Area Channeling Pattern

SADP : Selected Area Diffraction Pattern

SC : Scanning Coils ; bobine de balayage

SE : Secondary Electrons ; Électrons Secondaires

SEM : Scanning Electron Microscope ; Microscope Electronique à Balayage

SJG : Sous Joint de Grain

SSD : Statistically Stored Dislocations ; Dislocations statistiquement stockées

TKP : Transmission Kikuchi Patterns ; clichés de Kikuchi transmis

TRIP : TRansformation-Induced Plasticity

TWIP : TWinning-Induced Plasticity

u : ligne de dislocation

V : Tension d'accélération

v : Vitesse d'un électron

WD : Working Distance ; distance de travail

YAG : Yttrium-Aluminium Garnet film

$\theta_{hkl}$  : angle de Bragg du plan (hkl)

$\lambda$  : longueur d'onde

$\xi_g$  : Distance d'extinction de l'onde diffractée selon la famille de plan g.

# *Introduction générale*

La diffraction des électrons est une technique utilisée pour étudier la structure cristalline des matériaux et de façon générale leur microstructure (phases présentes, défauts, orientations etc.). Cette technique se décline sous différentes formes avec des énergies électroniques adaptées selon les matériaux étudiés et les informations attendues. La longueur d'onde ( $\lambda$ ) des électrons étant plus petite que celle des rayons X (diffraction X) le rayon de la sphère d'Ewald est plus important dans la diffraction électronique. Ceci permet à l'analyse de diffraction d'être plus complète puisqu'elle révèle plus d'information du réseau réciproque. De plus, la petite longueur d'onde des électrons permet d'avoir une meilleure résolution spatiale dans les techniques d'imageries en microscopie électronique. Non seulement la Microscopie Electronique en Transmission (MET) permet de révéler finement des défauts d'empilement ou résoudre des dislocations (vecteur de Burgers, ligne) mais la résolution atomique peut être atteinte en MET Haute Résolution. La diffraction électronique est également utilisée en microscopie électronique à balayage (MEB) avec la technique « diffraction des électrons rétrodiffusés » (EBSD) qui permet par exemple via une exploitation plus ou moins directe de déduire des densités de dislocations géométriquement nécessaires (GND).

Dans les semi-conducteurs comme GaN, ZnO et SiC, les dislocations traversantes altèrent les performances optoélectroniques. Dans d'autres matériaux, caractériser les dislocations permet de résoudre les systèmes de glissement et comprendre la plasticité. L'influence incontestable et importante des défauts sur les propriétés des matériaux amène à la recherche de techniques de caractérisation aussi performantes que la MET mais moins lourdes.

En effet grâce à sa haute résolution spatiale ( $<1\text{nm}$ ) et angulaire ( $<0,1^\circ$ ), la MET est depuis des décennies un outil incontournable pour étudier les dislocations. Néanmoins en plus du prix exorbitant d'un MET, il est nécessaire de procéder à une préparation d'échantillon fastidieuse qui exige leur amincissement, mécaniquement ou avec un polissage ionique, jusqu'à une épaisseur inférieure à  $100\text{nm}$ . De plus, les échantillons sont limités en taille ce qui signifie que dans beaucoup de cas l'étude n'est pas statistiquement significative.

La microscopie électronique à balayage (MEB) peut être une alternative ou du moins constituer une technique complémentaire. Elle présente plusieurs avantages par rapport à la MET comme une préparation des échantillons relativement facile, l'utilisation d'échantillons

massifs non transformés en lames minces et la possibilité d'analyse de très larges zones. La technique EBSD au MEB utilise les clichés de diffraction pour identifier l'orientation du cristal. La découverte du phénomène de diffraction sur lequel se base l'EBSD remonte à 1928 quand Shoji Nishikawa et Seishi Kikuchi observent pour la première fois des figures de diffraction d'électrons qui seront nommées par la suite cliché de Kikuchi. Depuis les années 1990, la technique EBSD a été automatisée pour une exploitation facilitée et constitue actuellement la méthode la plus utilisée pour la caractérisation des microstructures des matériaux polycristallins. Elle permet non seulement d'accéder aux déformations élastiques et plastiques des matériaux mais aussi d'estimer la densité des dislocations géométriquement nécessaires (Geometrically Necessary Dislocations (GND)) en se basant sur la mesure de désorientation locale. Cependant, elle ne permet pas d'estimer toutes les dislocations présentes dans le cristal (Statistically Stored Dislocation (SSD) + GND) puisque, contrairement à la MET, elle ne permet pas d'observer directement les dislocations et de les caractériser.

Par ailleurs, il existe une technique au MEB appelée Imagerie par contraste de canalisation d'électrons « Electron Channeling Contrast Imaging » (ECCI) qui permet l'observation des défauts cristallins. En effet en 1967, Coates visualise fortuitement pour la première fois des pseudo-bandes de Kikuchi (Electron Channeling Pattern (ECP)) sur un monocristal de GaAs imagé à plat en très faible grossissement dans un MEB. Un phénomène équivalent à la diffraction des électrons en MET est responsable de la création de ces clichés, il est nommé « Canalisation d'électron » (Electron Channeling en anglais) et tout de suite reconnu comme un moyen de contraster et donc d'étudier les dislocations dans un MEB. Grâce à ce phénomène, s'est aussi développée la technique « Rocking Beam » qui permet l'acquisition d'un cliché pseudo-Kikuchi « Selected Area Channeling Pattern » relatif à un grain et donc la détermination de son orientation cristallographique avec une très grande précision. C'est ainsi que depuis les années soixante-dix il est devenu possible d'observer les dislocations en utilisant un détecteur d'électrons rétrodiffusés [Clarke 1971]. Cependant la caractérisation de ces dislocations était un défi. En effet, pour les caractériser (visualiser finement et résoudre) il faut orienter, avec grande précision (meilleur que  $0,1^\circ$ ), le cristal à analyser par rapport au faisceau d'électrons incident afin de satisfaire les conditions très strictes de canalisation d'électrons pour une famille de plans  $\{hkl\}$  réflecteurs. À cause de la limitation en résolution spatiale et angulaire des techniques actuelles (EBSD, ECP et SACP) permettant de déterminer l'orientation de l'échantillon, l'ECCI se limita aux monocristaux (ou des polycristaux à gros

grains) et les conditions de canalisation ne sont pas toujours satisfaites. Pour cette raison, jusqu'à présent, l'étude des défauts au MEB dans des polycristaux se limite généralement à leur observation et ne permet pas de les caractériser comme au MET. Pour cela, la MEB a été longtemps considérée comme inadéquate pour la caractérisation des défauts cristallins.

Grâce à l'arrivée des MEB haute résolution à émission de champ et l'amélioration des détecteurs des électrons rétrodiffusés, l'Imagerie par Contraste de Canalisation d'Electron (Electron Channeling Contrast Imaging -ECCI en anglais) s'est beaucoup améliorée ces dernières années mais la caractérisation des défauts cristallins dans les polycristaux ne s'est pas améliorée à cause des limitations citées précédemment.

Ce travail de thèse s'inscrit dans ce cadre : Mise en place de la technique ECCI au laboratoire puis caractérisation au MEB des défauts cristallins dans les polycristaux même à grains fins. Pour cela et afin de répondre aux exigences nécessaires à l'ECCI (orientation du cristal étudié avec une précision meilleure que  $0,1^\circ$ ) nous avons d'abord développé dans un MEB le mode de balayage Rocking Beam (Précession du faisceau) permettant l'acquisition de clichés SACP haute résolution « High Resolution Selected Area Channeling Pattern – HR-SACP ». Dans un deuxième temps nous avons mis au point une procédure originale pour réaliser de l'« Accurate Electron Channeling Contrast Imaging –A-ECCI ».

Dans un troisième temps, ces techniques ont été utilisées pour visualiser et caractériser des défauts cristallins (dislocations, sous-joint de grain (SJG), domaine d'ordre...) dans des matériaux polycristallins (Acier, Oxyde d'Uranium- $UO_2$ , Alliage de titane aluminium - TiAl) au MEB.

La présentation de ce travail a été organisée de la façon suivante :

Le Chapitre I est consacré à la compréhension du principe de canalisation des électrons et des techniques utilisées dans ce travail ainsi qu'à une étude bibliographique des précédents travaux ayant traité ce sujet. Le développement du nouveau mode de balayage Rocking Beam (précession du faisceau) et l'amélioration de la technique ECCI sont abordés dans le chapitre II. Les chapitres III, IV et V présentent et discutent les résultats de l'application de la technique A-ECCI assistée par HR-SACP pour la caractérisation des défauts cristallins et l'analyse de la microstructure de trois matériaux différents. La caractérisation des dislocations et sous-joint de grain réalisée dans ce travail se base sur les critères d'invisibilité  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  et  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$  utilisées normalement au MET. Dans le chapitre III, l'A-ECCI est utilisée pour

caractériser des dislocations et SJG de très faible désorientation ( $<0,5^\circ$ ) dans un acier IF à grain fin. Le chapitre IV, se situe dans le cadre d'une collaboration avec le Commissariat à l'Energie Atomique (CEA). Il aborde l'analyse de la sous structure de déformation (SJG, dislocation...) d'un oxyde d'uranium ( $UO_2$ ) après fluage. Ceci a permis dans  $UO_2$  d'analyser pour la 1<sup>er</sup> fois par MEB un réseau de dislocation formant un SJG habituellement observable par MET. Les résultats préliminaires mais probants obtenus ont permis la signature d'un contrat de recherche avec le CEA Cadarache dans le cadre d'une thèse portant sur l'étude des liens entre la microstructure et les mécanismes d'endommagement par fluage du dioxyde d'uranium qui a débuté en 2015. Finalement, le chapitre V est consacré à l'étude de la microstructure de l'alliage Titane Aluminium (TiAl). Il traite, plus spécifiquement, une problématique bien connue dans la phase gamma ( $\gamma$ -TiAl) qui concerne l'identification des domaines d'ordre et des familles de macles. Avec ce chapitre, on montre que l'application de l'A-ECCI n'est pas limitée aux défauts cristallins tels que les dislocations mais peut être aussi utilisée dans l'identification des orientations cristallographiques des phases pseudo-symétriques où l'analyse est difficile avec les techniques ordinaires.

Ce projet de recherche, financé par le ministère français de l'éducation nationale, de l'enseignement supérieur et de la recherche, a mené à un dépôt d'invention par l'université de Lorraine, à plusieurs publications (5 jusqu'à présent) dans des revues internationales et à l'obtention de deux prix d'excellence scientifique (1<sup>er</sup> Prix Bodycote 2016 de la Société Française de Métallurgie et de Matériaux, Prix de la Société Américaine de Microscopie (M&M Presidential Scholar Award 2015)).

# *Chapitre I*

## *Bibliographie*

---

*La microscopie électronique à balayage (MEB) est une technique qui fournit des informations à haute résolution de la surface d'un échantillon en utilisant le principe d'interaction électrons-matière. Elle donne des informations sur la topographie de l'échantillon en utilisant les électrons secondaires (SE), la composition chimique via les rayons X et des informations cristallographiques via les électrons rétrodiffusés (BSE). Même si l'étude des défauts cristallins est généralement du domaine du microscope électronique en transmission (MET), il existe une technique intitulée « Imagerie par contraste de canalisation des électrons » (Electron Channeling Contrast Imaging (ECCI)) qui permet l'observation et la caractérisation des défauts cristallins tels que : dislocations, fautes d'empilements, nano macles et champs de déformation élastique dans des matériaux massifs. La technique ECCI utilise le principe de canalisation d'électrons, principe expliqué dans la suite de ce chapitre.*

## I.1 Historique

En 1967, Coates [Coates 1967] visualise pour la première fois des pseudo-bandes de Kikuchi sur un monocristal de GaAs à faible grandissement en utilisant un détecteur d'électrons rétrodiffusés (BSE) (diffusés d'un angle supérieur à  $90^\circ$ ) dans un MEB, l'image acquise est présentée dans la figure I.1. À faible grandissement ( $<100$  fois), l'angle entre le faisceau incident et la normale à la surface de l'échantillon varie. Lorsque cet angle est proche de la condition de Bragg pour une famille de plan donnée, résulte alors une chute de l'intensité des électrons rétrodiffusés (voir figure I.2). Ces variations d'intensité créent un contraste particulier qui s'affiche à l'image BSE de la surface de l'échantillon. Comme le montre la figure on perçoit des bandes pseudo-Kikuchi sur l'image BSE de ce monocristal. Chaque bande repère un plan cristallographique. Ceci montre la dépendance de l'intensité des électrons rétrodiffusés à l'angle d'incidence du faisceau d'électron par rapport aux plans cristallins.

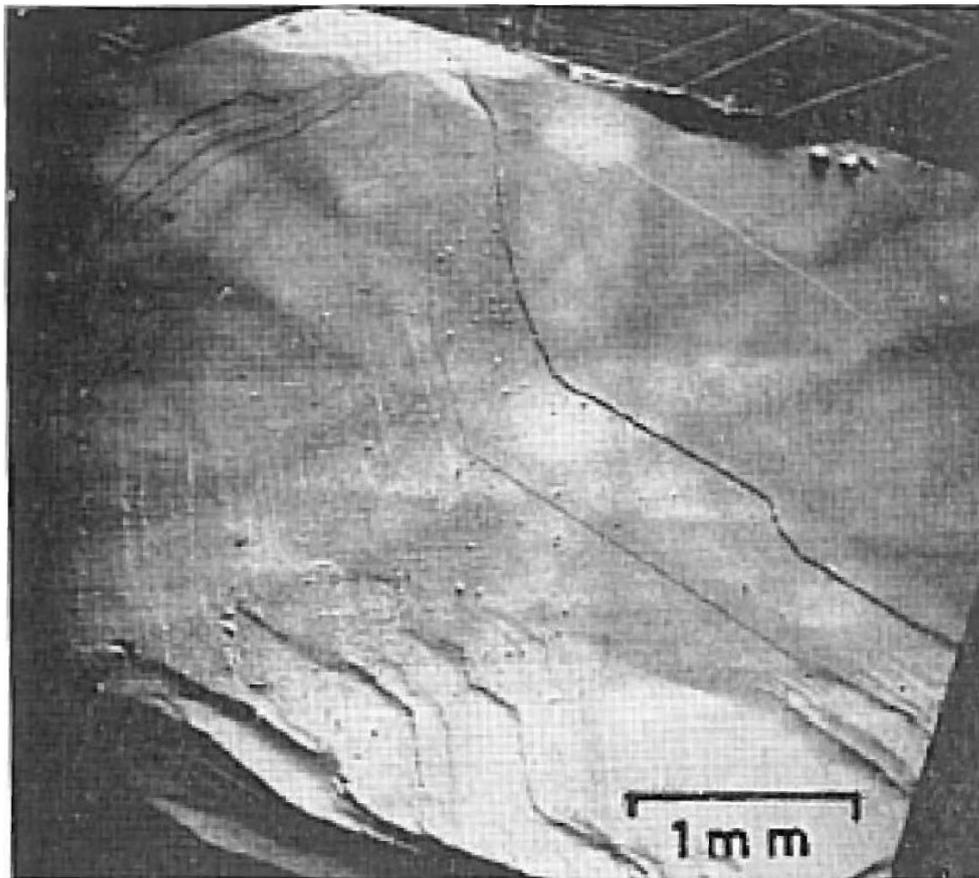


Figure I.1 Cliché ECP acquis pour la première fois sur un monocristal de GaAs orienté près d'un axe de zone  $\{111\}$  [Coates 1967]

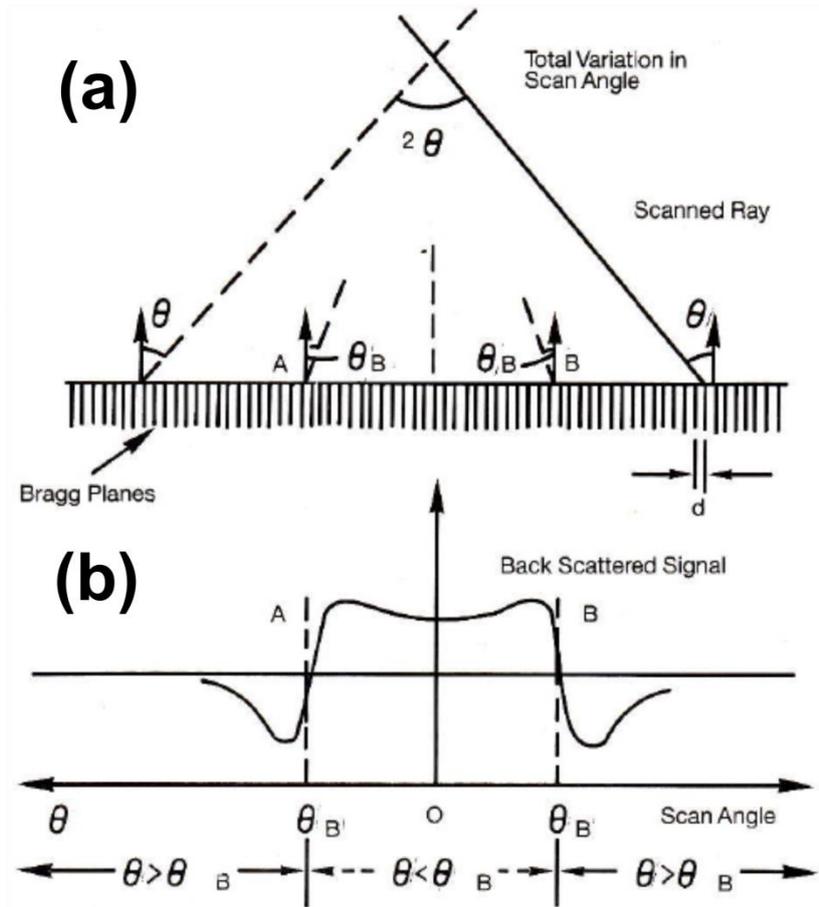


Figure I.2 Illustration de la formation des bandes de Kikuchi à faible grossissement d'après M. Kaczorowski et W.W. Gerberich en 1987 [Kaczorowski 1987]. (a) Faisceau d'électron balayant un monocristal avec un angle d'ouverture  $2\theta$ . (b) Courbe de la variation de l'intensité des électrons rétrodiffusés par rapport à l'angle d'inclinaison du faisceau d'électrons.  $\theta_B$  correspond à l'angle de Bragg.

Le mécanisme responsable de la formation de ces bandes est baptisé "*Canalisation d'électrons*" (*Electron Channeling*). Le cliché obtenu est nommé "Cliché de canalisation d'électron" (*Electron Channeling Patterns-ECP*). La technique est tout de suite reconnue comme un moyen permettant de déterminer l'orientation d'un cristal dans un MEB. Coates prédit en 1967 [Coates 1967] qu'il serait possible d'acquérir le même cliché ECP d'une zone beaucoup plus petite de l'échantillon en faisant une précession du faisceau (*Rocking Beam*) dans deux directions orthogonales autour d'un point pivot sur la surface de l'échantillon. Ceci implique la possibilité d'acquérir un cliché ECP d'un échantillon polycristallin. Cette technique est nommée "*Selected Area Channeling Patterns*" et a été développée quelques années après la découverte des ECP. Elle sera introduite par la suite.

Durant la même année, Booker et al. [Booker 1967] confirment les observations de Coates et proposent une explication au mécanisme de canalisation d'électrons reposant sur les Ondes de Bloch. Ils suggèrent aussi qu'il serait possible d'utiliser ce phénomène pour observer les défauts cristallins (dislocations et sous-joints de grain) dans un échantillon massif au MEB, puisqu'au voisinage d'une condition de Bragg l'intensité des électrons rétrodiffusés varie considérablement en fonction de l'orientation cristallographique. C'est ainsi qu'est née la technique ECCI.

## **I.2 Principe de la canalisation d'électrons**

Le phénomène de canalisation d'électrons a été largement détaillé dans la littérature [Kamaladasa 2010] [Goldstein 1975] [Wilkinson 1997]. Deux approches sont présentées selon la nature assimilée à l'électron : une approche "particule" et une autre "onde". La notion "onde" est préférée pour des analyses quantitatives et est utilisée dans la simulation des bandes de Kikuchi. Par contre, la notion "particule" est plus simple pour expliquer le contraste d'orientation et des défauts cristallins.

### **I.2.1 Approche particule**

Dans cette approche on assimile les électrons à des particules et l'ensemble des points du réseau cristallin à un ensemble de canaux ou chemins. La probabilité de la rétrodiffusion d'un électron dépend de l'angle d'incidence du faisceau d'électron par rapport aux plans réflecteurs dans le cristal. La figure I.3 illustre l'approche particule de la canalisation d'électron d'après D.C. Joy et al. en 1982 [Joy 1982]. Lorsque la trajectoire des électrons est presque parallèle aux plans d'une famille réflectrice (hkl) du réseau cristallin, ils sont susceptibles de pénétrer en profondeur dans le matériau avant d'être diffusés. Par contre, quand ils possèdent un angle important avec les plans (hkl), le taux des électrons rétrodiffusés augmente considérablement.

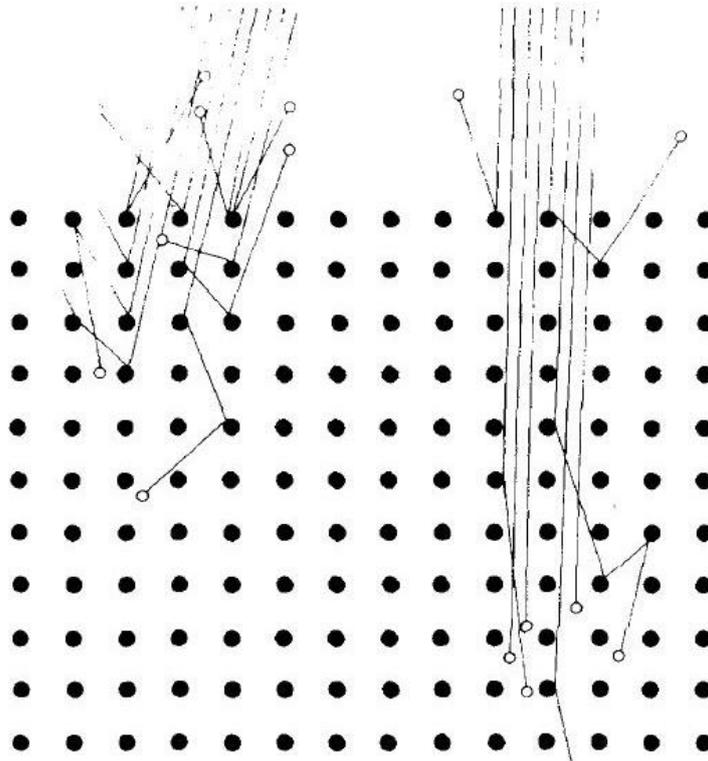


Figure I.3 Illustration de l'approche particule de la canalisation des électrons [Joy 1982]

## I.2.2 Approche ondes de Bloch

D'après Felix Bloch [Bloch 1928], les ondes de Bloch sont des ondes planes modulées par une fonction de la même périodicité que le réseau cristallin. Elles traversent le cristal avec la même périodicité que le réseau en ayant un front d'onde parallèle à la surface du cristal. Le carré de l'amplitude de l'onde de Bloch, en n'importe quel point, représente la probabilité de trouver un électron en ce point.

D'après le modèle donné par Booker et al. [Booker 1967], l'onde incidente d'électrons est décrite par la superposition de plusieurs ondes de Bloch. Cette description repose sur la théorie de la diffraction dynamique développée par Howie et Whelan en 1962 [Howie 1962] qui décrit les effets de diffraction des électrons transmis à travers une lame mince.

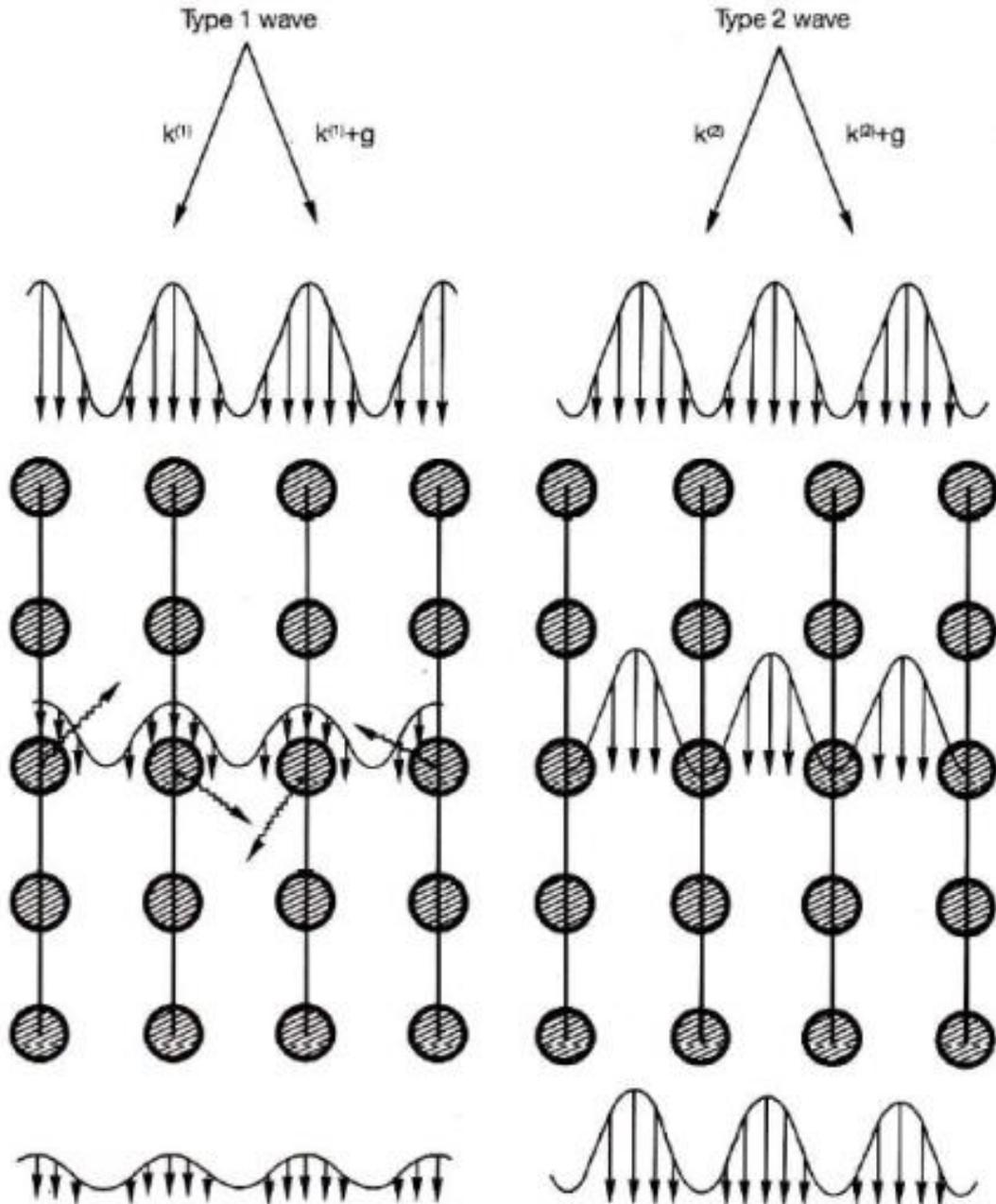


Figure I.4 Illustration de l'approche "Ondes de Bloch" de la canalisation des électrons d'après M. Kaczorowski et W.W. Gerberich en 1987 [Kaczorowski 1987]

En 1965, Hirsch et al. [Hirsch 1965] interprètent la canalisation des électrons par les ondes de Bloch. Ils prennent en considération le cas le plus simple correspondant à la condition de Bragg d'un plan réflecteur quelconque. D'autres chercheurs ont eu la même interprétation (Onde de Bloch) comme E. M. Schulson en 1977 [Schulson 1977]. Ils décrivent le passage des électrons à travers le cristal par la superposition de deux ondes de Bloch : type I et type II. L'onde de type I et celle de type II présentent respectivement un maximum et un minimum d'intensité au niveau des atomes qui forment le réseau cristallin (voir figure I.4). Les électrons

correspondants aux ondes de Bloch de type I ont une forte probabilité de se trouver au voisinage du noyau d'un atome, par conséquent, il est plus probable qu'ils soient rétrodiffusés. En revanche, les électrons décrits par l'onde de Bloch de type II ont une forte probabilité de se trouver loin des atomes et donc ne sont quasiment pas rétrodiffusés et pénètrent en profondeur dans le cristal.

La constitution des électrons en fonction des deux types d'onde de Bloch I et II dépend du paramètre de déviation de la condition de Bragg noté  $s$ , c-à-d la déviation du faisceau d'électrons incident par rapport à l'angle de Bragg. Quand  $s=0$  ( $\theta=\theta_B$ ), les électrons incidents seront divisés équitablement entre les deux types d'ondes de Bloch : I et II. À  $s<0$  ( $\theta < \theta_B$ ), les ondes de Bloch de type I sont préférentiellement excitées. En revanche à  $s>0$  ( $\theta>\theta_B$ ), les ondes de Bloch de type II deviennent préférentiellement excitées. Ceci est illustré dans la figure 4 d'après M. Kaczorowski et W. W. Gerberich [Kaczorowski 1987] où on voit les deux types d'ondes de Bloch I et II entrer en interaction avec un réseau périodique d'atome.

En se basant sur les conditions précédentes, on peut expliquer le contraste observé dans les clichés ECP. Dans la figure 2.a, on considère un réseau monocristallin positionné de manière à avoir une famille de plans réflecteurs (plans de Bragg) au voisinage de la condition de Bragg  $\theta=\theta_B$  (condition deux ondes) par rapport au faisceau incident. En balayant la surface de l'échantillon à faible grandissement, l'angle d'incidence du faisceau d'électrons change, et par conséquent le paramètre de déviation  $s$  aussi. Le profil d'intensité des électrons rétrodiffusés par rapport à l'angle  $\theta$  est aussi tracé sur la figure I.2.b. Quand  $\theta<\theta_B$  ( $s<0$ ), les ondes de type I sont majoritaires, donc on aura une forte intensité d'électrons rétrodiffusés d'où la formation d'une bande brillante de largeur égale à deux fois l'angle de Bragg du plan (hkl) réflecteur correspondant. À  $\theta=\theta_B$  ( $s=0$ ) (ondes de Bloch de types I et II), l'intensité chute rapidement tout en gardant un faible nombre d'électrons rétrodiffusés. À  $\theta>\theta_B$  ( $s>0$ ), les ondes de type II seront majoritaires, ce qui va se traduire par une très faible intensité des électrons rétrodiffusés et de leur pénétration en profondeur dans le cristal. Ceci constitue la ligne de la bande de Kikuchi et correspond à la condition de canalisation d'électrons.

Des théories développées par Hirsch et Humphreys [Hirsch 1970], Vicario et al. [Vicario 1971], Spencer et al. [Spencer 1972] et Sandström et al. [Sandström 1974] ont été utilisées pour expliquer la canalisation des électrons en prenant en compte multiple ondes de Bloch. Ces résultats ont été utilisés par la suite pour simuler les clichés de Kikuchi par Rossouw et al.

[Rossouw 1994] et plus récemment par A. Winkelmann et al. [Winkelmann 2007] et Y. N. Picard et al. [Picard 2014].

### I.3 Paramètre de déviation $s$ et condition de canalisation

Le paramètre de déviation  $s$  joue un rôle important dans l'établissement des conditions de canalisation. La figure I.5 montre l'intensité des électrons rétrodiffusés en fonction du paramètre  $s$ , d'après S. Zeafferer et N. N. Elhami [Zeafferer 2014]. En effet, le point  $s=0$  (condition de Bragg) ne correspond ni à la condition de canalisation ni au point d'inflexion de la courbe. Le point de la canalisation des électrons (ligne de la bande de Kikuchi) correspond à un minimum d'intensité d'électrons rétrodiffusés à  $s>0$ . La courbe à droite de la figure I.5 ne représente qu'une moitié du profil typique d'une bande de Kikuchi.

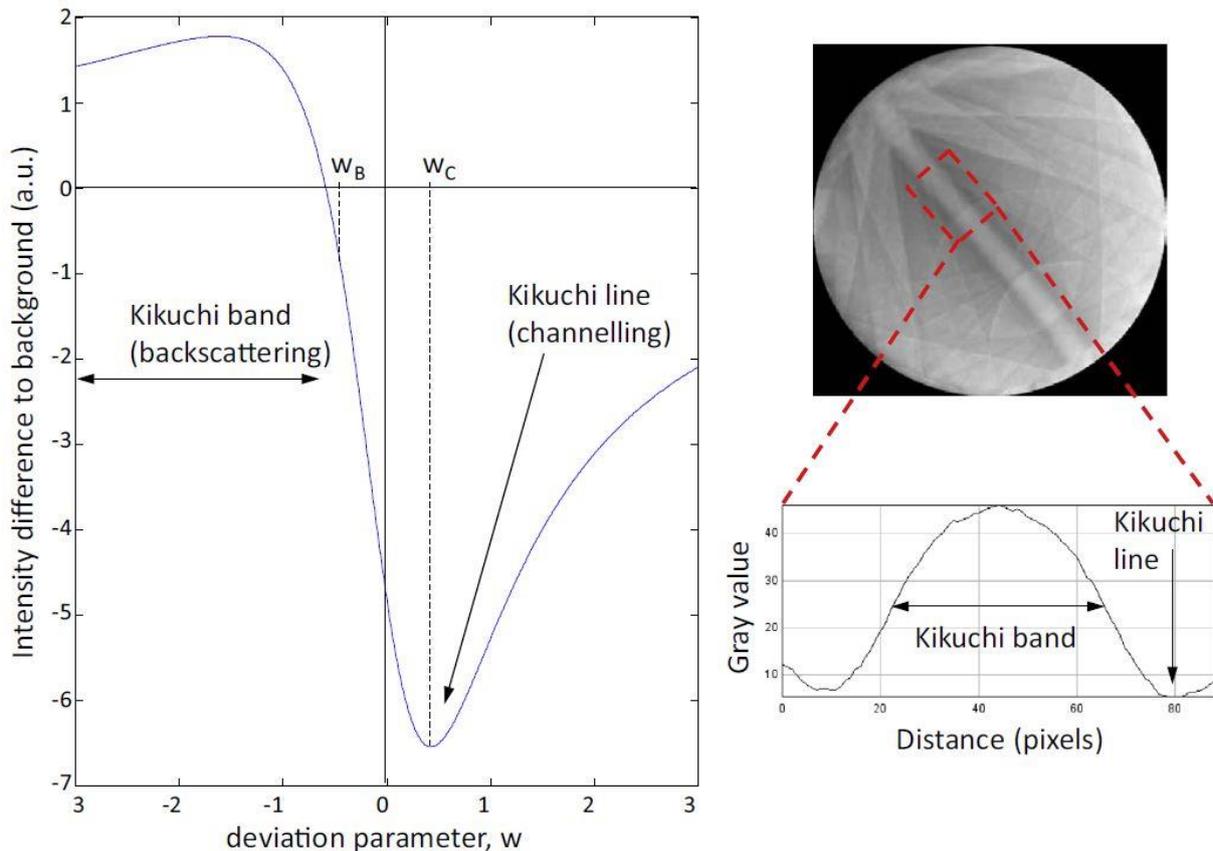


Figure I.5 Courbe de l'intensité des électrons rétrodiffusés en fonction du paramètre déviation  $s$  [Zeafferer 2014]

Il convient de noter que la largeur d'une bande de Kikuchi est directement proportionnelle à l'angle de Bragg et à la longueur d'onde  $\lambda$  du faisceau incident. Elle est donnée par la formule de Bragg:

$$n\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta_{hkl} \quad (\text{I.1})$$

$d_{hkl}$  est la distance interréticulaire du plan (hkl),  $\theta_{hkl}$  est l'angle de Bragg du plan (hkl), n ordre de diffraction (nombre entier).

La largeur angulaire d'une bande de Kikuchi d'un plan (hkl) est égale à  $2\theta_{hkl}$ .

## **I.4 Configuration expérimentale de l'ECCI : *High tilt* et *Low tilt***

Il existe deux configurations expérimentales de la technique ECCI :

Une configuration *high tilt* dans laquelle l'échantillon est incliné à plus que  $40^\circ$  où on utilise un détecteur des électrons rétrodiffusé rétractable (ForeScattered electron Detector : FSD) qui s'insère en face de l'échantillon (voir figure I.6). De nos jours, le détecteur FSD est combiné à la caméra EBSD (Electron Backscattered Diffraction) sous forme de diodes à son extrémité.

Une configuration *low tilt* qui consiste à utiliser un détecteur des électrons rétrodiffusés (rétractable ou pas) positionné sous la pièce polaire du MEB (BackScattered electron Detector : BSD). L'échantillon est ainsi étudié à basse inclinaison.

Les deux configurations *high tilt* et *low tilt* ont été utilisées depuis les années 1970 pour l'imagerie du contraste de canalisation des électrons. La configuration *high tilt* était plus utilisée car elle permettait d'avoir un signal FSE (ForeScattered Electrons) plus important et donc de minimiser les problèmes signal/bruit. Pitaval et al. [Pitaval 1977] et Morin et al. [Morin 1979] ont utilisé cette configuration en inclinant la normale de l'échantillon de  $50^\circ$  à  $70^\circ$  par rapport au faisceau d'électrons (voir figure I.6). Un filtre d'énergie a été ajouté pour ne garder que les électrons rétrodiffusés à haute énergie, améliorant ainsi le signal et le contraste de canalisation d'électrons [Sandström 1974].

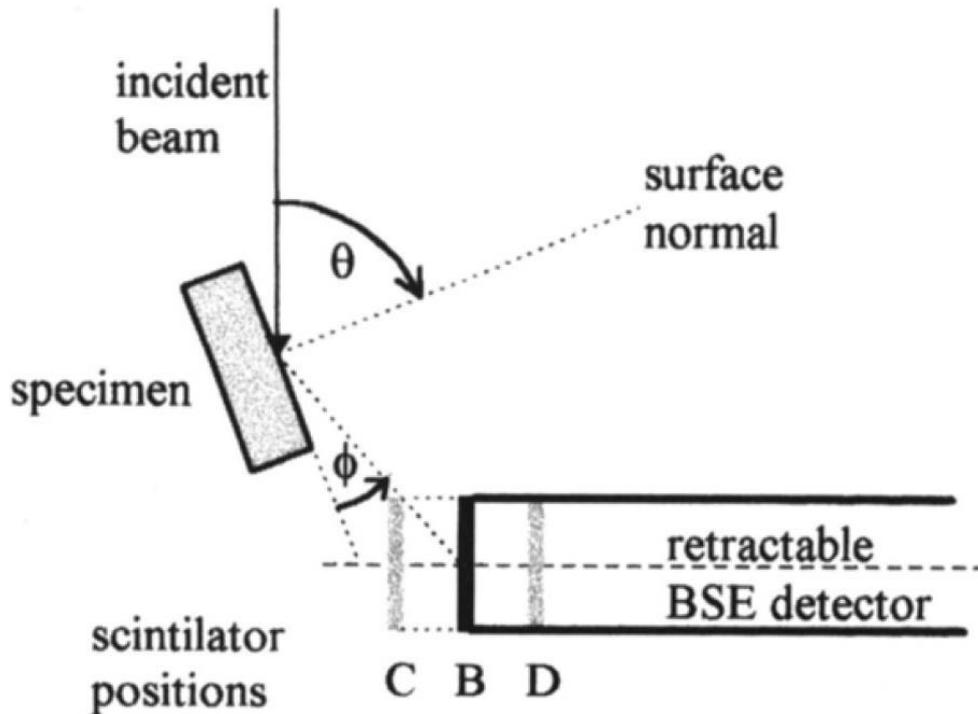


Figure I.6 Configuration *high tilt* pour l'ECCI [Wilkinson 1997]

À partir de 1993, le détecteur FSD en configuration *high tilt* a été intégré dans une caméra EBSD, par Day, A. [Day 1993]. Il a été appelé par la suite Forward-Scatter Detector (FSD). Il est constitué de trois diodes en silicium situées dans la partie inférieure de la caméra EBSD.

En 1998, B.A Simkin et M.A. Crimp [Simkin 1999] démontrent que la configuration *low tilt* est meilleure en imagerie malgré le fait d'avoir moins de signal BSE que la configuration "high tilt". Ils ont comparé les deux configurations dans les mêmes conditions expérimentales en utilisant un porte-échantillon spécial. La configuration *low tilt* est réalisée en utilisant un détecteur BSE (4 diodes en silicium) située sous la pièce polaire du MEB. La figure I.7 illustre ces deux configurations avec le même porte-échantillon.

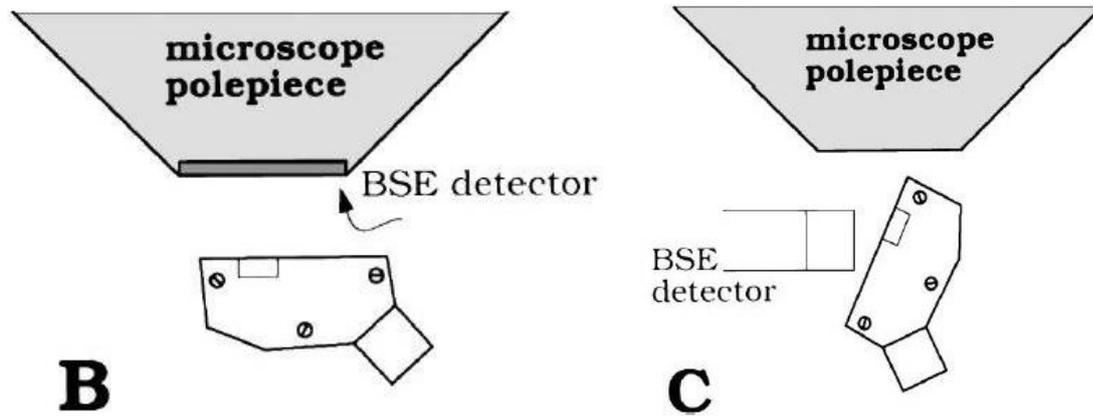


Figure I.7 Configuration expérimentale utilisant un porte-échantillon permettant d'alterner entre basse et haute inclinaison [Simkin 1999]

La figure I.8 contient deux images en électrons rétrodiffusés (BSE : figure I.8.A et FSE : figure I.8.B) et deux clichés ECP, l'un acquis en *low tilt* (figure I.8.C) et l'autre en *high tilt* (figure I.8.D) [Simkin 1999]. Ces images ont été acquises dans la même zone de l'échantillon. Ceci a permis de prouver que les images ECCI et cliché ECP sont de meilleure qualité en *low tilt* qu'en *high tilt*. L'un des facteurs qui cause cette différence est l'augmentation de la convergence du faisceau d'électrons en configuration *high tilt* ce qui rend l'observation des dislocations plus difficiles. Ils ont noté de plus que les images en *high tilt* sont très sensibles à la topographie de l'échantillon à cause de la géométrie de la configuration (Inclinaison). S.Zeaferer et N. N. Elhami [Zeaferer 2014] ont aussi observé un net avantage pour la configuration *low tilt*.

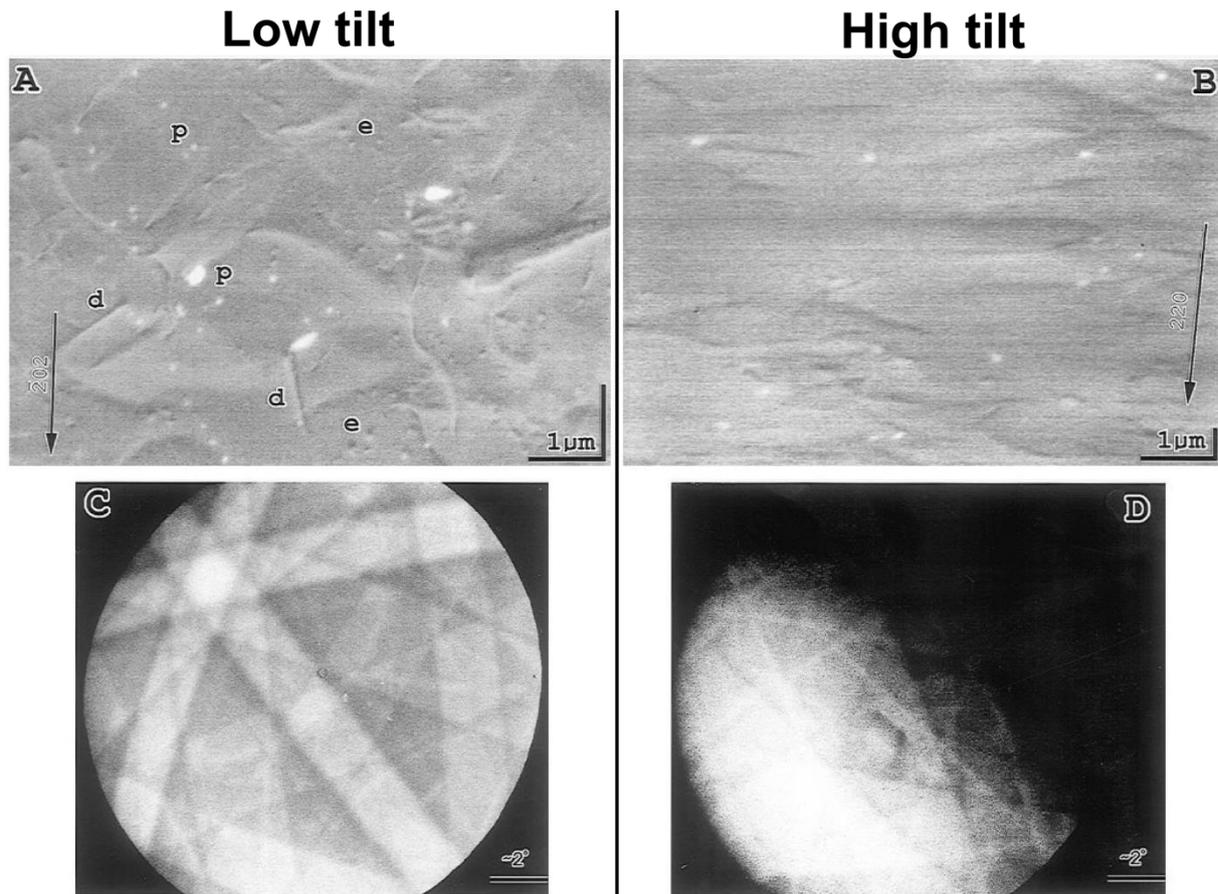


Figure I.8 Comparaison entre les images ECCI et cliché ECP acquises en *low tilt* et *high tilt* [Simkin 1999]

## I.5 Établissement des conditions de canalisation d'électrons

Afin d'utiliser la technique ECCI d'une manière efficace pour des études fines (caractérisation de dislocation...), il est important de bien contrôler les conditions de canalisations, c-à-d orienter de façon précise le faisceau d'électrons incident en conditions de canalisation par rapport à une famille de plans réflecteurs du cristal ciblé. La figure I.9 est un schéma simplifié illustrant l'établissement des conditions de canalisation d'une manière générale au MEB. Il est réalisé en bougeant l'échantillon en rotation et en inclinaison de manière à placer le faisceau incident sur le bord d'une bande de Kikuchi d'un plan réflecteur, de sorte à satisfaire une déviation  $s > 0$ , comme indiqué sur la figure. La croix sur la figure représente l'orientation du cristal par rapport au faisceau incident (axe optique du MEB). Il faut donc la placer sur le bord de la bande (hkl) sélectionnée (à  $s > 0$ ) pour se mettre en condition de canalisation. Ceci nécessite une très grande précision angulaire du cristal par rapport au faisceau incident, d'au moins  $0,1^\circ$  [Wilkinson 1997].

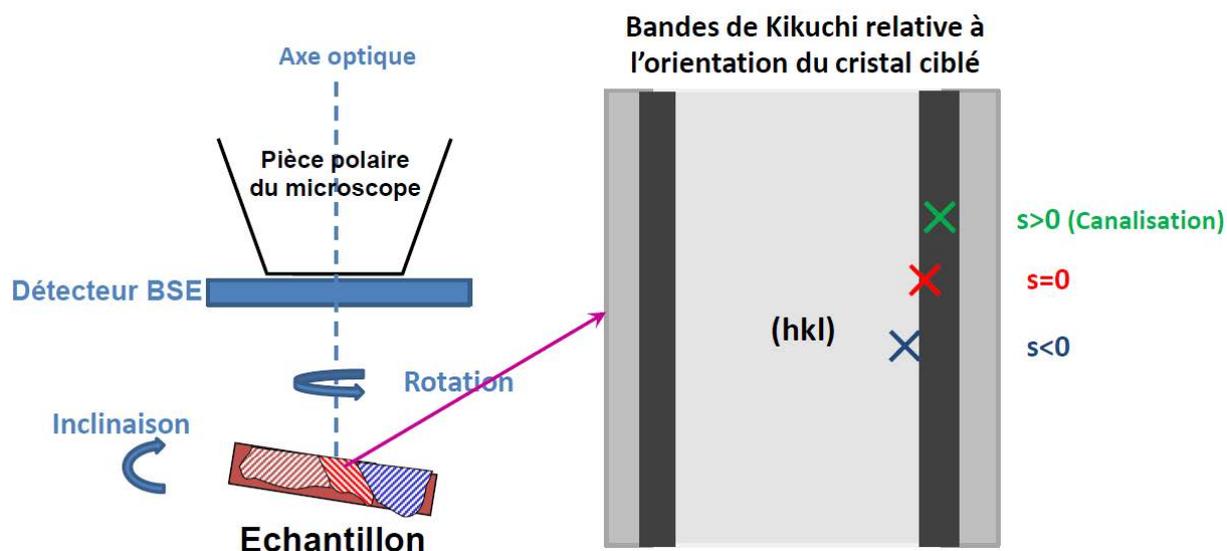


Figure I.9 Établissement des conditions de canalisation en contrôlant le paramètre de déviation  $s$ .

Il est nécessaire pour contrôler les conditions de canalisation, de visualiser les bandes de Kikuchi directement ou bien indirectement par le biais d'une simulation. Il faut donc d'abord déterminer l'orientation cristallographique du cristal ciblé par rapport au faisceau incident. Ils existent trois techniques au MEB permettant de le faire: il s'agit de l' « *Electron Channeling Pattern* » l'ECP, le "*Selected Area Channeling Patterns (SACP)* " et la technique « *Diffractions des électrons rétrodiffusés* » (*Electron Backscatter Diffraction*) (EBSD).

### I.5.1 Electron Channeling Patterns (ECP)

La technique *Electron Channeling Patterns* (ECP) a déjà été introduite dans ce chapitre. Il s'agit des clichés de Kikuchi obtenus en très faible grandissement grâce au balayage du faisceau électronique sur un monocristal. Les clichés ECP sont recueillis par un détecteur d'électrons rétrodiffusés. Du fait de la nécessité de ce balayage sur une large zone, la technique ECP possède une résolution spatiale de plusieurs millimètres. Ceci implique de ne travailler que sur des monocristaux ou sur de très gros grains ( $>2\text{mm}$ ) si on veut éviter des clichés flous à cause de la superposition. Par contre, l'ECP possède une bonne précision angulaire de l'ordre de  $0,1^\circ$  suffisante pour bien contrôler les conditions de diffraction nécessaires à l'ECCI [Wilkinson 1997]. Elle permet de sélectionner la condition de diffraction directement en positionnant le cristal ciblé (en rotation et en inclinaison) et en observant directement les clichés ECP. Il suffit de se positionner au bord de la bande de la famille de plans réflecteurs souhaités (figure I.9 et I.10.b).

Quelques années après l'observation des ECP, Clark en 1971 [Clark 1971] et Stern en 1972 [Stern 1972] publient des images ECCI de dislocations sur des lames minces en transmission en utilisant le MEB dans sa configuration standard avec le détecteur FSE. En 1987, Geoffrey E. Lloyd [Lloyd 1987] a utilisé l'ECCI assisté par l'ECP pour étudier et visualiser des sous joints de grain sur des minéraux. Cette dernière décennie, l'utilisation de l'ECCI assisté par l'ECP a augmenté, surtout pour étudier les défauts cristallins dans des matériaux monocristallins comme des semi-conducteurs [Trager-Cowan 2007] [Naresh-Kumar 2012] [Kamaladasa 2011]. Par exemple, Trager et al. [Trager-Cowan 2007] ont observé les marches atomiques et les dislocations traversantes dans GaN. En 2012 [Naresh-Kumar 2012], ils ont réussi à identifier les vecteurs de Burgers des dislocations traversantes en utilisant l'ECCI assisté par l'ECP (voir figure I.10) en configuration *high tilt*.

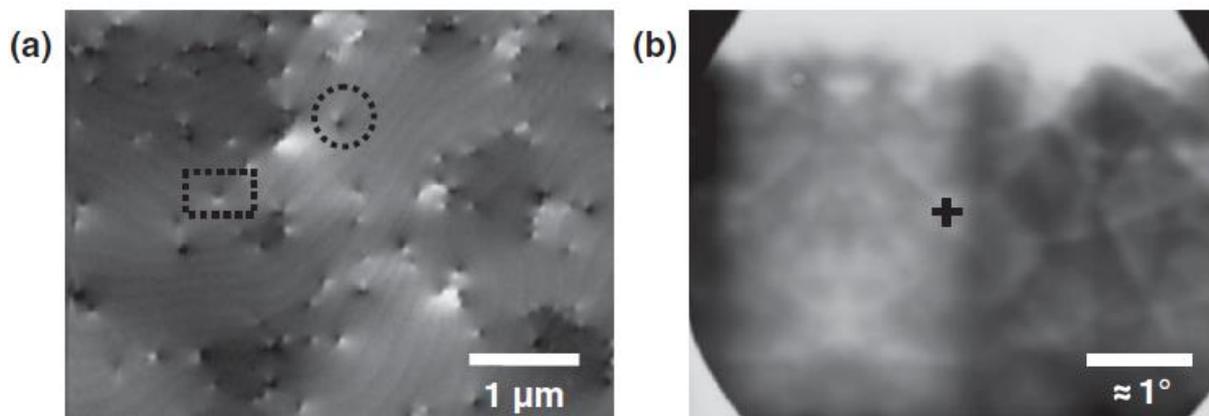


Figure I.10 Observation des marches atomiques et caractérisation des dislocations traversantes dans GaN en utilisant l'ECCI assisté par ECP. (a) Image ECCI des marches atomiques et dislocations traversantes dans GaN: le cercle et le rectangle discontinu entourent respectivement une dislocation vis et coin (b) cliché ECP [Naresh-Kumar 2012]

## I.5.2 Selected Area Channeling Patterns (SACP)

Le *Selected Area Channeling Patterns* (SACP) est un cliché ECP acquis d'une zone réduite grâce à un mode de balayage appelé précession du faisceau ou *Rocking Beam* (RB). Le premier mode RB a été développé en 1969 par C.G. Van Essen et E.M. Schulson [Van Essen 1969] afin de combler la limitation de la résolution spatiale de la technique ECP. Ceci a été réalisé en s'inspirant de la technique *Rocking Beam* qui existait déjà au MET. Dans le MEB utilisé par C.G. Van Essen et E.M. Schulson, le mode de balayage standard est réalisé en défléchissant le faisceau dans la colonne électronique dans deux directions perpendiculaires l'une par rapport à l'autre à l'aide de deux bobines de balayages (voir figure I.11.a) de manière

à avoir un "cross-over" avant la lentille finale. En jouant sur le courant de ces deux bobines le cross-over a été déplacé au niveau de la surface de l'échantillon (voir figure I.11.b) afin de réaliser le RB. Cette méthode est connue sous le nom de la Déflexion Double. La résolution spatiale du cliché SACP a été estimée entre 50 $\mu$ m et 100 $\mu$ m.

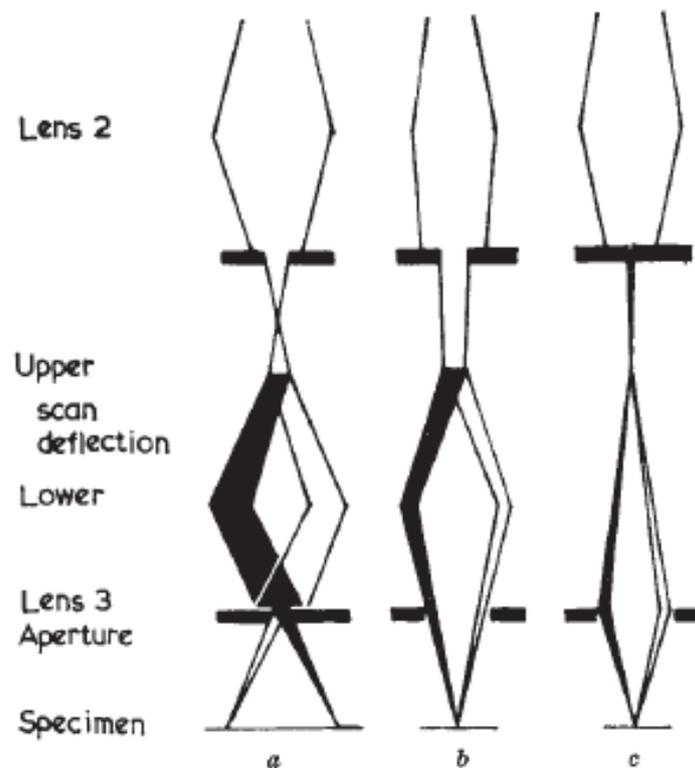


Figure I.11 (a) Mode de balayage standard. Le mode Rocking Beam en utilisant (b) la méthode de la déflexion double et (c) la méthode de la déflexion focale. [Van Essen 1970]

La figure I.12.a est un schéma explicatif du RB et de l'acquisition du cliché SACP. Il s'agit d'incliner le faisceau incident selon deux axes perpendiculaires l'un par rapport à l'autre (l'angle  $\alpha$  et  $\beta$ ) en focalisant le faisceau sur le même point de la surface de l'échantillon. À chaque inclinaison du faisceau incident correspond un pixel sur le cliché SACP traduisant l'intensité des électrons rétrodiffusés (niveau de gris). La figure I.12.b est un exemple de cliché SACP acquis sur un MEB TESCAN [Dluhos 2012]. La croix au centre du cliché correspond au faisceau non incliné, c'est à dire qu'il correspond à l'axe optique du microscope (trait discontinu dans la figure I.12.a).

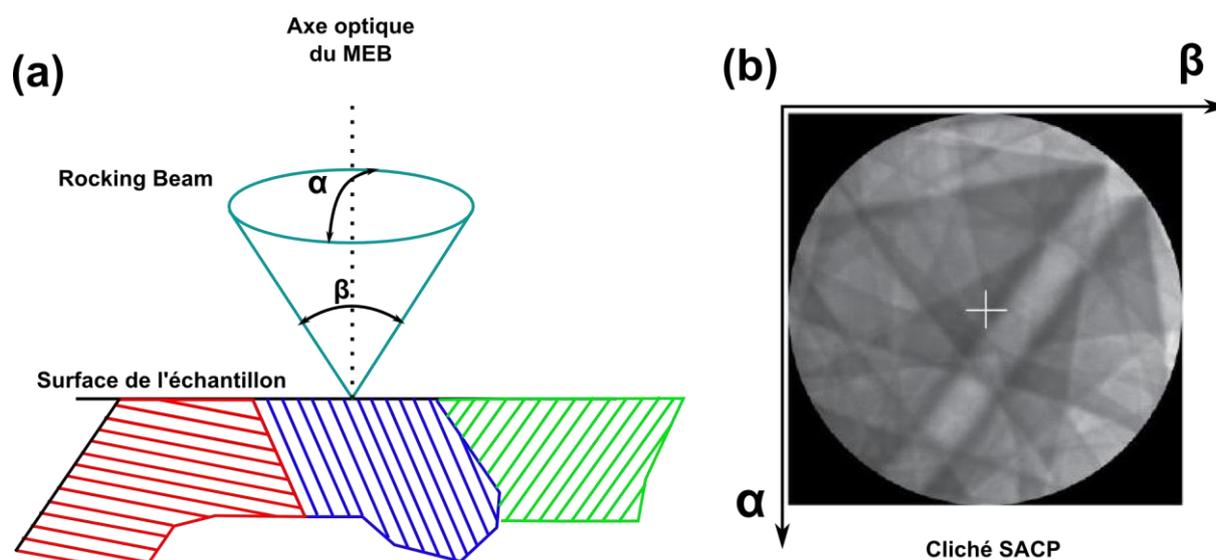


Figure I.12 (a) Principe du mode de balayage RB et acquisition du (b) cliché SACP [Dluhos 2012]

Théoriquement le RB est réalisé sur un point de la surface de l'échantillon mais expérimentalement ce n'est pas le cas à cause des aberrations sphériques et des imprécisions dans la focalisation du faisceau à la surface de l'échantillon. Le cliché est donc collecté à partir d'un certain volume (disque sur la surface). Cette surface représente la résolution spatiale de la technique et donc du cliché SACP. La résolution angulaire du SACP est tout comme l'ECP d'environ  $0,1^\circ$  [Wilkinson 1997].

Le paramètre "ouverture angulaire" du *Rocking beam* est l'angle maximal d'inclinaison du faisceau incident par rapport à l'axe optique du microscope. Il est aussi l'angle d'ouverture du cliché SACP et est généralement le même sur les deux axes d'inclinaison ( $\alpha = \beta$ ).

Le principal facteur qui fait que la résolution spatiale réelle soit loin de celle attendue, sont liés au fait que le point du RB n'est pas en coïncidence avec la surface de l'échantillon, comme illustré dans la figure I.13.a. De plus, les aberrations sphériques dans la lentille objectif écartent le faisceau du point du RB (figure I.13.b). La figure I.13.c illustre le RB en corrigeant les problèmes de focalisation et d'aberrations sphériques.

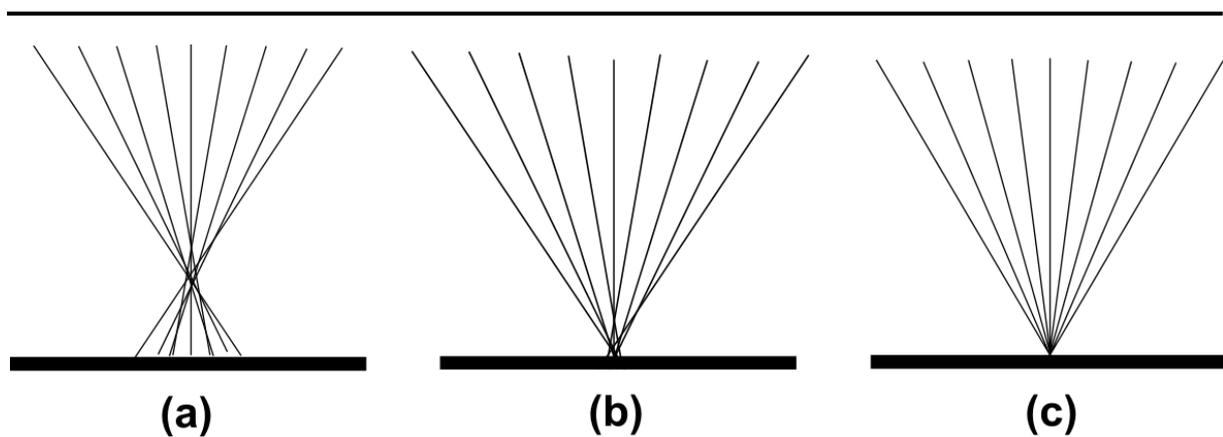


Figure I.13 Rocking beam (a) non focalisé sur surface (b) focalisé sur surface (c) focalisé avec des corrections dynamiques des aberrations sphériques.

Le RB a été amélioré par la suite à différentes reprises. D'abord en 1970, par C. G. Van Essen et al. [Van Essen 1970], qui, en effectuant des corrections d'astigmatisme et d'aberration sphérique, sont passés à une résolution spatiale de  $10\mu\text{m}$ . La méthode utilisée est nommée la méthode de la Déflexion Focale. Dans cette technique, le faisceau d'électron est défléchi en utilisant une seule bobine de balayage ainsi que la lentille objectif. La deuxième bobine de balayage est désactivée (voir figure I.11.c).

Ensuite en 1972, D. C. Joy et D. E. Newbury [Joy 1972] ont amélioré la technique en focalisant le faisceau d'électrons dynamiquement afin de garder le point *cross-over* le plus stable possible. La résolution spatiale est nettement améliorée, ils l'ont estimé entre 1 et  $2\mu\text{m}$ .

Avec le développement des techniques d'analyses microstructurales au MEB, comme l'EBSA qui a une meilleure résolution spatiale ( $\approx 50\text{nm}$ ) et une vitesse d'acquisition pouvant atteindre 1600 points par seconde, l'utilisation du RB a disparu petit à petit des MEB sauf quelques exceptions.

Actuellement, seule la compagnie Tescan continue d'équiper ces MEB d'un mode de balayage RB [Simkin 1999] [Dluhos 2012]: avec une résolution spatiale d'environ  $20\mu\text{m}$  et une ouverture angulaire d'environ  $20^\circ$ . La figure I.14 illustre le mode de balayage RB dans un TESCAN MIRA et montre un exemple de cliché SACP acquis sur un monocristal de silicium avec une ouverture angulaire de  $22^\circ$ . Le faisceau d'électron est défléchi à plusieurs reprises dans la colonne en utilisant les deux bobines de balayages et la lentille objective afin de réaliser la précession. Une correction dynamique des aberrations sphériques est appliquée pour améliorer la résolution spatiale et la qualité du cliché SACP.

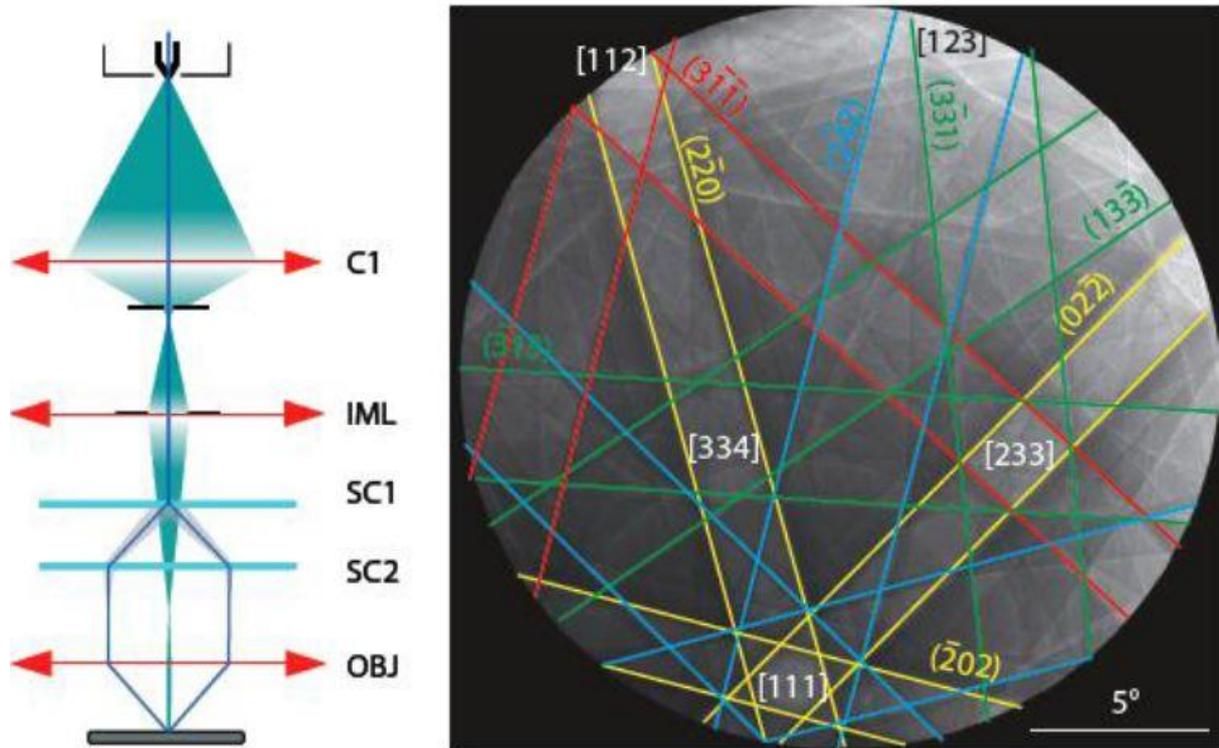


Figure I.14 Schéma de la configuration du mode Rocking Beam dans le MEB à émission de champ TESCAN MIRA [Dluhos 2012]. Cliché SACP acquis d'un monocristal de silicium avec une ouverture angulaire de 22°.

### I.5.3 Electron BackScattered Diffraction (EBSD)

L'EBSD [Maitland 2007] [Schwazer 2008] est une technique au MEB qui permet d'obtenir des informations microstructurales quantitatives à propos de la nature cristallographique de la plupart des matériaux cristallins (métaux, minéraux, semi-conducteurs, céramiques). Elle détermine l'orientation cristallographique, la taille des grains, les joints de grain, la texture et les différentes phases du matériau.

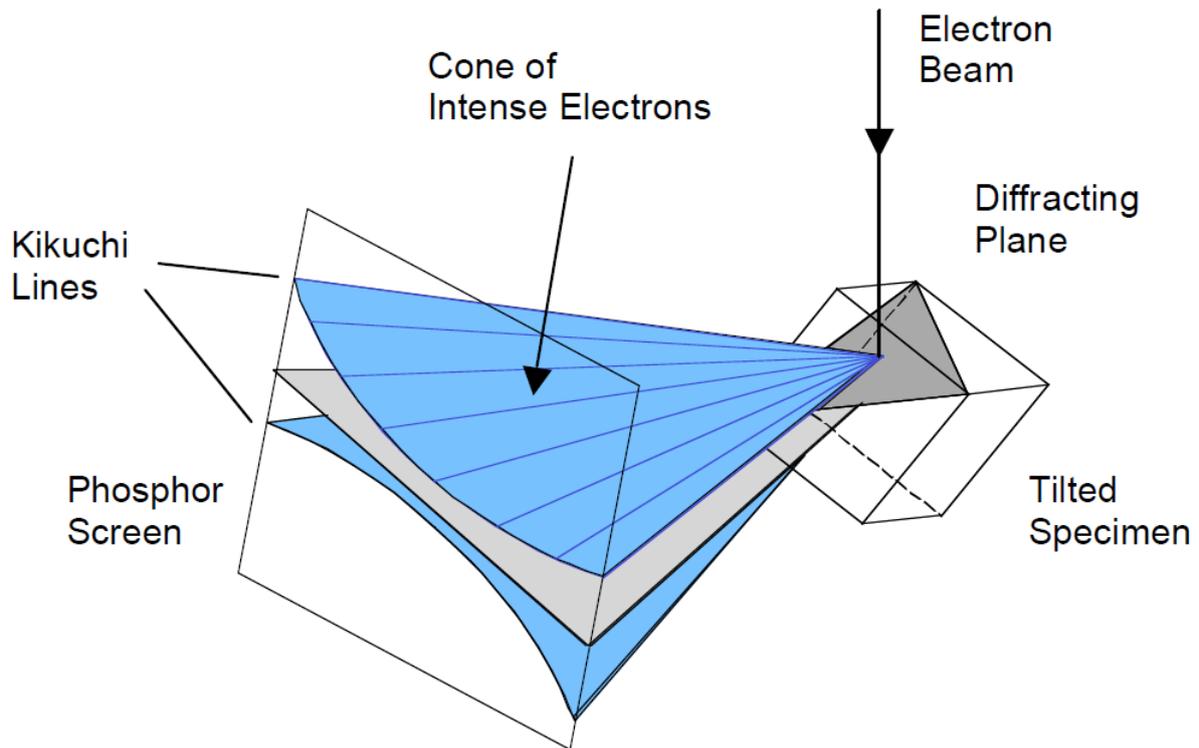


Figure I.15 Schéma simplifié du principe de la formation des bandes de Kikuchi en EBSD. [Schwazer 2008]

La configuration expérimentale de l'EBSA nécessite une inclinaison de  $70^\circ$  de l'échantillon poli, c'est-à-dire  $20^\circ$  entre le faisceau incident et la surface de l'échantillon. Le faisceau d'électrons bombarde ensuite la surface et interagit avec la matière provoquant la réémission de plusieurs types d'électrons à partir d'un point source (électrons secondaires, électrons rétrodiffusés, électrons Auger). La technique EBSD se base sur la diffraction des électrons rétrodiffusés sur des plans cristallins réflecteurs du cristal. Cette diffraction se fait selon deux cônes, dits cône de Kossel. L'intersection des cônes de Kossel avec un écran phosphore positionné devant l'échantillon génère des lignes, appelées bandes de Kikuchi (voir figure I.15). Ces lignes sont projetées des plans cristallins donnant ainsi une information directe sur la structure cristalline et l'orientation cristallographique du cristal. L'acquisition des clichés de Kikuchi par le détecteur (Caméra EBSD) peut atteindre environ 1600 points/seconde. Ce qui en fait l'une des techniques d'analyse microstructurales les plus rapides. L'EBSA a une bonne résolution spatiale: cela dépend du matériau et de la tension d'accélération (environ 50 nm sur un acier à 20kV). Elle a aussi une bonne précision angulaire d'environ  $0,05^\circ$  (Système Oxford Instruments) [Thomsen 2013]. En revanche, elle est limitée en résolution angulaire absolue, c'est-à-dire l'orientation du cristal par rapport à l'axe optique du microscope [Wilkinson 1997].

Elle est de l'ordre de  $1^\circ$  à  $2^\circ$  dans les systèmes EBSD conventionnels. C'est loin des  $0,1^\circ$  nécessaire à l'établissement des conditions de canalisation de l'ECCI.

L'EBSD permet donc d'acquérir les bandes de Kikuchi et d'avoir l'orientation cristallographique du cristal étudié. Par contre, elle ne peut être appliquée qu'en inclinant l'échantillon à  $70^\circ$ . Elle ne permet pas l'observation directe des bandes de Kikuchi en configuration *low tilt*. Il faut donc les simuler à partir de l'orientation mesurée afin de contrôler les conditions de canalisation.

Récemment en 2009 Gutierrez-Urrutia et al. [Gutierrez-Urrutia 2009] [Gutierrez-Urrutia 2013] ont mis au point une nouvelle configuration pour l'ECCI intitulée cECCI (controlled ECCI) permettant de contrôler les conditions de canalisation. Cette technique utilise la haute résolution spatiale de l'EBSD afin de déterminer l'orientation cristallographique du cristal ciblé pour l'étude des défauts cristallins par ECCI. Des simulations des bandes de Kikuchi [Zaefferer 2000] sont ensuite utilisées pour établir les conditions de canalisation en inclinant et en tournant l'échantillon (voir figure I.16.c). Cependant, l'établissement des conditions de canalisation manque de précision avec le cECCI et n'atteint pas les  $0,1^\circ$  de précision angulaire absolue nécessaire à l'ECCI. En utilisant une procédure stricte d'alignement et de calibration de la platine du MEB et du système EBSD, S. Zaefferer et al. [Zaefferer 2014] [Gutierrez-Urrutia 2009] [Gutierrez-Urrutia 2013] arrive à une précision angulaire absolue d'environ  $0,5^\circ$ .

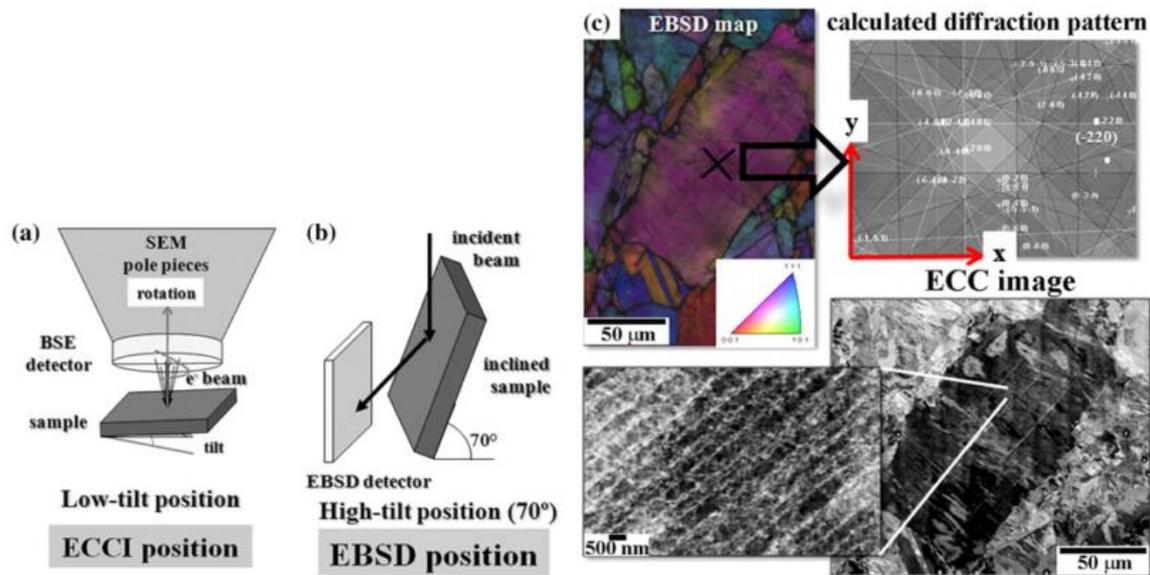


Figure I.16 (a-b) Configuration expérimentale de la technique cECCI. (c) Explication du mode opératoire de la technique afin de contrôler les conditions de canalisation [Gutierrez-Urrutia 2013].

Gutierrez-Urrutia et al. [Gutierrez-Urrutia 2009] [Gutierrez-Urrutia 2013] [Gutierrez-Urrutia 2012] ont utilisé le cECCI pour déterminer la densité de dislocation dans des aciers TWIP et micrographier des défauts cristallins: dislocations, fautes d'empilement, bandes de glissement, joints de grains et nano-macles.

## I.6 Imagerie des défauts cristallins par ECCI

Le MET a été longtemps considérée comme un unique et excellent moyen pour étudier les défauts cristallographiques et leurs arrangements dans différents matériaux après traitements thermiques et/ou mécaniques. En 1967, Booker et al. [Booker 1967] ont prévu qu' « il serait possible d'utiliser les MEB pour détecter et caractériser les dislocations d'une manière directe ». Ceci a pris plus que 20 ans avant que la technique ECCI ait été appliquée avec succès pour la caractérisation des défauts cristallins individuels. Ceci n'a été rendu possible qu'à partir du développement des MEB haute résolution (HR-SEM) équipés d'un canon à émission de champ (FEG-SEM) permettant d'obtenir une imagerie haute résolution s'approchant de plus en plus de celle du MET. Grâce à l'ECCI le MEB a pu empiéter sur le domaine de l'observation et la caractérisation des défauts cristallins réservées jusqu'alors au MET.

L'ECCI a été utilisé pour étudier différents défauts cristallins comme les dislocations, défauts d'empilements, bandes de glissement et nano-macles.

En se mettant en conditions de canalisation on peut dévoiler l'existence de ces défauts. En effet, en canalisation la plupart des électrons pénètrent en profondeur du cristal et très peu sont rétrodiffusés. En revanche, la présence de défauts cristallins, comme une dislocation, modifie l'alignement quasi-parfait des atomes perturbant cette canalisation et augmentant considérablement l'intensité d'électron rétrodiffusés dévoilant ainsi leur présence.

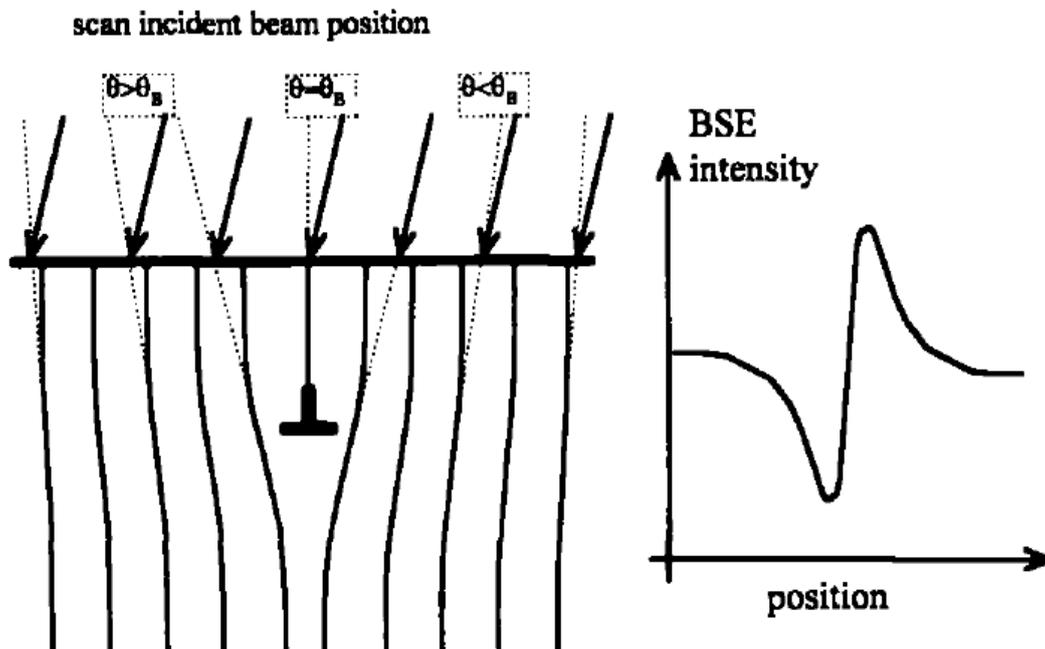


Figure I.17 Perturbation des conditions de canalisation par la présence d'une dislocation coin [Wilkinson 1997]

La figure I.17 illustre la variation de l'intensité des BSE aux alentours d'une dislocation coin. La figure I.18 montre une zone observée par deux détecteurs différents : (a) détecteur des électrons secondaires (SE) et (b) détecteur BSD en conditions de canalisation. Deux dislocations sont visibles seulement dans l'image BSE grâce à la canalisation des électrons dans le cristal. Les dislocations apparaissent brillantes sur un fond sombre confirmant qu'elles modifient localement les conditions de diffraction pendant la canalisation d'électrons augmentant ainsi le taux des électrons rétrodiffusés.

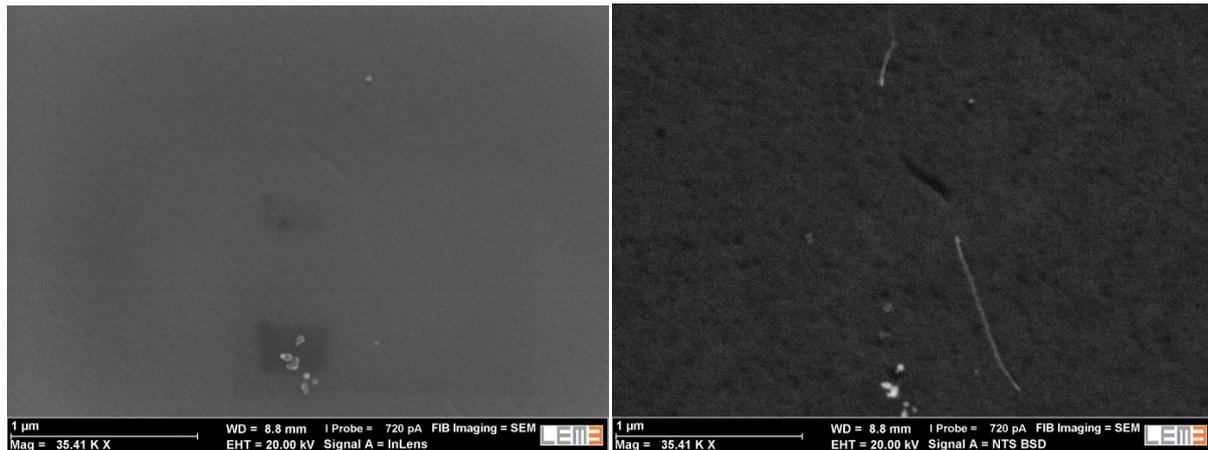


Figure I.18 Observation de la même zone en utilisant (a) le détecteur des électrons secondaires et (b) le détecteur des électrons rétrodiffusés en condition de canalisation

En 1972, cinq ans après que Coates et Booker aient découvert les ECPs, Spencer et al. [Spencer 1972] ont conclu à partir d'un calcul utilisant la théorie de la diffraction dynamique que les défauts cristallins individuels (comme les dislocations...) pouvaient être observés sur des films minces sous conditions optimisées dans un MEB conventionnel équipé d'un filament de tungstène. Pitaval et al. [Pitaval 1977] et Morin et al. [Morin 1979] ont réalisé respectivement en 1977 et 1979 des études expérimentales innovantes sur des dislocations individuelles par ECCI dans un MEB équipé d'un canon à émission de champ à cathode froide (Stereoscan MKII) qu'ils avaient conçu au début des années 1970. En l'équipant d'un filtre haute énergie (*high-energy filter*) pour enlever les électrons rétrodiffusés (BSE) de basse énergie, ils étaient capables d'observer des dislocations dans un monocristal de silicium à une tension d'accélération entre 40-50 kV et en inclinant l'échantillon de 50° à 70° (configuration *high tilt*). Ils ont utilisé le SACP pour contrôler leurs conditions de canalisation. Ces auteurs ont souligné l'importance du critère d'invisibilité ( $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  et  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$ ) utilisé au MET pour caractériser les dislocations par ECCI.

Depuis 1990, l'utilisation de l'ECCI pour l'étude des dislocations a significativement augmenté. Czernuszka et al. [Czernuszka 1990] ont montré qu'il était possible d'observer et de caractériser les dislocations individuelles dans des matériaux massifs. Les auteurs ont utilisé l'ECCI en configuration *high tilt*, dans un MEB équipé d'un canon à émission de champ. Le détecteur rétrodiffusé utilisé est un détecteur à haut rendement "*high-efficiency BSE detector*" (Yttrium-Aluminium Garnet film - YAG) sans filtration d'énergie. Ils ont appliqué l'ECCI à différents matériaux massifs monocristallin (Si et Ni<sub>3</sub>Ga) pour observer des dislocations avec une largeur d'environ 20 nm. Wilkinson et al. [Wilkinson

1993] ont également observé des dislocations de *misfit* à l'interface de couches épitaxiales Si-Ge sur un substrat de silicium.

Dans la même période, plusieurs papiers ont été publiés à propos de l'étude de l'arrangement des dislocations dans des matériaux métalliques déformés. Le groupe de Mughrabi et al. [Zauter 1990] [Zauter 1992] ont été les premiers à publier sur ce sujet en 1990. Ils ont appliqué l'ECCI à plusieurs matériaux : acier austénitique, cuivre et fer  $\alpha$ . Ces auteurs ont aussi comparé leurs résultats acquis par l'ECCI (*low tilt*  $< 10^\circ$ ) au MET conventionnel et ont montré l'importance de l'ECCI et son apport. Ils ont montré qu'il était possible de distinguer les murs de dislocations, cellules de dislocations et les sous joints de grain. De plus, ils ont souligné le fait que l'ECCI est une technique complémentaire au MET permettant de faire des études simples et relativement faciles grâce à la préparation non complexe des échantillons et à l'étendue des zones étudiées par rapport au MET.

Durant les deux dernières décennies, Crimp et ces collaborateurs [Ng 1998] [Ng 2004] [Crimp 2006] ont réalisé un progrès significatif dans la technique ECCI au MEB, en la présentant comme une alternative au MET. Alors que depuis le début des années 1990 l'ECCI a été appliqué en configuration *high tilt*. B. A. Simkin et M. A. Crimp [Simkin 1999], ont recommandé la configuration *low tilt* ( $< 10^\circ$ ). Ils ont utilisé un détecteur BSD (*standard 4 quadrants Si-diode backscatter detector*) sous la pièce polaire du MEB ayant un large angle solide de détection. Ils ont démontré que même si le signal BSE est inférieur à celui de la configuration *high tilt* cela permet d'obtenir une meilleure qualité d'image pour l'ECCI. Ces auteurs ont aussi comparé l'imagerie ECCI sous différents vecteurs de déviation  $s$ :  $s=0$ ,  $s<0$  et  $s>0$ , concluant que la meilleure qualité d'image est obtenue lorsque  $s \approx 0$ . Ceci est illustré dans la figure I.19 où l'on observe trois images ECCI selon différentes valeurs de  $s$ : A ( $s<0$ ), B ( $s \approx 0$ ) et C ( $s>0$ ). On remarque le changement du contraste entre les trois conditions. Ils ont aussi attribué plusieurs avantages à l'ECCI par rapport au MET comme:

- La préparation des échantillons relativement facile.
- Une zone étudiée beaucoup plus large.
- La possibilité de réaliser des essais *in situ* sur des matériaux massifs.

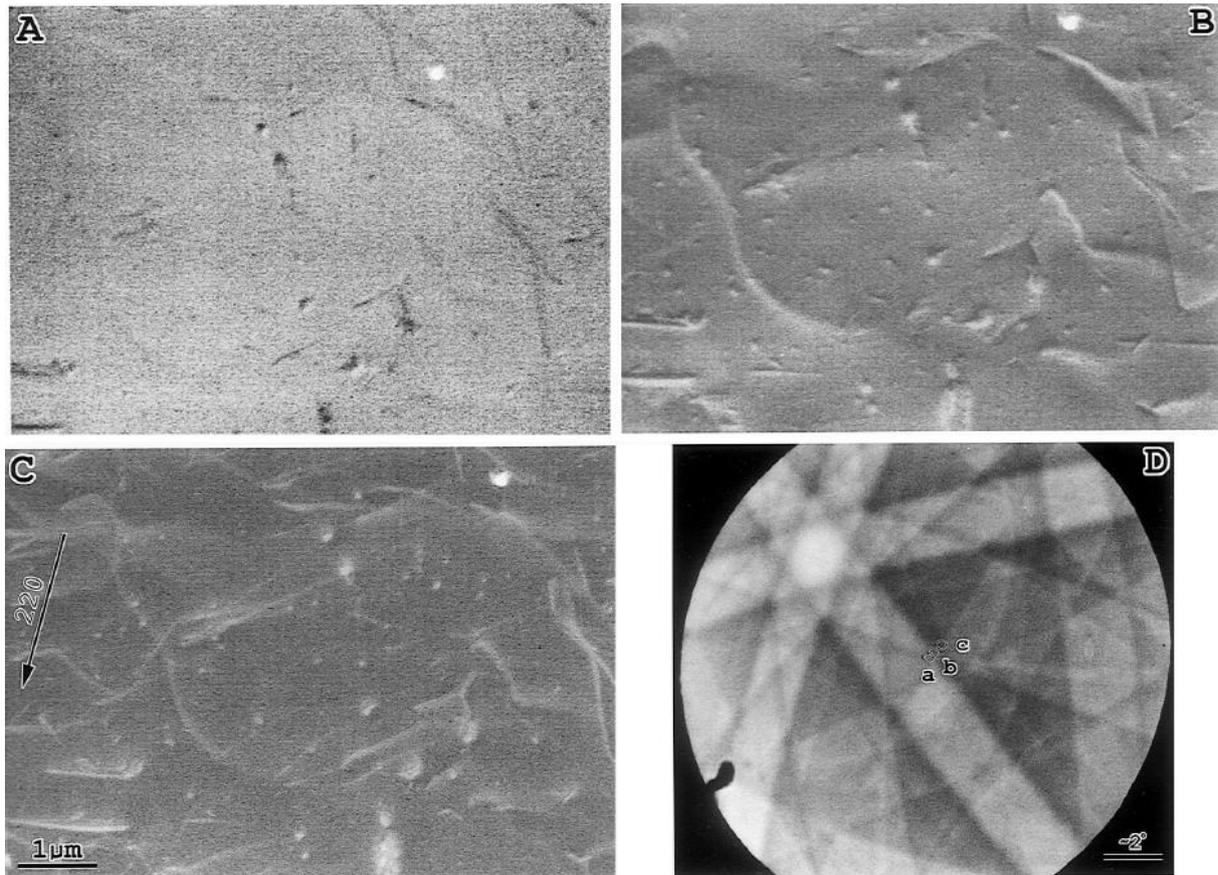


Figure I.19 Images ECCI de la même zone selon différents paramètres de déviation (a)  $s < 0$  (b)  $s = 0$  (c)  $s > 0$ . (d) Cliché SACD relatif à l'orientation du grain étudié: a, b et c représentent le paramètre de déviation de chaque image ECCI [Simkin 1999]

En 2001, M.A. Crimp et al. [Crimp 2001] démontrent pour la première fois le critère d'invisibilité  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$  pour les dislocations coins dans un FeAl polycristallin à large grain. Les conditions de canalisation d'électrons ont été contrôlées en utilisant les clichés SACD acquises dans un MEB CamScan 44FE. La figure I.20 montre l'analyse des dislocations : les dislocations a1 et a2 disparaissent à  $g=200$  satisfaisant la condition  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$ .

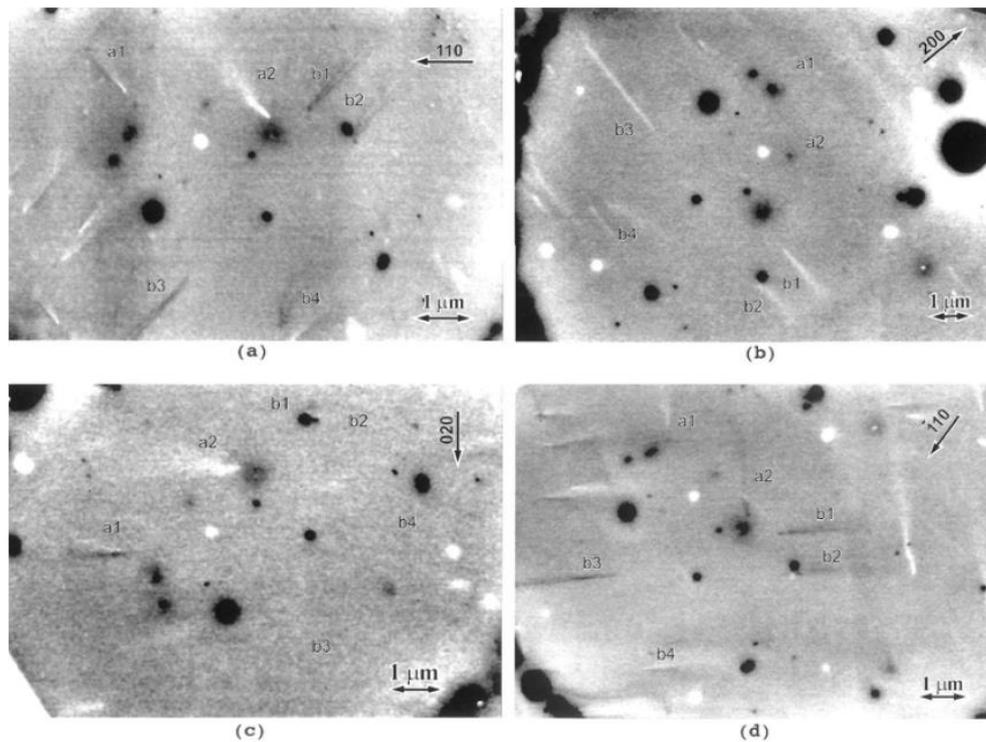


Figure I.20 Quatre micrographies ECCI utilisées dans l'analyse des dislocations coins dans FeAl. Démonstration du critère d'invisibilité  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$ .

Depuis 2009, Picard et al. [Picard 2009] [Picard 2014] [Kamaladasa 2011] [Kamaladasa 2010] ont commencé à étudier les dislocations traversantes dans des films minces de Si et de GaN en utilisant l'ECCI afin de déterminer les vecteurs de Burgers. Les auteurs ont noté que le critère d'invisibilité ( $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  et  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$ ) ne pouvait pas être appliqué à cause de la relaxation de surface à l'extrémité des dislocations qui rendait leur disparition impossible. Cependant, le contraste ECCI des dislocations traversantes peut être utilisé pour différencier les dislocations vis, coins et mixtes. Plus récemment en 2012, Naresh-Kumar et al. [Naresh-Kumar 2012] ont identifié les vecteurs de Burgers des différents types de dislocations traversantes (coin, vis et mixtes) dans du GaN en étudiant le contraste clair/sombre des dislocations qui change en fonction de leurs natures.

En 2011 Weidner et al. [Weidner 2011] [Weidner 2015] ont montré qu'il était possible de visualiser des défauts d'empilement par ECCI dans un FEG-SEM haute résolution. La figure I.21 montre un exemple d'image ECCI de faute d'empilement dans un acier TRIP. Le contraste de l'image a été inversé afin de ressembler aux images obtenues au MET. La résolution obtenue des fautes d'empilement est comparable à celle du MET.

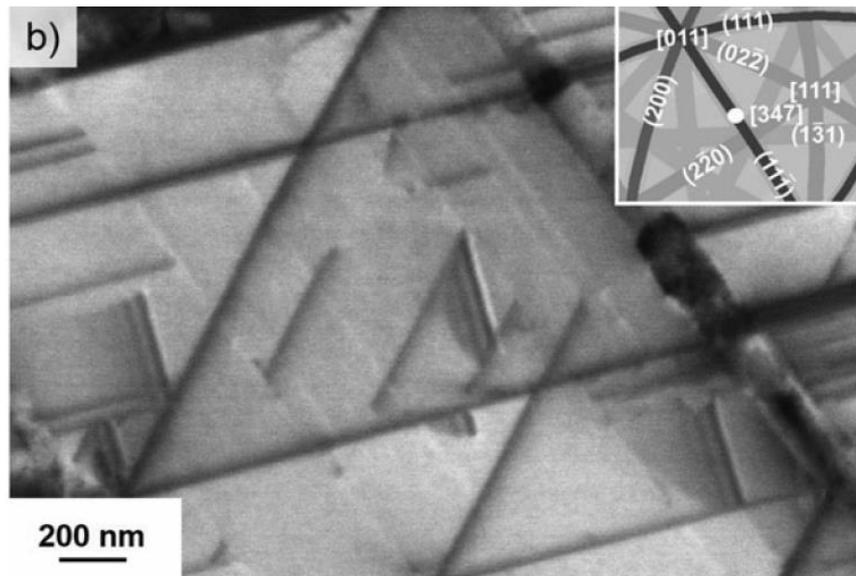


Figure I. 21 Image ECCI avec contraste inversé de fautes d'empilement dans l'acier TWIP [Weidner 2015]

Depuis plusieurs années, l'analyse des dislocations dans les matériaux polycristallins par ECCI s'est principalement limitée à leur observation sauf pour les matériaux à gros grain [Crimp 2001] ou leur caractérisation a été possible avec beaucoup de difficulté à cause des limites de résolution (angulaire et spatiale) dans les techniques (EBSD, ECP, SACP) utilisée pour contrôler les conditions de canalisation très strictes nécessaires à la technique ECCI.

## I.7 Préparation d'échantillon

La préparation de la surface de l'échantillon est d'une importance primordiale pour l'ECCI. Généralement, les échantillons massifs sont préparés, dans un premier temps, mécaniquement jusqu'à une taille de papier de polissage de  $1\mu\text{m}$  ou moins. Ensuite, plusieurs types de polissage sont possibles pour l'étape finale : polissage mécanique, chimique, électrolytique ou ionique.

## I.8 Conclusion

La technique ECCI s'est améliorée à travers le temps grâce à l'évolution des microscopes électroniques à balayage haute résolution. Néanmoins, le contrôle des conditions de canalisation avec précision reste un défi à acquérir. Actuellement, même combiné avec l'ECP, SACP ou l'EBSD, l'ECCI n'est pas toujours utilisé d'une manière efficace à cause des

limitations en résolution spatiale et/ou angulaire de ces techniques (Sauf pour les monocristaux).

Le développement du nouveau mode Rocking Beam présenté dans le chapitre II permettra de dépasser les points faibles actuels de l'ECCI en contrôlant avec précision les conditions de canalisation et en améliorant la résolution spatiale et angulaire de la technique. Ceci permettra par la suite dans les chapitres suivants III, IV et V d'utiliser l'ECCI pour la première fois dans des matériaux polycristallins à grain fins au MEB pour analyser d'une manière profonde les défauts cristallins (dislocations, sous joint de grain, domaine d'ordre) en s'appuyant sur des procédures similaires à celles du MET.

## I.9 Références bibliographiques

- [Bloch 1928] F. Bloch. Über die Quantenmechanik der Elektronen in Kristallgittern. *Zeitschrift für. Physik*, **52**: 555–600, 1928
- [Booker 1967] G.R. Booker, A. M. B. Shaw, M.J. Whelan and P. B. Hirsch. Some comments on the interpretation of the ‘Kikuchi-like Reflection Patterns’. *Philosophical Magazine*, 16(144) 1185-1191, 1967.
- [Clarke 1971] D. R. Clarke. Observation of crystal defects using the scanning electron microscope. *Philosophical Magazine*, 24, 973-979, 1971.
- [Coates 1967] D. G. Coates. Kikuchi-like reflection patterns obtained with scanning electron microscope. *Philosophical Magazine*; 16(144) 1179-1185, 1967.
- [Crimp 2006] M.A. Crimp. Scanning Electron Microscopy Imaging of Dislocations in Bulk Materials using Electron Channeling Contrast. *Microscopy research and Technique*, 69, 374-381, 2006.
- [Czernuszka 1990] J. T. Czernuszka, N. J. Long, E. D. Boyes and P. B. Hirsch. Imaging of dislocations using backscattered electrons in a scanning electron microscope. *Philosophical Magazine Letters*, 62, 227-232, 1990.
- [Day 1993] A. P. Day. Developments in the EBSD technique and their application to grain imaging. Ph.D. thesis, Department of Physics, University of Bristol, 1993.
- [Dluhos 2012] J. Dluhos, L. Sedlacek and J. Man. Application of electron channeling contrast imaging in study of polycrystalline materials and visualization of crystal lattice defects. *Proceeding of the 21<sup>st</sup> International Conference on Metallurgy and Materials*, Brno, Czech Republic, EU, 2012.
- [Goldstein 1975] J. I. Goldstein and H. Yakowitz. *Practical scanning electron microscopy*. Plenum, New York, 1975
- [Gutierrez-Urrutia 2013] I. Gutierrez-Urrutia, S. Zaeferrer, and D. Raabe. Coupling of Electron Channeling with EBSD: Toward the Quantitative Characterization of Deformation Structures in the SEM. *Journal of microscopy*, 65, 1229-1236, 2013.
- [Gutierrez-Urrutia 2012] I. Gutierrez-Urrutia and D. Raabe. Dislocation density measurement by electron channeling contrast imaging in a scanning electron microscope. *Scripta Materialia* 66, 343-346, 2012.
- [Gutierrez-Urrutia 2009] I. Gutierrez-Urrutia, S. Zaeferrer and D. Raabe. Electron channeling contrast imaging of twins and dislocations in twinning-induced plasticity steels under controlled diffraction conditions in a scanning electron microscope. *Scripta Materialia*, 61, 737-740, 2009.
- [Hall 1978] M. G. Hall and G. K. Skinner. A spiral scanning attachment for electron-channelling studies with scanning electron microscope. *Journal of Physics E: Scientific Instruments*, 11, 1129, 1978.

[Hirsch 1965] P.B. Hirsch, A. Howie, R.B. Nicholson, D.W. Pashley and M. J. Whelan. Electron microscopy of thin crystals, Butterworths, London, 1965.

[Hirsch 1970] P. B. Hirsch and C. J. Humphreys. Theory of scanning electron microscope channeling patterns for normal and tilted specimens. Proceeding of the 7<sup>th</sup> international congress on electron microscopy (IF-SEM, Grenoble), I, 229-230, 1970.

[Howie 1962] A.Howie and M. J. Whelan. Diffraction contrast of electron microscope images of crystal lattice defects. III. Results and experimental confirmation of the dynamical theory of dislocation image contrast. Proceeding of The Royal Society, A 267 (1329): 206-230, 1962

[Joy 1972] D.C. Joy and D.E. Newbury. Scanning electron microscope selected area channelling patterns from 1 $\mu$ m specimen areas. Journal of Materials Science, 7, pp. 714–716, 1972.

[Joy 1982] D. C. Joy , D. E. Newbury , and D. L. Davidson. Electron channeling patterns in the scanning electron microscope. Journal of Applied Physics, 53(8), 81-122, 1982.

[Kaczorowski 1987] M.Kaczorowski and William W. Gerberich. Electron channeling studies of local surface deformation in HSLA steel. Metallurgical Science and Technology; 5 (1) 11-20, 1987

[Kamaladasa 2011] R. J. Kamaladasa, W. Jiang and Y. N. Picard. Imaging Dislocations in Single-Crystal SrTiO<sub>3</sub> Substrates by Electron Channeling. Journal of Electronic Materials, 40(11), 2222–2227, 2011

[Kamaladasa 2010] R. J. Kamaladasa, Y. N. Picard. Basic principles and application of electron channeling in a scanning electron microscope for dislocation analysis. Microscopy : Science, Technology, Applications and Education, 1583–1590, 2010.

[Lloyd 1987] G. E. Lloyd. Atomic number and crystallographic contrast images with the SEM: a review of backscattered electron techniques. Mineralogical Magazine, 51, 3-19, 1987.

[Maitland 2007] T. Maitland and S. Sitzman. Backscattering detector and EBSD in nanomaterials characterization. Scanning Microscopy for Nanotechnology, 41-75, 2007

[Morin 1979] P. Morin, M. Pitaval, D. Besnard and G. Fontaine. Electron-channelling imaging in scanning electron microscopy. Philosophical Magazine A, 1079, 40, 511-524, 1979.

[Naresh-Kumar 2012] G. Naresh-Kumar, B. Hourahine, P. R. Edwards, A. P. Day, A. Winkelmann, A. J. Wilkinson and C. Trager-Cowan. Rapid Nondestructive Analysis of Threading Dislocations in Wurtzite Materials Using the Scanning Electron Microscope. Physical Review Letters, 108 (13), 2012.

[Ng 1997] B.C. Ng, B.A. Simkin and M.A. Crimp. Electron channeling contrast imaging of dislocation structures in deformed stoichiometric NiAl Materials Sciences and Engineering A 239-240, 150, 1997.

[Ng 1998] B. C. Ng, B.A. Simkin and M.A. Crimp. Application of the electron channeling contrast imaging technique to the study of dislocations associated with cracks in bulk specimens. Ultramicroscopy 75, 137-145, 1998.

- [Ng 2004] B.C. Ng, B.A. Simkin, M.A. Crimp and T.R. Bieler. The role of mechanical twinning on microcrack nucleation and crack propagation in a near- $\gamma$  TiAl alloy. *Intermetallics*, 12, 12, 1317-1323, 2004.
- [Picard 2014] Y. N. Picard, M. Liu, J. Lammatao, R. Kamaladasa and M. D. Graef. Theory of dynamical electron channeling contrast images of near-surface crystal defects. *Ultramicroscopy*, 146, 71-78, 2014.
- [Picard 2009] Y.N. Picard, M.E. Twigg, J.D. Cladwell, C.R. Eddy Jr., M.A. Mastro and R.T. Holm. Resolving the Burgers vector for individual GaN dislocations by electron channeling contrast imaging. *Scripta Materialia* 61, 2009, 773-776, 2009.
- [Pitaval 1977] M. Pitaval, P. Morin, J. Baudry, E. Vicario and G. Fountaine. Advances in crystalline contrast from defects. Proceedings of the annual scanning electron microscopy symposium, 439-444, 1977.
- [Rossouw 1994] C. J. Rossouw, C. T. Forwood, M. A. Gibson and P. R. Miller. Generation and absorption of characteristic X-rays under dynamical electron diffraction conditions. *Philosophical Magazine*, 70 (6), 453-464, 1994.
- [Sandström 1974] R. Sandström, J. P. Spencer and C. J. Humphreys. A theoretical model for energy dependence of electron channelling patterns in the SEM. *Journal of physics D*, 7, 1030-1046, 1974.
- [Schwazer 2008] R. A. Schwazer, D. P. Field, B. L. Adams, M. Kumar and A. J. Schwartz. Present state of electron backscatter Diffraction and prospective developments. *Electron backscatter diffraction in materials science*, 2<sup>nd</sup> Edition, 2008.
- [Schulson 1977] E. M. Schulson. Electron channeling patterns in scanning electron microscopy, *Journal of Materials Science*, 12, 1071-1087, 1977.
- [Simkin 1999] B.A. Simkin and M.A. Crimp. An experimentally convenient configuration for electron channeling contrast imaging. *Ultramicroscopy* 77, 65-75, 1999.
- [Spencer 1972] J. P. Spencer, C. J. Humphreys and P. B. Hirsch. A dynamical theory for contrast of perfect and imperfect crystals in the scanning electron microscope using backscattered electrons. *Philosophical Magazine*, 26(1), 193-213, 1972.
- [Stern 1972] R. M. Stern, T. Ichinokawa, S. Takashima, H. Hashimoto and S. Kimoto. Dislocation images in the high resolution scanning electron microscope. *Philosophical Magazine*, 26, 1495-1499, 1972.
- [Thomsen 2013] K. Thomsen, N.H. Schmidt, A. Bewick, K. Larsen and J. Goulden. Band refinement for improving the accuracy of EBSD orientation measurements. Application note, AZtecHKL, 2013
- [Trager-Cowan 2007] C. Trager-Cowan, F. Sweeney, P. Trimby, A. Day, A. Gholinia, N.-H. Schmidt and I. Watson. Electron backscatter diffraction and electron channeling contrast imaging of tilt and dislocations in nitride thin films. *Physical Review B*, 75(8), 2007.
- [Van Essen 1969] C.G. Van Essen and E.M. Schulson. Selected area channelling patterns in the scanning electron microscope. *Journal of Materials Science*, 4, pp. 336-339, 1969

[Van Essen 1970] C.G. Van Essen, E.M. Schulson and R.H. Donaghy. Electron channelling patterns from small (10 $\mu$ m) selected areas in the scanning electron microscope. *Nature*, 225, pp. 847–848, 1970.

[Vicario 1971] E. Vicario, M. Pitaval, G. Fontaine, Étude des pseudo-lignes de Kikuchi observées en microscopie électronique à balayage. *Acta Crystallographica*, 27 (1), 1-6, 1971.

[Weidner 2011] A. Weidner, S. Martin, V. Klemm, U. Martin and H. Biermann. Stacking faults in high-alloyed metastable austenitic cast steel observed by electron channelling contrast imaging. *Scripta Materialia* 64, 513-516, 2011.

[Weidner 2015] A. Weidner, H. Biermann. Case studies on the application of high-resolution electron channelling contrast imaging investigation of defects and defect arrangements in metallic materials. *Philosophical Magazine*, 95, 759-793, 2015.

[Wilkinson 1997] A. J. Wilkinson, P. B. Hirsch. Electron diffraction based techniques in scanning electron microscopy of bulk materials. *Micron*, 28(4), 279–308, 1997.

[Wilkinson 1993] A. J. Wilkinson, G. R. Anstis, J. T. Czernuszka, N. J. Long and P. B. Hirsch. Electron channeling contrast imaging of interfacial defects in strained silicon-germanium layers on silicon. *Philosophical Magazine A*, 68, 59-80, 1993.

[Wilkinson 1993] A. J. Wilkinson, P. B. Hirsch, J. T. Czernuszka, and N. J. Long. Electron channeling contrast imaging of defects in semi-conductors. *Proceeding Microscopy of Semiconducting Materials*, 134, 755-762, 1993.

[Winkelmann 2007] A. Winkelmann, C. Trager-Cowan, F. Sweeney, A. P. Day and P. Parbrook. Many-beam dynamical simulation of electron backscatter diffraction patterns. *Ultramicroscopy*, 107, 414-421, 2007.

[Zauter 1990] R. Zauter, F. Petry, H.-J. Christ and H. Mughrabi. High temperature creep behavior and microstructure development of AISI 304L stainless steel. *Materials Science and Engineering, A* 124, 125, 1990.

[Zauter 1992] R. Zauter, F. Petry, M. Bayerlein, C. Sommer, H.-J. Christ and H. Mughrabi. Electron channeling contrast as a supplementary method for microstructural investigations in deformed metals. *Philosophical Magazine*, 66, 425, 1992.

[Zeafferer 2014] S. Zeafferer and N. N. Elhami. Theory and application of electron channelling contrast imaging under controlled diffraction conditions. *Acta Materialia*, 75, 20-50, 2014.

[Zeafferer 2000] S. Zeafferer. New developments of computer-aided crystallographic analysis in transmission electron microscopy. *Journal of applied crystallography*, 33, 10-25, 2000.

## ***Chapitre II***

# ***Techniques expérimentales : Rocking Beam et A-ECCI***

---

*Une partie de ce chapitre a été publiée en 2014 dans Ultramicroscopy : J. Guyon, H. Mansour, N. Gey, M.A. Crimp, S. Chalal, N. Maloufi, Sub-micron resolution selected area electron channeling patterns, 149, 34-44. Cette partie a aussi fait l'objet d'un dépôt d'invention par l'Université de Lorraine.*

*Le Rocking Beam (RB) est l'une des techniques utilisées dans le passé pour l'établissement des conditions de canalisation pour l'ECCI. Il permet l'acquisition des clichés de Kikuchi "Selected Area Channeling Patterns" (SACP) avec une précision angulaire d'environ  $0,1^\circ$ . Cependant, le RB développé dans le passé présente quelques limitations en résolution spatiale et n'existe quasiment plus dans les microscopes dernières générations disponibles sur le marché. Dans ce chapitre, une nouvelle méthode pour l'acquisition de clichés SACP haute résolution (HR-SACP) est développée pour la première fois sur la colonne GEMINI I de ZEISS. Une méthode innovante via l'Application Programming Interface (API) de ZEISS est utilisée pour créer le RB malgré le fait que la colonne GEMINI I ne fût pas conçue pour le faire. On démontre aussi pour la première fois une résolution spatiale et angulaire du RB respectivement en dessous de  $1\mu\text{m}$  et de  $0,04^\circ$ . De plus, une nouvelle méthode pour la mesure de la résolution spatiale est présentée. Les clichés HR-SACP obtenus ont une ouverture angulaire de  $\approx 4^\circ$  (à une distance de travail de 10mm) suffisante pour trouver l'orientation du cristal étudié en utilisant des clichés de Kikuchi simulés à partir de données EBSD.*

*Les clichés HR-SACP sont ensuite utilisés pour établir les conditions de canalisation pour la technique ECCI avec une grande précision inédite. La technique améliorée s'appelle désormais « Accurate Electron Channeling Contrast Imaging (A-ECCI) ».*

## II.1 Introduction

Le Rocking Beam (RB) ou Précession du Faisceau, technique présentée dans le chapitre I, est parmi les techniques qui permettent d'obtenir l'orientation cristallographique des matériaux au microscope électronique à balayage (MEB). Elle est utilisée pour contrôler les conditions de canalisation d'électrons nécessaires à la technique d'imagerie par contraste de canalisation d'électron (ECCI) avec une bonne précision angulaire d'environ  $0,1^\circ$  et une résolution spatiale  $>10\mu\text{m}$ . Malheureusement, de nos jours le RB est de moins en moins disponible sur les MEB dernières générations.

Afin d'effectuer une précession du faisceau d'électron sur la surface de l'échantillon, le faisceau incident doit être défléchi au moins à deux reprises dans la colonne électronique.

Actuellement, seule la compagnie Tescan commercialise un mode de balayage RB dans ses MEB. Deux ensembles de bobines de balayage sont utilisés pour décaler le faisceau incident parallèlement à l'axe optique (voir figure I.14) [Dluhos 2012]. Ce faisceau est ensuite focalisé sur un point pivot de la surface de l'échantillon par la lentille objectif. Des corrections d'aberration sphériques sont appliquées afin d'améliorer la qualité des clichés SACP et leur résolution spatiale. Cette méthode n'est pas complètement détaillée dans [Dluhos 2012].

Plusieurs configurations ont été proposées dans le passé. La première approche proposée par Van Essen et Schulson [Van Essen 1969] en 1969, consiste à contrôler l'ensemble des bobines de balayage (utilisé normalement pour le mode de balayage standard) pour défléchir tous les faisceaux vers un même point sur la surface de l'échantillon (voir figure I.12). Elle est connue sous le nom de la méthode de la Déflexion Double. Par conséquent, les faisceaux ne passent plus par le centre de la lentille objectif qui est désactivée pour éviter toute déflexion supplémentaire du faisceau. La focalisation est réalisée dans ce cas par la dernière lentille condenseur, située avant la lentille objectif. Le principal point faible de cette procédure est la résolution spatiale (entre  $50\mu\text{m}$  et  $100\mu\text{m}$ ) causée par les aberrations sphériques.

Pour améliorer cette résolution spatiale, une deuxième méthode intitulée la méthode de la Déflexion Focale a été développée en 1970 par C. G. Van Essen et al. [Van Essen 1970]. En désactivant la deuxième bobine de balayage, ils ont réalisé la deuxième déflexion nécessaire pour le RB en utilisant la lentille objectif. Ils réduisent ainsi les aberrations sphériques et améliorent nettement la résolution spatiale du RB, estimée à environ  $10\mu\text{m}$ . La plupart des MEB équipés du RB ont utilisé cette nouvelle technique. Cependant, le problème principal de

la Déflexion Focale réside dans la difficulté de commutation entre le mode d'imagerie et le mode RB. Il nécessite à la fois que les lentilles objectif et condenseur soient commandées manuellement pour commuter entre le mode d'imagerie conventionnel et le RB, ce qui cause des problèmes d'hystérésis dans les deux lentilles.

Dans ce chapitre, une méthode innovante pour effectuer la précession dans la colonne électronique GEMINI I de la compagnie Carl ZEISS est détaillée. Un cliché Kikuchi (High Resolution Selected Area Channeling Pattern HR-SACP) est collecté avec une haute résolution angulaire et spatiale atteinte pour la première fois. Le HR-SACP est ensuite utilisé pour établir les conditions de canalisations nécessaires à la technique ECCI.

## **II.2 Développement du mode de balayage Rocking Beam**

### **II.2.1 Méthodologie**

Une nouvelle procédure est développée pour tourner le faisceau dans la colonne électronique haute résolution GEMINI I. Cette colonne n'a pas été conçue initialement pour faire ce type de balayage. Cette procédure crée un point pivot du faisceau d'électron sur la surface de l'échantillon en combinant l'effet des bobines de diaphragme et de balayage, en les utilisant d'une manière contraire à leur fonction primaire. D'abord, le faisceau est défléchi de l'axe optique du microscope puis ramené parallèle à ce dernier en utilisant les bobines d'alignement du diaphragme. Après être passé à travers les bobines de balayage et la lentille objectif, le faisceau atteint la surface de l'échantillon incliné et décalé par rapport à l'axe optique du MEB. Par la suite, une correction est appliquée par la bobine de balayage afin de s'assurer que le faisceau incliné passe par un point d'intersection entre la surface de l'échantillon et de l'axe optique du microscope. Ce point est le point pivot nécessaire pour la précession.

Pour mieux comprendre cette procédure, il est important de visualiser la configuration de la colonne électronique GEMINI I et de clarifier les fonctions primaires des bobines utilisées.

## II.2.2 Mode de fonctionnement conventionnel de la colonne GEMINI I

La figure II.1 montre un schéma simplifié de la colonne GEMINI I avec ses différentes fonctionnalités.

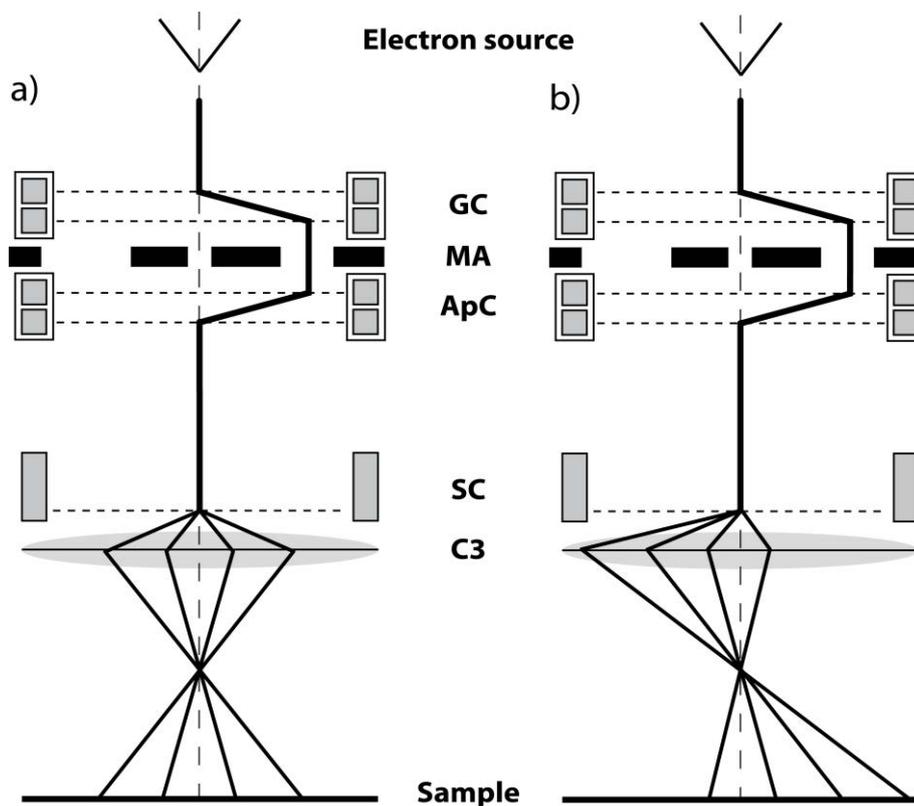


Figure II.1 Schéma simplifié de la colonne GEMINI I : Chemin suivi par le faisceau d'électron en mode d'imagerie standard en sélectionnant un diaphragme décentré de l'axe optique grâce aux bobines déflectrices GC et ApC. (a) sans l'application d'un Beam Shift (b) avec application du Beam Shift par la bobine de balayage SC.

Contrairement aux autres microscopes électroniques à balayage, les diaphragmes dans une colonne GEMINI I sont fixes. Ils sont groupés en une pièce appelée *Multihole Aperture* (MA). En revanche, la sélection des diaphragmes se fait par une série de bobines qui défléchissent le faisceau à travers le diaphragme sélectionné dans le MA au lieu de bouger ce dernier mécaniquement vers l'axe optique pour le centrer autour du faisceau incident. Cette opération est réalisée en utilisant deux assemblages de bobines déflectrices. Le premier assemblage de bobines, appelé bobines d'alignement du canon GC (*Gun alignment Coils*) défléchit le faisceau pour le faire passer à travers le diaphragme sélectionné. Le deuxième assemblage de bobines, appelé bobines d'alignement de diaphragme ApC (*Aperture alignment*

*Coils*) ramène le faisceau à l'axe optique du microscope après avoir traversé le diaphragme. Les deux assemblages de bobines défectrices sont similaires et arrangés de la même manière. La figure II.2 est une représentation schématique d'un assemblage de bobines défectrices. Il est constitué de deux ensembles de bobines. Chaque ensemble est constitué de 4 bobines coplanaires permettant de déplacer le faisceau selon les axes X (bobines 2 et 4) et Y (bobines 1 et 3). Les courants appliqués à ces bobines sont contrôlés par l'utilisateur via les paramètres du canon et des diaphragmes (*Align X* et *Align Y*). Il convient de noter qu'au-dessus de ces ensembles de bobines il y a une lentille magnétique condensateur qui est activée seulement quand le courant de sonde est élevé pour booster la densité d'électron du faisceau. La colonne GEMINI I inclut aussi des bobines d'astigmatisme servant à corriger les distorsions du faisceau électronique. Cependant, ces deux derniers composants fonctionnent de la même manière en mode conventionnel et pendant la précession du faisceau.

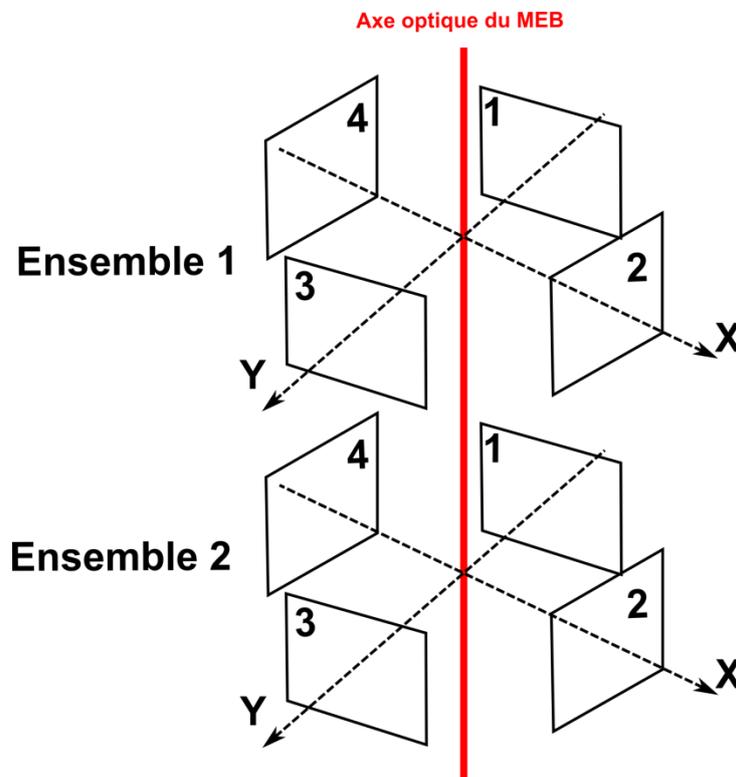


Figure II.2 Représentation schématique de l'assemblage de bobines défectrices dans le GC et l'ApC constitué de deux ensembles de bobines.

En mode d'imagerie conventionnelle, l'ensemble Lentille Objectif (C3) focalise le faisceau d'électron à la distance de travail (*WD*) souhaitée. Il est constitué de deux lentilles une électrostatique et une électromagnétique, leur combinaison crée une lentille achromatique connue sous le nom de *Triplet*. Elle minimise les aberrations achromatiques et sphériques. Les

électrons incidents sont déviés par le champ électromagnétique puis par la lentille électrostatique retardatrice. C'est un mode de balayage propre à la colonne GEMINI I, contrairement aux autres colonnes constituées généralement d'un mode de balayage double (deux bobines de balayage).

La fonction *Beam Shift* du MEB permet de balayer une zone d'intérêt décentrée de l'axe optique du MEB sans bouger l'échantillon en la décalant comme illustré dans la figure II.1.b. Ce *Beam Shift* ou décalage du faisceau fonctionne en variant le courant des SC. En mode imagerie standard et sans l'application d'un *Beam Shift* par les bobines de balayages (SC), le faisceau balaie de façon symétrique par rapport à l'axe optique (voir figure II.2.a). La focalisation de la lentille objectif C3 inverse la direction de la déflexion du faisceau par les SC. Il est contrôlé par l'utilisateur selon la direction X et Y. On parle donc d'un *Beam Shift X* et d'un *Beam Shift Y*.

## II.2.3 Mode de fonctionnement de la précession -Rocking

### Beam

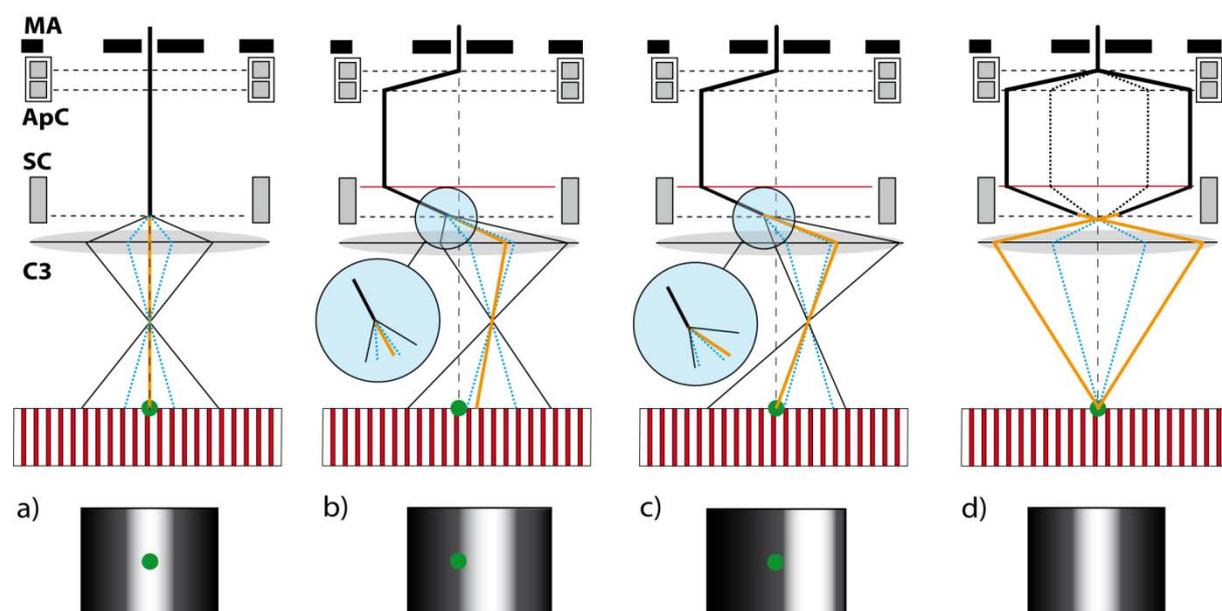


Figure II.3 Schéma explicatif des étapes du mode de balayage Rocking Beam dans la colonne GEMINI I. (a) Mode de balayage standard sans application de Beam Shift : Formation de cliché ECP sur un monocristal. (b) Déflexion du faisceau incident par les bobines ApC : décalage de la zone balayée et du cliché ECP (c) Correction du décalage en appliquant un Beam Shift par la bobine SC : Correction de la zone balayée avec décalage des bandes de Kikuchi (d) Mode Rocking Beam : répétition de la manipulation dans (b) et (c) avec des différents angles d'incidences pour l'acquisition du cliché SACP. Le point vert est un détail

sur la surface. Le faisceau central est présenté en jaune. Les faisceaux en condition de Bragg sont présentés en bleu pointillés.

La procédure à suivre pour la précession est illustrée dans la figure II.3 en commençant par le principe de formation des bandes de Kikuchi (ECP) en mode imagerie conventionnel. La manière de collecter les bandes SACP en mode RB sera ensuite détaillée progressivement. Le schéma de la colonne électronique dans la figure II.3 illustre le faisceau incident bombardant un gros grain (un monocristal) en mode de balayage conventionnel à faible grandissement (a-c) et bombardant l'échantillon en un seul point pivot en (d). Le cliché ECP ou SACP correspondant à chaque figure est représenté schématiquement en dessous de chaque configuration. Le point vert représente un petit détail sur la surface de l'échantillon. Le faisceau primaire est défini comme le faisceau d'électron en amont de la bobine de balayage SC et illustré avec des lignes noires épaisses. La largeur de la zone balayée (en mode ECP dans les figures II.3.a-c est délimitée par des lignes noires fines. À l'intérieur de cette zone de balayage, des faisceaux spécifiques sont indiqués:

Les faisceaux en conditions de Bragg sont illustrés en lignes bleues pointillées et seront nommés dorénavant Faisceau Bragg (FB)

Le faisceau au centre de la zone balayée est représenté en orange et sera nommé dorénavant Faisceau Central (FC).

La figure II.3.a illustre le microscope en mode d'imagerie conventionnel. Le signal collecté par le détecteur BSD forme un cliché ECP lorsqu'on balaie le monocristal à très faible grandissement. En désactivant le *Beam Shift*, le FC est en coïncidence avec l'axe optique du microscope. La zone balayée est centrée autour du détail vert en bougeant l'échantillon (selon l'axe X et Y). Ainsi, la lentille C3 focalise le FC sur le détail vert. Le cristal est orienté d'une manière à avoir le FC parallèle à une famille de plan réflecteur (en rouge). Les bandes de Kikuchi sont donc aussi centrées autour du détail vert dans l'image BSE (figure II.3.a).

Dans la figure II.3b, le faisceau incident est doublement défléchi à gauche par la bobine ApC. Ceci résulte en un décalage du faisceau par rapport à l'axe optique du MEB tout en restant parallèle à ce dernier. Puisqu'il ne passe plus par le centre de la bobine de balayage SC, le faisceau subit une autre déflexion au niveau de cette dernière (SC). Cette déflexion supplémentaire est indiquée sur la figure au niveau de la ligne horizontale rouge. En conséquence à la déflexion appliquée, la zone balayée est décalée (à droite du détail vert) et n'est plus centrée sur l'axe optique du microscope. Le FC n'est donc plus focalisé sur le détail

vert et les FB ne sont plus symétriquement espacés du FC, mais sont plutôt décalés à droite. En conséquence (figure II.3b), la bande de Kikuchi se déplace à droite et le détail vert est décalé à gauche sur l'image BSE.

Par ailleurs, pour effectuer une précession du faisceau il faut repositionner le *FC* sur le détail après l'avoir défléchi. Ceci est effectué en décalant le faisceau avec la fonction *Beam Shift* au niveau des bobines de balayage SC comme illustré dans la figure II.2c. Ainsi, le FC suit le chemin nécessaire pour réaliser sa précession. Pour cela, il suffit de répéter les étapes (b) et (c) à différents angles de déflexion.

Finalement, la figure II.2d illustre le mode de balayage RB nécessaire à la collection des clichés SACP. La procédure représentée dans la figure II.2b et c est répétée pour différents angles d'incidences créant ainsi le RB. Il convient de souligner que les bobines de balayage (SC) ne sont plus utilisées pour scanner la surface mais plutôt pour contrôler le décalage du faisceau (*Beam Shift*) tandis que le RB est contrôlé par les ApC.

Afin de collecter un cliché SACP d'une petite zone bien ciblée, ce mode de balayage nécessite une calibration du *Beam Shift* en fonction de la déflexion appliquée par les bobines ApC selon les axes X et Y. Cette calibration doit être réalisée par l'utilisateur selon des conditions de fonctionnement du microscope bien définies; la tension d'accélération, la distance de travail, la taille du diaphragme. Comme on le montre plus loin, cette calibration est très sensible aux paramètres qu'on vient de citer et elle est la clé de la résolution spatiale atteinte par cette technique.

## II.2.4 Collection des clichés SACP

Dans cette étude, le signal BSE utilisé pour la formation des clichés SACP est collecté par un détecteur standard rétractable formé de 4 diodes de Silicium qui s'insère sous la pièce polaire, comme illustré dans la figure II.4. L'acquisition du cliché HR-SACP s'effectue en 3 étapes:

Le faisceau est d'abord défléchi de l'axe optique du microscope en utilisant les ApC selon deux axes : X et Y. Ces déflexions sont commandées d'une manière graduée, représentée par un serpentín (*Snake Path*) sur la figure II.4. Ce chemin (en pointillés verts sur la figure) minimise le mouvement du faisceau d'une position à une autre ainsi que le temps de latence entre la commande et la réponse. Le pas des déflexions est contrôlé selon X et Y par

l'utilisateur et affecte directement le temps d'acquisition et la résolution angulaire du cliché SACP.

Le faisceau est décalé par la fonction *Beam Shift* selon X et Y par les bobines de balayages SC afin de corriger sa trajectoire. Comme mentionné précédemment, des calibrations du *Beam Shift* dépendantes des conditions de travail sont nécessaires.

Le signal formant les clichés SACP est collecté par le détecteur BSE. L'intensité des BSE est enregistrée pour chaque déflexion du faisceau (X, Y). Ce signal est utilisé progressivement pour construire le cliché SACP. Ce dernier a comme abscisse les déflexions sur X et comme ordonnée ceux sur Y. Chaque pixel (X, Y) correspond à l'intensité des BSE selon la déflexion (ApC X, ApC Y).

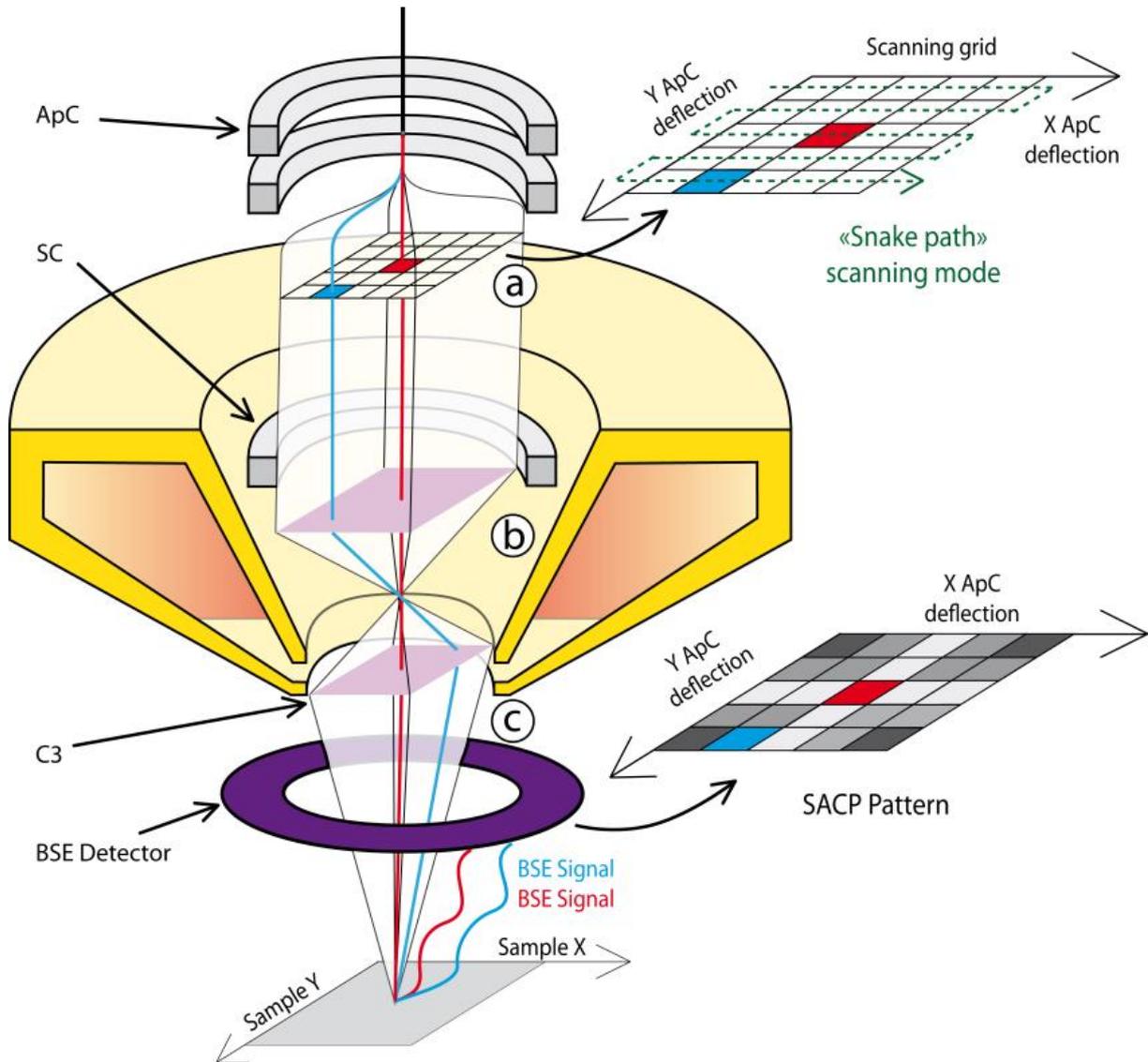


Figure II.4 Schéma simplifié d'une coupe de la colonne GEMINI I illustrant les différentes déflexions nécessaires à la création du cliché HR-SACP. (a) La double déflexion du faisceau par les bobines ApC. (b) Déflexion du faisceau par le champ magnétique de la bobine SC et application du Beam Shift pour le ramener au point pivot du Rocking Beam. (c) Collection du signal BSE et création du cliché HR-SACP.

## II.3 Application et résultats

### II.3.1 Procédure expérimentale

Le développement du mode de balayage RB a été réalisé sur un FIB SEM Zeiss Auriga 40 équipé d'une colonne électronique de type GEMINI I, d'une colonne ionique Orsay Physics COBRA et d'un système d'injection de gaz permettant la déposition de platine. Le signal BSE est collecté par un détecteur d'électrons rétrodiffusés à 4 quadrants de diode en silicium ayant un diamètre de 10mm. L'automatisation du RB a été réalisée via la version 2.9 d'API Zeiss

*communication tool*. Les conditions de travail utilisées sont : une distance de travail qui varie entre 7 et 10mm, une tension d'accélération de 20kV et un diaphragme de diamètre 30 $\mu$ m (le diaphragme central de la colonne).

Avant de commencer la calibration, on effectue une correction d'hystérésis, un alignement de la colonne électronique, une correction de l'astigmatisme et une remise à zéro des bobines ApC et SC. La calibration du *Beam Shift* est effectuée manuellement en prenant 200 points de déflexion différents selon (X, Y). Ces points sont choisis de manière symétrique et ordonnée (sur X et Y) par rapport à l'axe optique. La calibration est effectuée en mode d'imagerie standard en centrant un petit détail (<1 $\mu$ m) dans le milieu de l'écran. Pour chaque déflexion du faisceau par les ApC X et ApC Y, on enregistre la correction du *Beam Shift* selon X et Y nécessaire pour ramener le faisceau sur le petit détail. Il convient de noter que les axes X et Y des ApC ne sont pas parallèles aux axes X et Y des SC et de ce fait une déflexion selon X doit être compensée par la combinaison de deux *Beam Shift* selon X et Y. Les 200 points nécessaires pour la calibration sont effectués sans coupure et le plus rapidement possible pour minimiser l'effet d'instabilité du faisceau incident en fonction du temps. Les données expérimentales sont ensuite interpolées en utilisant Matlab pour prédire tous les *Beam Shift* nécessaires à compenser les déflexions (X, Y). Les données ainsi obtenues sont représentées sur la figure II.5. Deux courbes sont ainsi obtenues : *Beam Shift X = F (ApC X, ApC Y)* et *Beam Shift Y = F (ApC X, ApC Y)*.

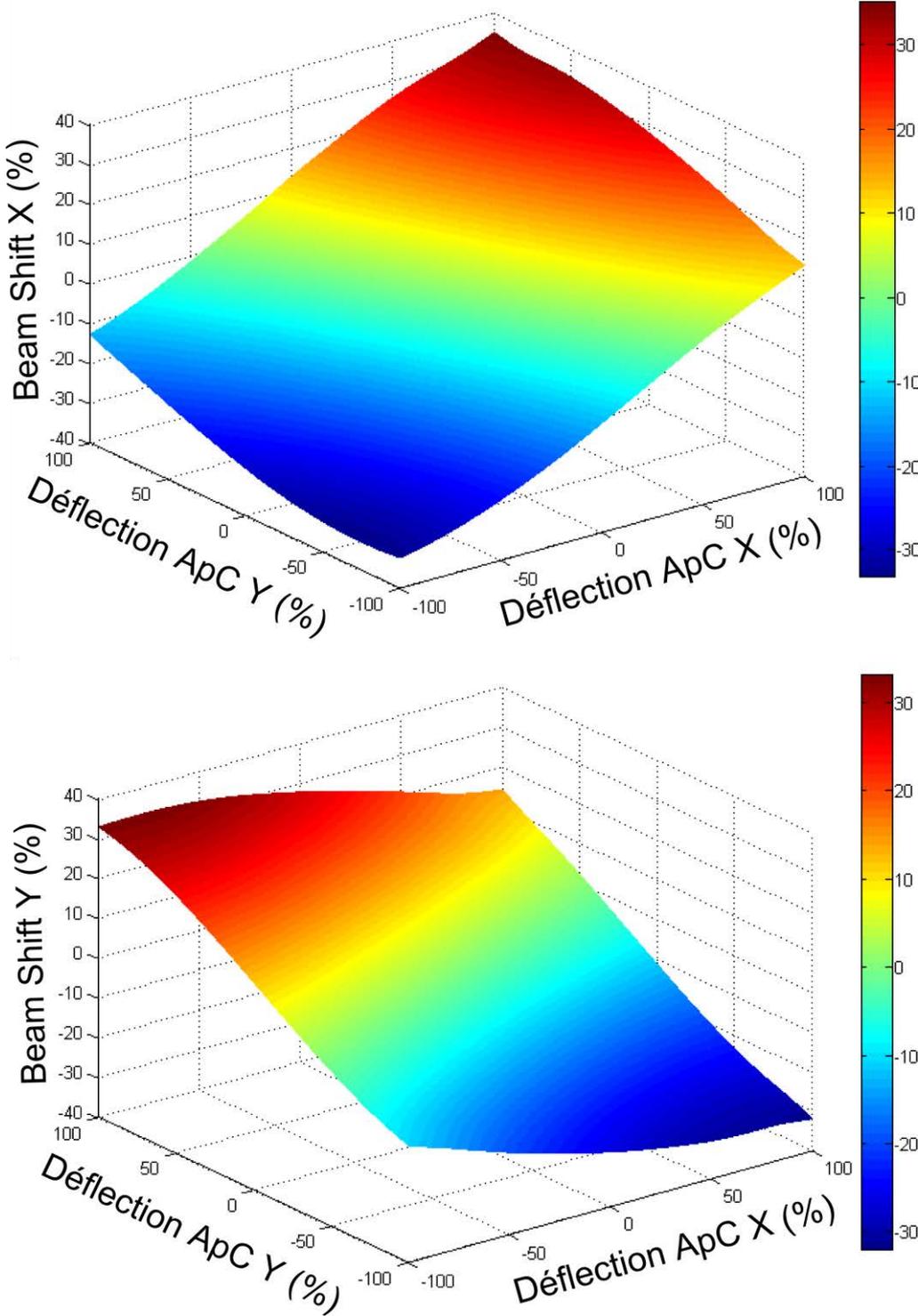


Figure II.5 Calibration du Beam Shift X et Y en fonction des déflexions ApC X et ApC Y.

## II.3.2 Caractéristiques des clichés HR-SACP

### II.3.2.1 Le Cliché HR-SACP

La figure II.6 compare un cliché ECP (figure II.6.a) à un cliché HR-SACP (figure II.6.b) tous les deux acquis sur un monocristal de silicium dans la même orientation. La qualité du HR-SACP est comparable à celle de l'ECP malgré la différence de résolution des deux images. L'ECP est acquis en mode imagerie standard du MEB avec une résolution de 1024x768 pixels. Il possède une ouverture angulaire de  $\approx 7^\circ$ . D'autre part, le HR-SACP est constitué de 101x101 pixels et présente une ouverture angulaire de  $\approx 4^\circ$ . Le niveau de gris sur les deux clichés (ECP et HR-SACP) est identique sans aucun post-traitement.

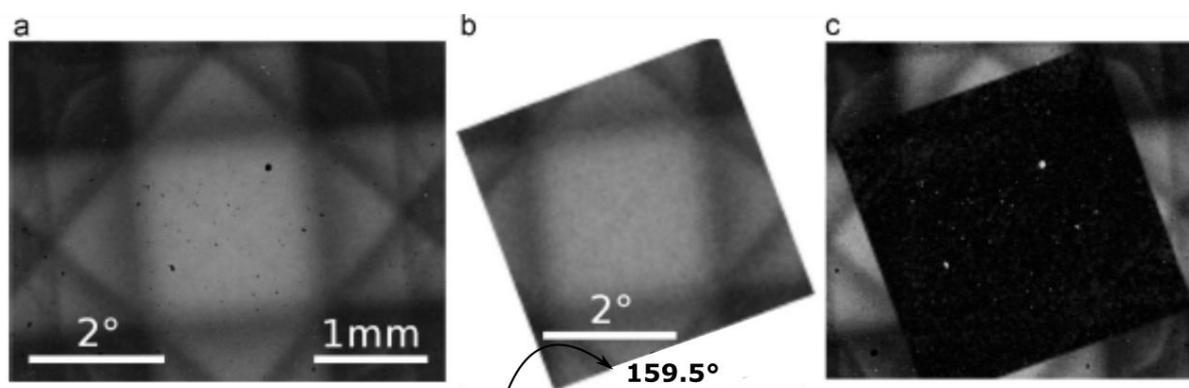


Figure II.6 (a) Cliché ECP et (b) cliché HR-SACP collectés d'un monocristal de Silicium. (c) Corrélation entre l'image ECP (a) et le HR-SACP (b). Les pixels en noirs indiquent une très bonne corrélation. Les pixels en blancs indiquent une faible correspondance qui résulte des taches (poussières et défauts) sur la surface du silicium visualisée dans l'image ECP.

La taille de la zone couverte par l'ECP est mesurée assez précisément en utilisant l'échelle de l'image MEB: Elle présente une surface de  $3,8 \times 2,8 \text{ mm}^2$  à une distance de travail de 10mm et un grossissement minimal. La figure II.6.c est une corrélation entre le cliché ECP et HR-SACP. Elle révèle les différences entre les deux clichés en les soustrayant l'un de l'autre. Les différences sont présentées en blanc et les coïncidences en noir. Les points noirs observés sur l'image ECP (figure II.6.a) résultent des défauts (poussières et particules) existant sur la surface du monocristal de silicium. Bien évidemment, ces points noirs sont absents dans le cliché HR-SACP (figure II.6.b), puisque ce dernier est acquis d'une zone (500nm) beaucoup plus petite que celle de l'ECP. L'information cristallographique des deux clichés est donc très similaire, il n'y a pas d'anomalie apparente.

Il est important d'indiquer que le cliché HR-SACP a subi une rotation de  $159.5^\circ$  pour se superposer correctement au cliché ECP. Cette rotation est due à deux facteurs. En premier lieu, on note une rotation de  $180^\circ$  entre l'ECP et le HR-SACP. Ceci est illustré sur la figure II.7 dans laquelle plusieurs faisceaux incidents sont colorés en fonction de leurs angles d'incidences dans la configuration ECP et HR-SACP. Le pixel correspondant à chaque faisceau est représenté grossièrement de la même couleur sur l'image ECP ou HR-SACP. On observe que la position des pixels s'est inversée entre l'ECP et le HR-SACP, le pixel rouge se trouve à droite dans le cliché ECP mais à gauche dans le cliché HR-SACP. La raison de cette inversion est liée à la manière différente de collecter les données entre l'ECP et le HR-SACP.

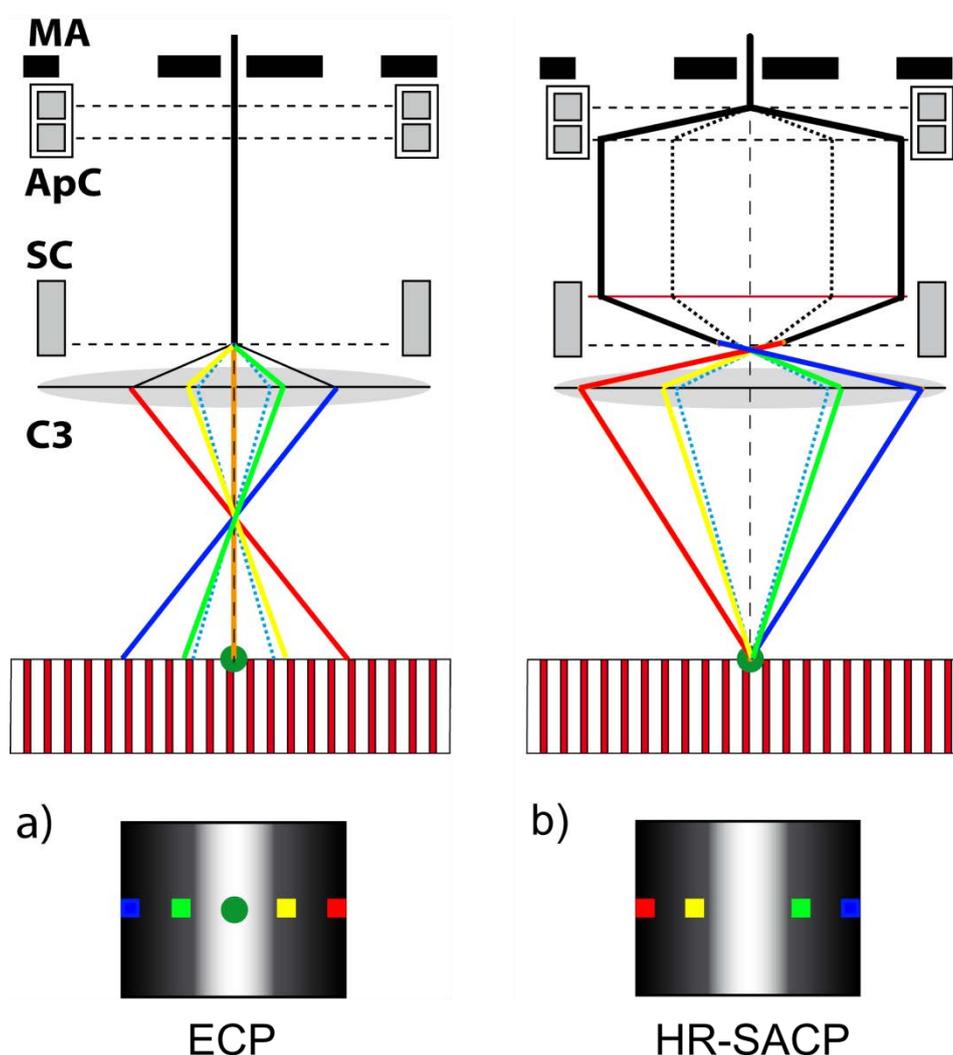


Figure II.7 L'inversion entre l'ECP et le HR-SACP. (a) La formation du cliché ECP en mode de balayage standard (b) Collection du cliché HR-SACP en mode Rocking Beam. Les pixels sur les clichés correspondent aux signaux enregistrés depuis les faisceaux de la même couleur.

Le deuxième facteur responsable de la rotation entre l'ECP et le HR-SACP est le fait que les bobines ApC et SC n'ont pas le même repère (X, Y). En effet, les déflexions exercées par les

bobines ApC et SC ne sont pas réalisées selon les mêmes axes X et Y. Un angle de non-alignement de  $-20,5^\circ$  entre les deux repères ApC et SC est mesuré sur la colonne électronique GEMINI I. Ceci résulte en une erreur de rotation supplémentaire du cliché HR-SACP de  $-20,5^\circ$ .

Donc, la combinaison de ces deux facteurs donne une erreur de rotation totale de  $180^\circ - 20,5^\circ = 159,5^\circ$  entre le HR-SACP et l'orientation cristallographique réelle du cristal cible (ECP). La validation de cette valeur est effectuée soigneusement sur plusieurs orientations cristallographiques différentes en évitant ceux qui présentent des symétries pour ne pas créer d'ambiguïté lors de la correction.

### II.3.2.2 Ouverture et résolution angulaire

L'ouverture et la résolution angulaire du cliché HR-SACP varient en fonction des paramètres du microscope: tension d'accélération, distance de travail et taille du diaphragme. Dans cette étude, la tension d'accélération et la taille du diaphragme sont fixées respectivement à 20kV et 30 $\mu$ m. La distance de travail varie entre 7 et 10 mm.

L'ouverture angulaire du HR-SACP est directement liée à la valeur maximale des déflexions du faisceau incident contrôlées par les bobines ApC sur les axes X et Y. Pour mesurer l'ouverture angulaire du cliché HR-SACP, on utilise la largeur de bande d'une famille de plans connue. Ceci est effectué en sachant que la largeur de bande de Kikuchi est égale à  $2\theta_{hkl}$ , avec  $\theta_{hkl}$  étant l'angle de Bragg d'une famille de plan (hkl).

Cette ouverture angulaire est mesurée à partir du cliché HR-SACP (101x101 pixels). La figure II.8 montre un cliché HR-SACP d'un monocristal de silicium orienté en axe de zone [001]. La largeur de la bande (220), est égale à  $2\theta$ . L'angle de Bragg est calculé en utilisant la loi de Bragg :

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad (\text{II.1})$$

où  $\lambda$  est la longueur d'onde,  $d$  est la distance réticulaire,  $\theta$  est l'angle de Bragg et  $n$  est l'ordre de diffraction.

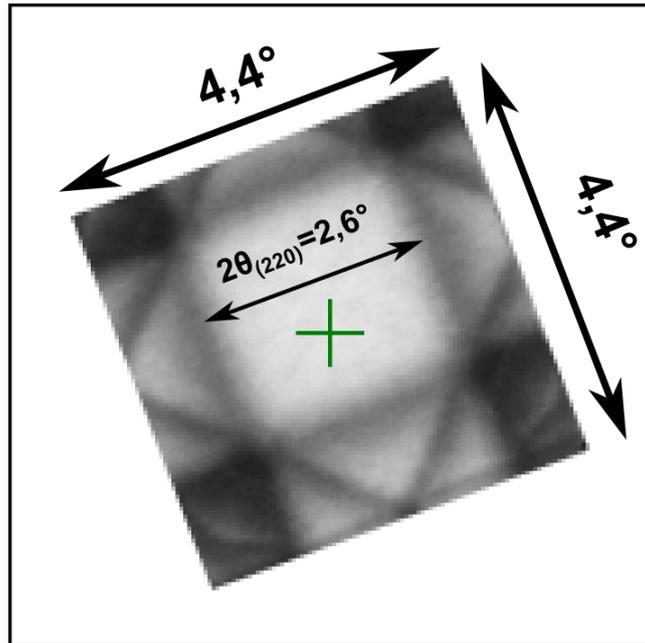


Figure II.8 Mesure de l'ouverture angulaire du cliché HR-SACP (à WD=7mm) connaissant la largeur d'une bande ( $2\theta$ ) de Kikuchi sur un monocristal de silicium.

La longueur d'onde  $\lambda$  est calculée pour une tension d'accélération de 20 kV en utilisant l'équation de De Broglie:

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h}{mv} \quad (\text{II.2})$$

avec  $h$  la constante de Planck,  $p$  la quantité de mouvement,  $m$  la masse d'un électron et  $v$  la vitesse d'un électron.

L'énergie d'un électron accéléré est égale à son énergie cinétique, elle peut être écrite ainsi :

$$E = eV = m \frac{v^2}{2} \quad (\text{II.3})$$

avec  $E$  l'énergie d'un électron accéléré,  $e$  la charge d'un électron et  $V$  la tension d'accélération.

À l'aide des équations (3), l'équation de De Broglie peut être écrite après simplification sous la forme :

$$\lambda = \sqrt{\frac{1.5}{V}} \quad (\text{II.4})$$

Pour une tension d'accélération  $V= 20\text{kV}$ , la longueur d'onde  $\lambda$  est égale à  $8,66 \cdot 10^{-3} \text{nm}$ . Sachant que la distance interréticulaire du plan (220) dans un silicium est  $d_{(220)}=0,192\text{nm}$ ,

l'angle de Bragg du plan (220) est égal à  $\approx 1,3^\circ$ . On obtient une largeur de bande (220) égale à  $2\theta \approx 2,6^\circ$ . Connaissant le nombre de pixels ( $\approx 59$ ) qui constitue la bande, on en déduit qu'un pixel correspond à  $0,044^\circ$  à une distance de travail  $WD=7\text{mm}$ . Puisque le cliché est formé de  $101 \times 101$  pixels, on en déduit que l'ouverture angulaire du HR-SACP est égale à  $\approx 4,4^\circ$ .

La valeur de l'ouverture angulaire du HR-SACP varie en fonction de la distance de travail. La figure II.9 montre plusieurs clichés HR-SACP à différentes WD (0; 2; 5; 7 et 10mm). Les distances de travail  $WD=0$  et  $2\text{mm}$  ne sont pas atteintes mécaniquement à cause du risque d'entrer en collision avec le détecteur BSE. En revanche, elles sont atteintes électroniquement en défocalisant le faisceau par la lentille C3. Ceci permet de défléchir le faisceau d'avantage. On remarque que l'ouverture angulaire est inversement proportionnelle à la WD: Elle passe de  $6^\circ$  à  $4,2^\circ$  respectivement à une  $WD = 0\text{mm}$  et  $10\text{mm}$ . Cette variation de l'ouverture angulaire est liée à l'action de focalisation de la lentille objectif C3 qui, comme expliqué auparavant, défléchit le faisceau d'électron en fonction du courant appliqué.

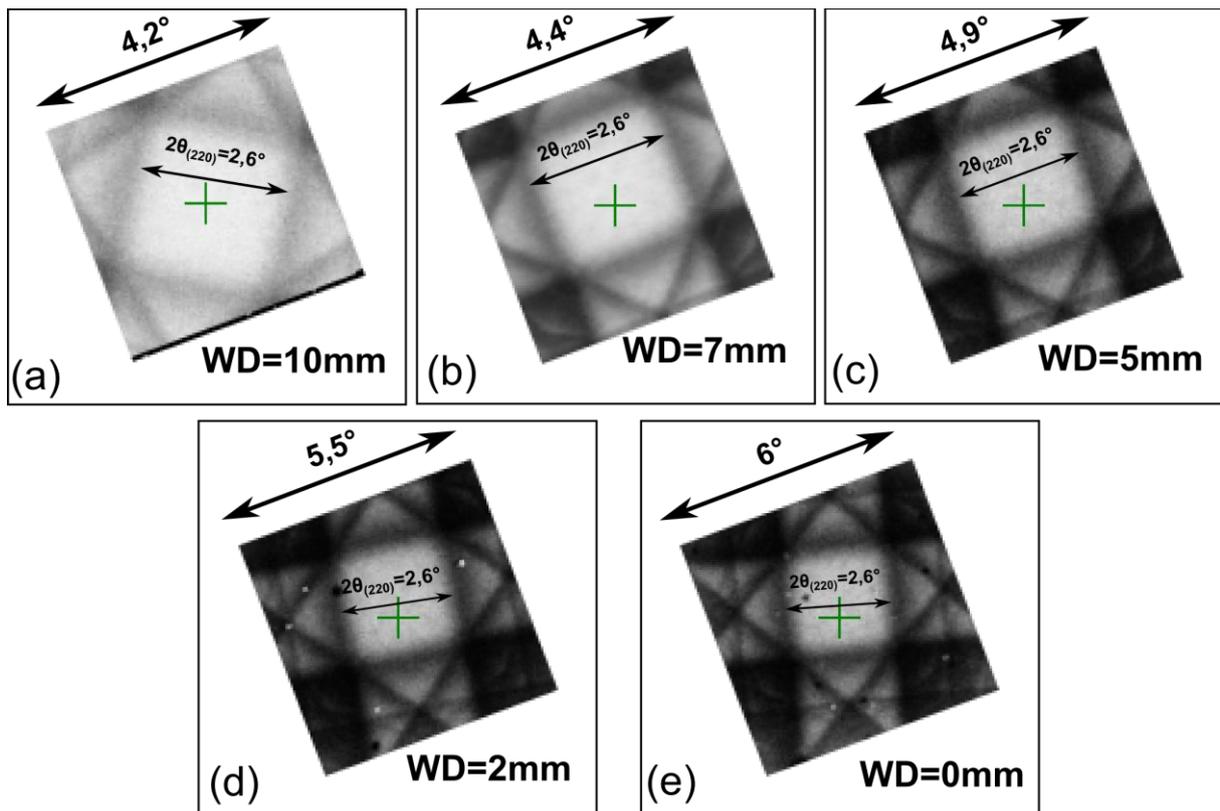


Figure II.9 L'ouverture angulaire du cliché HR-SACP en fonction de la distance de travail WD. (a) 10mm, (b) 7mm, (c) 5mm, (d) 2mm, (e) 0mm.

Le nombre de pixels du cliché SACP est directement lié au pas utilisé dans le balayage *Rocking Beam*. C'est à dire que le pas avec lequel le faisceau est défléchi va définir la

résolution angulaire du HR-SACP. Plus le pas sera petit plus le temps d'acquisition du cliché va augmenter. En résolution maximale (101x101 pixels) l'acquisition d'un cliché dure environ sept minutes ce qui revient à un temps d'acquisition d'environ quatre millisecondes par pixel. La figure II.10 montre trois clichés HR-SACP avec différentes tailles: (a) 101x101 pixels; (b) 61x61 pixels et (c) 41x41 pixels. La résolution angulaire et le temps d'acquisition sont indiqués sous chaque cliché.

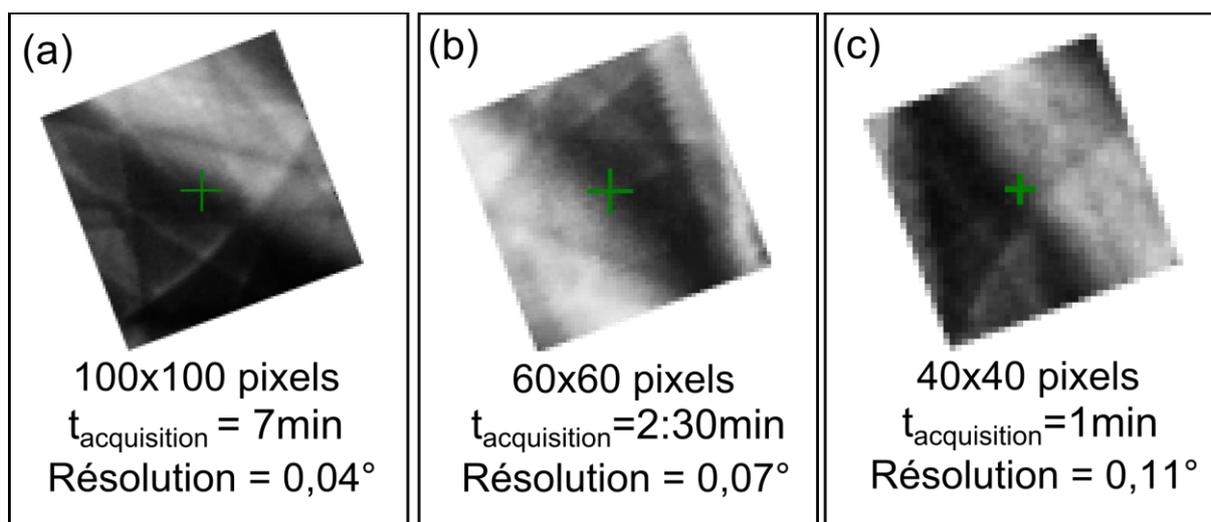


Figure II.10 Différents clichés HR-SACP à divers pas du Rocking Beam: (a) 0,04° (b) 0,07° (c) 0,11°

### II.3.2.3 Résolution spatiale

La résolution spatiale du HR-SACP est définie par la taille de la zone à partir de laquelle le cliché HR-SACP peut être acquis sans distorsion ni bruit. L'apport de la technique SACP par rapport à l'ECP en termes de résolution spatiale est aisément reconnu mais n'a jamais été démontré ou quantifié avec exactitude. Dans la plupart des études précédentes, cette résolution spatiale a été évaluée en collectant des clichés SACP depuis des grains d'une certaine taille. Si durant le RB le faisceau quitte le grain ciblé, le cliché obtenu sera distordu et bruité. Cependant, il n'est pas toujours facile de quantifier le bruit causé par le dépassement du faisceau. En plus, il est compliqué de trouver un grain ayant une forme bien définie (circulaire ou rectangulaire). Par conséquent, il n'était pas possible de quantifier avec précision la résolution spatiale du RB.

Une méthode rigoureuse pour la quantification de la résolution spatiale du HR-SACP est présentée pour la première fois dans cette partie. Celle-ci est réalisée au moyen d'un FIB MEB

Zeiss Auriga 40 sur un échantillon monocristallin de silicium (Si). En combinant l'utilisation du faisceau d'ion et de l'injection du gaz, des carrés de platine (Pt) de différentes tailles sont déposés à la surface du Si. Puisque les deux matériaux n'ont pas le même numéro atomique ( $Z_{Pt}=78$ ;  $Z_{Si}=14$ ), une grande variation dans le signal des électrons rétrodiffusés est observée en balayant les deux matériaux. Le résultat est présenté sur la figure II.11.a. Le contraste de l'image BSE est maximisé de telle sorte à avoir une intensité maximale quand le faisceau balaye le platine (255 sur l'échelle de gris) et minimale en balayant le silicium (0 sur l'échelle de gris). Par conséquent, lorsqu'on acquiert un HR-SACP dans la zone de la figure II.11.a, les pixels résultants sur le cliché auront une intensité maximale (255) ou minimale (0) s'ils proviennent respectivement du platine ou du silicium. Par conséquent, l'acquisition du HR-SACP à partir d'un carré de platine permet de savoir si toute l'information provient ou non de ce dernier et ainsi de mesurer la résolution spatiale. Ceci permet de quantifier le pourcentage de l'information venant du carré en platine et de détecter tout dépassement du faisceau. Il convient de mentionner qu'on ne s'attend pas à obtenir des clichés de Kikuchi depuis les carrés en platine puisque le contraste de l'image BSE est maximisé.

La figure II.11.a correspond à une photo de la série de carrés en platine de différentes tailles ( $5\mu\text{m}$  jusqu'à  $500\text{nm}$ ) utilisée pour identifier la résolution spatiale du HR-SACP. La figure II.11.b est le résultat du cliché collecté des carrés de taille allant de  $5\mu\text{m}$  jusqu'à  $1\mu\text{m}$ . Le HR-SACP contient 100% de pixels blancs (niveau de gris maximal 255). Cela indique que 100% des pixels proviennent de l'intérieur des carrés de platine. On en déduit donc à ce stade que la résolution spatiale est inférieure à  $1\mu\text{m}$ . La figure II.11.c, montre le cliché HR-SACP collecté du carré de taille  $500\text{nm}$ . Le pourcentage des pixels blanc d'intensité maximale décroît à 82%. Cela indique que quelques faisceaux sont sortis du carré  $500\text{nm}$ . On en conclut, que la résolution spatiale du HR-SACP est de l'ordre de  $500\text{nm}$ .

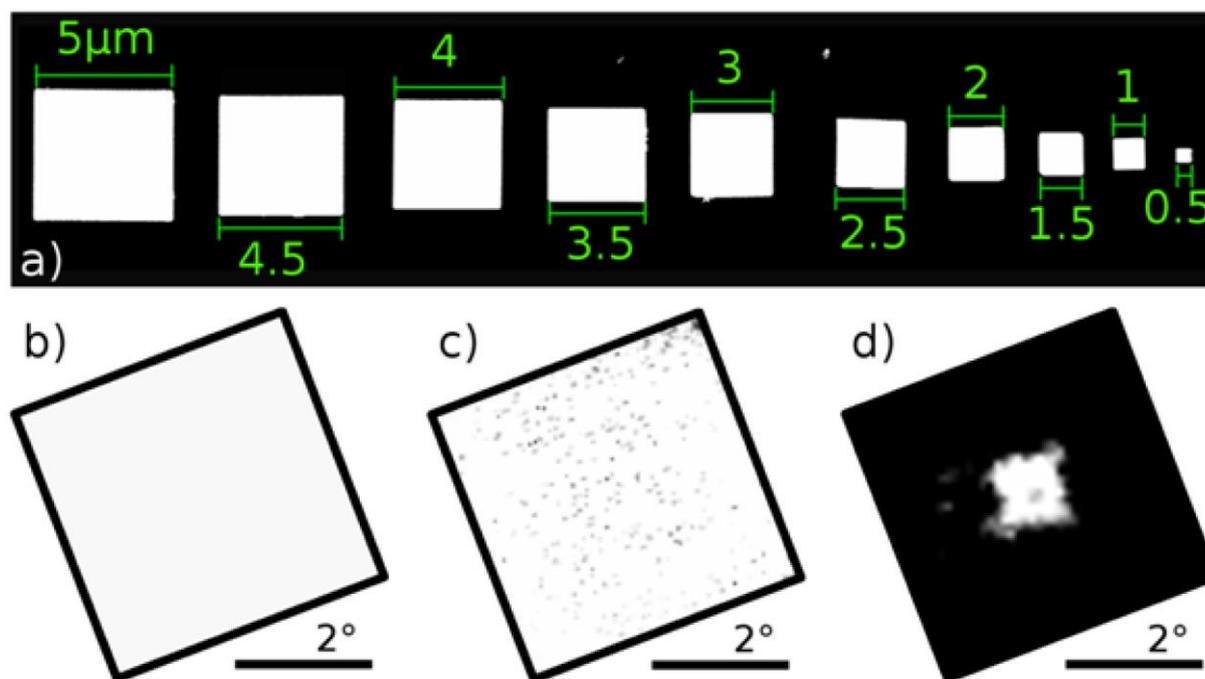


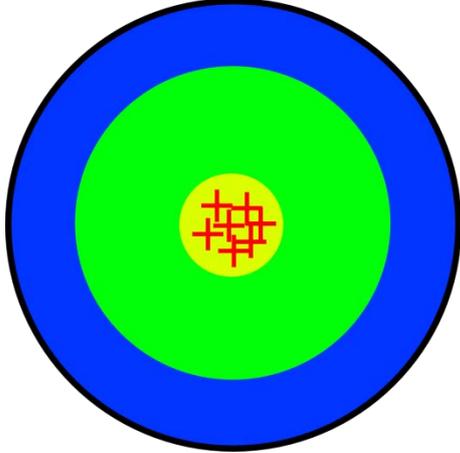
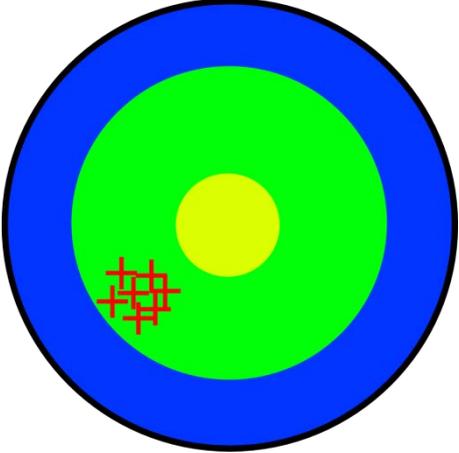
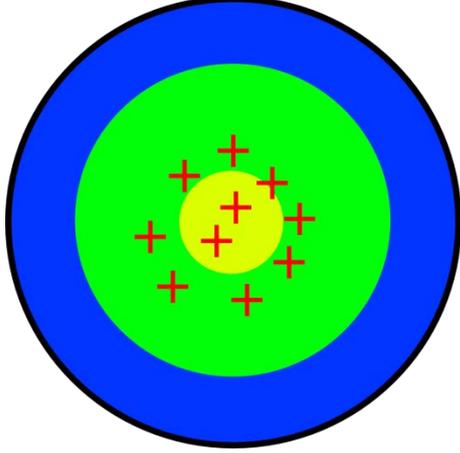
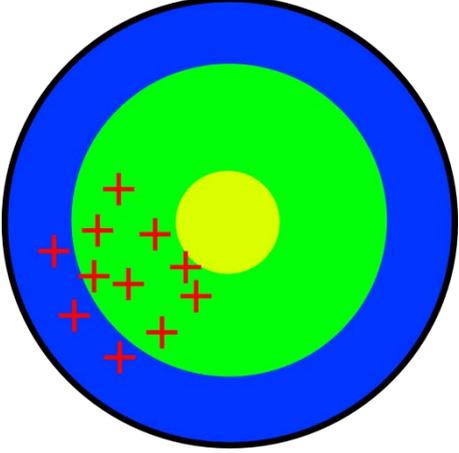
Figure II.11 Mesure de la résolution spatiale des clichés HR-SACP. (a) Image BSE des carrés en platine déposés sur le monocristal de silicium à l'aide du FIB. Le cliché HR-SACP collecté des carrés : (b) 5 µm à 1 µm. (c) 500nm. (d) 500nm sans correction d'hystérésis et sans alignement de la colonne.

Toutefois, pour atteindre une telle résolution, il est nécessaire de réaliser une correction d'hystérésis des bobines et de bien aligner le faisceau d'électrons à travers le diaphragme sélectionné. La figure II.11.d montre un cliché HR-SACP obtenu à partir du même carré 500nm sans appliquer la correction d'hystérésis et l'alignement du faisceau incident. Le pourcentage des pixels ayant une intensité de 255 chute à 6,25%.

#### II.3.2.4 Précision et répétabilité du cliché HR-SACP pour l'accomplissement des conditions de canalisation

Afin de bien comprendre cette partie, il est nécessaire de rappeler la définition de la précision et de la répétabilité. La précision est la proximité de la mesure à la valeur réelle. La répétabilité ou reproductibilité est l'étroitesse de l'accord entre les résultats de mesures successifs du même mesurande. Il convient de noter que ces deux termes ont deux appellations différentes en anglais qui peuvent causer de la confusion. La précision est traduite en *Accuracy* et la répétabilité en *Precision*.

Table II.1 Différence entre la précision et la répétabilité

	Précis ( <i>Accurate</i> )	Imprécis ( <i>Inaccurate</i> )
<b>Bonne répétabilité</b> ( <i>Precise en Anglais</i> )		
<b>Mauvaise répétabilité</b> ( <i>Imprecise en Anglais</i> )		

L'importance de ces deux aspects du HR-SACP consiste à l'accomplissement sans ambiguïté des conditions de canalisation relative à une famille de plan réflectrice pour l'ECCI et la détermination non seulement du vecteur  $\mathbf{g}$  correspondant mais aussi de la valeur du paramètre de déviation  $s$  par rapport à la condition de Bragg.

Ce qui est important pour la technique ECCI, c'est l'établissement des conditions de canalisations avec une précision d'au moins  $0,1^\circ$ . C'est à dire, le fait d'orienter le cristal de manière à avoir le faisceau incident (axe optique du microscope) sur le bord de la bande de la famille de plan réflectrice souhaitée. Cette précision a été généralement admise aux alentours de  $0,1^\circ$  en ECP et en SACP. Dans ce travail, on montre que cette valeur peut facilement être dépassée grâce au développement du HR-SACP.

Le faisceau incident (non dévié) est représenté par une croix au centre du cliché HR-SACP. En collectant plusieurs HR-SACP dans les mêmes conditions de travail (utilisateur, tension d'accélération, positionnement de la platine...) la croix sur le cliché HR-SACP ne bouge pas et reste sur le même pixel. Ce qui veut dire que la répétabilité est meilleure qu'un pixel. Sachant que le cliché HR-SACP est constitué de  $101 \times 101$  pixels et d'une ouverture angulaire de  $4,2^\circ$  (à une  $WD = 10\text{mm}$ ), un pixel représente  $0,042^\circ$ . Donc, le faisceau est orienté avec une précision et une répétabilité d'au moins  $0,042^\circ$ .

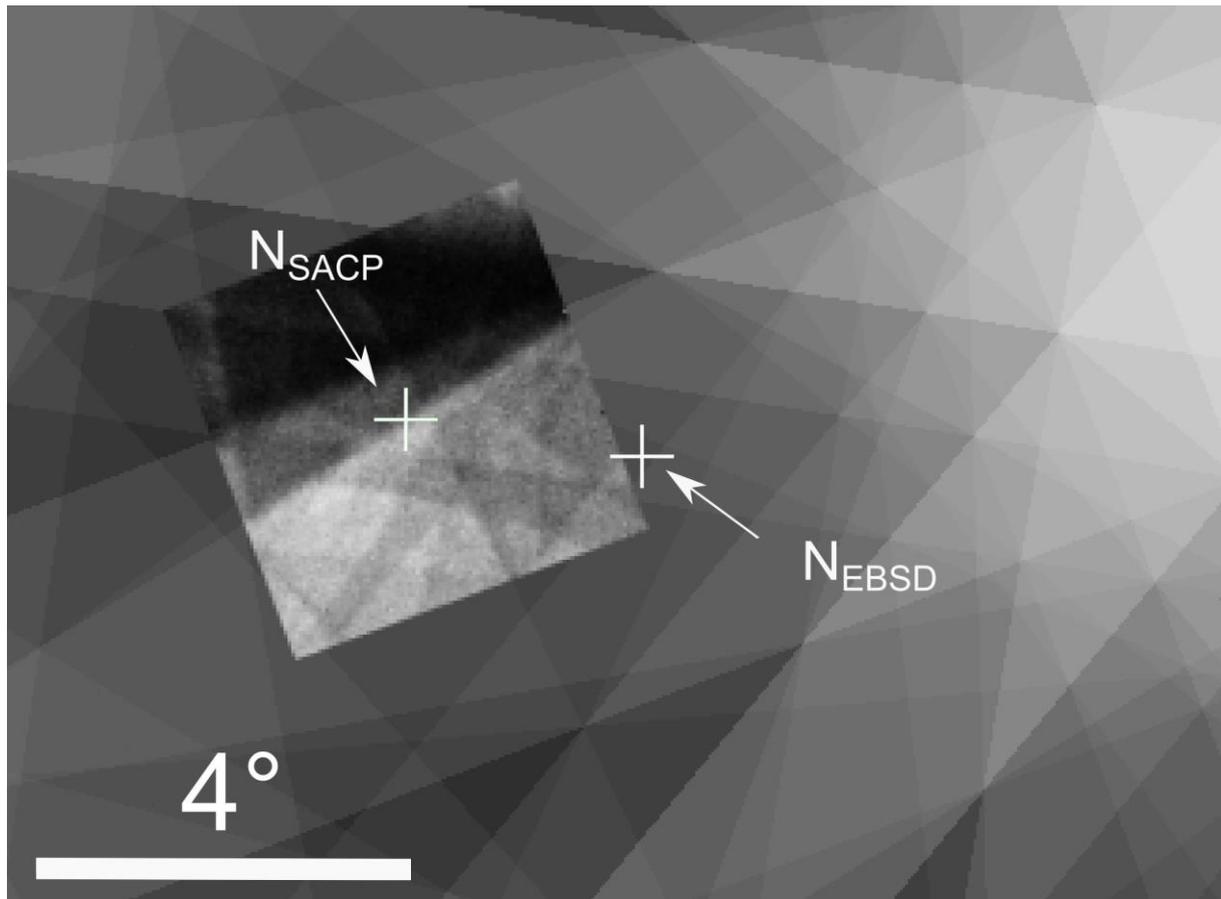


Figure II.12 Comparaison de la normale de l'échantillon simulée à partir de données EBSD (indiqué par  $N_{\text{EBSD}}$  sur la simulation des clichés de Kikuchi) et la normale de l'échantillon (axe optique du microscope) mesurée par le HR-SACP à  $0^\circ$  d'inclinaison.

Dans la figure II.12, l'orientation cristallographique obtenue par HR-SACP est comparée à celle obtenue en simulant des données EBSD. On commence par acquérir une carte EBSD du cristal étudié en l'inclinant à  $70^\circ$ . Puis, on simule l'orientation du cristal à  $0^\circ$  pour la comparer à celle obtenue en utilisant le HR-SACP (les simulations cinématiques sont obtenues en utilisant le logiciel *Esprit DynamicS* de *Bruker*). La figure II.12 montre un HR-SACP acquis sur un monocristal de nitrure de gallium à  $0^\circ$  d'inclinaison superposé à des simulations de

données EBSD également à plat. Ceci permet de comparer les deux mesures. On remarque que l'orientation mesurée par EBSD est décalée par rapport à celle obtenue par HR-SACP. Ce décalage correspond à une erreur d'environ  $2^\circ$ .

Cette expérience est répétée 8 fois résultant à une erreur moyenne de  $1,8^\circ$  entre l'orientation obtenue par l'EBSD et celle déterminée par le HR-SACP. Ceci indique que l'EBSD a une précision (*Accuracy*) d'environ  $2^\circ$ . Cette erreur résulte de deux erreurs systématiques. La première est liée aux erreurs de calibrations du plateau du MEB et de ses imprécisions en inclinaison et en rotation. La deuxième concerne les erreurs liées à l'EBSD comme la détermination du Pattern Center (PC) [19].

Le HR-SACP permet de déterminer directement l'orientation du cristal par rapport au faisceau incident et d'établir les conditions de canalisation avec une précision et répétabilité d'au moins  $0,04^\circ$ . Il présente plusieurs avantages par rapport à l'EBSD, néanmoins les simulations des données EBSD restent très utiles pour l'indexation du cliché HR-SACP à cause de sa petite ouverture angulaire d'environ  $4^\circ$ .

## **II.4 Accurate Electron Channeling Contrast Imaging (A-ECCI)**

Dans cette partie, on s'intéresse à la configuration expérimentale de la technique A-ECCI et à la procédure effectuée pour l'établissement des conditions de canalisation. Ces conditions sont établies en utilisant les clichés HR-SACP collectés par le mode de balayage Rocking Beam. Les HR-SACP ont une petite ouverture angulaire de  $4^\circ$  difficilement indexable. Cependant, en les combinant à des simulations de bande de Kikuchi on arrive à identifier l'orientation du cristal cible et à établir les conditions de canalisation de façon très précise.

### **II.4.1 Configuration expérimentale**

La figure II.13 est une représentation schématique de la configuration expérimentale de l'A-ECCI dans la chambre du MEB. La configuration A-ECCI principalement utilisée dans ce projet de thèse est la configuration *low tilt* (voir partie I.3). Il s'agit d'une configuration dans laquelle on utilise le détecteur d'électrons rétrodiffusés (BSD) insérable sous la pièce polaire, le même utilisé pour l'acquisition des clichés HR-SACP. Ce détecteur BSD possède un diamètre de 10 mm. La distance de travail optimale pour la collection du signal BSE est

d'environ 7mm. Cette distance change d'un détecteur BSE à un autre en fonction de sa taille et de sa géométrie. La procédure utilisée pour la détermination de la WD optimale est la suivante : Premièrement, on fixe les paramètres du microscope à grande distance de travail: tension d'accélération, diaphragme et contraste BSE. On diminue ensuite la distance de travail, en observant l'image BSE en directe. Le signal s'intensifie progressivement jusqu'à atteindre un maximum correspondant à une distance optimale. Au-delà de cette distance, le signal chute de nouveau. Ainsi, la WD optimale pour l'acquisition du signal BSE est déterminée. Cependant, à forte inclinaison, on augmente la WD pour éviter de heurter le détecteur BSD. La WD est généralement entre 7 et 10 mm.

Pour utiliser le système EBSD, l'échantillon est incliné de  $70^\circ$  à une distance de travail de 15mm. La caméra EBSD est équipée d'un détecteur d'électrons rétrodiffusés (FSD) utile pour retrouver la zone étudiée.

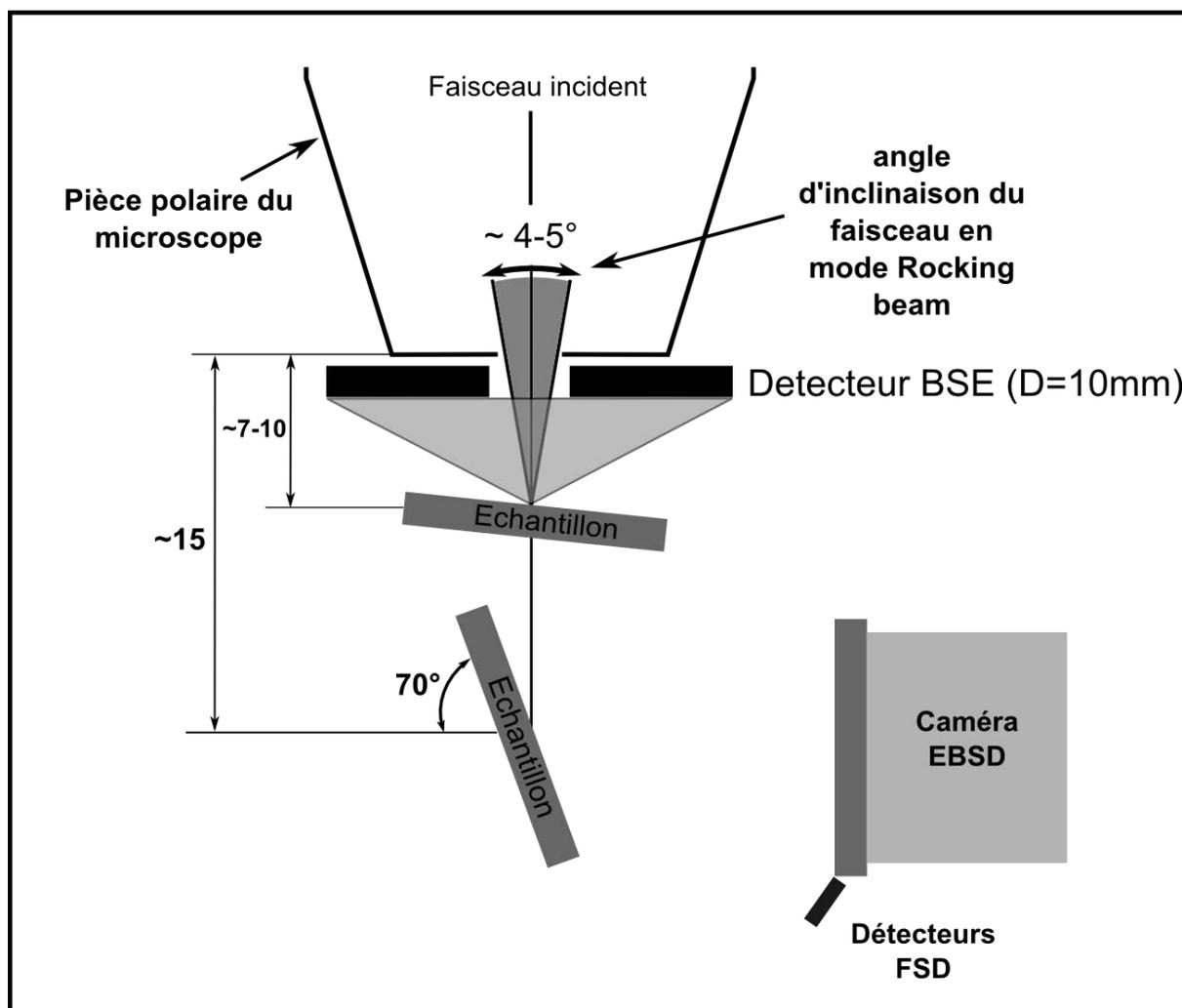


Figure II.13 Représentation schématique de la configuration expérimentale de l'A-ECCI

## II.4.2 Détermination de l'orientation cristallographique

Comme il a été noté auparavant, pour déterminer l'orientation cristallographique exacte du grain cible, on combine l'utilisation du HR-SACP et des simulations de bandes de Kikuchi à partir de données EBSD.

Premièrement, une carte EBSD de la zone étudiée est effectuée à  $70^\circ$  d'inclinaison. Ensuite, on simule les clichés de Kikuchi à  $0^\circ$  d'inclinaison (à plat) à partir de l'orientation mesurée par EBSD, pour connaître approximativement l'orientation du cristal par rapport au faisceau incident avec une erreur de  $\approx 2^\circ$  (précision angulaire de l'EBSD standard). Ensuite l'acquisition des clichés HR-SACP et leur superposition aux clichés simulés permet d'identifier l'orientation cristallographique avec une grande précision. Ceci est illustré sur la figure II.12.

## II.4.3 Établissement des conditions de canalisation

Une fois que l'orientation à plat du cristal est identifiée, l'échantillon est réorienté (incliné et/ou tourné) de façon à atteindre les différentes conditions de canalisation. Pour cela, on se réfère au cliché simulé. La figure II.14 est un schéma explicatif de la procédure utilisée pour trouver les angles de tilt et de rotation nécessaires pour atteindre les différentes conditions de canalisations ( $g_{hkl}$ ).

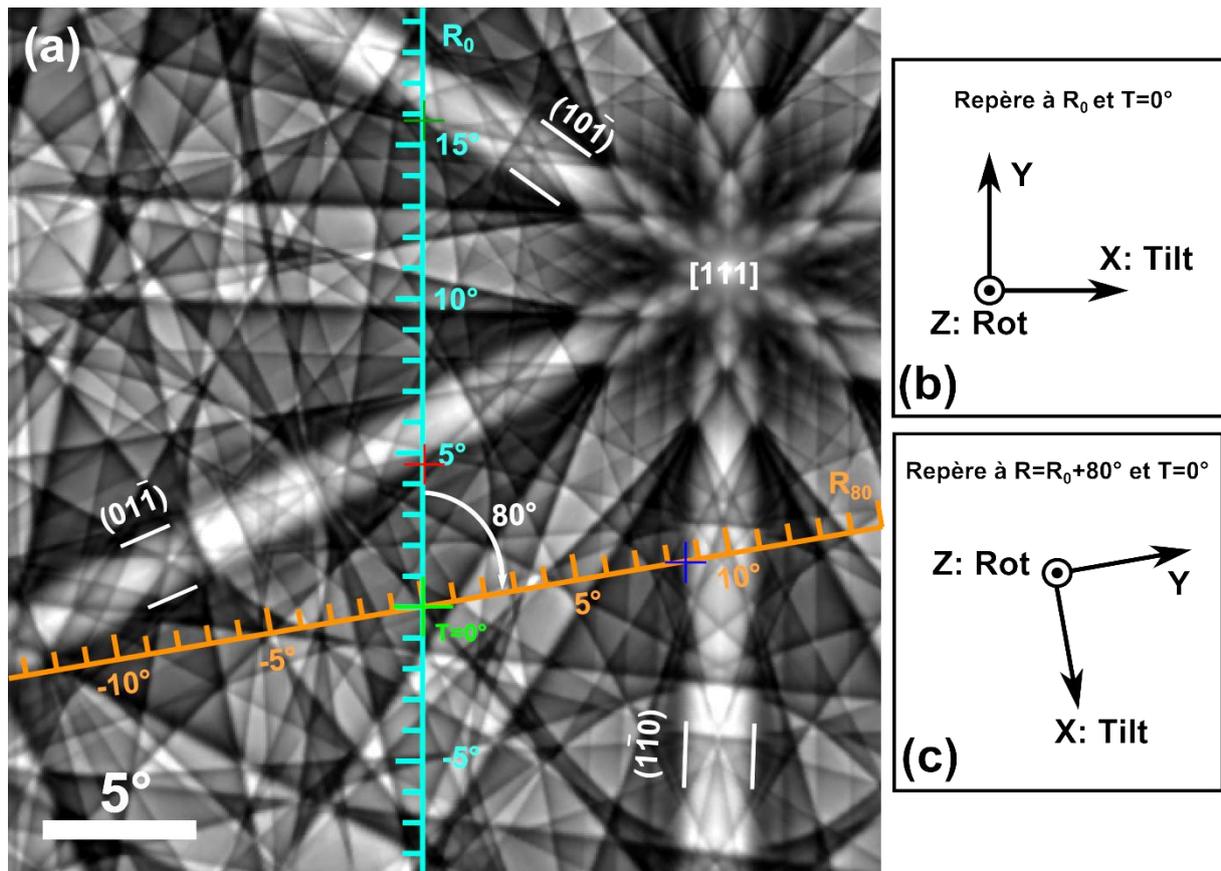


Figure II.14 Schéma explicatif de la mesure des angles de rotation et d'inclinaison nécessaire pour se mettre en conditions de canalisation.

Dans cet exemple, on considère une simulation dynamique des clichés de Kikuchi (figure II.14.a) d'un acier ferritique à partir de données EBSD. L'orientation du cristal à plat (angle de tilt =  $0^\circ$ ) est proche de l'axe de zone [111]. Elle est déterminée par HR-SACP et indiquée sur la figure par la croix verte. L'angle de rotation de la platine  $R_0$  est le même lors de l'acquisition de la carte EBSD. La figure II.14.b illustre le repère de la platine à  $R_0$  et  $T=0^\circ$ . Initialement, l'axe de tilt X correspond à la direction horizontale du cliché simulé. Par conséquent, en inclinant l'échantillon (en gardant la rotation R fixe) le cliché va se décaler vers le bas et la croix va se traduire perpendiculairement à l'axe de tilt X c.-à-d. suivant la direction de l'axe gradué  $R_0$  (en bleu) dans la figure II.14.a. La graduation de l'axe sert à mesurer l'angle de tilt nécessaire pour s'orienter selon les familles de plans ciblés (interceptant la direction  $R_0$ ). Par exemple, pour se mettre en condition de canalisation à  $g = (01-1)$ , il faut incliner l'échantillon de  $\approx 4,7^\circ$  (croix rouge). Pour atteindre d'autres plans qui n'interceptent pas la direction  $R_0$ , il suffit d'effectuer une rotation. Par exemple, pour se mettre en condition de canalisation par rapport à  $g = (1-10)$ , il faudra réaliser une rotation de  $80^\circ$  puis un tilt d'environ  $\approx 7,7^\circ$ . En

effectuant cette rotation, le shift résultant d'une inclinaison ne s'effectue plus selon l'axe  $R_0$  mais selon  $R_{80}$  en orange dans la figure II.14a.

Cependant, ces dernières mesures ne sont pas suffisantes pour se mettre en condition de canalisation avec précision. Ceci est dû à l'imprécision et à la limite mécanique de la platine du MEB en rotation et en inclinaison. De plus, les directions du shift ( $R_0$  et  $R_{80}$ ) tracées dans la figure II.14.a ne sont pas droites mais sont en réalité courbées comme les bandes de Kikuchi. Ceci résulte en une erreur qui augmente proportionnellement à l'inclinaison et à la rotation. Cela permet de s'approcher de la condition de canalisation souhaitée. Il faut alors acquérir un cliché HR-SACP pour affiner le positionnement et se mettre en canalisation de façon précise. Par ailleurs, cela permettra également de contrôler le paramètre de déviation  $s$  par rapport à la condition  $g$ .

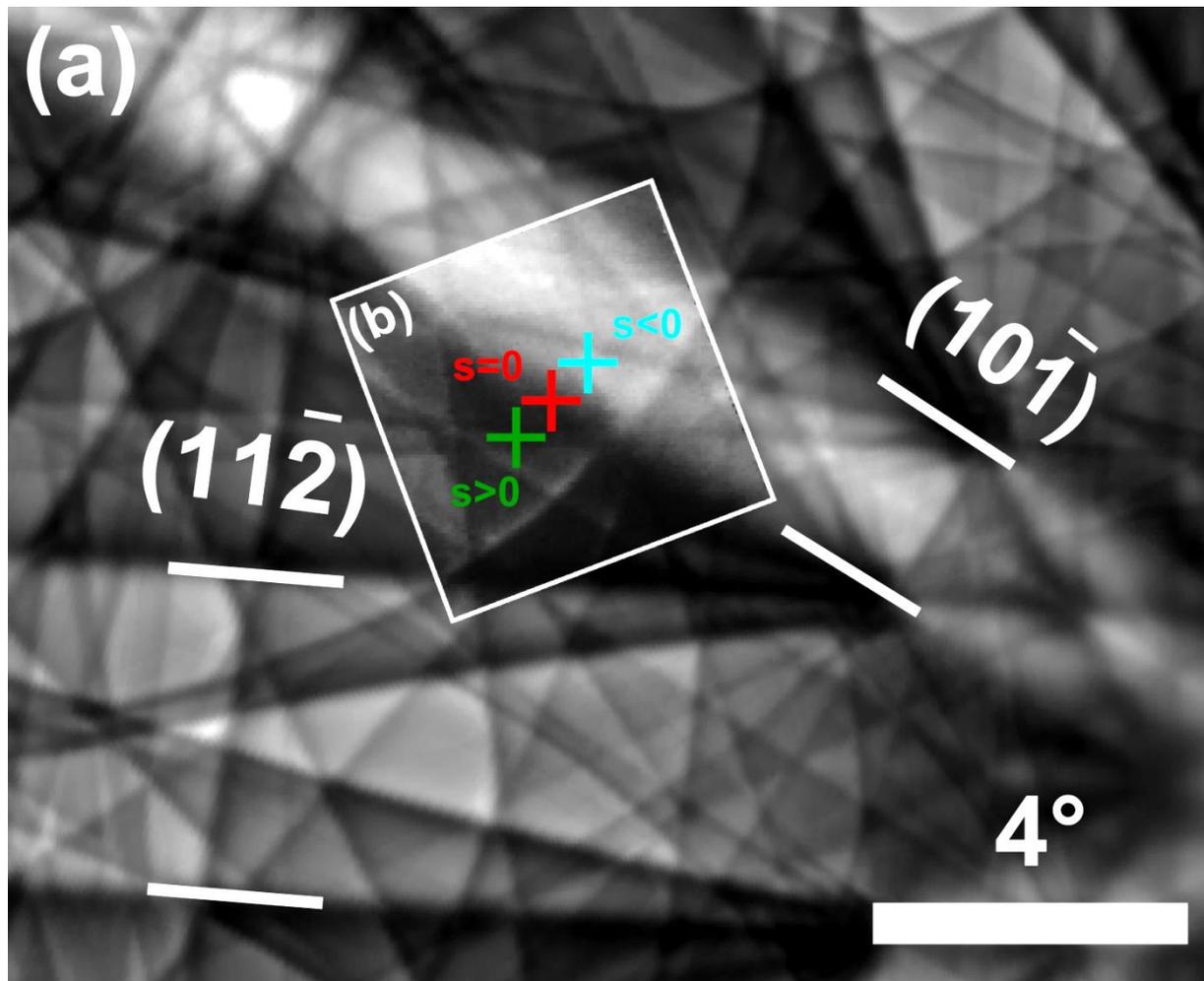


Figure II.15 Établissement de la condition de canalisation pour  $g = (10-1)$ . (a) Simulation dynamique des clichés de Kikuchi. (b) HR-SACP, croix rouge  $s=0$ , bleu  $s<0$  et verte  $s>0$ .

La figure II.15 illustre le positionnement final utilisant le HR-SACP et l'établissement de la condition de canalisation à  $g = (10-1)$ . Un HR-SACP (figure II.15.b) de la condition de canalisation est superposé à la simulation dynamique. Le code couleur des croix dans le cliché HR-SACP est fonction du paramètre de déviation  $s$ . Pour,  $s=0$  la croix est rouge,  $s<0$  la croix est bleu et  $s>0$  la croix est verte. On se met généralement à une condition de canalisation avec une déviation légèrement positive ( $s>0$ ) pour un contraste de canalisation optimal. Ainsi la matrice (grain) est très sombre ce qui permet une meilleure visibilité des défauts cristallins.

## II.5 Conclusion et discussion

Les résultats présentés dans ce chapitre concernent deux points importants. Premièrement, le développement du *Rocking Beam* sur la colonne GEMINI I malgré qu'elle n'était pas conçue pour cela. Deuxièmement, l'établissement des conditions de canalisation en utilisant le HR-SACP combiné avec les simulations de bande de Kikuchi.

La méthode utilisée pour créer la précession du faisceau présentée dans cette étude (figure II.2) est différente des méthodes (Déflexion Double, Déflexion Focale et Balayage Spiral) citées dans le chapitre I. La première différence réside dans la série de déflexion plus nombreuses et complexes. D'abord, deux déflexions sont effectuées au niveau des ApC afin de décaler le faisceau de l'axe optique tout en lui restant parallèle. Ensuite, une déflexion supplémentaire est appliquée par la SC aux faisceaux décentrés de l'axe optique du microscope. Enfin, l'action de focalisation de la lentille objectif C3 résulte dans une dernière déflexion du faisceau d'électrons. Le deuxième point qui distingue cette procédure est la calibration du *Beam Shift* appliquée par les SC. Cela permet d'améliorer considérablement la résolution spatiale. De plus, cette technique n'est pas limitée par des problèmes d'hystérésis en changeant le mode de balayage (standard vers *Rocking Beam*), puisque la lentille objectif reste excitée de la même manière.

Ces différentes déflexions sont dues à la conception spéciale de la colonne GEMINI I, comme indiqué dans la section II.2.2. La colonne GEMINI I ne possède qu'un seul système de bobine de balayage. De plus, la colonne utilise des diaphragmes fixes réglables électroniquement au lieu des diaphragmes classiques réglables mécaniquement. Grâce aux bobines ApC conçues initialement pour défléchir le faisceau vers le diaphragme sélectionné le mode RB a pu être mis au point.

Les calibrations digitales n'ont jamais été utilisées pour le développement d'un mode de balayage RB. Il est clair qu'au premier développement du RB, il n'était pas possible d'utiliser de telles commandes digitales précises sur les instruments analogiques alors disponibles. Des corrections dynamiques de focalisation de la lentille objectif permettant de minimiser les aberrations sphériques ont été utilisées sur des MEB (comme le microscope CamScan de TESCAN [Dluhos 2012]). Mais ces corrections ont été appliquées en contrôlant les gains électroniques des bobines, ce qui est loin de la précision des calibrations digitales. De plus, ces corrections souffrent des problèmes de latence et d'hystérésis de la lentille objectif.

Dans la procédure développée ici, les problèmes de latence et d'hystérésis de la lentille objectif sont évités du fait que son courant reste constant en mode RB. De plus, la calibration digitale est acquise pour des conditions de travail du microscope bien définies ce qui rend les corrections très précises en comparaison avec les corrections réalisées en contrôlant le gain des bobines. Ces corrections prennent en compte presque toutes les conditions de travail principales du MEB et ne se basent pas sur des modèles prédictifs de certains effets comme les aberrations sphériques. De plus, ces calibrations peuvent être acquises à plusieurs conditions de travail, comme la tension d'accélération ou la distance de travail, et donc offrent une grande flexibilité pour acquérir des clichés HR-SACP. Cette procédure d'amélioration de résolution spatiale ne se limite pas à la colonne GEMINI I et peut être appliquée à n'importe quel MEB une fois qu'il possède un mode RB.

Alors que notre approche présente un avantage significatif vis à vis de la résolution spatiale, elle reste limitée par le besoin d'acquisition des points de calibration ce qui prend entre 15 et 30 minutes (en fonction du nombre de points utilisés pour la calibration). En outre, l'acquisition d'un cliché HR-SACP de résolution 101x101 pixels dure environ sept minutes ce qui est relativement long par rapport aux autres modes RB développés dans le passé. Ce temps de collection relativement long est majoritairement dû au temps de communication de l'interface API avec le MEB. Cependant, il serait possible d'améliorer ce temps d'acquisition en faisant des modifications hardware sur la machine pour utiliser une communication directe au lieu de passer par l'interface API.

Dans cette étude, une méthode rigoureuse pour la quantification de la résolution spatiale du HR-SACP a été utilisée pour la première fois. Il convient de noter que nous avons utilisé une déposition des carrés en Pt au lieu des cercles à cause de la difficulté que requiert la déposition de forme circulaire d'une petite taille au FIB. Pour la même raison les carrés

utilisés ont une taille minimale de 500 nm. Il est possible d'améliorer cette résolution spatiale en augmentant le nombre de points de calibration du *Beam Shift*. En effet, la calibration du *Beam Shift* ne dépend que du déplacement du faisceau et de son repositionnement qui a une précision de quelques nanomètres. Donc, théoriquement il serait possible d'avoir une résolution spatiale de cliché HR-SACP en dessous de 100 nm se rapprochant ainsi de la limite de la résolution spatiale du signal des électrons rétrodiffusés.

Il y a un autre facteur qui affecte considérablement la résolution spatiale et qu'il faudra aussi corriger si on veut atteindre une résolution en dessous des 100 nm: c'est l'astigmatisme. En effet, ce dernier croit considérablement avec l'inclinaison du faisceau lors du RB accentuant ainsi l'effet des aberrations sphériques et limitant la résolution spatiale. La figure II.16.a est une image d'électrons secondaires de type I (InLens SE) prise sur un monocristal de silicium après avoir acquis un cliché HR-SACP. La correction du *Beam Shift* a été désactivée volontairement pour imager l'effet de contamination de chaque faisceau pendant le balayage RB. Chaque tâche noire sur l'image est en effet la tâche de contamination du faisceau incident à un certain angle d'incidence. Les tâches au milieu proche des indices 1 correspondent aux faibles angles d'incidence. Les tâches près des indices 2 correspondent aux faisceaux distordus à cause de l'astigmatisme quand l'inclinaison devient importante. Les figures II.16.b et II.16.c sont des représentations schématiques respectivement des faisceaux non distordus et distordus. Ces tâches sont linéairement ordonnées et espacées au milieu de l'image. Les axes de tilt du faisceau (ApC X et ApC Y) par les ApC sont déduits de l'image. On remarque que plus l'angle augmente plus les tâches de contamination s'allongent: Cela est dû à l'effet de l'astigmatisme, qui croit proportionnellement à l'angle d'incidence du faisceau. Cependant dans cette étude, ni l'astigmatisme ni la focalisation de la lentille objectif lors du mode RB n'ont été corrigés pour deux raisons. Premièrement, il est très difficile de contrôler plusieurs paramètres en même temps (ApC, *Beam Shift*, Focalisation de la lentille C3 et l'astigmatisme) et d'arriver à les synchroniser seulement en les contrôlant électroniquement via API. Deuxièmement, ces paramètres sont liés entre eux et cela impliquera la nécessité de plusieurs calibrations supplémentaires pour bien les contrôler pendant le RB.

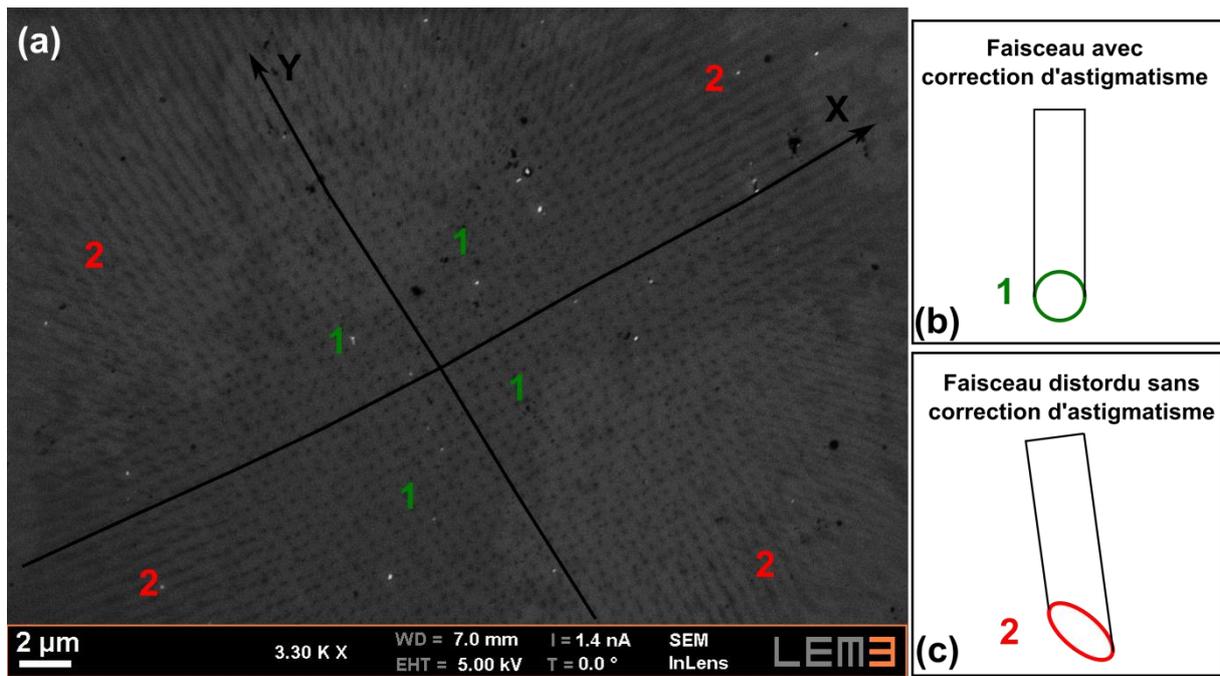


Figure II.16 (a) Tâches de contamination du faisceau d'électron lors du mode de balayage Rocking beam en désactivant la correction du Beam shift. (b) Faisceau avec correction d'astigmatisme (c) Faisceau distordu sans correction d'astigmatisme

Dans cette étude, l'approche HR-SACP présentée est idéale pour l'établissement des conditions nécessaires à la technique ECCI, c'est à dire contrôler les conditions de canalisation en alignant le faisceau incident en position de Bragg par rapport à une famille de plan réflecteur avec une précision supérieure ou égale à  $0,04^\circ$ . Sans le cliché HR-SACP, il est très difficile d'être précis dans l'établissement des conditions de diffraction en se basant seulement sur l'EBSD, comme illustré dans la figure II.12. L'EBSD a une très bonne répétabilité mais une précision d'environ  $2^\circ$  en orientation absolue (par rapport à l'axe optique). De plus, contrairement au cliché SACP, l'EBSD ne permet pas la visualisation directe à basse inclinaison des clichés de Kikuchi. Ainsi, le développement du HR-SACP facilite considérablement l'utilisation de la technique ECCI. Cependant, la procédure présentée pourrait encore être accélérée en simulant les angles de rotation et d'inclinaison (à partir des données EBSD) nécessaires pour se mettre en condition de canalisation.

## ***Chapitre III***

# ***Analyse des défauts cristallins par imagerie de contraste de canalisation des électrons (A-ECCI): application à l'acier IF***

---

*Le contenu de ce chapitre a fait l'objet de deux publications dans Scripta Materialia, en 2014 et 2015.*

*La technique Imagerie par Contraste de Canalisation des Électrons est utilisée, pour la première fois sur un matériau polycristallin à petits grains (15-20 $\mu$ m), pour caractériser des dislocations (vis, coins et mixtes) et des sous-joints de grain de très faible désorientation. Une procédure a été mise en place pour analyser les dislocations (ligne de dislocation et vecteur de Burgers) et les sous joints de grain (type, structure, désorientation). Les critères d'invisibilité valables en MET ont été appliqués :  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  et  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$ . Ceci est réalisé rapidement, sans détruire le matériau et sans ambiguïté. Ce qui signifie qu'il devient alors possible de réaliser des analyses similaires à celles de la microscopie électronique en transmission en s'affranchissant de la préparation de lames minces et en profitant des avantages du MEB. Dans ce chapitre cette procédure est appliquée à un acier IF (Interstitial Free).*

## III.1 Introduction

Les aciers IF (Interstitial Free) sont utilisés particulièrement dans l'industrie automobile dans le but de minimiser la masse des véhicules sans perdre en rigidité ou en résistance au crash. Grâce à une métallurgie spécifique sans éléments interstitiels (Interstitial Free), ces aciers ont un très bon compromis entre formabilité et résistance mécanique. Le pourcentage massique du carbone (élément principal d'addition interstitiel avec l'azote) dans l'acier IF est de 0,005% et les autres éléments interstitiels sont stabilisés par ajout de titane ou niobium. Cette faible teneur en carbone donne aux aciers IF une microstructure purement ferritique.

Afin d'améliorer les performances de ces aciers, il est important de comprendre le lien entre leurs propriétés mécaniques et la microstructure du matériau, c.-à-d. étudier les défauts cristallins comme les dislocations, joints de grain, sous joints de grain et comprendre les mécanismes de déformation. Jusqu'à présent, ce type d'analyse a été réalisé principalement en MET puisqu'elle permet d'atteindre une haute résolution (0,1nm-0,01nm). Cependant la préparation de lames minces nécessaire au MET est très fastidieuse et cause souvent des artefacts qui nuisent à l'analyse et à l'interprétation des résultats. De plus, les zones étudiées au MET sont limitées à la taille de la lame mince (typiquement 15 $\mu$ m x 5 $\mu$ m x 50nm).

Le but de ce chapitre est d'appliquer la technique A-ECCI au MEB pour caractériser les défauts cristallins dans l'acier IF massif choisi ici comme "matériau modèle". Des dislocations (vis, coins et mixtes) sont analysées en utilisant les critères d'invisibilités  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  et  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$  utilisés généralement au MET. Puis, un sous joint de grain (SJG) de très faible désorientation ( $\approx 0,1^\circ$ ) est caractérisé (type, structure de dislocations et désorientation) en utilisant l'A-ECCI et le High Resolution Selected Area Channeling Pattern (HR-SACP). Les résultats sont ensuite comparés à ceux obtenus par calcul théorique et mesurés par EBSD haute précision. Ceci ouvre de nouveaux horizons à l'étude des défauts cristallins au MEB avec une échelle comparable à celle du MET tout en étudiant des zones beaucoup plus larges. Ce qui permettra d'avoir des résultats plus valides statistiquement.

## III.2 Matériau

L'acier IF utilisé dans cette étude a été fourni par ArcelorMittal. Il a été d'abord laminé à chaud dans un intervalle de température entre 1120° et 1000° pour atteindre une épaisseur de

2,8 mm. Il a subi ensuite un laminage à froid pour avoir une épaisseur finale de 1,4 mm suivi d'un traitement de recristallisation.

L'acier IF+2Si est purement ferritique et possède une structure cristalline cubique centré (cc). Afin d'augmenter le nombre de dislocation dans le matériau, l'échantillon étudié a été déformé de 1% en traction.

### III.2.1 Préparation métallographique de l'acier IF

Une bonne préparation métallographique de l'échantillon est primordiale pour avoir de bons résultats avec la technique A-ECCI. Dans le cas de l'acier IF, l'échantillon est poli mécaniquement avec des draps de polissage de différentes tailles de particule jusqu'à la taille de 1 $\mu$ m. Pour enlever la zone écrouie mécaniquement (zone de Beilby), il est suivi par un polissage électrolytique en utilisant une solution contenant: 700 ml d'éthanol, 120 ml d'eau distillé, 100 ml d'éther monobutylique d'éthylène glycol et 78 ml d'acide perchlorique à une tension de 60 V pendant 5 s. Ceci résulte en une surface plane sans contraintes résiduelles.

## III.3 Résultats

La figure III.1.a est une image acquise avec le détecteur des électrons rétrodiffusés (BSD). Elle permet d'avoir une idée globale sur l'état de l'échantillon. Puisque l'acier IF est monophasé, le contraste visible dans l'image BSE n'est lié qu'à l'orientation cristallographique (voir Annexe I). C'est ce qui nous permet en ce mode d'imagerie de distinguer les grains. Ceux avec un contraste sombre sont en condition de canalisation, puisque la majorité des électrons rétrodiffusés pénètrent en profondeur de l'échantillon ce qui donne une faible intensité sur le détecteur BSD.

Dans la figure III.1, deux clichés HR-SACP sont collectés des grains 2 et 3 (Figure III.1.d-e). Malgré la petite taille des grains (4 $\mu$ m pour le grain 3), les clichés HR-SACP collectés sont de bonne qualité, sans bruit ni distorsion. Ainsi, l'orientation cristallographique de ces petits grains est déterminée sans aucune ambiguïté grâce à la résolution spatiale de 500 nm du HR-SACP et sa résolution angulaire (meilleure que 0,5°). Les figures III.1.b et III.1.c sont des clichés HR-SACP collectés respectivement dans les zones 1 $\alpha$  et 1 $\beta$  du même grain 1. En comparant ces deux clichés, on remarque un léger déplacement de la croix rouge (trace du faisceau d'électrons hors balayage et correspondant à l'axe optique du microscope). Ce

décalage correspond à la désorientation entre les zones  $1\alpha$  et  $1\beta$  également visible grâce au léger changement de contraste dans l'image BSE (Figure III.1.a). Connaissant l'ouverture angulaire du HR-SACP ( $4,2^\circ$  à  $WD=10\text{mm}$ ) et le nombre de pixel séparant les deux croix, cette désorientation est d'environ  $0,3^\circ$ .

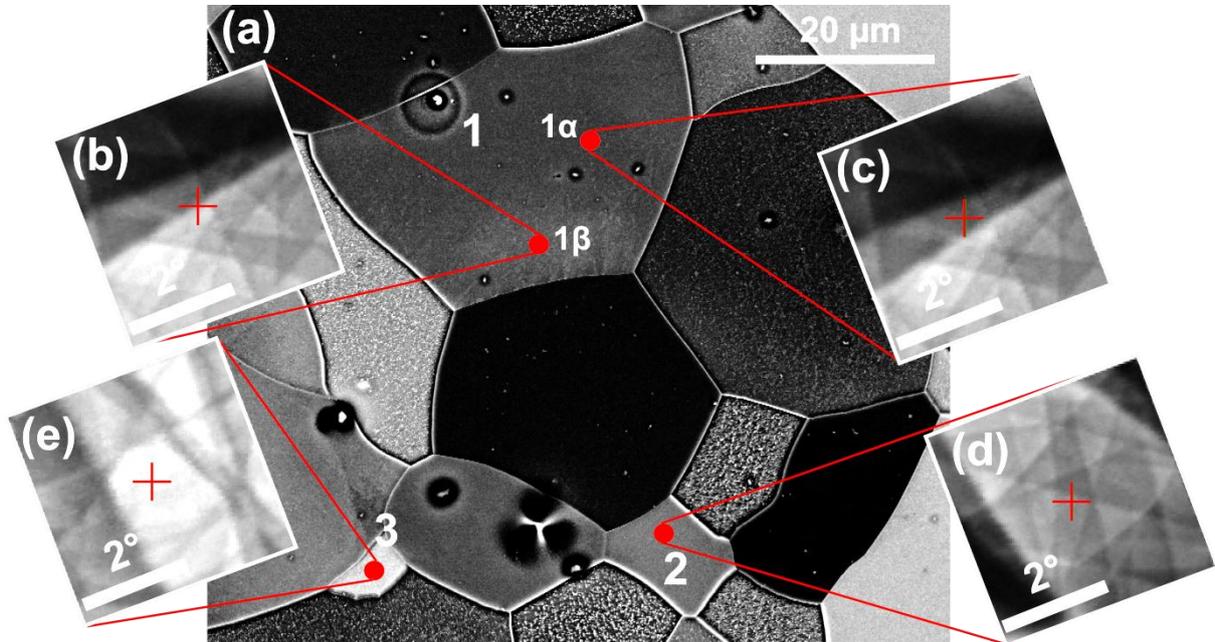


Figure III.1.a Micrographie A-ECCI de l'acier IF. Collection de cliché HR-SACP de grains de différentes tailles.

### III.3.1 Caractérisation des dislocations vis, coins et mixtes

Dans cette partie, l'A-ECCI est appliqué pour la caractérisation de dislocations en utilisant les critères d'invisibilités  $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$  et  $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\times\mathbf{u}=0$ , utilisés généralement au MET. La zone étudiée est celle notée par  $1\alpha$  du grain 1 de la Figure III.1.a. La procédure décrite dans le chapitre précédent est appliquée afin de se mettre en conditions de canalisation d'électrons (2-ondes). Dans un premier temps, une carte EBSD de la zone étudiée est réalisée évidemment à  $70^\circ$  d'inclinaison. À partir de ces données EBSD, les clichés de Kikuchi correspondants à l'orientation du grain cible à  $0^\circ$  d'inclinaison (échantillon à plat) sont simulés en utilisant le logiciel Esprit DynamicS de Bruker. Cette simulation permet d'obtenir un diagramme de Kikuchi à  $0^\circ$  et donc de connaître approximativement l'orientation du cristal dans le repère du microscope et par rapport au faisceau incident. L'acquisition des clichés HR-SACP permet ensuite d'établir les conditions de canalisation avec une grande précision en appliquant les rotations et les inclinaisons nécessaires.

La Figure III.2.a est la simulation dynamique des clichés de Kikuchi à partir de données EBSD de la zone  $1\alpha$ . Les 4 clichés HR-SACP (Figure III.2.b-e) représentent les conditions de canalisation utilisées dans l'analyse des dislocations et sont superposées sur la simulation dynamique. La croix verte indique l'orientation du cristal à  $0^\circ$  d'inclinaison par rapport au faisceau incident. Elle est obtenue à partir d'un HR-SACP collecté à plat (à  $0^\circ$  d'inclinaison et  $0^\circ$  de rotation). Les 4 conditions de canalisation sont atteintes en inclinant et en le tournant l'échantillon.

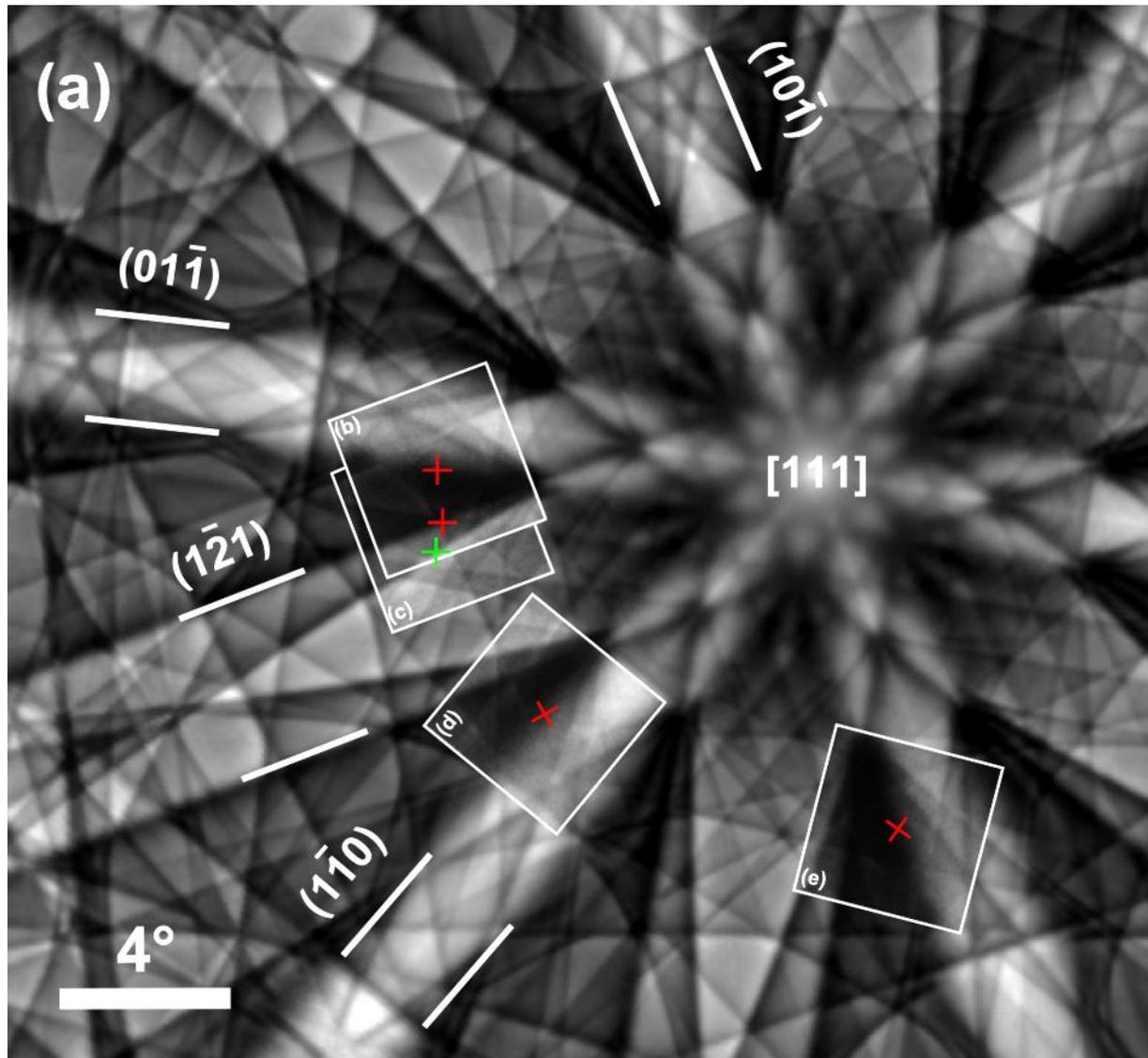


Figure III.2 Superposition des clichés HR-SACP (b, c, d et e) utilisé dans l'analyse des dislocations sur une simulation dynamique des bandes de Kikuchi (a).

Dans un acier IF de structure cc à faible déformation, les dislocations ont un vecteur de Burgers  $\mathbf{b} = 1/2 \langle 111 \rangle$ . Ceux de type vis ont une ligne de dislocation parallèle au vecteur de Burgers, c.-à-d. la même direction  $\langle 111 \rangle$ . Les dislocations coins ont une ligne de direction

$\langle 110 \rangle$  perpendiculaire au vecteur de Burgers. Cependant, la dislocation mixte peut avoir une ligne courbée sans une direction bien définie. Elle possède deux composantes: une vis et une coin en fonction de sa ligne ( $\perp$  ou  $\parallel$  au vecteur de Burgers).

L'analyse de dislocations par A-ECCI est représentée dans la Figure III.3. Dans les 4 conditions de canalisation utilisées, la matrice du grain étudiée apparaît sombre (canalisation d'électron) et les dislocations apparaissent comme des lignes blanches (écart par rapport à la condition de canalisation). Parmi les dislocations existantes dans la zone étudiée, 4 groupes sont étudiés: les dislocations **a**: a1, a2 (**en vert**), **b**: b1, b2, b3, b4, (**en bleu ciel**), **c** (**en magenta**) et **d** (**en marron**). Un code couleur est utilisé pour mieux visualiser chaque groupe de dislocations. La couleur devient rouge lorsque les dislocations disparaissent (à  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  ou  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$ ).

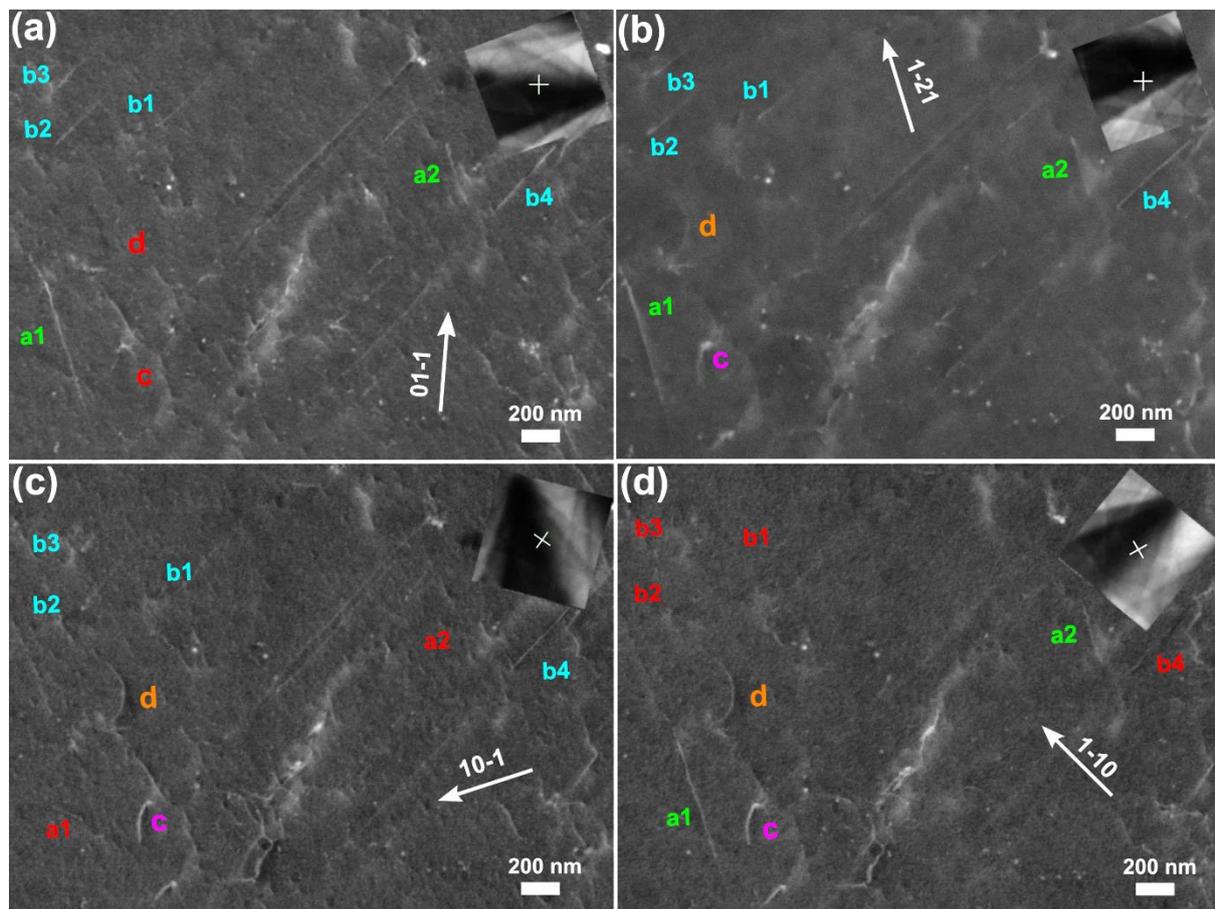


Figure III.3 Micrographies A-ECCI: analyse de dislocation vis, coin et mixte dans l'acier IF en utilisant les critères d'invisibilité  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  et  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$ .

On commence par l'analyse des dislocations **a1-a2** et **b1-b4**. Puisqu'en ECCI le contraste des dislocations diminue avec leur pénétration dans l'échantillon, il est alors possible de

déterminer le sens d'inclinaison des dislocations. On remarque que les lignes de dislocations des groupes **a** et **b** sont à peu près à  $120^\circ$  l'une de l'autre. La projection stéréographique des pôles  $\{111\}$  (voir Figure III.4) correspond aux traces des dislocations **a** et **b**. Ces lignes sont respectivement dans les directions  $[1-11]$  et  $[11-1]$ . Ceci indique qu'elles sont probablement des dislocations vis puisque le vecteur de Burgers dans l'acier cc est de la famille  $\mathbf{b} = 1/2 \langle 111 \rangle$ . Afin de vérifier leur caractère vis, le critère d'invisibilité  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  est appliqué pour déterminer les vecteurs de Burgers. Les dislocations **a** sont visibles à  $\mathbf{g} = (01-1)$  (Figure III.3.a),  $\mathbf{g} = (1-21)$  (Figure III.3.b) et  $\mathbf{g} = (1-10)$  (Figure III.3.d) et disparaissent à  $\mathbf{g} = (10-1)$  (en rouge dans la Figure III.3.c) satisfaisant ainsi  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$ , où  $\mathbf{g}$  est perpendiculaire à la ligne de dislocation. Donc, les dislocations **a1** et **a2** sont bien des dislocations vis et possèdent un vecteur de Burgers  $\mathbf{b}_a = 1/2 [1-11]$ . De la même manière, on démontre que les dislocations **b** sont des dislocations vis ayant comme vecteur de Burgers  $\mathbf{b}_b = 1/2 \langle 11-1 \rangle$  (Elles deviennent invisibles à  $\mathbf{g} = (1-10)$  dans la figure III.3.d).

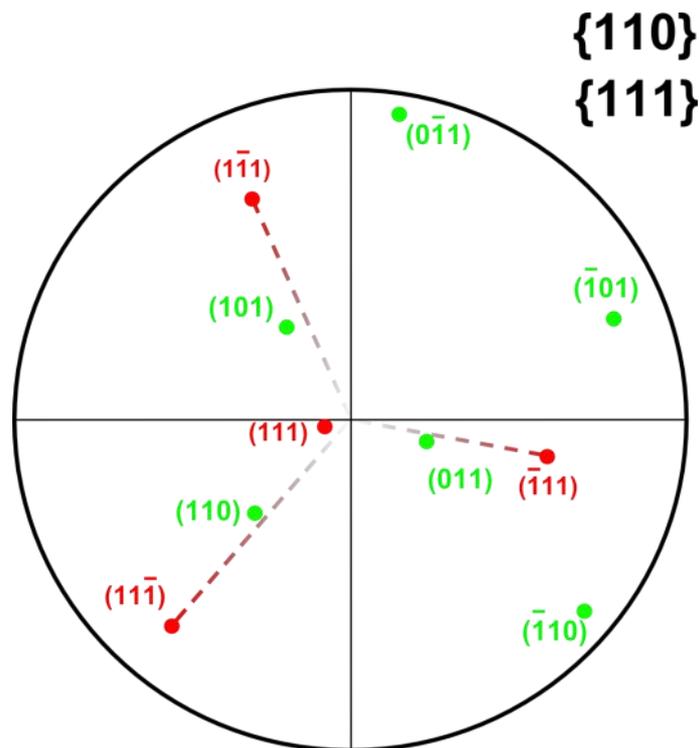


Figure III.4 Projection stéréographique des pôles  $\{110\}$  et  $\{111\}$ .

On s'intéresse ensuite à la dislocation **c**. La figure III.5 est un agrandissement de la dislocation **c** observée dans la figure III.3. Elle possède une ligne de dislocation qui n'est pas parfaitement droite. La direction de la dislocation change légèrement. Ceci est peut être due à l'émergence de la dislocation en surface et donc à la relaxation de contrainte, qui cause généralement une

petite déviation de la ligne de dislocation juste avant son émergence à la surface. Si c'est le cas alors, le point le plus lumineux situé à l'extrémité de la ligne (vers le haut) est le point d'émergence de la dislocation à la surface. Selon la projection stéréographique de la figure III.4, la direction de la dislocation  $\mathbf{c}$  est proche de  $\mathbf{u} = [0-11]$  indiquant que ce n'est pas une dislocation vis. Pour connaître le vecteur de Burgers de la dislocation, les critères d'invisibilités  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  et  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$  sont utilisées. La dislocation  $\mathbf{c}$  est visible à  $\mathbf{g} = (10-1)$  (figure III.5.c),  $\mathbf{g} = (1-10)$  (figure III.5.d) et  $\mathbf{g} = (1-21)$  (figure III.5.b) et disparaît à  $\mathbf{g} = (01-1)$  (figure III.5.a) qui satisfait  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  et  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$ . Dans la figure III.5.a, malgré le léger changement dans sa direction, la dislocation  $\mathbf{c}$  disparaît complètement à l'exception d'une tâche blanche. Cette tâche peut être le point d'émergence à la surface, qui reste bien visible à cause de la relaxation de contrainte ou bien une autre dislocation connectée à la dislocation  $\mathbf{c}$ . En conclusion, la dislocation  $\mathbf{c}$  est probablement une dislocation coin ayant comme vecteur de Burgers  $\mathbf{b} = 1/2[-111]$  et comme ligne de dislocation  $\mathbf{u} = [0-11]$ .

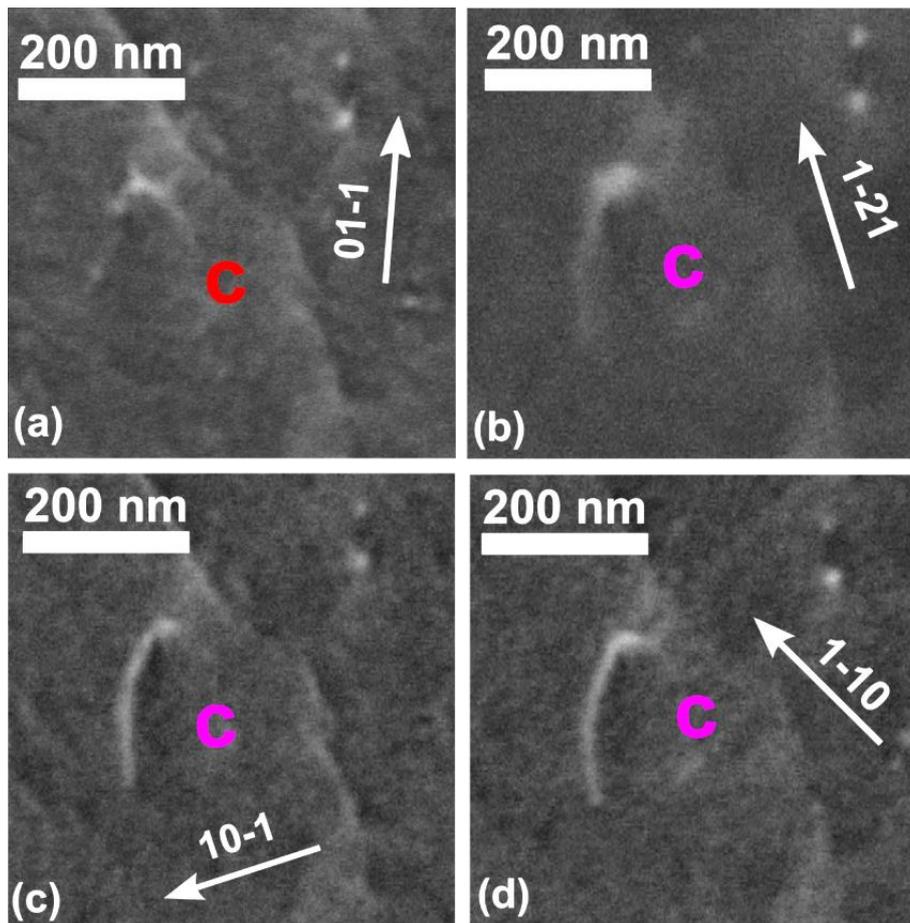


Figure III.5 Agrandissement et caractérisation de la dislocation  $\mathbf{c}$  de la figure III.3

La figure III.6 est un agrandissement de la dislocation **d** de la figure III.3. Cette dislocation possède une ligne courbée indiquant qu'elle a un caractère mixte. Le critère d'invisibilité est appliqué pour déterminer le vecteur de Burgers. La boucle est visible à  $\mathbf{g} = (10-1)$ ,  $\mathbf{g} = (1-10)$  et  $\mathbf{g} = (1-21)$  et disparaît à  $\mathbf{g} = (01-1)$  qui satisfait  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  (voir figure III.6.a-d). Donc, la dislocation **d** possède un vecteur de Burgers  $\mathbf{b} = 1/2[-111]$ .

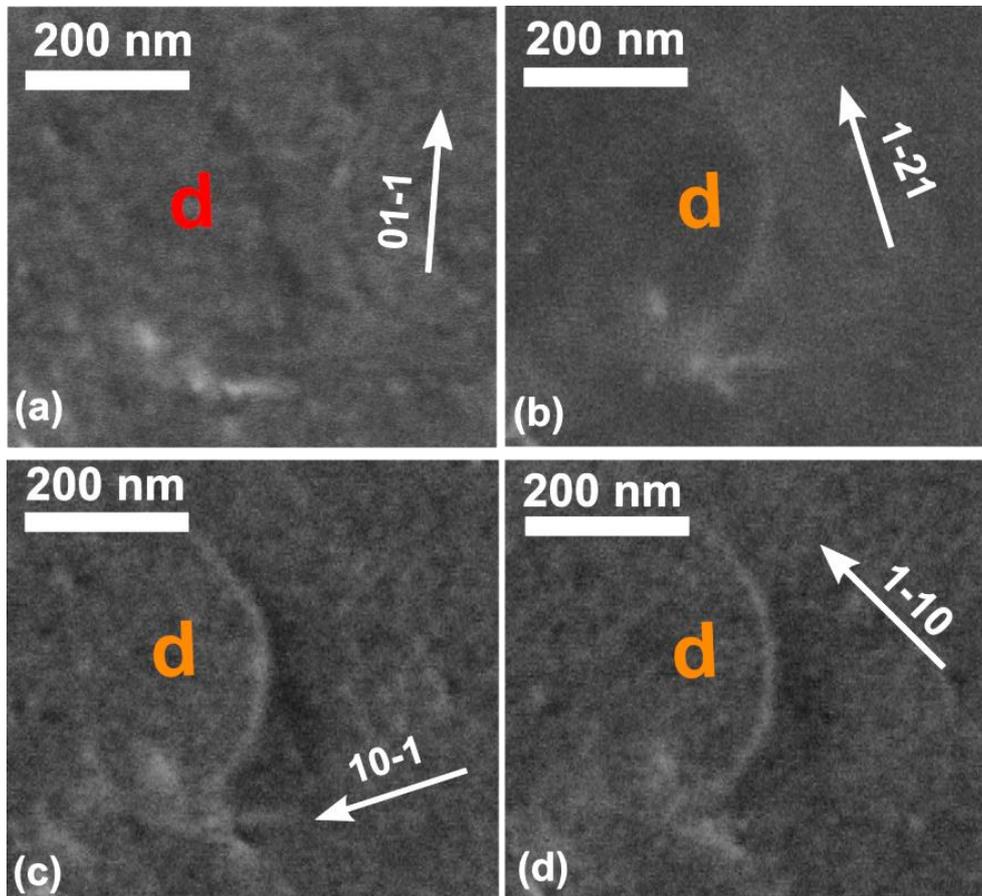


Figure III.6 Agrandissement et détermination du vecteur de Burgers de la boucle de dislocation (dislocation mixte) de la figure III.3.

### III.3.2 Étude d'un sous joint de grain tilt de très faible désorientation

Dans cette partie l'A-ECCI assisté par HR-SACP est utilisé pour la première fois au MEB pour caractériser un SJG de très faible désorientation. L'EBSD haute précision est utilisé pour vérifier les résultats obtenus.

### III.3.2.1 Mesure de la désorientation par HR-SACP

La figure III.7.a est une image BSE du grain étudié. Le changement de contraste dans le grain (du gris vers le blanc) révèle la position du SJG. Cette modification de contraste est due à la désorientation du réseau cristallin de part et d'autre du SJG. On remarque que ce dernier s'arrête au milieu du grain. Afin de mesurer la désorientation, deux clichés HR-SACP (figure III.7.b-c) sont collectés de part et d'autre du SJG. Les deux clichés sont très similaires mais on remarque un petit décalage de la croix rouge (qui indique l'orientation du cristal par rapport au faisceau incident). Ce décalage correspond à la désorientation du réseau cristallin autour du SJG. En utilisant le logiciel **Fiji** et plus précisément une fonction de superposition d'image (**MultistackReg**). Il s'agit de prendre l'un des deux clichés comme référence et de mesurer le décalage entre les deux en pixels. Le nombre de pixels correspondant au décalage entre les deux HR-SACP est mesuré avec précision. Il est de 3,08 pixels. De plus, la direction du décalage est identifiée et tracée en rouge dans la figure III.7. Sachant que le HR-SACP est constitué de 101x101 pixels et présente une ouverture angulaire de  $4,4^\circ$  (à  $WD=7\text{mm}$ ), un pixel correspond à  $\approx 0,044^\circ$ . Donc, la désorientation du SJG correspond à  $\theta_{\text{HR-SACP}} \approx 0,13^\circ$ .

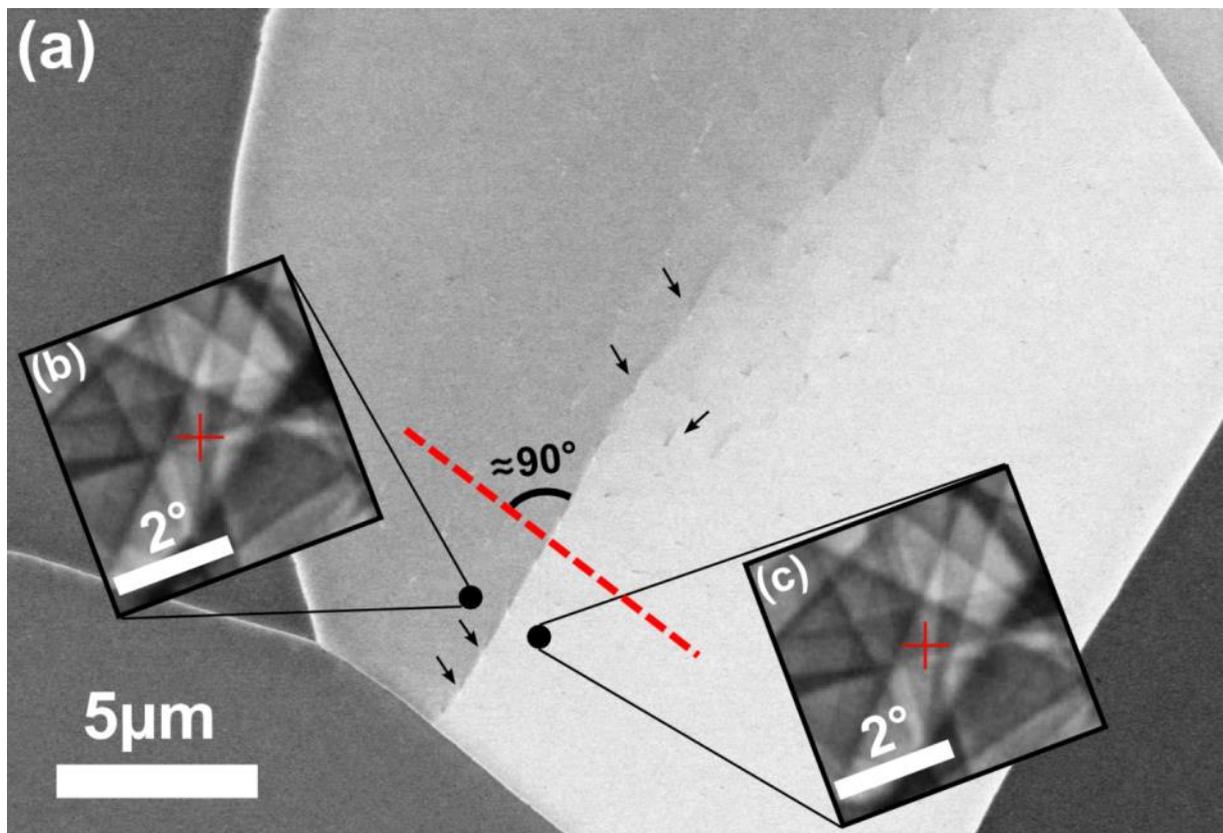


Figure III.7 Micrographie BSE révélant l'existence du SJG. Deux HR-SACP (b) et (c) ont été collectés d'une part et d'autre du joint permettant de mesurer la désorientation.

La direction du décalage (tracée en trait rouge interrompue dans la figure III.7) est presque perpendiculaire à la trace du SJG, c.-à-d. que l'axe de rotation est probablement proche de la parallèle à la trace du SJG.

Grâce à la variation de contraste autour des dislocations, l'image BSE révèle aussi l'existence de dislocations le long du SJG et même dans le grain d'intérêt. Quelques-unes sont indiquées dans la figure III.7.a par des flèches.

### III.3.2.2 Structure du sous joint de grain

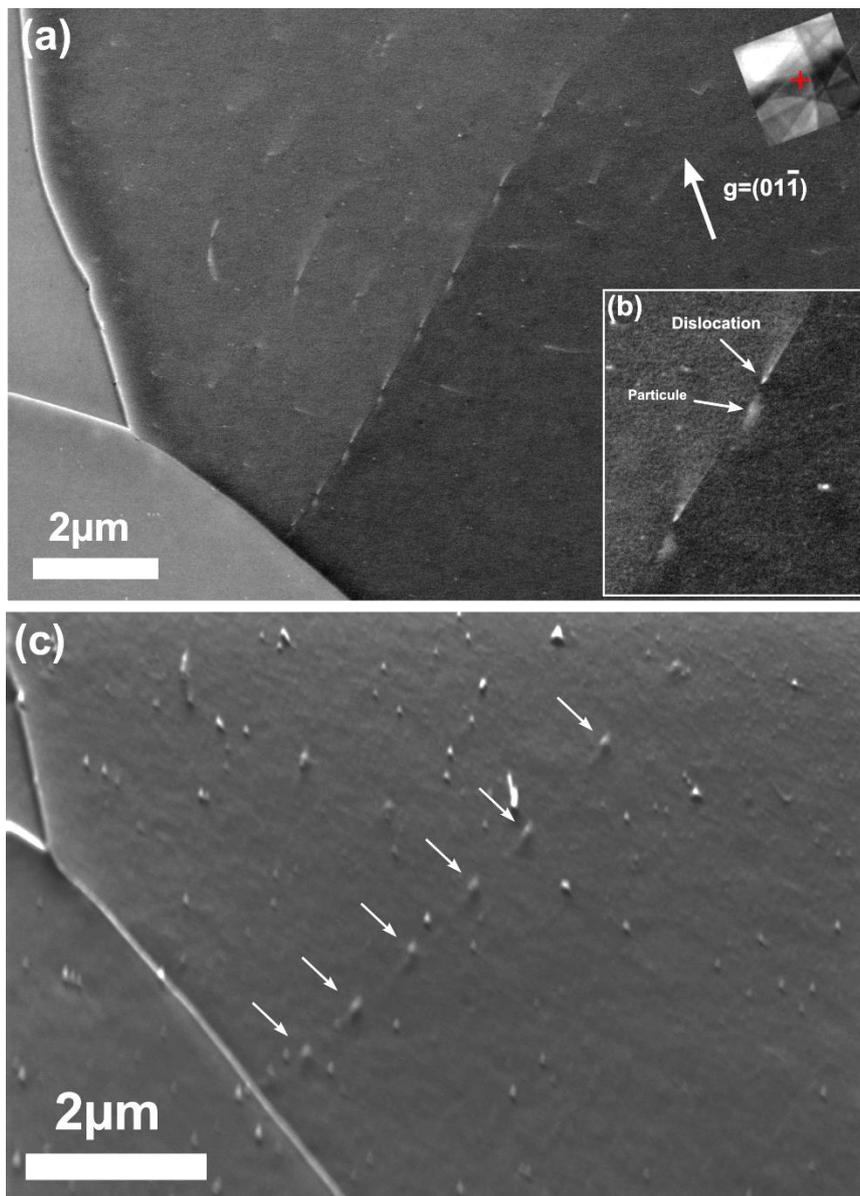


Figure III.8 (a) Micrographie A-ECCI à  $g= (01-1)$  dévoilant les dislocations formant le sous joint de grain. (b) Grossissement sur les dislocations le long du sous joint de grain (c) Micrographie SE du SJG.

À fort grandissement et en conditions de canalisation, la visualisation de la structure de dislocation formant le SJG devient possible. La Figure III.8.a est une image A-ECCI à  $g = (01-1)$  et un grandissement d'environ 8000. Les dislocations apparaissent en ligne blanche sur une matrice sombre. On remarque que la distance entre les dislocations formant le SJG n'est pas constante. En effet, elle décroît du haut vers le bas indiquant que la désorientation entre les deux sous grain croît du haut vers le bas du SJG.

La Figure III.8.b est une image à plus fort grandissement ( $\approx 16000X$ ) du SJG. On observe qu'à côté de chaque dislocation, il existe une tâche blanche. Afin de savoir si ces tâches sont liées ou non à la cristallographie du cristal, elles ont été imagées par le détecteur des électrons secondaires (SE) (Figure III.8.c). Elles sont bien visibles dans l'image SE. Par conséquent, on en déduit qu'elles sont des particules situées proche ou à la surface de l'échantillon. Elles sont indiquées par des flèches blanches. Il est possible que ces particules soient des carbures. On remarque qu'elles sont aussi organisées le long du SJG et que la distance entre elles change aussi de la même manière que la distance entre les dislocations. Il y a donc un lien entre les deux. En effet, la précipitation aux joints de grain est favorisée par rapport à celle au volume du matériau pour deux raisons principales:

- Effet thermodynamique: la barrière d'activation de la germination hétérogène est inférieure à celle de germination homogène.
- Effet cinétique: le coefficient de diffusion intergranulaire est supérieur au coefficient de diffusion intragranulaire (en volume). Ceci permet aux atomes ségrégués de migrer rapidement vers tout germe critique [Priester 2011].

Donc la saturation du joint en soluté résulte dans la ségrégation. On remarque que ces particules existent aussi à côté des dislocations libres mais seulement ceux ayant la même direction que les dislocations du SJG (figure III.8.a et III.10.a). Ceci confirme que la formation de ces précipités dépend du plan de glissement des dislocations. Ces précipités se forment au niveau des SJG et des dislocations selon des plans de glissement précis et freinent leurs mouvements.

### III.3.2.3 Caractérisation des dislocations et détermination du type du sous joint de grain

La figure III.9 présente une simulation dynamique des bandes de Kikuchi correspondant à l'orientation du SJG à plat. Les différents clichés HR-SACP utilisés dans l'analyse y sont superposés.

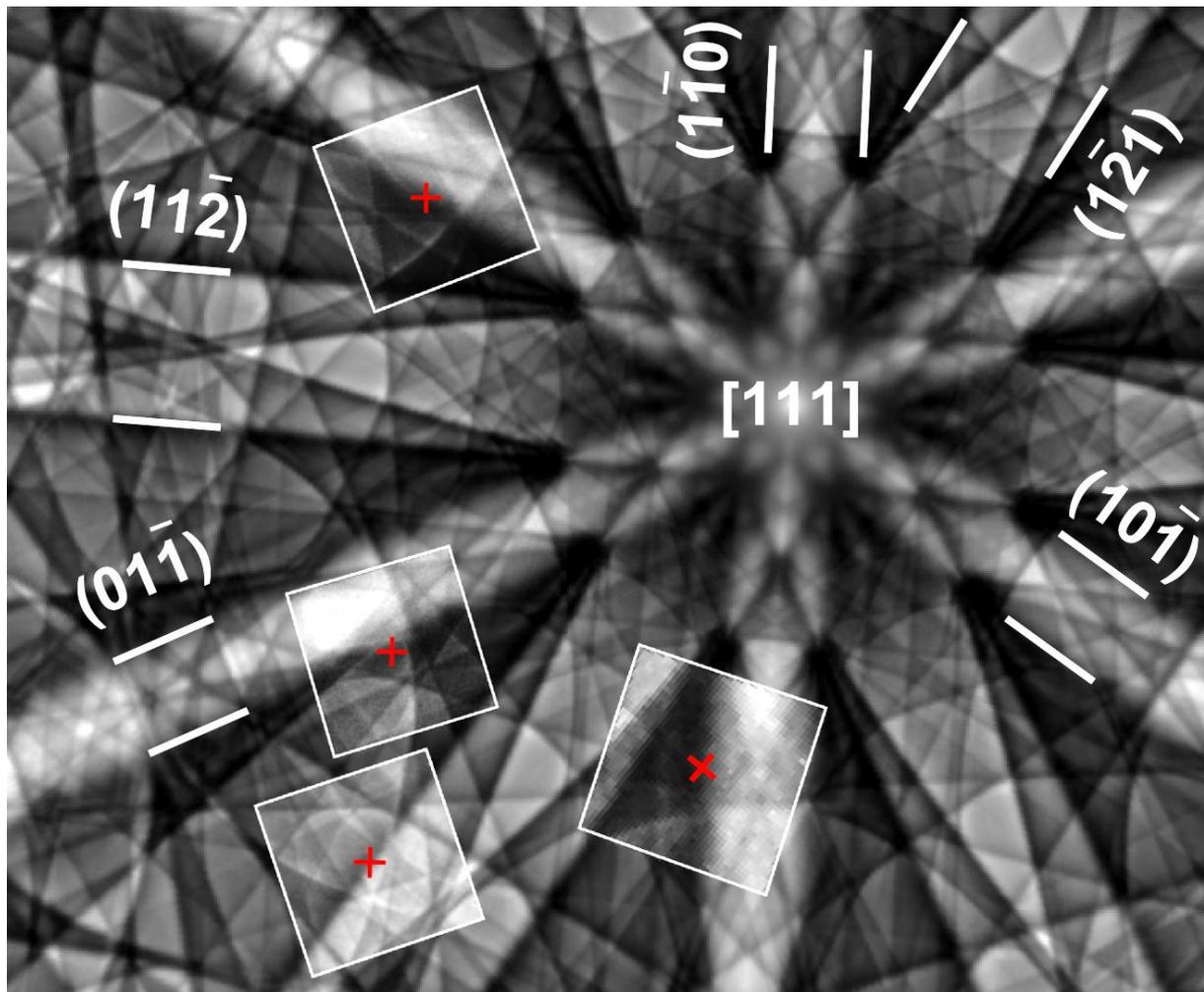


Figure III.9 Superposition des clichés HR-SACP correspondants aux conditions de canalisation utilisées dans l'analyse A-ECCI sur des simulations dynamiques de bandes de Kikuchi

Pour déterminer la nature du SJG, le type des dislocations qui le forment et calculer sa désorientation, une analyse A-ECCI plus approfondie a été effectuée.

En premier lieu, la ligne des dislocations est caractérisée. Afin de déterminer sa direction cristallographique, on commence par déterminer son inclinaison par rapport à la surface de l'échantillon.

La figure III.10 est un schéma explicatif de la méthode utilisée pour mesurer l'inclinaison par rapport à la surface d'une ligne quelconque de dislocation. Le schéma présente une coupe transversale dans le matériau étudié contenant les dislocations, dans le cas présent c'est le plan du SJG. Les lignes de dislocations sont schématisées en rouge et possèdent un angle d'inclinaison  $\beta$  par rapport à la surface de l'échantillon.

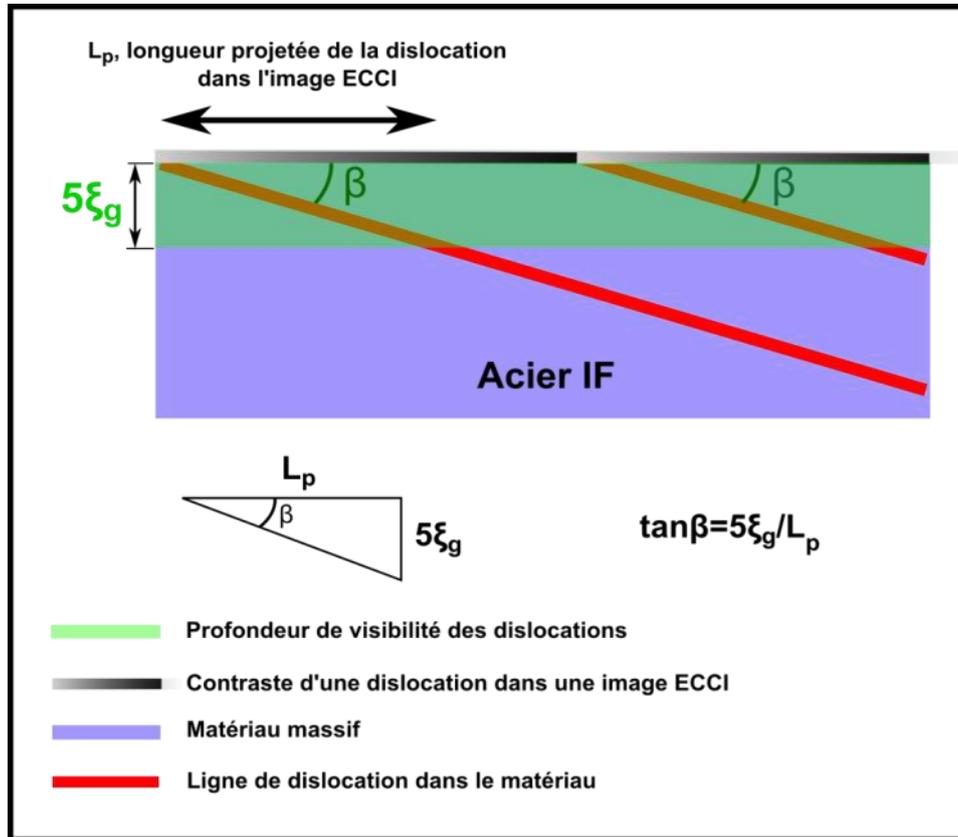


Figure III.10 Représentation Schématique explicative de la détermination de l'angle d'inclinaison d'une dislocation à partir d'une image ECCI

D'après Wilkinson et al. [43], la profondeur de visibilité d'une dislocation est à peu près égale à  $\approx 5\xi_g$ ,  $\xi_g$  étant la distance d'extinction de l'onde diffractée selon la famille de plan  $g$ .  $5\xi_g$  est la profondeur de l'information obtenue dans une image ECCI d'une dislocation à une condition  $g$  (zone verte dans la figure III.10). La longueur d'une dislocation dans une image ECCI, noté  $L_p$ , est en effet la projection sur la surface de l'échantillon de la dislocation sous une profondeur de  $\approx 5\xi_g$ . La dislocation est représentée dans la figure III.10 par une ligne grise qui s'assombrit vers le noir, faisant allusion au contraste d'une dislocation dans une image ECCI. L'angle d'inclinaison de la dislocation est alors calculé à partir de la relation suivante déduite de la figure III.10:

$$\tan \beta = \frac{5\xi_g}{L_p} \quad (\text{III.1})$$

À 20 kV, dans un acier cc et à  $\mathbf{g} = (01-1)$  la distance d'extinction est  $\xi_g = 14,2\text{nm}$  [Reimer 2008]. On en déduit que la profondeur de visibilité des dislocations dans ces conditions est égale à  $5\xi_g = 71\text{nm}$ . L'analyse des dislocations du SJG est représentée dans la figure III.11. La longueur  $L_p$  de la dislocation dans l'image A-ECCI de la figure III.11.b à  $\mathbf{g} = (01-1)$  est  $\approx 480\text{nm}$ . À partir de la profondeur de visibilité des dislocations ( $5\xi_g$ ) et de la longueur  $L_p$ , l'angle d'inclinaison ( $\beta$ ) des dislocations est estimé à  $8^\circ$  en utilisant l'équation (III.1). Ensuite, la trace des dislocations est superposée à la projection stéréographique (déduite de l'orientation cristallographique du grain) dans la figure III.11.f en prenant en compte l'angle d'inclinaison.

La direction et l'angle d'inclinaison correspondent à la direction  $[10-1]$ . Ceci indique que ces dislocations ne sont pas des dislocations vis.

Les critères d'invisibilité  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  et  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$  sont ensuite appliqués dans la figure III.11 pour l'identification du vecteur de Burgers. Les dislocations sont visibles à  $\mathbf{g} = (01-1)$ ,  $\mathbf{g} = (1-10)$  et  $\mathbf{g} = (1-21)$  et deviennent invisibles à  $\mathbf{g} = (10-1)$  ce qui satisfait  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  et  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$  pour des dislocations ayant comme vecteur de Burgers  $\mathbf{b} = [1-11]$  et comme ligne de dislocation  $\mathbf{u} = [10-1]$  (figure III.11.a, c-e). Les dislocations formant le SJG sont donc des dislocations coins indiquant que le système de glissement est  $[1-11] (121)$ . Le plan du SJG est le (1-11). La ligne et le vecteur de Burgers des dislocations sont schématisés dans la projection stéréographique (figure III.11.f) respectivement en ligne discontinue rouge et verte.

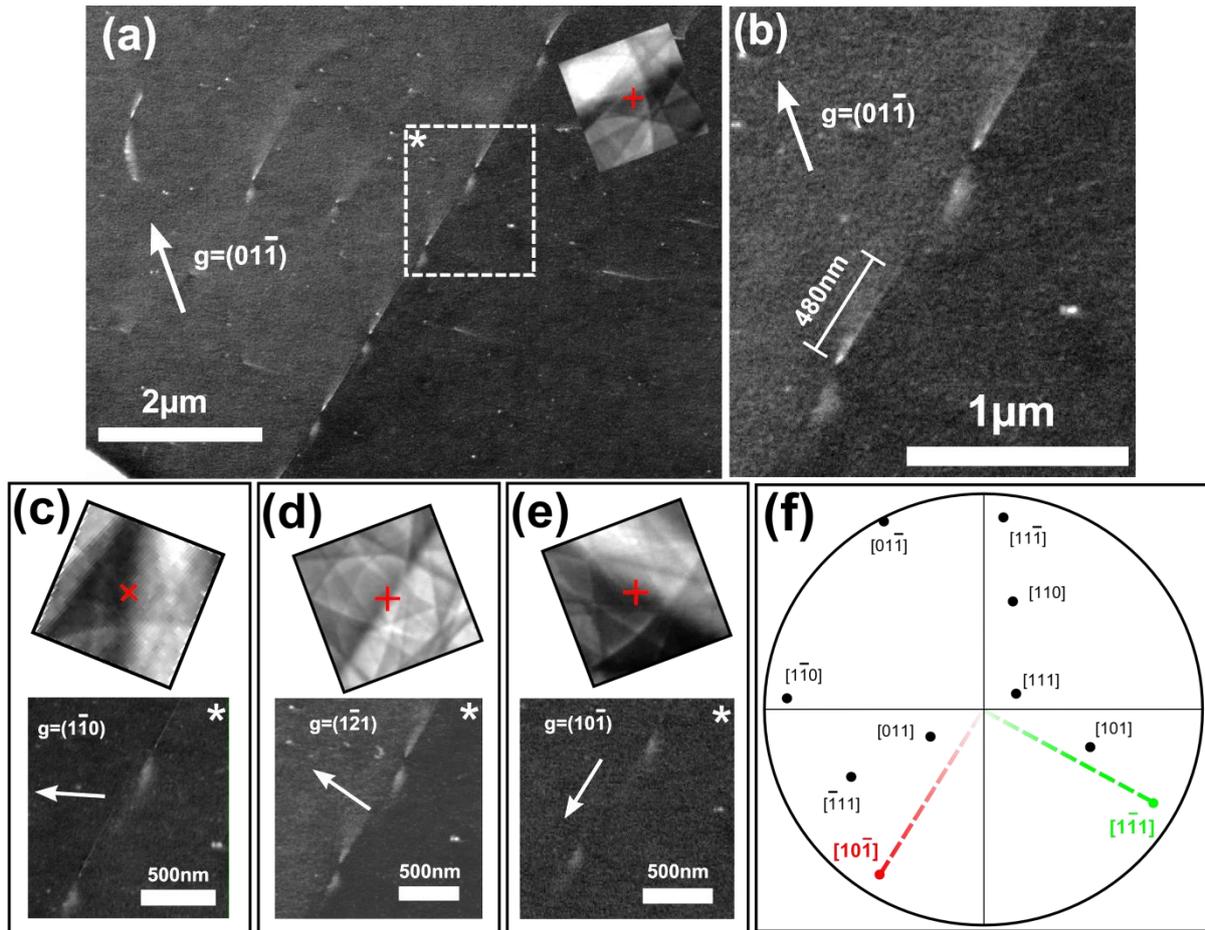


Figure III.11 Analyse des dislocations du sous joint de grain en utilisant les critères d'invisibilités à  $\mathbf{g} = (01\bar{1})$  (a),  $\mathbf{g} = (1\bar{1}0)$  (c),  $\mathbf{g} = (1\bar{2}1)$  (d) et  $\mathbf{g} = (10\bar{1})$  (e). (b) Grossissement des dislocations dans (a) et détermination de la longueur  $L_p$ . (f) Identification de la ligne de dislocation en utilisant la projection stéréographique des pôles  $\{111\}$  et  $\{110\}$ . La ligne et le vecteur de Burgers des dislocations sont schématisés respectivement en ligne rouge et verte.

Par conséquent, le défaut étudié est un SJG de type Flexion (tilt) formé par des dislocations purement coin.

### III.3.2.4 Calcul de la désorientation du sous joint de grain

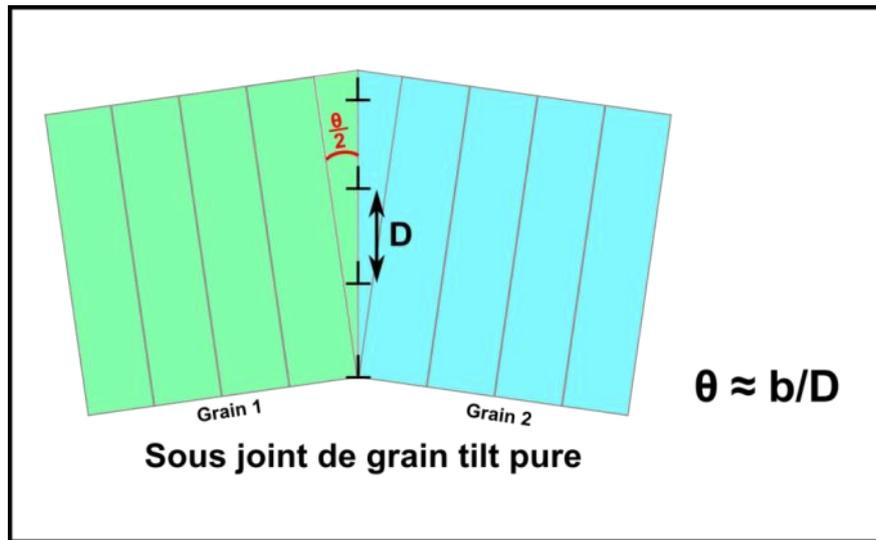


Figure III.12 Représentation schématique d'un sous joint de grain de flexion pure.

La figure III.12 schématise un SJG de flexion (tilt) séparant deux sous grains 1 et 2 ayant une désorientation  $\theta$ . Il est constitué d'un réseau de dislocations coins possédant des lignes perpendiculaires au plan de la figure. La formule suivante permet de calculer la désorientation  $\theta$  connaissant le vecteur de Burgers  $b$  et la distance  $D$  entre les lignes des dislocations [Read 1953] :

$$\theta_{Th} \approx \frac{b}{D} \quad (\text{III.2})$$

Puisque les dislocations du SJG étudié ne sont pas perpendiculaires à la surface de l'échantillon (voir figure III.13), la distance observée entre les lignes de dislocation dans l'image A-ECCI, nommé dorénavant  $d$ , est différente de la distance  $D$ . Cependant, connaissant l'angle d'inclinaison  $\beta$  ( $8^\circ$ ) des dislocations et  $d$  ( $\approx 1010$  nm) mesurée directement sur l'image ECCI, la distance  $D$  peut être déterminée à partir de la relation suivante (figure III.13) :

$$D = d \sin \beta \quad (\text{III.3})$$

$D$  est approximativement égal à **146 nm**.

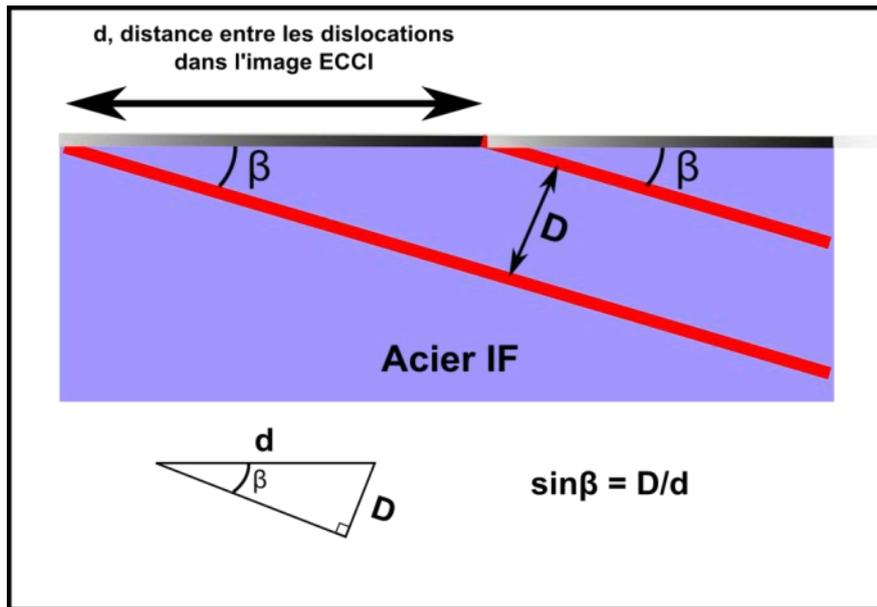


Figure III.13 Représentation schématique de la détermination de la distance **D** entre les dislocations d'un SJG.

Une fois la distance **D** trouvée, l'équation (III.2) peut être appliquée pour calculer la désorientation du SJG. Avec un paramètre de maille  $a=0,29 \text{ nm}$ , le vecteur de Burgers  $\mathbf{b}=a/2\langle 111 \rangle$  a une amplitude de  $0,25 \text{ nm}$ . La désorientation  $\theta_{\text{Th}}$  du SJG est donc égale à  $\theta_{\text{th}} \approx 0,25/146 \approx 0,001712 \text{ rad} \approx 0,1^\circ$ . Cette valeur est cohérente avec la valeur mesurée en utilisant le HR-SACP ( $0,13^\circ$ ).

### III.3.2.5 Mesure de la désorientation du sous joint de grain par EBSD

Afin de vérifier les résultats obtenus précédemment par HR-SACP et A-ECCI, un système EBSD (Oxford Instruments) haute précision ( $0,05^\circ$ ) est utilisé pour analyser le sous joint de grain.

La carte EBSD a été collectée dans la zone d'intérêt en utilisant un pas de 60 nm. Elle a une précision de  $0,05^\circ$  grâce à un nouvel algorithme qui ré-affine la précision de la détection des bandes de Kikuchi en utilisant des simulations de bandes de Kikuchi [Thomsen 2013]. Cet algorithme prend en compte le fait que ces bandes sont des hyperboles et non pas des droites. Néanmoins, le SJG est tellement faible qu'il est indétectable en utilisant les fonctions ordinaires de détection de joint de grain dans la suite **Channel 5** (logiciel de post-traitement des données EBSD d'Oxford Instruments). Cependant, en traçant la désorientation par rapport à un pixel de référence, marqué **R** dans la figure III.14, la présence du SJG est ainsi révélée. Le contraste obtenu est très similaire à celui obtenu dans la micrographie A-ECCI de la figure

III.7. Le SJG commence au milieu du grain et se propage vers le bas. Afin de bien analyser la carte EBSD, plusieurs zones ont été marquées sur cette dernière par des lettres  $A_1$ ,  $A_2$ ,  $B_1$ ,  $B_2$ ,  $B_3$  et  $C$ . Ensuite, les orientations de ces zones ont été moyennées en prenant  $\approx 220$  pixels de donnée EBSD autour de la zone. Enfin, les désorientations entre les zones intéressantes ont été calculées et affichées dans la table 2.

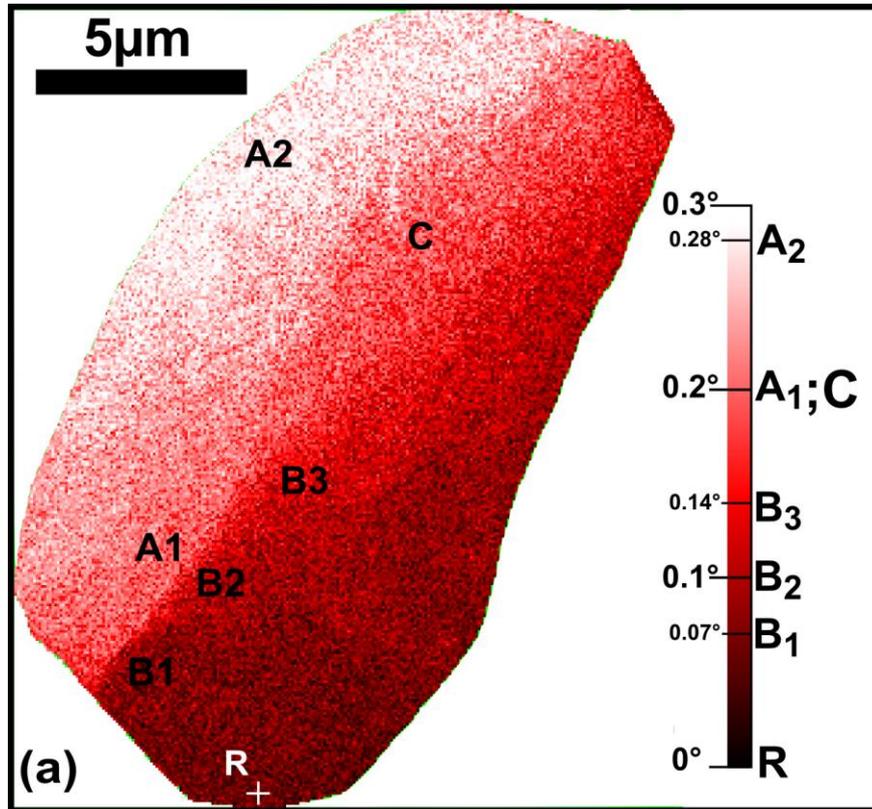


Figure III.14 Carte EBSD haute précision autour du sous joint de grain étudié par A-ECCI. La désorientation par rapport à un pixel R en dessous de la carte est tracée en utilisant une barre d'échelle allant de  $0^\circ$  à  $0,3^\circ$ .

Table III.2 Désorientations entre les différentes zones marquées sur la figure III.14

$\theta_{A1-B2}$	$\theta_{B1-B2}$	$\theta_{B2-B3}$	$\theta_{A1-A2}$	$\theta_{A2-C}$	$\theta_{C-B3}$
$0,12^\circ$	$0,03^\circ$	$0,05^\circ$	$0,10^\circ$	$0,09^\circ$	$0,08^\circ$

La désorientation du SJG mesurée en EBSD entre les zones  $A_1$  et  $B_2$  (les mêmes endroits auxquels les HR-SACP ont été collectés dans la figure III.7) est égale à  $\theta_{EBSD} = 0,12^\circ$ . Cette valeur est très proche des valeurs obtenues par HR-SACP ( $0,13^\circ$ ) et par analyse des dislocations coins ( $0,1^\circ$ ). On observe aussi que la désorientation le long du joint de grain

change. Une désorientation de  $0,08^\circ$  est mesurée entre  $\mathbf{B}_1$  et  $\mathbf{B}_3$ . Ceci est cohérent avec le changement de distance entre les dislocations observé dans la micrographie A-ECCI de la figure III.9 indiquant que la désorientation diminue du bas vers le haut.

### III.4 Discussion et conclusions:

Dans cette partie, l'acier IF est utilisé comme "matériau modèle" pour appliquer la technique A-ECCI assisté par le HR-SACP. En appliquant le critère d'invisibilité  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  et  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$ , des dislocations vis, coin et mixtes sont caractérisées. Ensuite, la technique est utilisée pour une étude approfondie d'un SJG de très faible désorientation ( $\approx 0,1^\circ$ ) indétectable avec les techniques standard au MEB.

La désorientation du SJG a été mesurée de trois manières différentes. D'abord, en utilisant le HR-SACP qui a une précision et répétabilité de  $0,04^\circ$  et donc le plus précis parmi les trois méthodes en désorientation. Cependant, le HR-SACP possède une résolution spatiale de 500 nm beaucoup moins bonne que l'EBSD. Dans le cas présent cette résolution spatiale n'a pas pénalisé la mesure d'orientation par HR-SACP car les zones où ces derniers ont été collectés possèdent une orientation cristallographique homogène (sans désorientation). Ceci est constaté à partir des clichés HR-SACP collectés (figure III.7.b et III.7.c) qui ne sont pas bruités ni distordus. De plus, les zones où les HR-SACP ont été collectés possèdent un contraste BSE homogène dans la micrographie A-ECCI (voir figure III.7 et figure III.10.a). Après l'acquisition des clichés HR-SACP, nous avons utilisé le logiciel **Fiji** pour déterminer la translation (en pixels sur deux axes X et Y) nécessaire pour superposer les deux clichés. Ceci a permis ensuite de calculer la désorientation connaissant le pas angulaire ( $0,042^\circ$ ) du HR-SACP (taille d'un pixel en degrés).

La deuxième méthode consiste à déduire la désorientation par l'analyse des dislocations formant le SJG. Elle se base sur la détermination du vecteur de Burgers  $\mathbf{b}$  des dislocations par analyse A-ECCI et sur la mesure de la distance entre les lignes de dislocations  $\mathbf{D}$  formant le SJG. La distance  $\mathbf{D}$  a été calculée à partir de l'angle d'inclinaison  $\beta$  des dislocations par rapport à la surface de l'échantillon et de la distance  $\mathbf{d}$  entre les dislocations dans l'image A-ECCI. L'angle d'inclinaison  $\beta$  a été calculé à son tour à partir de la profondeur de visibilité des dislocations  $5\xi_g$  et à partir de la longueur des dislocations dans les images A-ECCI. Ces séries de mesures nécessaires et les approximations effectués ( $\theta_{Th}$  et  $\xi_g$ ) expliquent le léger écart entre  $\theta_{Th}$  et  $\theta_{HR-SACP}$ .

La troisième méthode utilisée est l'EBSD haute précision ( $0,05^\circ$ ). L'EBSD possède une résolution spatiale bien meilleure que le HR-SACP. Malgré cette précision de  $0,05^\circ$ , le SJG n'a pas été détecté en utilisant un post traitement standard de **Channel 5**, pas conçu à la base pour des désorientations aussi faibles que  $0,1^\circ$ . De plus, la désorientation du SJG diminue en s'approchant du centre du grain analysé jusqu'à ce qu'il disparaisse. Il a été donc nécessaire de mettre en place une procédure particulière. En traçant la désorientation de la carte EBSD par rapport à un pixel loin du joint de grain, la détection devient possible. Puis, en moyennant l'orientation d'à peu près 220 pixels dans les zones correspondantes à la collection des HR-SACP, une désorientation de  $\theta_{\text{EBSD}} = 0,12^\circ$  est mesurée. Cette valeur est très proche de celle mesurée par HR-SACP ( $0,13^\circ$ ).

En utilisant l'A-ECCI assisté par le HR-SACP, un SJG de très faible désorientation de l'ordre de  $0,1^\circ$  dans un acier IF massif a été caractérisé au MEB rapidement, sans destruction de l'échantillon et sans ambiguïté. La structure des dislocations (vecteur de Burgers et direction) qui le forment a été identifiée en appliquant les critères d'invisibilités utilisés généralement au MET. Ceci a permis de déterminer le plan et le type du SJG ainsi que le système de glissement. Ces résultats démontrent que l'A-ECCI assistée par HR-SACP est une puissante technique au MEB pour la caractérisation des défauts cristallins.

## **III.5 Références bibliographiques**

[Priester 2011] Louisette Priester, Joints de grains et plasticité cristalline, 2011

[Read 1953] W. T. Read. Dislocations in crystals. McGraw Hill Book Compagny Inc. New York Toronto London, 1953.

[Reimer 2008] L. Reimer, H. Kohl, Transmission Electron Microscopy, fifth edition, Springer, New York, 2008.

## *Chapitre IV*

# *Analyse par EBSD et A-ECCI de la sous-structure de déformation par fluage dans $UO_2$*

---

*Ce chapitre présente une étude de la microstructure du dioxyde d'uranium ( $UO_2$ ) après déformation par fluage. La technique d'imagerie par contraste de canalisation d'électron est utilisée pour analyser les sous structures de déformations constituées majoritairement par des sous grains, sous joint de grain et des réseaux de dislocation. Les critères d'invisibilité  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  et  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$  sont appliqués pour connaître la nature des dislocations (coin, vis) et sous joint de grain (flexion, torsion). La désorientation à travers les sous joint de grain est estimée de trois manières différentes : analyse de dislocations, clichés « High Resolution Selected Area Channeling Patterns (HR-SACP) » et la technique « Electron BackScattered Diffraction (EBSD) ».*

## IV.1 Introduction

Près de 80% de l'énergie électrique en France est produite par l'industrie nucléaire. Le cœur d'un réacteur à eau sous pression (REP) est constitué de plusieurs assemblages comprenant des crayons de combustible. Ces derniers sont constitués d'un empilement de pastilles combustible (hauteur 13mm, diamètre 8mm) dans une gaine métallique en zirconium, comme illustré sur la Figure IV.1.a. Le matériau des pastilles combustible est le dioxyde d'uranium (UO<sub>2</sub>) du fait de ses caractéristiques intrinsèques (température de fusion 2865°C, stable sous l'effet des rayonnements émis du réacteur...). Ces pastilles sont fabriquées par frittage de poudre d'UO<sub>2</sub>. Toutefois, l'UO<sub>2</sub> présente une mauvaise conductivité thermique qui cause un fort gradient de température quand le réacteur fonctionne. Dans les conditions d'irradiation imposée, la température au centre de la pastille peut atteindre les 1500°C et près des bords 600°C. Ceci engendre une déformation viscoplastique (fluage) au milieu de la pastille et une zone périphérique fragile qui contient des fissurations. Par conséquent, la pastille se déforme et entre en contact avec la gaine après une longue durée d'utilisation, comme indiqué dans la figure IV.1.b.

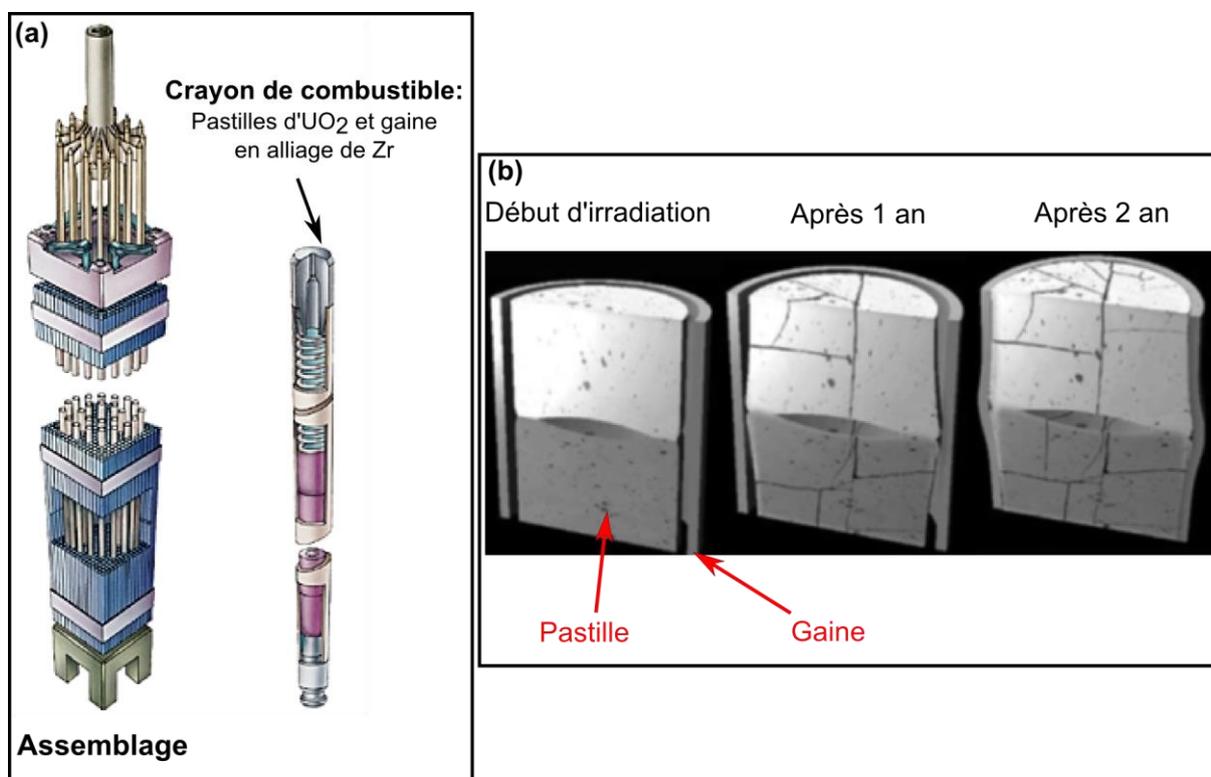


Figure IV.1 (a) Assemblage des crayons de combustible dans un REP (b) Endommagement des pastilles suite à une longue durée d'utilisation

Pour améliorer la performance du combustible, il est important de comprendre la relation entre la microstructure d'UO<sub>2</sub> et le procédé de fabrication (frittage de poudre) ainsi que le mécanisme de déformation pendant le fluage. C'est dans ce cadre général, que se situe ce chapitre de thèse. Cette étude a démarré en tant qu'une prestation de service que j'ai réalisé pour le Commissariat à l'Energie Atomique (CEA) afin de tester la capacité de l'A-ECCI à révéler des détails microstructuraux sur UO<sub>2</sub>. Suite aux résultats prometteurs obtenus, une thèse de doctorat a démarré en 2015 en collaboration entre le LEM3 et le CEA. Pour ma part j'ai mené une étude approfondie des structures de dislocations des sous-joints de grains réalisée pour la première fois, à notre connaissance, dans un MEB sur UO<sub>2</sub>. Je commencerai par présenter la structure cristalline d'UO<sub>2</sub> et ses systèmes de glissement puis l'analyse des structures de dislocations des sous joint de grain en utilisant l'A-ECCI et l'EBSD.

## **IV.2 Matériaux**

Les pastilles ont été fabriquées par frittage de poudre d'UO<sub>2</sub> au CEA Cadarache. Elles ont été déformées de 8% en fluage, en compression uniaxiale, sous 50MPa à 1500°C, hors irradiation. Dans ces conditions de température et de charge choisies sur la base d'une étude précédente [Ndiaye 2012], des mécanismes de fluage dislocationnel sont activés dans la zone centrale (domaine ductile) de l'échantillon ou la déformation est viscoplastique [Seltzer 1971]. L'échantillon analysé est issu d'une coupe longitudinale dans la partie centrale des pastilles. Pour les analyses au MEB, l'échantillon a été poli mécaniquement jusqu'à une finition à la silice colloïdale.

La structure dislocationnelle est analysée en utilisant l'A-ECCI et l'EBSD à une échelle microscopique s'approchant de celle du MET.

### **IV.2.1 Structure cristallographique fluorine UO<sub>2</sub>**

Le dioxyde d'uranium est une céramique qui cristallise dans une structure de type fluorine CaF<sub>2</sub> (groupe d'espace Fm3m). La figure IV.2 est une présentation schématique de la maille élémentaire d'UO<sub>2</sub>.

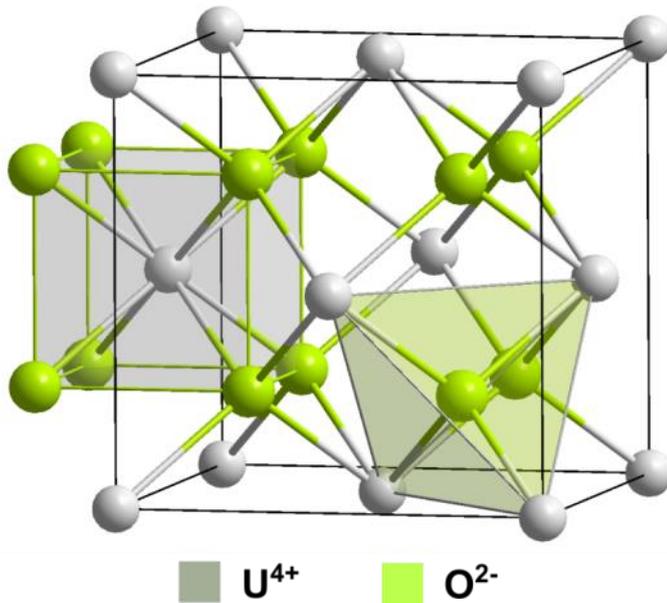


Figure IV.2 Structure cristallographique d'UO<sub>2</sub>

Le réseau cristallin d'UO<sub>2</sub> est constitué de deux sous-réseaux: le sous-réseau des atomes d'uranium et celui des atomes d'oxygène. La maille élémentaire peut être décrite de deux manières équivalentes:

- Les ions U<sup>4+</sup> constituent un réseau cubique à faces centrées où les ions O<sup>2-</sup> occupent les sites tétraédriques.
- Les ions O<sup>2-</sup> constituent un réseau cubique simple où les ions U<sup>4+</sup> occupent le centre d'un cube sur deux ne partageant pas de face.

Le paramètre de maille d'UO<sub>2</sub> est égal à :  $a = 5,47 \text{ \AA}$ .

## IV.2.2 Systèmes de glissement et dislocations dans UO<sub>2</sub>

Les systèmes de glissement des monocristaux d'UO<sub>2</sub> déformés en compression entre 700°C et 1900°C ont été étudiés par Rapperport et Huntress en 1960 [Rapperport 1960]. Il en résulte que le principal système de glissement est le  $\{100\} \langle 110 \rangle$ . Cependant, en augmentant la température les plans  $\{110\}$  et  $\{111\}$  s'activent à leurs tours en gardant comme direction  $\langle 110 \rangle$ . Le système de glissement  $\{111\} \langle 110 \rangle$  est souvent activé par glissement dévié à partir des systèmes  $\{100\} \langle 110 \rangle$  et  $\{110\} \langle 110 \rangle$ . Ces résultats ont aussi été confirmés par MET par Ashbee [Ashbee 1964]. Le vecteur de Burgers est  $a/2 \langle 110 \rangle$  et correspond bien à la

plus courte période du réseau fluorine. Par ailleurs, il a été démontré que la complexité des joints de grain augmente avec l'augmentation du taux de déformation [Dherbey 2000].

Il convient de noter que les plans primaires de glissement  $\{100\}$  ne sont pas les plus denses, c'est à dire les plans de famille  $\{111\}$ , comme on peut observer dans les métaux de structure c.f.c.. Ceci est dû à la structure céramique ionique (présence de cation et anion) d'UO<sub>2</sub>. Ce caractère ionique fait que le système de glissement primaire dans UO<sub>2</sub> est celui qui accorde au cristal un minimum d'énergie électrostatique et non pas élastique.

D'autres différences par rapport à la structure c.f.c. simple sont causées par la structure ionique: les dislocations coins possèdent deux demi-plans adjacents pour maintenir la neutralité électrique du cristal. Une dislocation coin dans le plan  $\{100\}$  du système de glissement principal d'UO<sub>2</sub> est schématisée dans la figure IV.3 avec deux demi plans. L'un se termine par une rangée d'ions U<sup>4+</sup> et l'autre par une rangée d'ions O<sup>2-</sup>. Une telle dislocation porte donc une charge électrostatique susceptible de modifier les mécanismes de glissement et de montée des dislocations.

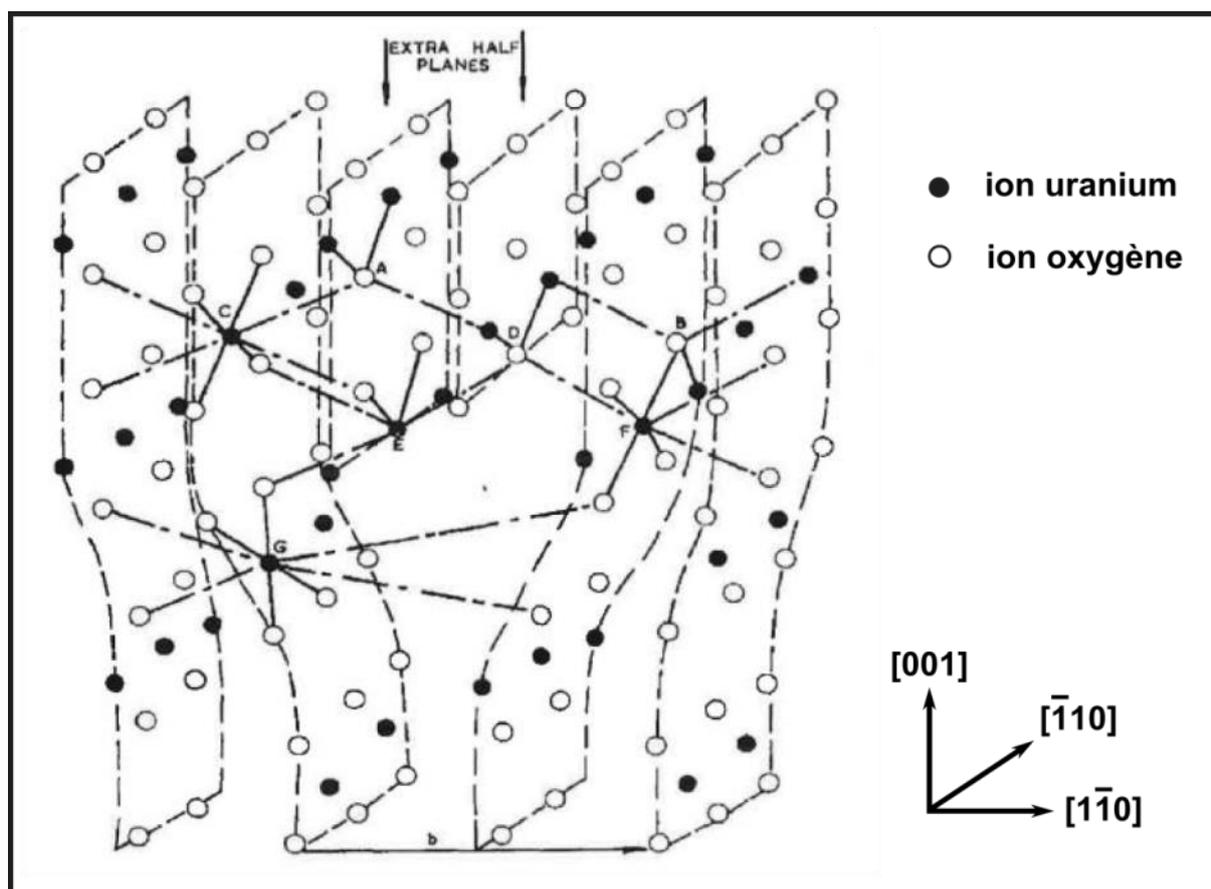


Figure IV.3 Dislocation coin dans le système  $\{100\} \langle 110 \rangle$  [Evans 1969]

Les dislocations vis sont difficiles à schématiser. Elles ne possèdent pas de charge électrostatique. La figure IV.4 est un modèle simple donné par Evans et Pratt [Evans 1969].

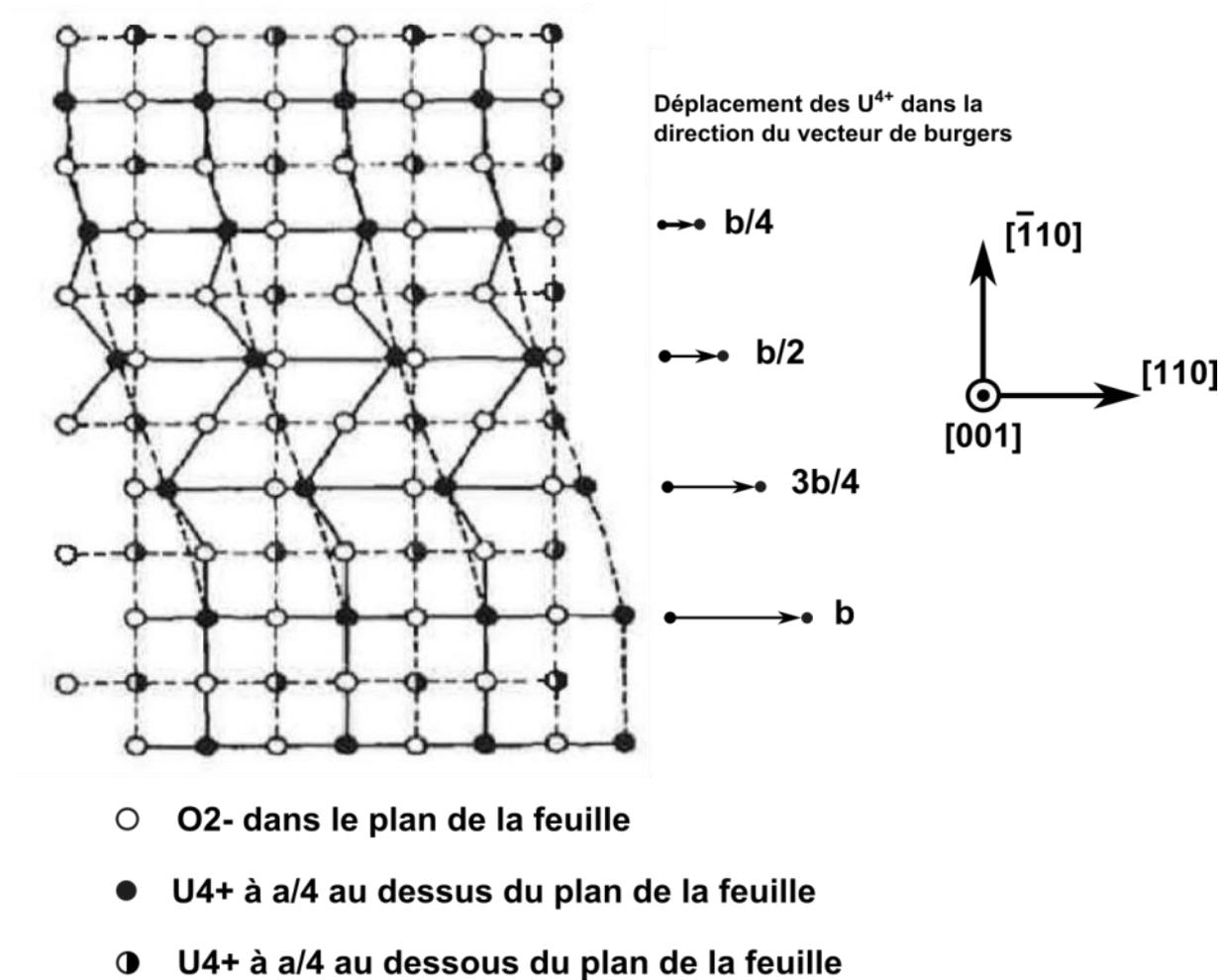


Figure IV.4 Dislocation vis dans le système {100} <011> [Evans 1969]

### IV.3 Description des sous joints de grain et des dislocations observés par A-ECCI

La figure IV.5 est une micrographie acquise avec le détecteur des électrons rétrodiffusés de la surface de l'échantillon à plat. Elle permet d'avoir une idée globale sur l'état de la surface de l'échantillon. La microstructure granulaire est mise en évidence grâce au phénomène de canalisation d'électrons.

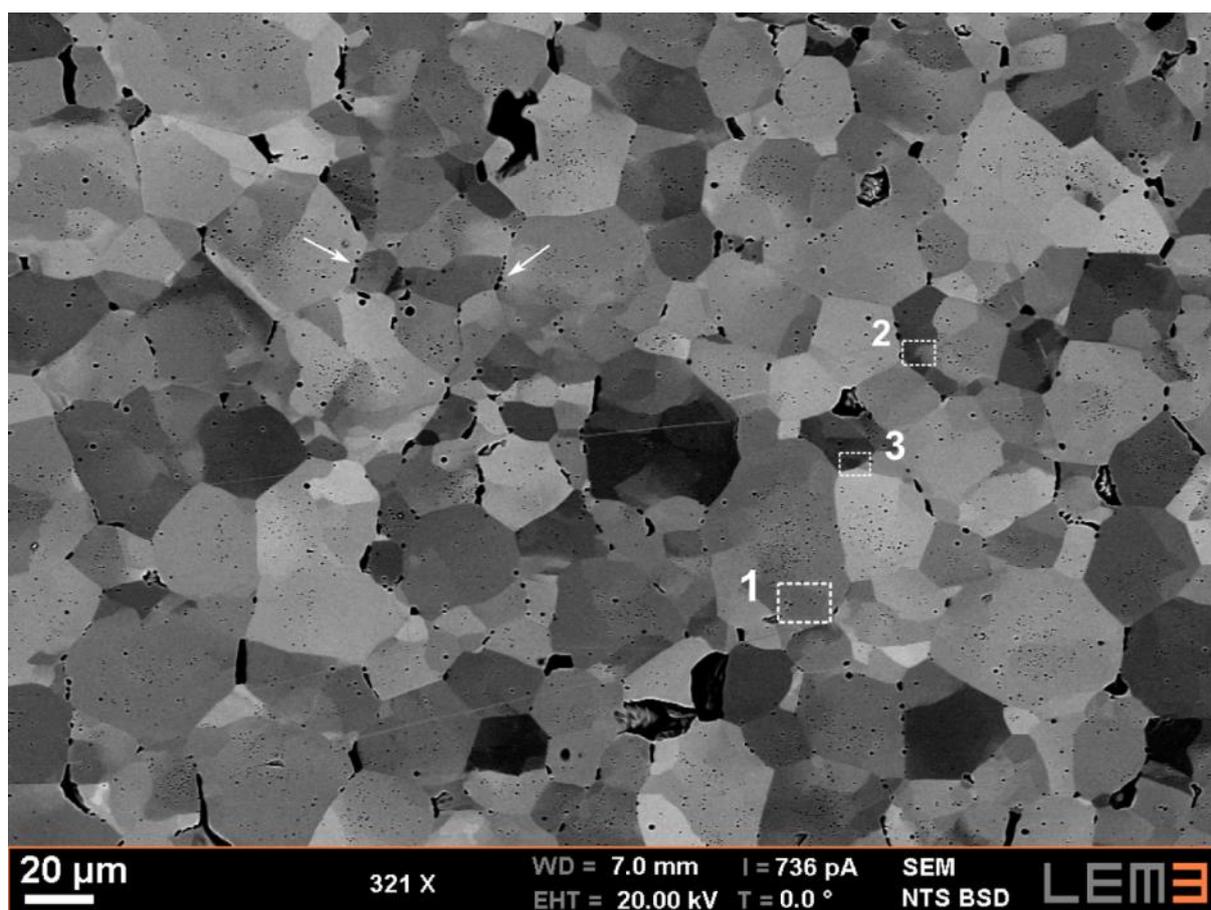


Figure IV.5 Micrographie BSD de la surface d'UO<sub>2</sub> dévoilant l'existence de cavités facettées, pores lenticulaires intragranulaires et la sous-structure de déformation (sous joint de grain).

On observe également plusieurs cavités intergranulaires (tâches noires allongées) qui seraient la conséquence de glissements aux joints de grains [Blanchard 1993] [Dherbey 2002]. Ces cavités facettées coexistent avec des alignements de pores lenticulaires sur certains joints de grains (flèches sur la figure VI.5). Ce type d'alignement serait la conséquence de mécanismes diffusionnels de migration de lacunes [Blanchard 1993]. La quantité de ces cavités facettées est proportionnelle à la déformation de l'échantillon. On observe aussi plusieurs porosités intragranulaires.

Par ailleurs, l'échantillon présente des sous-structures (sous joints de grains SJG et sous-grains), révélés par des variations de niveaux de gris au sein des grains, comme on peut l'observer sur la figure IV.5. Ces SJG jouent un rôle important dans la déformation d'UO<sub>2</sub>. Dans la partie qui va suivre, quelques exemples de SJG seront analysés. On s'intéresse aussi à leurs interactions avec les autres défauts (porosités et dislocations).

La figure IV.6 est une micrographie A-ECCI du sous grain de la zone 1 de la figure IV.5 constitué de réseaux de dislocations enchevêtrées ou parallèles. Il est ancré à des porosités ce qui limite sa mobilité. Cette structure cellulaire de dislocation scinde les grains en sous grains. On note la variation de la structure de dislocation en fonction du plan du SJG. Il passe d'un réseau enchevêtré de dislocations (en haut du SJG) à un réseau de dislocations parallèles (en bas du SJG).

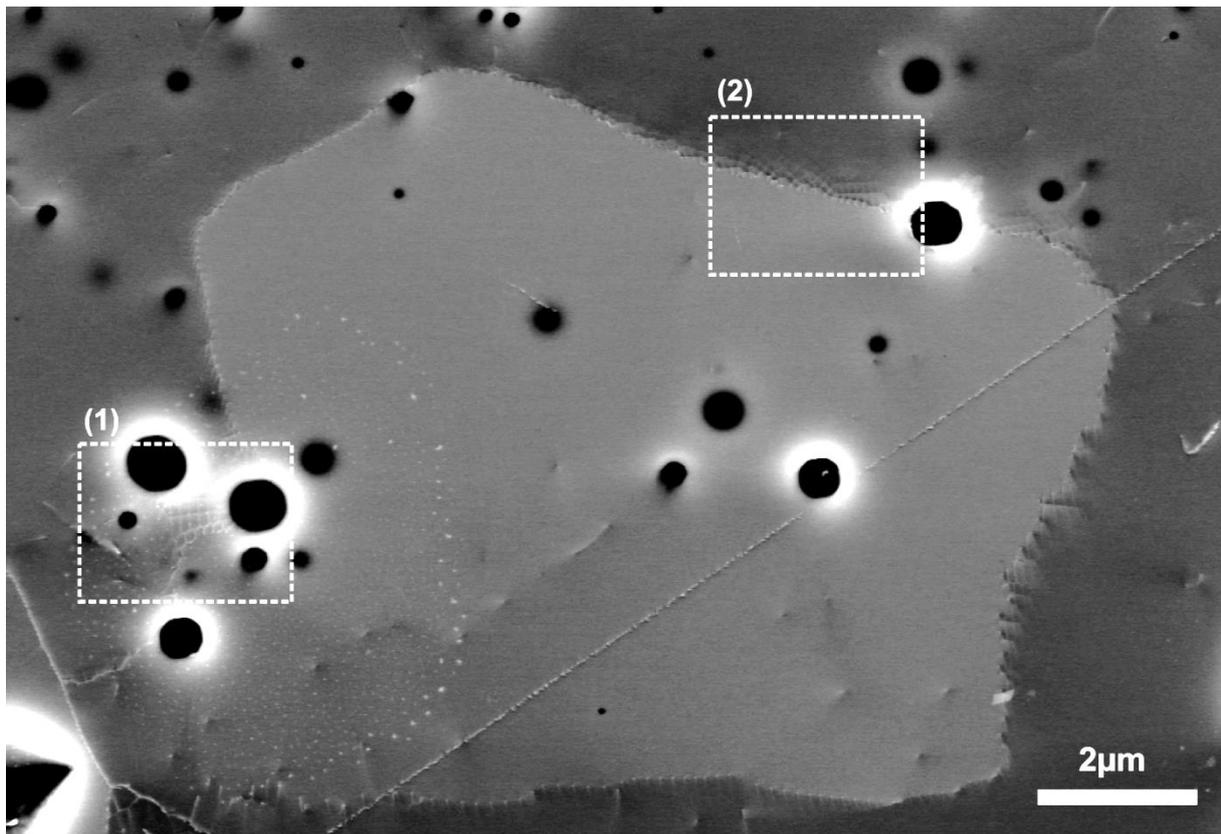


Figure IV.6 Micrographie A-ECCI d'un sous grain

La figure IV.7 est une image A-ECCI à fort grandissement de la zone 1 de la figure IV.6. On y observe un réseau de dislocations et quelques dislocations extrinsèques ancrés à des cavités, indiquées par des flèches blanches. On remarque la perturbation du réseau de dislocations par les porosités : il est hexagonal dans sa partie inférieure puis devient rectangulaire au milieu. Ces porosités jouent le rôle d'un frein et empêchent le mouvement des joints de grain et des dislocations. Elles ont donc un rôle très important dans la déformation plastique d'UO<sub>2</sub>.

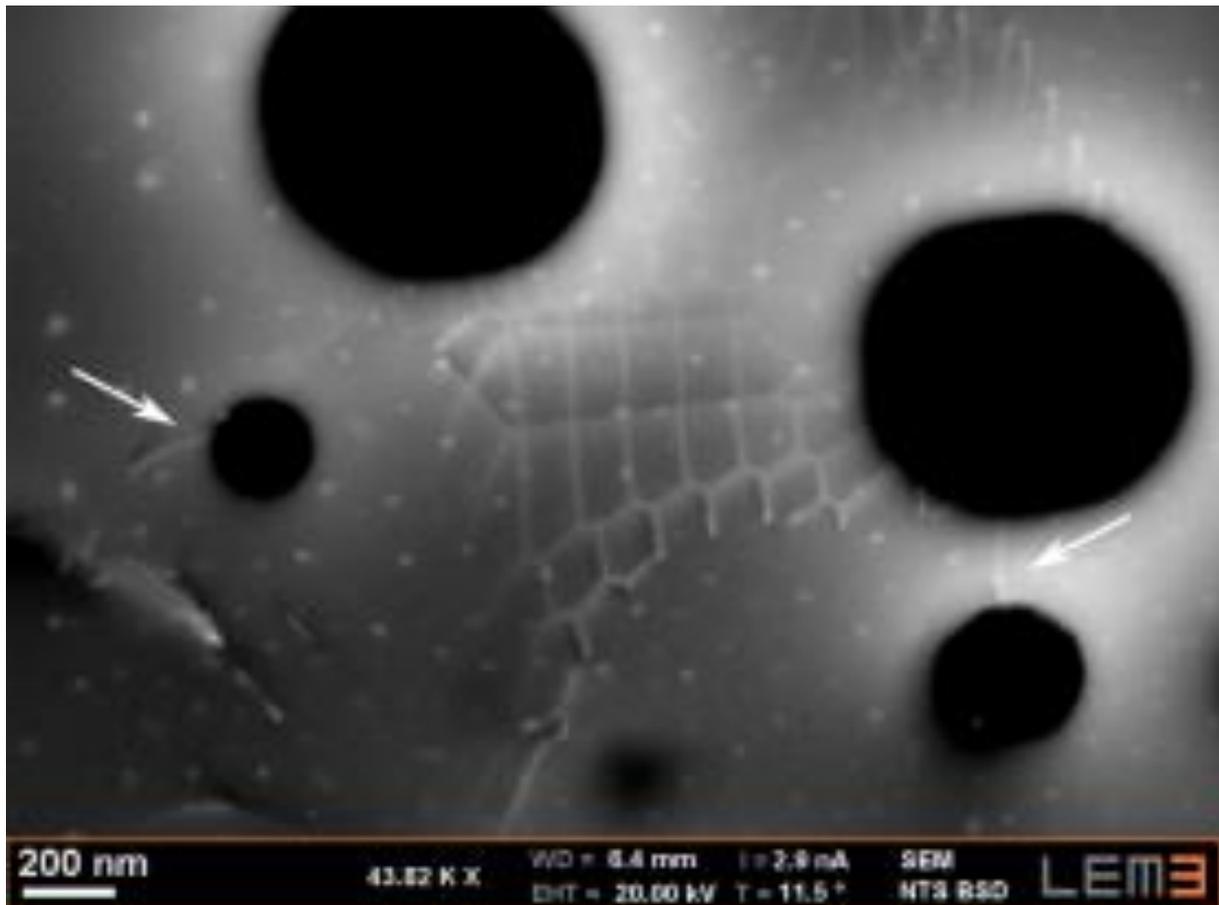


Figure IV.7 Micrographie A-ECCI montrant un réseau de dislocations et quelques dislocations extrinsèques (flèches blanches) ancrés à des porosités. (Points blancs sur la surface liés au polissage)

La figure IV.8 est une image A-ECCI à fort grossissement de la zone 2 de la figure IV.6. Elle montre un SJG formé par un réseau de dislocations non régulier. Il contient au moins 4 lignes de dislocation différentes. Ceci indique que le SJG est asymétrique et de caractère mixte, ce qui explique aussi la présence de plusieurs facettes qui le constituent. Ces facettes ont un angle d'environ 120° entre elles, probablement des plans de la famille {111}. Elles font augmenter l'aire du SJG mais réduisent son énergie. Il est très fréquent que les joints de grain ne possèdent pas un seul plan mais plusieurs facettes pour des raisons énergétiques. En observant le contraste du SJG dans l'image A-ECCI, on en déduit que son angle d'inclinaison varie: il augmente de droite à gauche (la longueur apparente du SJG est plus petite à gauche).

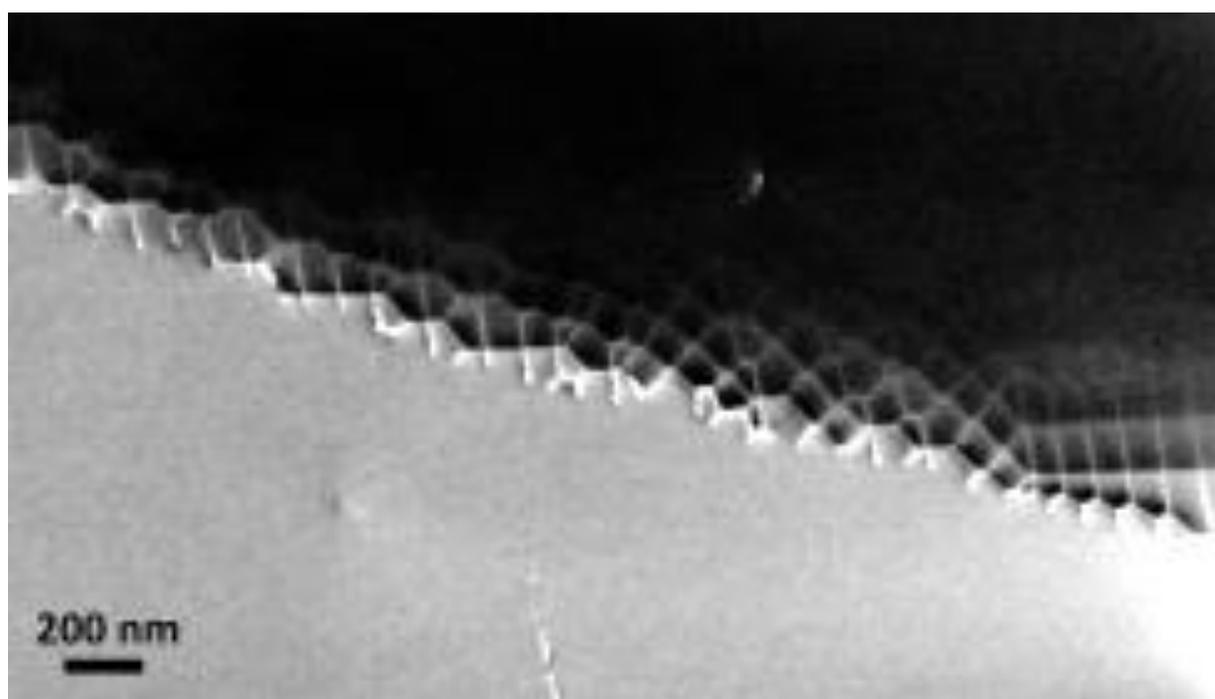


Figure IV.8 Micrographie A-ECCI d'un SJG mixte asymétrique.

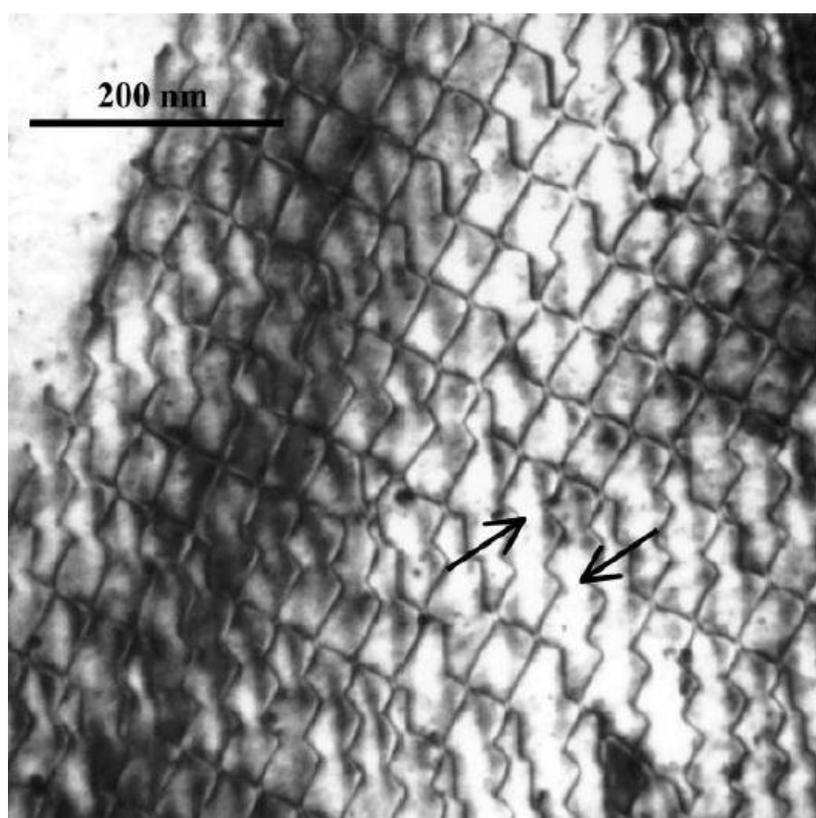


Figure IV.9 Micrographie acquise au MET d'un réseau de dislocation hexagonale dans UO<sub>2</sub> [Dherbey 2002]

La figure IV.9 est une micrographie MET montrant un réseau de dislocations hexagonal dans UO<sub>2</sub>. Il est semblable à celui de la figure IV.8. On remarque que la qualité et résolution de l'image A-ECCI s'approche de celle de la MET. Cependant sur l'image MET, on note l'absence de quelques dislocations dans le réseau (flèches noires dans la figure IV.9). D'après F. Dherbey et al. ceci est peut-être dû à l'extraction d'une dislocations du SJG lors de son déplacement ou à l'annihilation d'une de ces dislocations par une dislocation extrinsèque (au SJG) mobile aillant un vecteur de Burgers opposé.

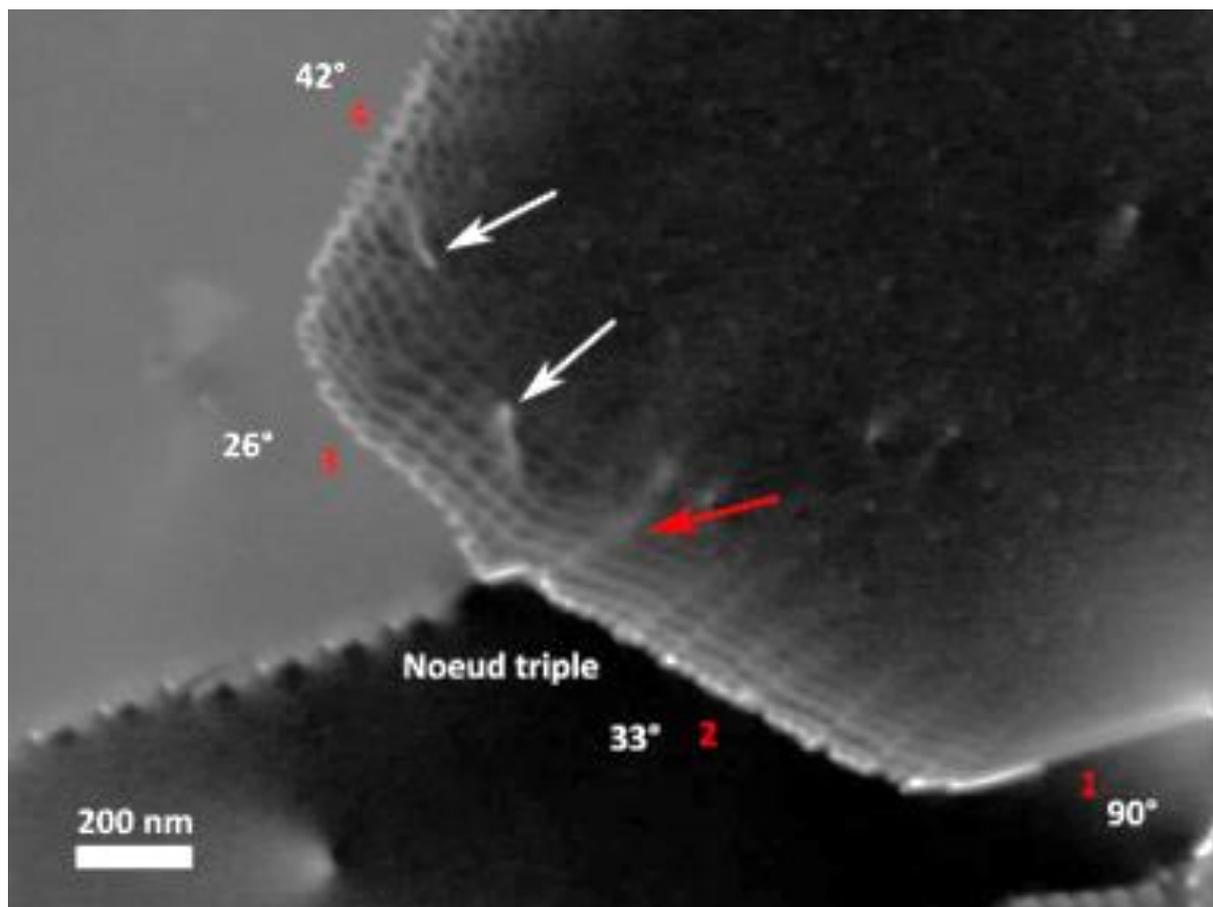


Figure IV.10 Micrographie A-ECCI d'un sous joint de grain formant un nœud triple. Flèches blanches: Dislocation extrinsèques au réseau de dislocations. On aperçoit le joint triple en profondeur (flèche rouge) grâce à l'information en volume que donne l'A-ECCI.

La figure IV.10 est une micrographie A-ECCI d'un autre SJG formé par un réseau de dislocations formant un nœud triple. L'image A-ECCI donne une 3ème dimension au SJG grâce à la profondeur de l'information des électrons rétrodiffusés. On remarque l'existence de quelques dislocations extrinsèques (flèches blanches) qui perturbent le réseau de dislocations. On observe aussi en profondeur, la continuité du nœud triple à l'intérieur du matériau (flèche rouge). L'image est acquise à  $g=(200)$  à 20 keV. Dans ces conditions, la distance d'extinction

dans UO<sub>2</sub> est  $\xi_{200} \approx 22,73 \text{ nm}$ . La profondeur de visibilité des dislocations est donc  $5\xi_{200} \approx 114 \text{ nm}$ . Le contraste des dislocations diminue en pénétrant dans le matériau sur une distance de 114 nm de profondeur donnant cet effet 3D. On peut ainsi déduire l'inclinaison du SJG par rapport à la surface grâce à la formule ( $D=d \times \tan\beta$ ) introduite dans le chapitre précédent. L'inclinaison varie en fonction des facettes du SJG : elle est d'environ  $90^\circ$  dans la zone 1,  $\approx 33^\circ$  dans la zone 2,  $\approx 26^\circ$  dans la zone 3 et  $\approx 40^\circ$  dans la zone 4.

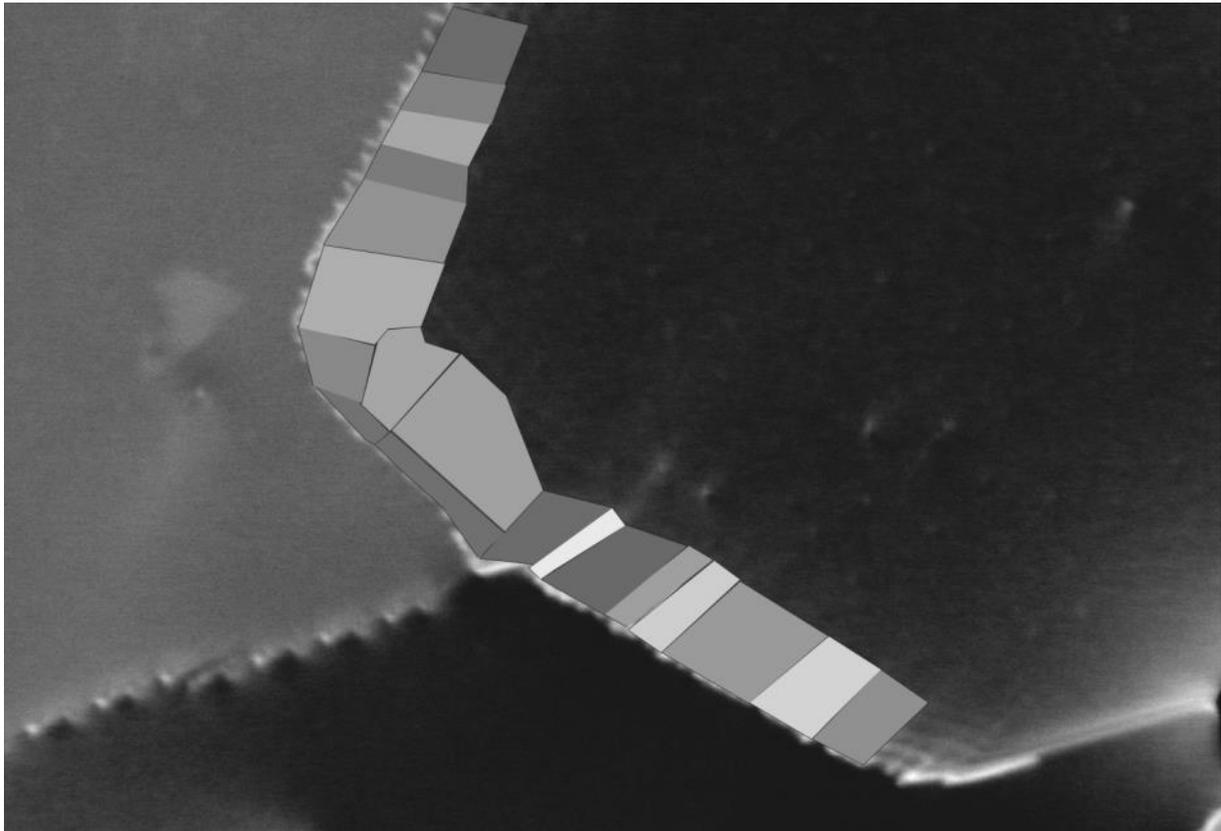


Figure IV.11 Reconstruction des facettes formant le SJG à partir de l'image A-ECCI de la figure IV.10.

Par ailleurs, la déformation du réseau de dislocations dans le SJG nous donne une idée sur l'état de son plan et des facettes qu'il contient. En tenant compte de cette déformation du réseau de dislocation aperçue dans la micrographie A-ECCI (figure IV.10), ces facettes sont schématisées approximativement dans la figure IV.11 en utilisant un logiciel de traitement d'images (InkScape).

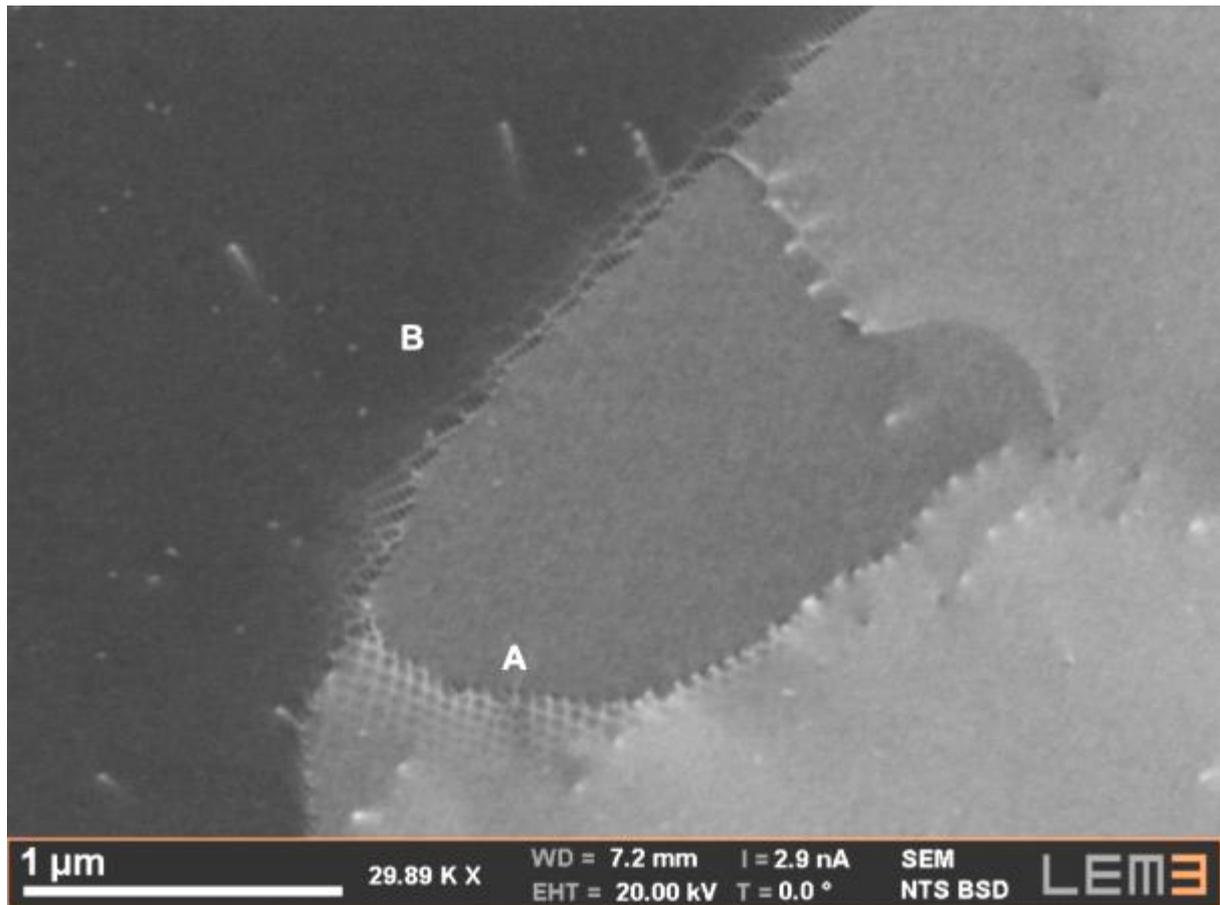


Figure IV.12 Image A-ECCI de deux SJG de torsion A et B.

Une autre zone avec deux SJG différents a été analysée pour mettre en évidence la variation de désorientation en fonction de la taille de maille du réseau de dislocations.

La figure IV.12 est une micrographie A-ECCI de deux SJG A et B, constitués de deux familles de dislocations perpendiculaires, indiquant que ces deux SJG sont de torsion. Les mailles du réseau formant le SJG A sont plus larges ( $\approx 53\text{nm}$ ) que celles du SJG B ( $\approx 29\text{nm}$ ) indiquant qu'il présente une désorientation plus petite. Grâce à la formule  $\theta \approx b/D$  (introduite dans le chapitre précédent), cette désorientation est estimée à environ  $0,4^\circ$  pour le SJG A et de  $0,8^\circ$  pour le SJG B.

## IV.4 Analyse d'un SJG par A-ECCI et HR-SACP

### IV.4.1 Analyse des dislocations formant le SJG par A-ECCI

Dans cette partie on s'intéresse à l'analyse d'un SJG de faible désorientation. On utilise une procédure similaire à celle appliquée à l'acier IF dans le chapitre précédent. La structure de

dislocations et la trace du SJG sont analysées afin de déterminer son type, sa désorientation ainsi que le système de glissement.

La figure IV.13 est une image A-ECCI à  $g=(202)$  du SJG d'intérêt. Il est ancré à des porosités. Le SJG présente plusieurs facettes et on remarque que la structure des dislocations le formant varie en fonction du plan du SJG.

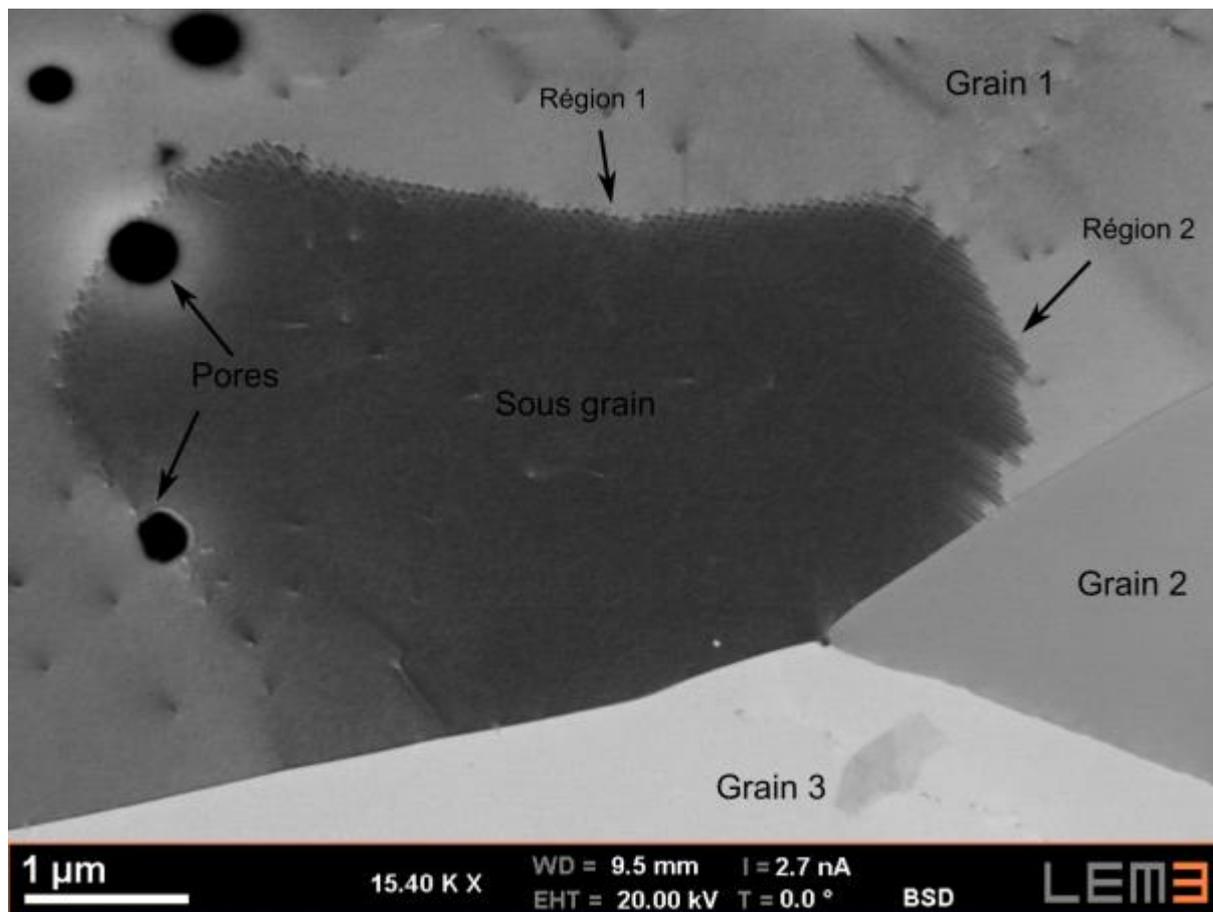
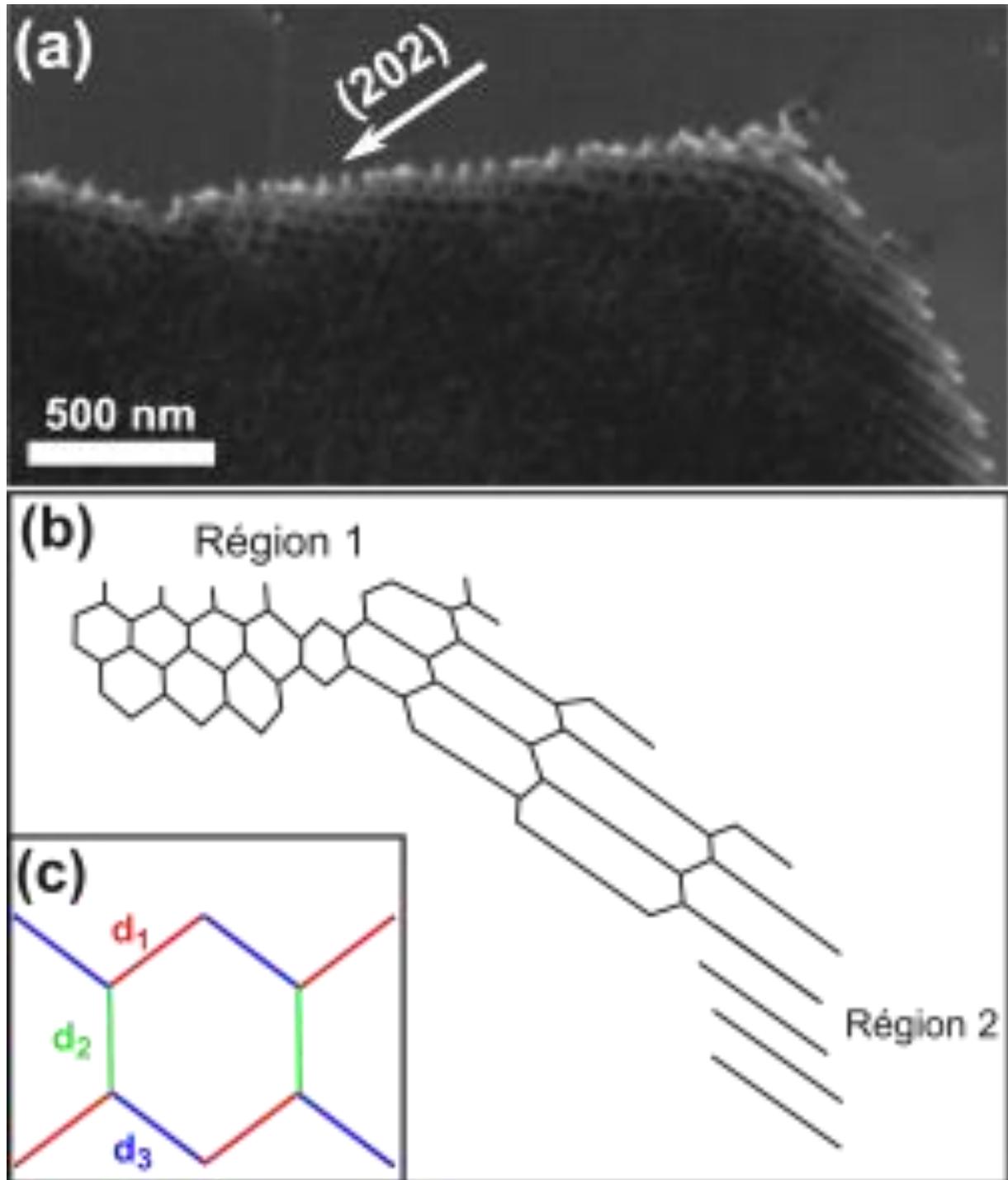


Figure IV.13 Micrographie A-ECCI d'un SJG ancré à deux porosités. Il est constitué de deux régions principales en fonction de son plan et structure de dislocations (Région 1 et 2).

On rappelle que dans une image ECCI le contraste des dislocations s'estompe en profondeur de l'échantillon. C'est à dire que plus une dislocation est proche de la surface plus elle est brillante et inversement jusqu'à ce qu'elle disparaisse complètement. Ce contraste de dislocations brillantes sur une matrice sombre révèle le(s) plan(s) constituant le SJG. On remarque alors que le plan et structure de dislocations changent le long du SJG. On distingue alors deux régions distinctes (voir figure IV.13):

- Région 1 : en haut du SJG de l'image A-ECCI, constituée par un réseau hexagonal de dislocations.

- Région 2 : en bas à droite du SJG de l'image A-ECCI, constituée par un réseau de dislocations individuelles parallèles entre elles, soit un mur de dislocations.



La figure IV.14.a est un agrandissement du SJG de la figure IV.13. On y observe plus clairement la structure de dislocations. Cette dernière est schématisée à partir de l'image A-ECCI dans la figure IV.14.b. On observe alors une zone de transition entre les régions 1 et 2 : les cellules de dislocations hexagonales se déforment et s'allongent à partir de la Région 1 jusqu'à avoir un réseau de dislocations parallèles dans la Région 2. La figure IV.14.c est une schématisation d'une cellule de dislocation hexagonale parfaite issues de la Région 1: elle est constituée de trois dislocations (identifiées par la suite), notées  $\mathbf{d}_1$  (rouge),  $\mathbf{d}_2$  (bleu) et  $\mathbf{d}_3$  (vert), possédant des lignes ayant un angle d'environ 120° entre elles. Il observe que les dislocations  $\mathbf{d}_3$  du réseau hexagonal s'allongent considérablement dans la partie de transition (Région 1-2) et viennent s'incrémenter au réseau de dislocations parallèles de la Région 2. On note, par ailleurs, que le changement de paroi du SJG (Région 1-2) ainsi que sa structure de dislocation indique qu'il change aussi de nature (flexion vers torsion).

Une procédure similaire à celle utilisée dans le chapitre précédent est appliquée pour déterminer les vecteurs de Burgers et directions des dislocations formant le SJG dans les deux Régions 1 et 2.

Premièrement, la Région 1 est caractérisée. Afin de déterminer les vecteurs de Burgers des dislocations, le SJG est micrographié à plusieurs reprises sous différentes conditions de canalisation. Le tableau 1 dresse un récapitulatif des 6 vecteurs de Burgers possibles dans UO<sub>2</sub>, ainsi que les produits  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b}$  utilisés pour l'analyse des dislocations.

Table 3 Tableau des vecteurs de Burgers possibles dans UO<sub>2</sub> et leurs produits scalaires avec les différents  $\mathbf{g}$  utilisés dans l'analyse

$\mathbf{g}$	$\mathbf{b}$	$1/2\langle 110 \rangle$	$1/2\langle 101 \rangle$	$1/2\langle 011 \rangle$	$1/2\langle -110 \rangle$	$1/2\langle -101 \rangle$	$1/2\langle 0-11 \rangle$
[202]		1	1	1	1	0	1
[020]		1	0	1	1	0	1
[1-11]		0	1	0	1	0	1
[111]		1	1	1	0	0	0
[2-20]		0	1	1	1	1	1
[200]		1	1	0	1	1	0

Les images A-ECCI sous différentes conditions de canalisation du réseau hexagonal sont illustrées dans les figures IV.14, 15, 16, 17 et 18.

Les dislocations  $\mathbf{d}_1$  (bleu) sont visibles à  $g = (202)$  (figure IV.14) et  $g = (2-20)$  (Figure IV.16) et s'éteignent uniquement à  $g = (020)$  (voir figure IV.15), ce qui satisfait la condition  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$ . On note bien que  $g = (020)$  est perpendiculaire à la ligne de dislocation. On en déduit que les dislocations  $\mathbf{d}_1$  possèdent un vecteur de Burgers  $\mathbf{b}_1 = 1/2[101]$  et qu'elles sont probablement des dislocations vis. Les traces des dislocations  $\mathbf{d}_1$ ,  $\mathbf{d}_2$  et  $\mathbf{d}_3$  sont superposées à la projection stéréographique des directions  $\{100\}$ ,  $\{110\}$ ,  $\{111\}$  et  $\{112\}$  (voir figure IV.19). La ligne de la dislocation  $\mathbf{d}_1$  correspond au pôle (101). Ceci montre que  $\mathbf{d}_1$  est bien une dislocation vis ayant comme vecteur de Burgers  $\mathbf{b}_1 = 1/2[101]$ .

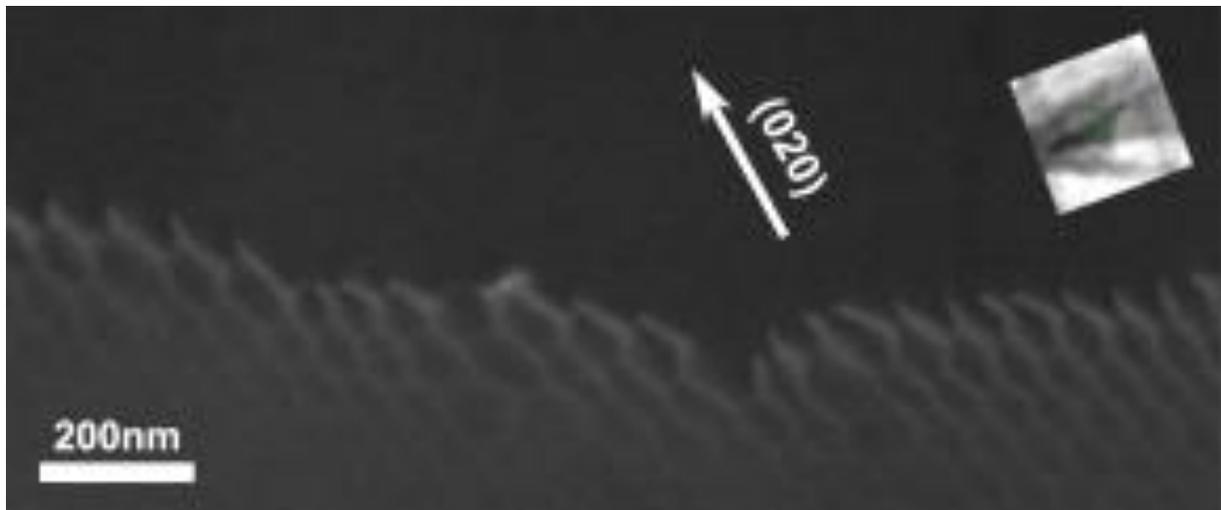


Figure IV.15 Micrographie A-ECCI du SJG dans la Région 1 à  $g = (020)$

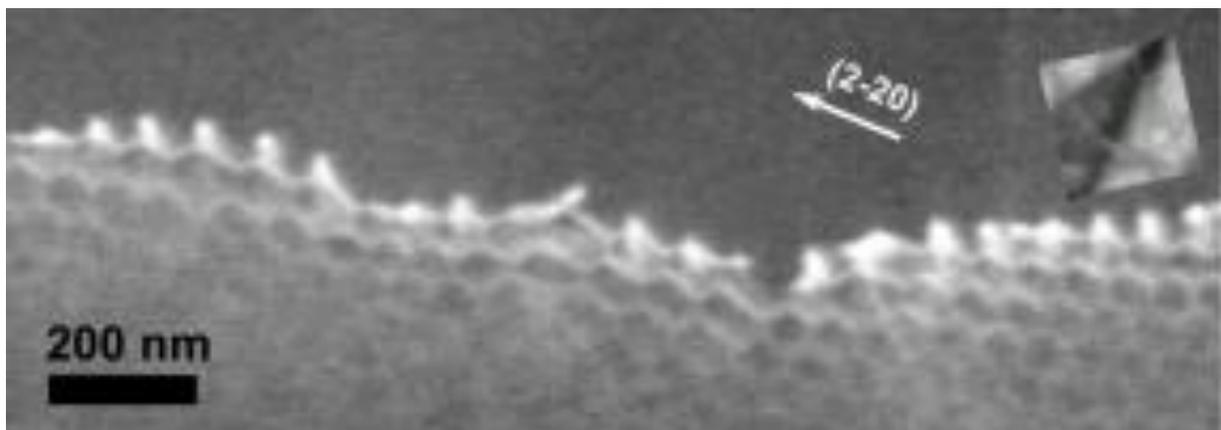


Figure IV.16 Micrographie A-ECCI du SJG dans la Région 1 à  $g = (2-20)$

Les dislocations  $\mathbf{d}_2$  sont visibles à  $g=(202)$  (figure IV.14) et  $g=(020)$  (figure IV.15) et disparaissent à deux reprises: à  $g=(2-20)$  (figure IV.16) et  $g=(1-11)$  (figure IV.17) perpendiculaire à la ligne de dislocation. Selon la projection stéréographique dans la figure IV.19, sa direction est très proche de  $(110)$ . Ceci indique que les dislocations  $\mathbf{d}_2$  sont de type vis de vecteur de Burgers  $\mathbf{b}_2=1/2[110]$ .

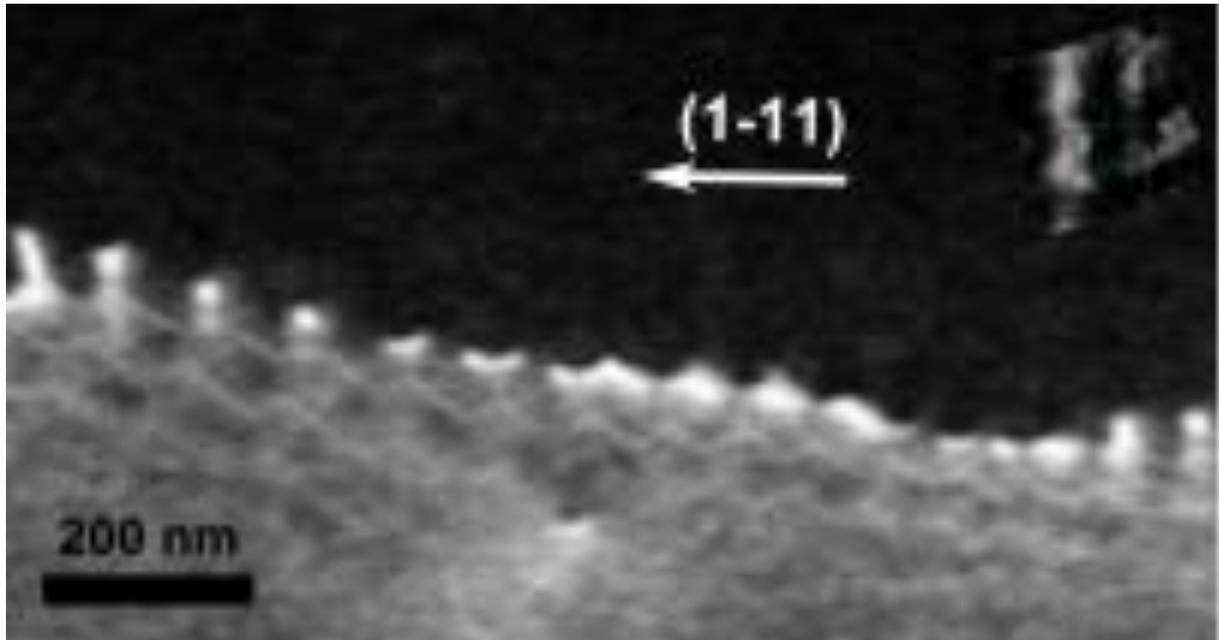


Figure IV.17 Micrographie A-ECCI du sous joint de grain dans la Région 1 à  $g=(1-11)$

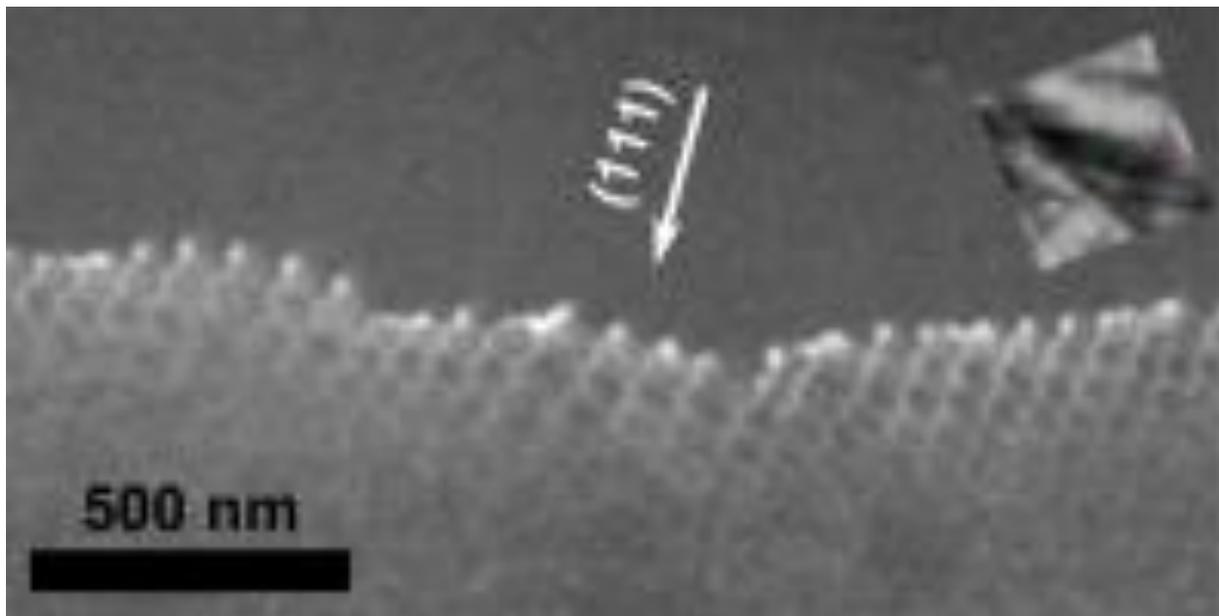


Figure IV.18 Micrographie A-ECCI du SJG dans la Région 1 à  $g=(111)$

Les dislocations  $\mathbf{d}_3$  sont visibles à  $g=(202)$  (figure IV.14) et  $(020)$  (figure IV.15). Cependant leurs contraste s'affaiblie à  $g= (111)$  (figure IV.18). Il n'est pas possible de conclure si elles deviennent totalement invisibles ou pas à partir de la figure IV.18. Ceci est peut-être dû à la difficulté de se mettre en condition de canalisation selon les plans  $\{111\}$ , expliqué dans la partie annexe II, ou bien indique que les dislocations  $\mathbf{d}_3$  sont de nature coin ou mixte, c'est à dire qu'elles s'éteignent quand  $g$  satisfait à la fois  $\mathbf{g}\bullet\mathbf{b}=\mathbf{0}$  et  $\mathbf{g}\bullet\mathbf{b}\times\mathbf{u}=\mathbf{0}$  (dislocations coins). Malgré cela, il est possible d'identifier sans ambiguïté le vecteur de Burgers de la dislocation  $\mathbf{d}_3$  en utilisant la loi des nœuds :

$$\mathbf{1/2[101]} (b_1) - \mathbf{1/2 [110]} (b_2) = \mathbf{1/2[0-11]} (b_3)$$

Les dislocations  $\mathbf{d}_3$  possèdent donc un vecteur de Burgers  $\mathbf{b}_3= \mathbf{1/2[0-11]}$ .

Selon la projection stéréographique dans la figure IV.19, la direction des  $\mathbf{d}_3$  est très proche de la direction  $[-211]$ . Si c'est le cas, elles seront des dislocations coins puisque la direction  $[-211]$  est perpendiculaire à  $[0-11]$ . Dans ce cas le vecteur  $g$  satisfaisant la condition d'invisibilité ( $\mathbf{g}\bullet\mathbf{b}=\mathbf{0}$  et  $\mathbf{g}\bullet\mathbf{b}\times\mathbf{u}=\mathbf{0}$ ) est  $g= (-422)$ . Il n'est pas possible expérimentalement de l'atteindre, cela nécessite une inclinaison de l'échantillon de plus que  $50^\circ$ . Il convient de noter aussi, qu'il n'est pas possible de trouver l'inclinaison de la dislocation  $\mathbf{d}_3$ , en utilisant la distance d'extinction comme dans le chapitre précédent, car elles sont disposées en cellules de dislocations et non pas en dislocation individuelles parallèles entre elles.

Les dislocations  $\mathbf{d}_3$ , très probablement coin, sont dans le plan  $(111)$  et appartiennent donc au système de glissement  $[0-11] (111)$ .

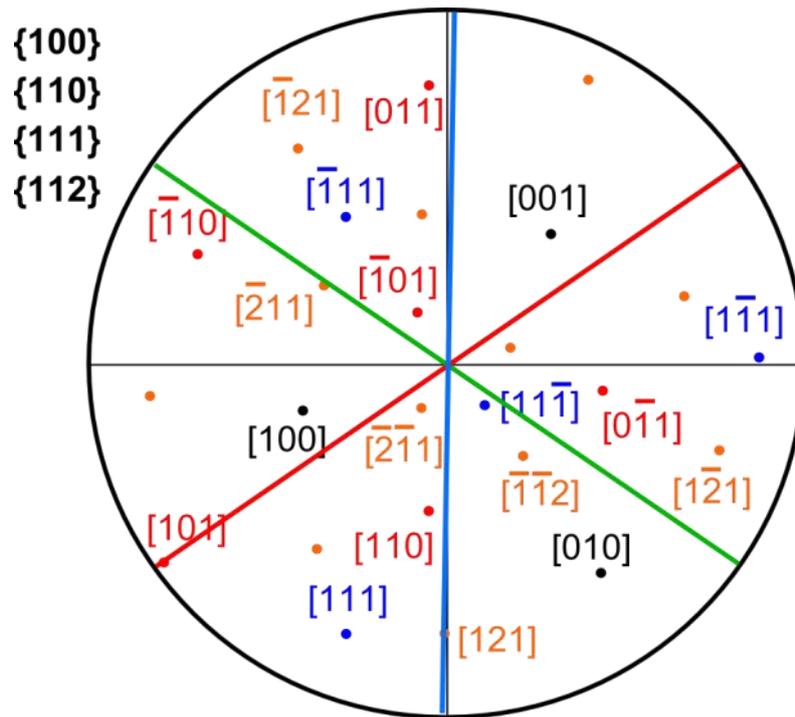


Figure IV.19 Superposition des traces des dislocations  $d_1$ ,  $d_2$  et  $d_3$  sur la projection stéréographique des directions  $\{100\}$ ,  $\{110\}$ ,  $\{111\}$  et  $\{112\}$ . L'orientation correspond à celle de la figure 13 à  $g=(202)$ .

Le SJG dans la Région 1 est asymétrique puisque qu'il présente plusieurs facettes et que sa trace à la surface de l'échantillon change. Il possède de plus un caractère mixte puisqu'il est constitué de 3 dislocations (deux vis et une coin ou mixte) et non pas de deux familles perpendiculaires de dislocations vis (le cas d'un SJG de torsion pure). Le plan du SJG possède plusieurs facettes et ne peut donc pas être identifié selon un seul plan. Cependant, les deux dislocations vis  $d_1$  et  $d_2$  appartiennent au plan  $(-111)$ , ce qui représente donc l'une des facettes du SJG.

Le SJG dans la Région 2 est cependant constitué de dislocations parallèles entre elles. Il ressemble au SJG de flexion dans l'acier IF analysé dans le chapitre précédent. Cependant, l'analyse A-ECCI montre que le SJG est formé par deux familles de dislocations intrinsèques qu'on appellera  $d_4$  et  $d_5$ . Ceci prouve que c'est un SJG asymétrique.

Les dislocations  $d_4$  et  $d_5$  ont une direction visiblement parallèle à la ligne de la dislocation  $d_3$ ,  $[-211]$ . Cependant, le calcul de l'inclinaison des lignes de dislocations  $d_4$  et  $d_5$  en utilisant la même méthode dans le chapitre précédent (connaissant la distance d'extinction) indiquent qu'elles sont presque parallèles à la surface (environ  $12^\circ$  d'inclinaison par rapport à la

surface). L'analyse de trace et d'inclinaison ne correspond à aucunes des directions principales ( $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$ ,  $\langle 111 \rangle$ ,  $\langle 112 \rangle$ ) mais le pôle qui coïncide le mieux est le  $[-120]$ .

La figure IV.20 est une micrographie A-ECCI du SJG dans la Région 2 à deux  $g$  différents. Les flèches vertes et blanches indiquent respectivement les dislocations  $d_4$  et  $d_5$ . Les  $d_5$  sont visibles à  $g=(202)$  (figure IV.20.a) et disparaissent à  $g=(020)$  (figure IV.20.b). Elles possèdent donc, selon le tableau 1, un vecteur de Burgers  $b_5 = 1/2[101] = b_1$  le même que les dislocations  $d_1$ .

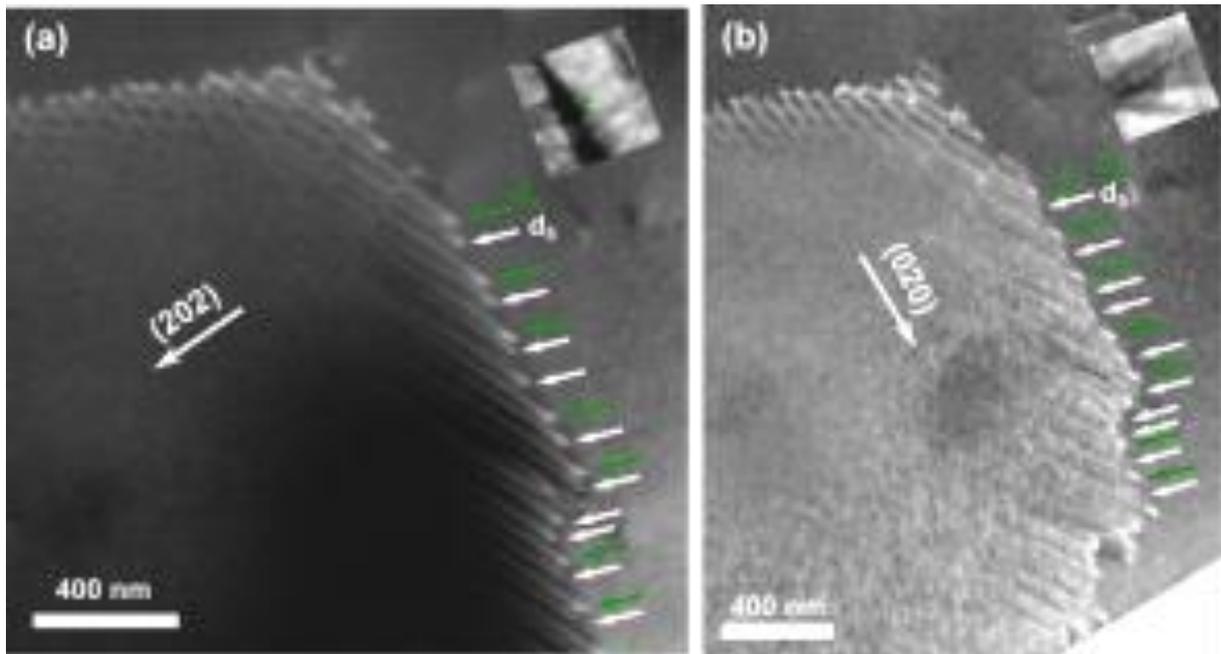


Figure IV.20 Micrographie A-ECCI du SJG dans la Région 2 à (a)  $g=(202)$  et (b)  $g=(020)$ . Les flèches vertes et blanches indiquent respectivement les dislocations  $d_4$  et  $d_5$ .

Les dislocations  $d_4$  sont visibles à  $g = (202)$  (figure IV.20.a),  $g = (020)$  (figure IV.20.b),  $g = (111)$  (figure IV.21.a). Cependant, à  $g=(200)$  (Figure IV.21.b) leurs contraste s'atténue remarquablement mais elles ne disparaissent pas complètement: la partie proche de la surface reste visible. On ne peut donc pas identifier avec certitude le vecteur de Burgers de ces dislocations. Il est probable que le vecteur  $b_4$  soit le  $1/2[01-1]$  selon l'analyse précédente (dislocations  $d_4$  s'atténue remarquablement à  $g=(200)$ ).

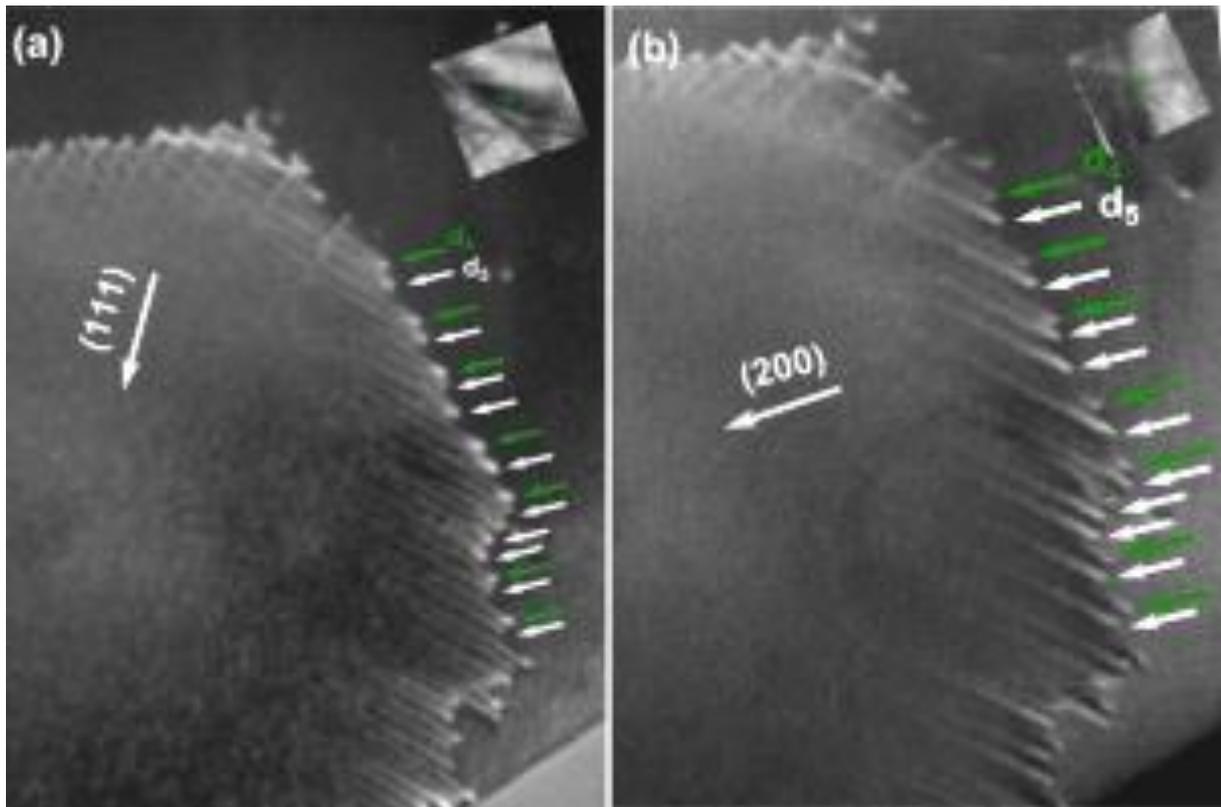


Figure IV.21 Micrographie A-ECCI du sous joint de grain coté 2 à (a)  $g=(111)$  et (b)  $g=(200)$ . Les flèches vertes, blanches et rouges indiquent respectivement les dislocations  $d_4$ ,  $d_5$  et ceux qui ont disparues.

La Région 2 du SJG est asymétrique et possède un caractère mixte puisque les dislocations  $d_5$  ont un vecteur de Burgers qui est visiblement ni perpendiculaire ni parallèle à la ligne de dislocation (selon la projection stéréographique la direction  $[101]$  n'est pas parallèle aux lignes des dislocations  $d_5$ ).

Par ailleurs, cette asymétrie du SJG donne lieu à des facettes (marches) et est accommodée par des dislocations de vecteurs de Burgers différents.

#### IV.4.2 Mesure de la désorientation du SJG par A-ECCI, HR-SACP et EBSD haute précision

La désorientation à travers le SJG est mesurée dans ces deux Régions (1 et 2) de trois manières différentes; premièrement en utilisant les clichés HR-SACP, puis en utilisant la formule  $\theta \approx b/D$  et finalement en utilisant l'EBSD haute précision.

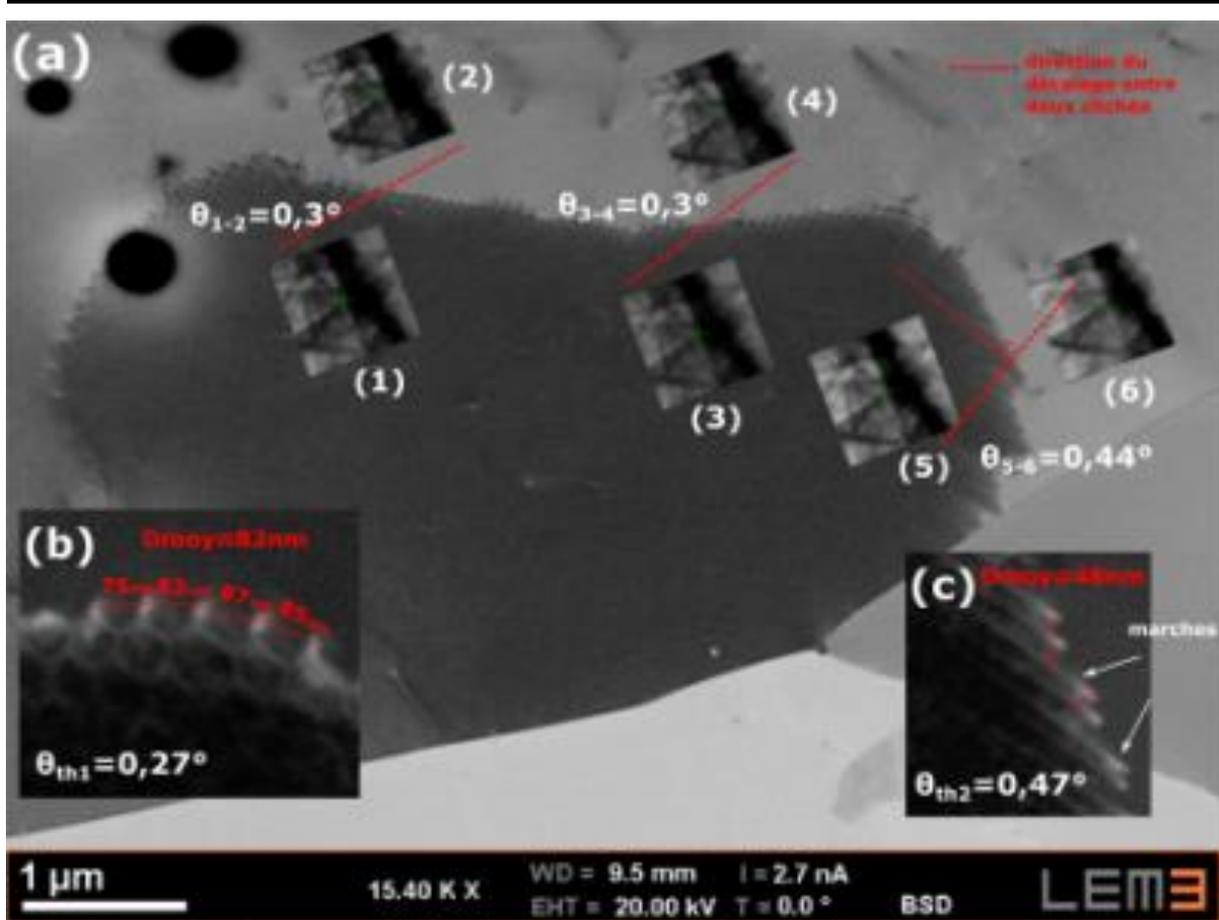


Figure IV.22 Micrographie A-ECCI du SJG à  $g=(202)$ . Six clichés HR-SACP collectés d'une part et d'autre du SJG sont superposés sur l'image à l'endroit où ils ont été pris. Les lignes rouges discontinues indiquent la direction du décalage entre les deux clichés HR-SACP. Agrandissement du SJG avec les mesures des distances entre les dislocations nécessaires au calcul de la désorientation théorique dans la Région 1 (b) et 2 (c).

La figure IV.22 est une micrographie A-ECCI à  $g=(202)$  du SJG. Des clichés HR-SACP sont collectés de part et d'autre du SJG le long des deux Régions 1 et 2. En utilisant les mêmes étapes décrites dans le chapitre précédent (paragraphe III.4.2), on déduit la désorientation et la direction du décalage entre les deux clichés (lignes rouges discontinues). Deux mesures à deux endroits différents le long du SJG de la Région 1 sont réalisées:  $\theta_{1-2}=0,3^\circ$  et  $\theta_{3-4}=0,3^\circ$  (voir figure IV.22).

Dans la Région 2 du SJG, on mesure de la même manière une désorientation  $\theta_{5-6}=0,44^\circ$ . La direction du décalage est proche de la perpendiculaire aux lignes des dislocations  $\mathbf{d}_4$  et  $\mathbf{d}_5$ . Ceci veut dire que la composante de flexion est probablement dominante dans cette région du SJG (mixte).

La désorientation angulaire du SJG dans la Région 2 est donc supérieure à celle de la Région 1. Ceci est cohérent avec l'observation de la structure de dislocations dans le SJG : le fait que la distance entre les dislocations est minimale à droite du SJG (Région 2) puis augmente successivement en se déplaçant vers la droite. À l'extrémité gauche en bas du SJG, on observe quelques dislocations intrinsèques dont l'espacement augmente jusqu'à ce que le SJG s'arrête.

La désorientation est ensuite calculée connaissant l'espacement entre les dislocations formants le SJG. Selon Read [Read 1953] la formule  $\theta \approx b/D$  reste aussi valable pour les SJG de torsion. On applique alors cette formule à la Région 1 du SJG en négligeant le fait qu'il a un caractère mixte. Le vecteur de Burgers dans l'UO<sub>2</sub> possède une amplitude  $b = \frac{1}{2}a[110] = \frac{1}{2}0,547\sqrt{2} = 0,387$  nm. La distance D entre les dislocations est mesurée directement sur l'image A-ECCI, elle est d'environ 82 nm (voir figure IV.22.b). La désorientation selon cette formule est alors égale à  $\theta_{Th1} \approx 0,387/82 \approx 0,27^\circ$ .

On applique aussi la même formule dans la Région 2 du SJG en négligeant le fait qu'il est asymétrique et mixte. La moyenne de la distance entre les dislocations **D** est égale à environ 48 nm, comme indiqué dans la figure IV.22.c. En appliquant la formule  $\theta \approx b/D$ , on conclut que  $\theta_{Th2} \approx 0,387/48 \approx 0,47^\circ$ .

Le SJG est aussi étudié en utilisant l'EBSD haute précision.

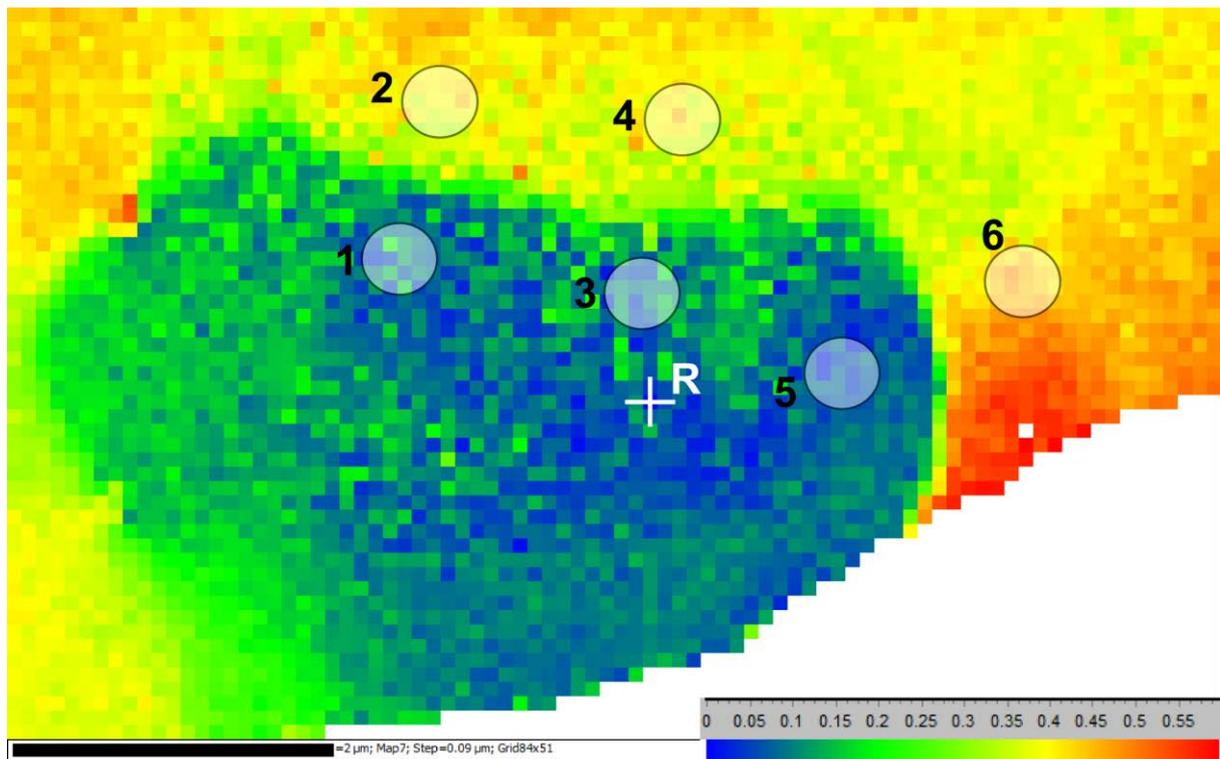


Figure IV.23 Carte EBSD haute précision autour du SJG étudié par A-ECCI. La désorientation par rapport à un pixel R dans le SJG est tracée en utilisant une barre d'échelle allant de  $0^\circ$  à  $0,6^\circ$ .

Une carte EBSD haute précision ( $0,05^\circ$  de précision) a été réalisée dans la zone du SJG en utilisant le même système EBSD Oxford Instruments décrit dans le chapitre précédent. Le pas utilisé est de 90 nm. Le SJG n'est pas détectable en utilisant les fonctions ordinaires de détection de joint de grain dans la suite CHANNEL 5. Cependant, il est révélé en traçant la désorientation par rapport à un pixel de référence "R" (choisi aléatoirement sur la carte), en prenant comme intervalle de désorientation  $0^\circ$ - $0,6^\circ$  (voir figure IV.23). Le contraste obtenu permet de visualiser le SJG et la distribution de la désorientation dans la zone.

La désorientation est ensuite mesurée entre les mêmes zones d'acquisition des clichés HR-SACP afin de comparer les deux sets de valeurs. L'orientation est d'abord moyennée sur des zones d'environ 500 nm (résolution spatiale du HR-SACP) pour réduire le bruit de mesure. Ceci est illustré par des cercles dans la figure IV.23. La désorientation est ensuite mesurée :  $\theta_{\text{EBSD1-2}} = 0,39^\circ$ ,  $\theta_{\text{EBSD3-4}} = 0,37^\circ$  et  $\theta_{\text{EBSD5-6}} = 0,46^\circ$ . Ces valeurs sont proches des valeurs mesurées par HR-SACP ( $\theta_{1-2} = \theta_{3-4} = 0,3^\circ$  et  $\theta_{5-6} = 0,44^\circ$ ) et la formule  $\theta \approx b/D$  ( $\theta_{\text{Th1}} = 0,27^\circ$ , et  $\theta_{\text{Th2}} = 0,47^\circ$ )

Les valeurs de désorientations calculées ( $\theta_{Th1} = 0,27^\circ$  et  $\theta_{Th2} = 0,44^\circ$ ) sont très proches des valeurs trouvées expérimentalement en utilisant le HR-SACP ( $\theta_{1-2} = \theta_{3-4} = 0,3^\circ$  et  $\theta_{5-6} = 0,44^\circ$ ) et l'EBSD haute résolution ( $\theta_{EBSD1-2} = 0,39^\circ$ ,  $\theta_{EBSD3-4} = 0,37^\circ$  et  $\theta_{EBSD5-6} = 0,46^\circ$ ) malgré le fait de négliger le caractère mixte et asymétrique du SJG des deux côtés. Ceci est peut-être dû au fait que la désorientation est très faible ( $< 0,5^\circ$ ) et qu'à chaque fois un des deux caractères du SJG (flexion ou torsion) est majoritaire.

## IV.5 Discussion et conclusions

Dans cette partie, l'A-ECCI assistée par HR-SACP et l'EBSD haute précision sont utilisés pour l'étude des sous structures de déformation d'UO<sub>2</sub> par fluage à haute température. Cela a permis de visualiser et d'analyser des SJG et des dislocations pour la première fois dans ce matériau au MEB avec une imagerie haute résolution. La structure de dislocation formant un SJG de nature mixte a été caractérisée.

Les dislocations de nature vis ont été les plus faciles à analyser. Cependant, les lignes des dislocations coins et mixtes sont plus difficiles, à analyser comme en MET. Le SJG ne peut pas être décrit par un seul plan cristallographique, il est en effet constitué par plusieurs facettes et donc plusieurs plans. Cependant, le plan (-111) contenant les dislocations  $d_1$  et  $d_2$  est un de ces plans principaux. L'existence de plusieurs facettes dans les SJG d'UO<sub>2</sub> est probablement due au fluage à chaud subi par le matériau.

La désorientation du SJG a été mesurée comme dans le chapitre précédent en utilisant trois méthodes différentes: le HR-SACP, la formule  $\theta \approx b/D$  se basant sur l'analyse des dislocations et l'EBSD. Les valeurs obtenues sont cohérentes.

## IV.6 Références bibliographiques

[Ashby 1964] K. H. G. Ashbee. Stacking Faults in Uranium Dioxide, Proceedings Of The Royal Society A, 280, 1380, 1964.

[Blanchard 1993] C. R. Blanchard and K. S. Chan. Evidence of Grain-Boundary-Sliding-Induced Cavitation in Ceramics under compression, Journal of the American Ceramic Society, 76, 7, 1651-1660, 1993.

[Dherbey 2000] F. Dherbey, Déformation à chaud du dioxyde d'uranium polycristallin : des mécanismes microscopiques au comportement macroscopique, Thèse, Institut National Polytechnique de Grenoble, 2000.

[Dherbey 2002] F. Dherbey, F. Louchet, A. Mocellin and S. Leclercq. Elevated temperature creep of polycrystalline uranium dioxide: from microscopic mechanisms to macroscopic behavior, Acta Materialia 50, 1495-1505, 2002.

[Evans 1969] A. G. Evans and P. L. Pratt. Dislocations in the Fluorine Structure. The Philosophical Magazine, 20, 166, 1213-1237, 1969.

[Ndiaye 2012] A. Ndiaye. Combustible nucléaire UO<sub>2</sub> à microstructures pilotées : compréhension des mécanismes d'élaboration et du comportement mécanique en température. Thèse, Université de Grenoble, 2012. French. <NNT : 2012GRENI084>. <tel-00848094>

[Rapperport] E. J. Rapperport and A. M. Huntress, Deformation modes of single crystal uranium dioxide from 700°C to 1900°C, Nuclear Metals Inc. NMI-1242, 1-29, 1960.

[Seltzer 1971] M. S. Seltzer, J. S. Perrin, A. H. Clauer and B. A. Wilcox. A review of creep behavior of ceramic nuclear fuels, Reactor Technology, 14, 99, 1971.

## *Chapitre V*

# *Étude des familles de macles et domaines d'ordres dans $\gamma$ -TiAl*

---

*Dans ce chapitre, l'A-ECCI (en mode high et low tilt) est utilisée pour étudier les familles de macles et les trois domaines d'ordre (DO) dans TiAl. La microstructure de  $\gamma$ -TiAl est analysée d'une manière générale pour montrer le potentiel de la technique A-ECCI en observant les DO et différents défauts dans le matériau (les dislocations). Une étude comparative entre les deux modes d'imageries A-ECCI: high et low tilt est réalisée. Une procédure permettant d'analyser les deux familles de macles ( $\gamma$  et  $\gamma^T$ ) dans  $\gamma$ -TiAl est ensuite présentée. Elle combine l'imagerie des électrons rétrodiffusés et le HR-SACP, permet d'écourter le temps d'analyse considérablement et d'analyser de larges zones. Finalement, les trois DO sont identifiés en utilisant les clichés HR-SACP et l'EBSD haute résolution en mode spot.*

## V.1 Introduction

### V.1.1 Intermétalliques à base de TiAl

Depuis les années 1970, les intermétalliques à base de titane et d'aluminium ont été largement utilisés dans les industries aérospatiales (aubes de turbine), énergétiques et militaires. Ces alliages sont connus par leurs propriétés physiques particulièrement intéressantes à haute température, leur résistance à la corrosion et l'oxydation, une bonne tenue au fluage et leur faible densité associée à un module d'Young élevé. Plus spécifiquement, les alliages basés sur la phase  $\gamma$ -TiAl, connues pour leurs faible densité volumique ( $3,7-4,7\text{g/cm}^3$ ), haute température de fusion (environ 1700 K) et bonne tenue à l'oxydation, sont utilisés dans des composants subissant de forte température en industrie automobile et aérospatiale [Appel 1988].

La plupart de ces alliages présentent une microstructure constituée de deux phases :  $\gamma$ -TiAl avec une structure quadratique  $L1_0$  et  $\alpha_2$ -Ti<sub>3</sub>Al avec une structure hexagonale  $DO_{19}$ . Ces deux phases sont issues pendant le refroidissement de la phase hexagonale désordonnée  $\alpha$  formée à haute température. Selon les traitements thermiques subis, une large variété de microstructures peut être obtenue. Il existe 4 types de microstructure bi-phasé  $\alpha_2$ -Ti<sub>3</sub>Al /  $\gamma$ -TiAl:

- *Duplex*, qui consiste en des fractions volumiques similaires des grains  $\gamma$  et colonies lamellaires  $\gamma/\alpha_2$
- *Lamellaire*, ne contient que des colonies lamellaires  $\gamma/\alpha_2$
- *Nearly lamellar*, contient majoritairement des colonies lamellaires
- *Nearly gamma*, contient majoritairement des grains  $\gamma$

### V.1.2 $\gamma$ -TiAl

La phase majeure dans les intermétalliques à base de titane et d'aluminium est  $\gamma$ -TiAl. Elle est légèrement quadratique avec une maille pseudo-cubique faces centrées (structure  $L1_0$ , voir figure V.1). Elle est constituée d'une alternance de plans Al et Ti selon la direction [001] (paramètre c) et de plans mixtes TiAl selon [100] et [010] (paramètre a). Le paramètre de maille c est d'environ 2% plus long que a. Il en résulte un rapport  $c/a \approx 1,02$ .

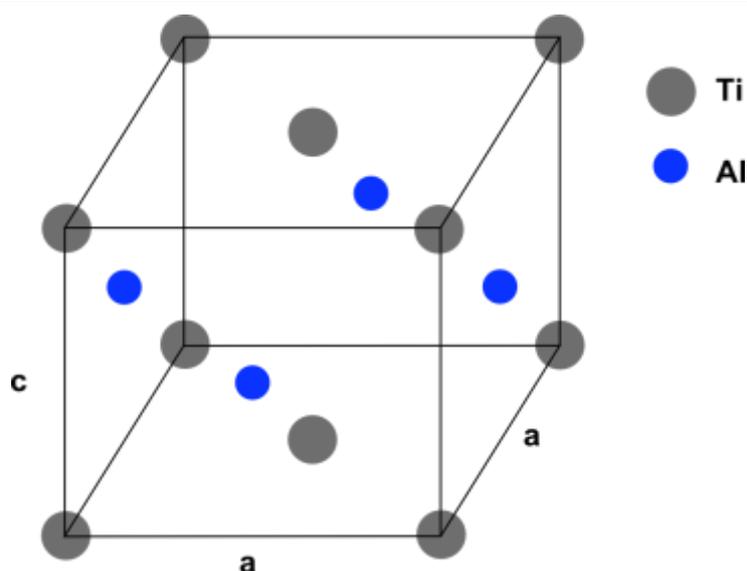


Figure V.1. Maille cristallographique de la phase  $\gamma$ -TiAl, structure  $L1_0$

Comme indiqué auparavant, la phase  $\gamma$ -TiAl est formée durant le refroidissement de la phase hexagonale  $\alpha$  (non ordonnée) ou de la phase hexagonale  $\alpha_2$ -Ti<sub>3</sub>Al (ordonnée) [Denquin 1996]. La transformation de phase se réalise en respectant la relation d'orientation de Blackburn : elle est de type  $(0001)_\alpha \parallel (111)_\gamma$  et  $\langle 11\bar{2}0 \rangle_\alpha \parallel \langle 1\bar{1}0 \rangle_\gamma$ , ce qui donne 6 variantes d'orientations cristallographiques différentes. Ces orientations se décomposent en deux groupes de trois sous forme de lamelles en relation de macle ou pseudo-macle. Dans chaque famille de lamelle, les trois variantes, appelées domaine d'ordre (DO), possèdent un axe c mutuellement perpendiculaire. Ces DO peuvent être considérés comme le résultat d'une rotation de  $120^\circ$  autour de la normale au plan (111).

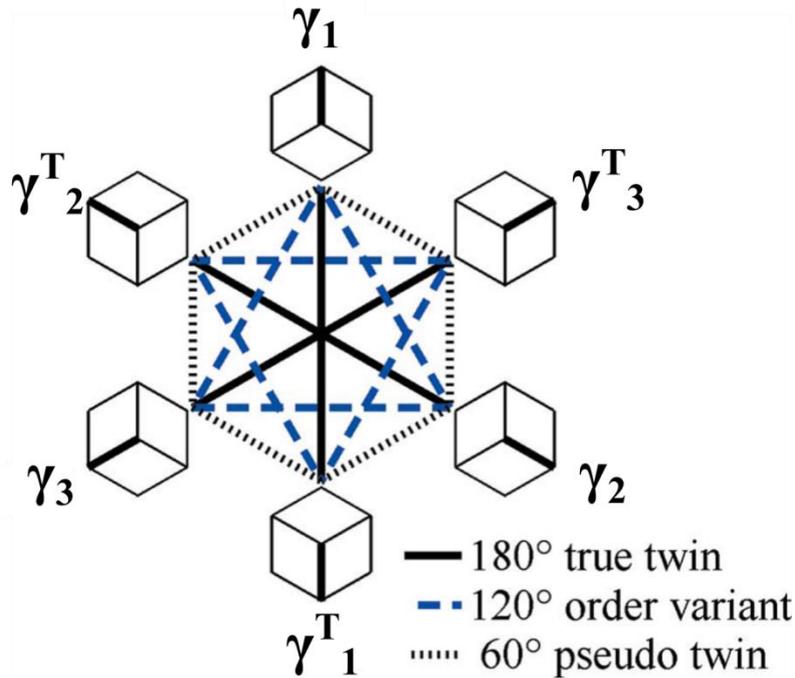


Figure V.2. Les 6 variantes d'orientations existantes dans la phase  $\gamma$ -TiAl. L'axe  $c$  de chaque maille est schématisé en gras.  $\gamma$  et  $\gamma^T$  sont les deux familles lamellaires en relation de macle, chacune contient 3 domaines d'ordre ( $\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3; \gamma_1^T, \gamma_2^T, \gamma_3^T$ ) (selon Claudio Zambaldi et al. [Zambaldi 2009]).

Les lamelles  $\gamma$ -TiAl, créées typiquement à partir d'un refroidissement lent, contiennent généralement deux familles de lamelles ( $\gamma$  et  $\gamma^T$ ) en relation de macle, chacune d'entre elles contient 1 à 3 DO [Zghal 1997] [Zghal 2005]. À part la relation de macle cohérente entre les deux familles de lamelles, deux relations pseudo-macles existent aussi. Elles sont générées par une rotation de  $\pm 60^\circ$  autour de  $\langle 111 \rangle$ . La figure V.2 schématise les différentes relations d'orientation entre les deux groupes de DO ( $\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3$ ) et ( $\gamma_1^T, \gamma_2^T, \gamma_3^T$ ). Les traits noirs correspondent aux relations de macle, les traits bleus discontinus aux relations de DO et les traits noirs discontinus aux relations de pseudo macles. Par exemple, le DO  $\gamma_1$  est en relation de macle avec  $\gamma_1^T$ , relation de DO avec  $\gamma_2$  et  $\gamma_3$  et en relation de pseudo macle avec  $\gamma_2^T, \gamma_3^T$ .

Malgré cette petite quadraticité, l'orientation de l'axe  $c$  dans  $\gamma$ -TiAl a des conséquences très importantes, particulièrement sur la déformation du matériau [Yamaguchi 1990] [Mecking 1996].  $\gamma$ -TiAl se déforme principalement par glissement des dislocations dans les plans  $\{111\}$ . On trouve quatre dislocations ordinaires de vecteur de Burgers de type  $\frac{1}{2} \langle 110 \rangle$ . Huit super dislocations de vecteur de Burgers  $\langle 101 \rangle$  peuvent être observées.

Par ailleurs, il est important de déterminer l'orientation des DO de chaque macle dans  $\gamma$ -TiAl pas seulement car la déformation du matériau dépend énormément de l'orientation de l'axe  $c$

mais aussi pour comprendre les différents états solides de la transformation de phase. De plus, une meilleure connaissance de la structure des DO permettra de mieux comprendre la relation entre microstructure et propriétés mécaniques de  $\gamma$ -TiAl. En effet, la densité des différents types d'interfaces est une variable principale dans les analyses mécaniques multi-échelles de type Hall-Petch [Dimiduk 1998] [Maruyama 2002].

### **V.1.3 Identification des DO dans $\gamma$ -TiAl**

Une détermination précise de l'orientation cristallographique de  $\gamma$ -TiAl devra faire la différence entre les axes [100], [010] et [001]. Dans le passé, la discrimination des DO par rayon X et techniques de diffraction électronique se basait principalement sur la détection des bandes de sur-structure dans les clichés de Kikuchi. C'est l'une des caractéristiques de la structure  $L1_0$  pour les plans cristallins (hkl) où l possède une parité différente de h et k. Par exemple, le plan (110) est réflecteur (bande de sur-structure) et (011) n'est pas réflecteur (1 et 0 sont de parité différente).

#### **V.1.3.1 Techniques utilisées au MET**

La technique "*Selected Area Diffraction Patterns (SADP)*" a été utilisée au MET par Inui et al. en 1992 [Inui 1992] pour étudier la microstructure des DO dans Ti-49,3Al (at %). En 2006, Dey et al. [Dey 2006] ont identifié par MET les DO en collectant les clichés de Kikuchi transmis (TKP). Après les avoir collectés automatiquement sur dix lignes d'une longueur de 5 $\mu$ m, ils distinguent les DO manuellement en identifiant les bandes de sur-structure dans les TKP. Il faut un temps d'acquisition de 2 secondes par cliché pour contraster les bandes de sur-structures, ce qui est très long pour ce type d'analyse. De plus, la MET souffre des limitations bien connues comme l'exigüité des zones observées, la complexité de la préparation d'échantillon et la difficulté des analyses à réaliser.

#### **V.1.3.2 EBSD**

##### **V.1.3.2.1 Limitation de l'EBSD conventionnel**

La technique EBSD au MEB permet de surmonter les problèmes rencontrés au MET. Elle permet de déterminer l'orientation cristallographique des grains dans des matériaux massifs et d'étudier des zones beaucoup plus étendues. Alors que les TKP en MET ont une ouverture angulaire d'environ 20°, les clichés EBSP possèdent une ouverture angulaire plus important

de  $70^\circ$ - $100^\circ$ . Ceci permet d'avoir un champ de vision vaste des bandes de Kikuchi mais rend plus difficile la détection des petits détails comme les bandes de sur-structure. De plus, la détection de l'angle entre les bandes de Kikuchi induit par la quadraticité dans  $\gamma$ -TiAl (environ  $0,5^\circ$ ) est très difficile sous des conditions conventionnelles.

Les clichés de Kikuchi des trois DO dans  $\gamma$ -TiAl sont presque identiques. La différence majeure consiste dans la présence des bandes de sur-structure et dans une légère distorsion due au faible rapport  $c/a$ . L'EBSD conventionnel utilisé dans des conditions conventionnelles n'arrive pas à faire la différence entre les trois DO. La figure V.3.a est une micrographie BSD à fort grandissement d'une colonie lamellaire  $\gamma$ -TiAl. Une carte EBSD est réalisée dans la zone micrographiée. Elle est indexée une fois avec une maille quadratique (figure V.3.b) et une fois en prenant une maille cubique (figure V.3.c). On remarque qu'en prenant une maille quadratique l'EBSD n'arrive pas à différencier entre les trois DO et ceci résulte en une carte bruitée. Le résultat reste le même en augmentant le temps d'exposition ou en modifiant le nombre de bandes utilisées pour l'indexation. Cependant, dans le cas d'une maille cubique l'EBSD indexe la phase  $\gamma$ -TiAl en négligeant sa quadraticité. Cela permet d'observer seulement les deux familles de macles  $\gamma$  et  $\gamma^T$  (voir figure V.3.c).

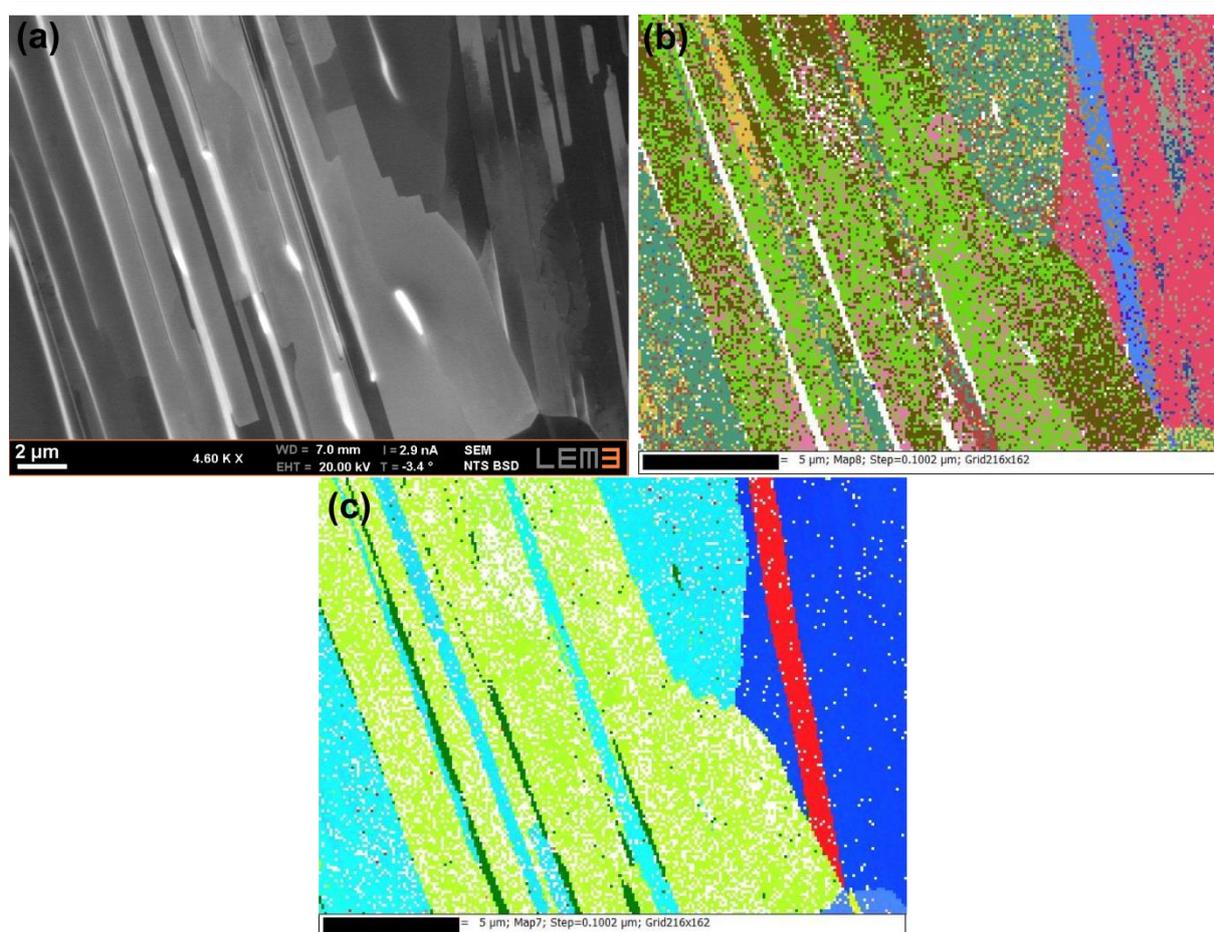


Figure V.3 (a) Micrographie BSE d'une colonie lamellaire. Carte EBSD en prenant un système cristallin quadratique (b) et cubique (c).

#### V.1.3.2.2 Cas particuliers

Quelques groupes de chercheurs ont essayé d'indexer les DO dans  $\gamma$ -TiAl en utilisant l'EBSO dans des conditions exceptionnelles.

En 2004, Pouchou et al. [Pouchou 2004] augmentent la distance entre la caméra EBSD et l'échantillon afin de détecter les bandes de sur-structure : l'angle solide de la caméra devient plus petit et permet d'agrandir les EBSP. Cependant, ils n'arrivent pas à indexer les DO d'une manière automatique car en EBSD l'indexation se base principalement sur l'angle entre les bandes de Kikuchi et pas sur la largeur des bandes. De plus, le fait d'augmenter la distance entre la caméra et l'échantillon réduit l'intensité de courant et augmente considérablement le temps d'analyse. En 2009, Zambaldi et al. [Zambaldi 2009] ont développé une nouvelle méthode permettant de résoudre la structure pseudo-cubique de  $\gamma$ -TiAl en utilisant l'EBSO. Cette approche se base sur la détection de la distorsion quadratique des bandes de Kikuchi suite à une série de calibrations laborieuses du *Pattern Center* et de l'acquisition des clichés et

leurs indexations. La méthode a un taux d'indexation entre 75 et 95% dépendant de la qualité des clichés acquis. Cependant, la carte EBSD prend beaucoup de temps à cause de la haute qualité nécessaire des clichés (0,5 secondes par point, 13 heures pour une zone de  $50 \times 20 \mu\text{m}$  avec un pas de  $0,1 \mu\text{m}$ ).

### V.1.3.3 SACP

En 2003, B.A. Simkin et al. [Simkin 2003] ont réussi à détecter les bandes de sur-structure de  $\gamma$ -TiAl sur des clichés Kikuchi réalisés par Rocking Beam. Le Rocking Beam utilisé possède un angle solide d'environ  $8^\circ$  et une résolution spatiale au mieux de  $10 \mu\text{m}$ . À cette époque la résolution spatiale du SACP ne permettait donc pas de le collecter sur des domaines aussi petits que les DO, généralement de largeur inférieure à  $2 \mu\text{m}$ . Alors que cela était aisé dans les grains monolithiques de taille supérieure à  $10 \mu\text{m}$ . Afin d'observer les bandes de sur-structure et d'indexer les clichés SACP il fallait balayer un angle solide suffisamment grand ; leur méthode consistait à collecter plusieurs SACP correspondant à différents angles d'inclinaison de l'échantillon donc du grain d'intérêt et ensuite de composer ces SACP pour obtenir un cliché Kikuchi détaillé et de largeur angulaire suffisante pour être indexable. Ceci était réalisé manuellement. Ensuite les données EBSD acquises étaient corrigées en se basant sur l'orientation précise et correcte trouvée grâce au SACP.

Dans ce chapitre, nous proposons une nouvelle méthode permettant d'analyser les familles de macles  $\gamma$  et  $\gamma^T$  dans  $\gamma$ -TiAl. Elle combine l'utilisation de l'EBSD et de l'A-ECCI et permet d'écourter considérablement le temps d'analyse. Les DO sont indexés avec le HR-SACP et l'EBSD haute résolution en se basant sur la détection des bandes de sur-structure.

## V.2 Résultats

### V.2.1 Configuration expérimentale

Dans ce chapitre, les deux configurations ECCI *low tilt* et *high tilt* sont utilisées pour l'imagerie ECCI. La configuration *low tilt* est déjà présentée dans le chapitre I et II.

#### V.2.1.1 High tilt

Dans la configuration *high tilt*, l'échantillon est incliné entre  $50^\circ$  et  $70^\circ$ . Trois diodes (ForeScattered Detector) (FSD) situées dans la partie basse de la caméra EBSD (Système

Bruker) sont utilisées pour l'imagerie ECCI, comme illustré sur la figure V.4 [Nolze 2015]. L'image obtenue est colorée à partir de trois couleurs de base : chaque couleur correspond à l'intensité des électrons rétrodiffusés acquise par une des trois diodes (bleu, vert ou rouge) (voir figure V.4). Les trois couleurs sont ensuite superposées dans la même image. Le contraste des couleurs sur l'image FSD dépend à la fois de l'orientation cristallographique (facteur 1), du positionnement du faisceau incident par rapport aux diodes (facteur 2) et de la topographie de l'échantillon (facteur 3). La dépendance de l'image à l'égard des deux premiers facteurs est fonction du grandissement utilisé lors de l'acquisition de l'image : les facteurs 1 et 2 sont respectivement dominants à fort et faible grandissement.

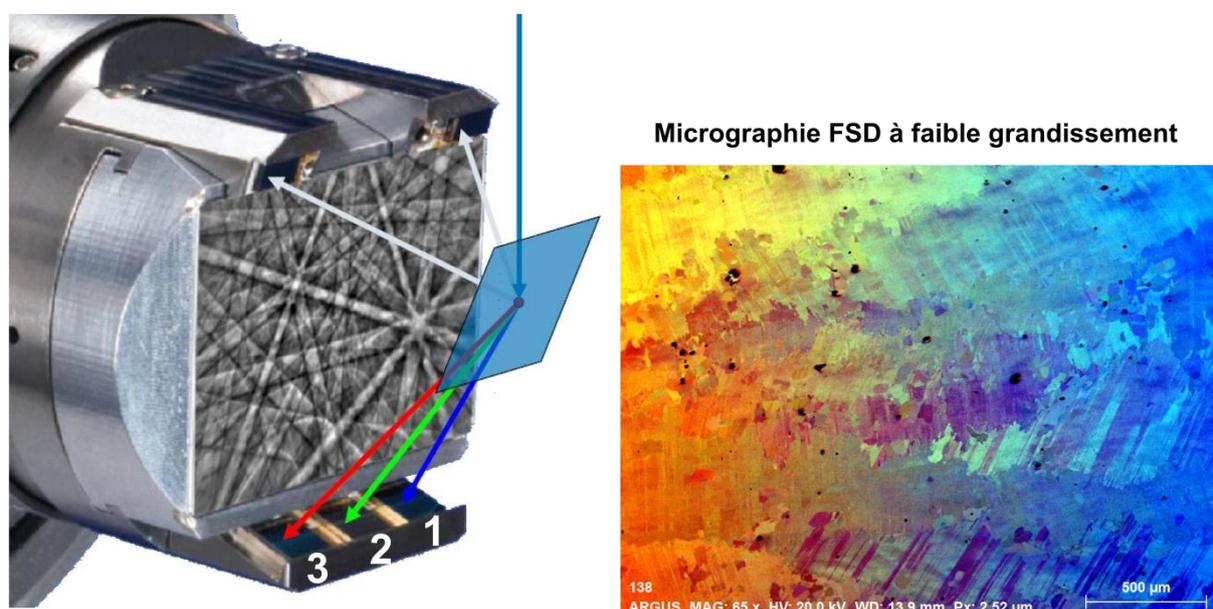


Figure V.4 Configuration expérimentale *high tilt* : 3 diodes (FSD) positionnées en bas de la caméra EBSD pour l'acquisition des électrons rétrodiffusés. Inspirée de [Nolze 2015].

La micrographie FSD dans la figure V.4 est acquise délibérément à faible grandissement pour accentuer l'effet des trois couleurs en fonction du positionnement de faisceau par rapport aux diodes (facteur 2). Par exemple, la diode n°1 reçoit un taux maximum d'électrons à partir de la zone située à droite de l'image. C'est pour cette raison que cette zone apparaît bleue sur l'image FSD. On remarque l'atténuation de la couleur bleu en allant de droite à gauche. On observe quelque chose d'équivalent pour la diode 3 à gauche en rouge.

Néanmoins, le contraste de l'image FSD dépend principalement du facteur 1 (orientation cristallographique) ; on remarque à l'intérieur des colonies lamellaires le changement de contraste (sombre/brillant) indiquant l'existence des deux familles de macles.

Pour optimiser l'information cristallographique obtenue du contraste des électrons rétrodiffusés, il faut idéalement acquérir les images à fort grandissement pour éliminer l'effet du facteur 2. Concernant l'effet du facteur 3 (topographie), il ne change pas en fonction du grandissement mais dépend de l'angle d'inclinaison de l'échantillon.

### V.2.2 Étude comparative entre l'imagerie BSD et FSD

Les deux configurations *high* et *low tilt* sont utilisées et combinées pour étudier la microstructure de TiAl. Dorénavant, les micrographies acquises en configuration *low tilt* seront nommées micrographies BSD (*BackScattered Detector*) et celles en *high tilt* : micrographies FSD (*ForeScattered Detector*).

La figure V.5 est une micrographie BSD de l'alliage TiAl. On y observe une microstructure typique bimodale constituée de très gros grains (ou colonies) lamellaires biphasés ( $\gamma$ -TiAl et  $\alpha_2$ -Ti<sub>3</sub>Al) et de grains  $\gamma$ -TiAl monolithiques plus petits. Les lamelles, sombres et claires, présentent une alternance de phase  $\gamma$  et  $\alpha_2$ . La phase  $\alpha_2$  apparaît très claire sur l'image BSD puisqu'elle est plus lourde (nombre atomique Z plus élevé) que la phase  $\gamma$ . Les grains monolithiques, de tailles variées, se trouvent souvent entre les colonies lamellaires et sont généralement maclés ( $\gamma$  et  $\gamma^T$ ) [Dupont 1996] [Denquin 1994].

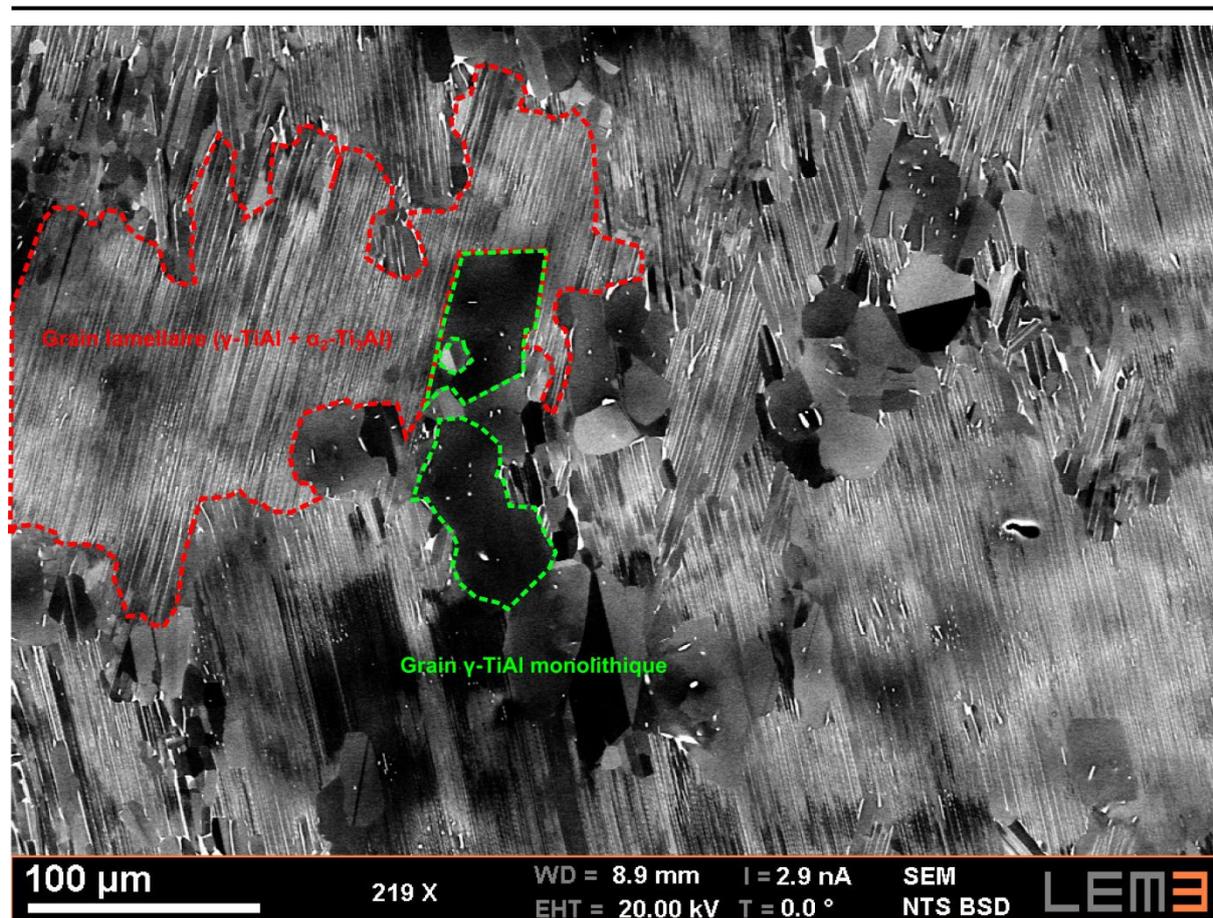


Figure V.5 Micrographie BSD de TiAl : Grain lamellaire (repéré en pointillés rouge), Grains  $\gamma$ -TiAl monolithiques (repéré en pointillés vert).

Le contraste du signal des électrons rétrodiffusés sur la micrographie BSD, lié à l'orientation cristallographique et au nombre atomique  $Z$ , permet de discerner assez bien les différentes colonies lamellaires ainsi que les grains  $\gamma$  monolithiques. Dans la figure V.5, une des colonies lamellaires est repérée en pointillés rouges et quelques grains  $\gamma$  monolithiques sont repérés en pointillés verts.

La figure V.6 est une micrographie BSD à plus fort grandissement d'un grain lamellaire prise dans une orientation cristallographique quelconque. On y observe l'alternance entre les phases  $\alpha_2$  (claire) et  $\gamma$  (sombre) au sein d'un grain lamellaire. La taille des lamelles varie entre 0,5 $\mu$ m et 2 $\mu$ m. Le contraste observé ne donne pas d'information concrète sur la distribution des deux familles de macles  $\gamma$  et  $\gamma^T$ . Cependant, on observe quelques variations de contraste à l'intérieur des lamelles ce qui correspondrait probablement aux DO.

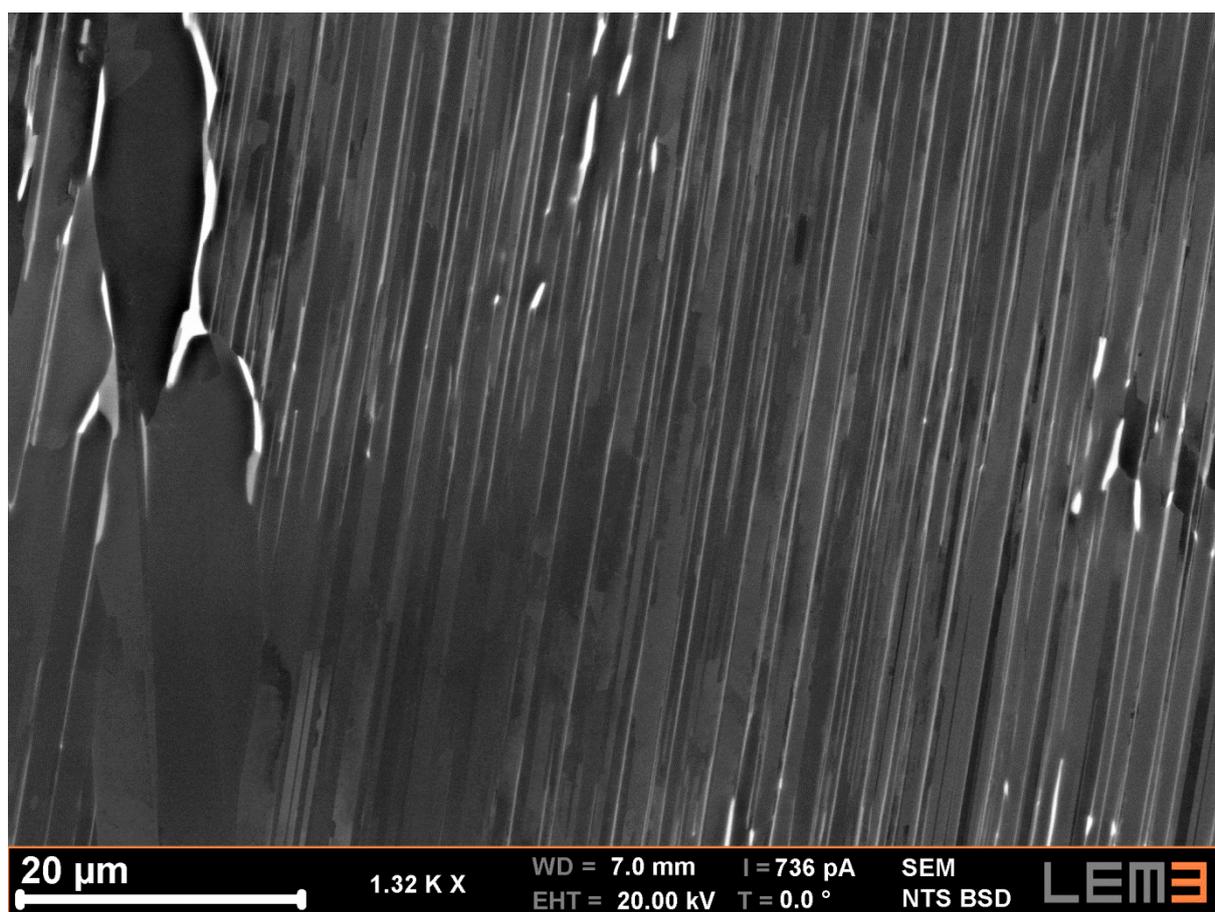


Figure V.6 Micrographie BSE d'un grain lamellaire ( $\gamma+\alpha_2$ )

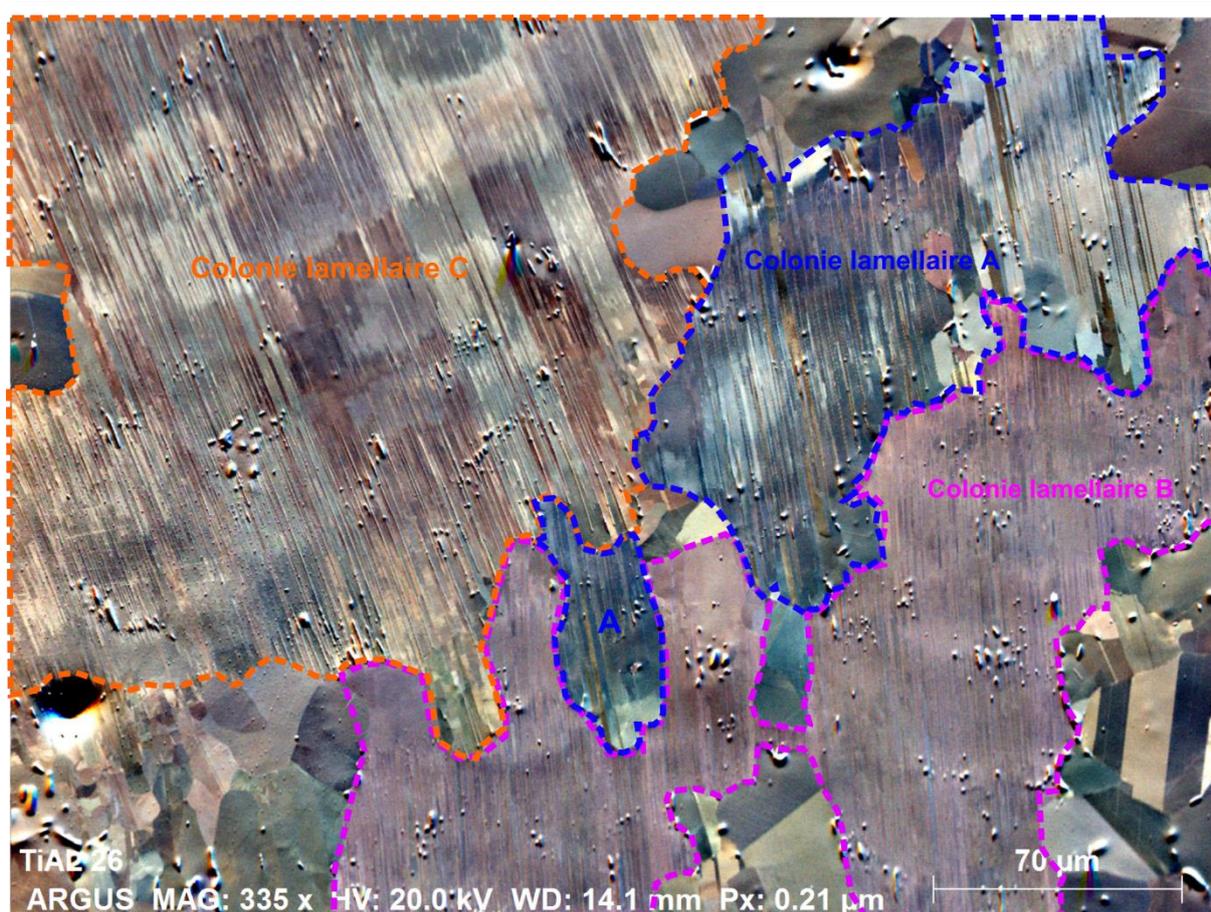


Figure V.7 Micrographie FSD de TiAl mettant en évidence la microstructure (Colonies lamellaires et grains  $\gamma$  monolithiques)

La figure V.7 est une micrographie FSD obtenue en *high tilt* à  $70^\circ$  d'inclinaison du même échantillon TiAl. On y observe plusieurs différences par rapport aux micrographies BSD. Premièrement, on remarque que le signal des électrons rétrodiffusés dans les micrographies FSD est beaucoup plus intense, ce qui améliore le rapport signal/bruit. Ceci est dû au fait qu'en configuration *high tilt* l'intensité des électrons rétrodiffusés est plus élevée qu'en configuration *low tilt* où le détecteur est parallèle à la surface de l'échantillon. En effet, en *high tilt* (inclinaison de  $70^\circ$ ) les électrons ont un angle d'incidence de  $20^\circ$  et sont plus susceptibles d'être réfléchis vers les diodes situées devant l'échantillon alors qu'en configuration *low tilt* l'angle d'incidence est de  $90^\circ$  et le détecteur est situé au-dessus de l'échantillon. L'image FSD est donc plus nette et obtenue en un temps d'acquisition plus court. De plus, l'interprétation de la microstructure devient relativement plus facile grâce à la coloration de l'image FSD (voir figure V.7).

On rappelle que la coloration de l'image FSD dépend à la fois de l'orientation cristallographique (facteur 1), du positionnement du faisceau incident par rapport aux diodes

(facteur 2) et de la topographie de l'échantillon (facteur 3) avec une modulation liée au grandissement de l'image. À fort et moyen grandissement, chaque grain diffracte les électrons et les renvoie vers les détecteurs FSD d'une manière propre à son orientation cristallographique (facteur 1). Ceci n'est pas vrai à très faible grandissement où l'image dépendra majoritairement de la position du faisceau par rapport aux diodes (facteur 2) (voir figure V.4). On observe dans la figure V.7 trois colonies lamellaires : A (en bleu), B (en rose) et C (en orange) ainsi que plusieurs grains  $\gamma$  monolithiques qui les séparent. Chaque colonie lamellaire possède une couleur plus ou moins constante dans la micrographie FSD à l'exception de la colonie A où sa partie droite est différente : elle change de couleur d'un bleu foncé vers un bleu clair. Ceci est peut être due au facteur 2 et/ou 3, cités auparavant, puisque le grandissement utilisé est relativement faible ( $\times 335$ ) ou bien tout simplement à un contraste cristallin due à une désorientation au sein de la même colonie. On note que la zone balayée est très large ( $>350\mu\text{m}$ ). Ce qui permettra de procéder par la suite à une analyse quantitative de l'orientation cristallographique. Il faut tout de même rester très vigilant avec l'interprétation des couleurs observées mais cela permettra par la suite de faire une analyse plus fiable et précise.

On remarque par ailleurs dans la colonie C l'existence de deux microstructures différentes : une en jaune et l'autre en marron. En effet, ceci correspond aux deux familles de macles  $\gamma$  et  $\gamma^T$ . Il est possible de les détecter grâce à leurs orientations cristallographiques différentes. Cette différence est visible en imagerie BSD ou FSD dans des orientations cristallographiques bien précises qui permettent de les contraster comme expliqué dans l'Annexe I. Ceci n'est pas le cas pour les deux familles de macles dans les colonies A et B de la figure V.7. Ces orientations précises seront contrôlées et exploitées par la suite en utilisant les clichés HR-SACP pour identifier les deux familles de macles. L'inconvénient principal de l'imagerie FSD est le fait qu'il est très difficile de contrôler l'orientation cristallographique et de se mettre en condition de canalisation. Ceci est dû au fait qu'on ne peut pas utiliser d'autres techniques à part l'EBSD pour contrôler l'orientation à  $70^\circ$  d'inclinaison ce qui implique une précision angulaire pas suffisante pour la technique ECCI (voir chapitre II). De plus, les possibilités d'inclinaison et de rotation de l'échantillon dans ces conditions sont très réduites à cause du risque de collision avec la caméra EBSD et la pièce polaire du MEB.

Cependant, l'imagerie FSD est très efficace pour des études qualitatives rapides et peut donner des informations quantitatives (par exemple la différenciation des deux familles de macles  $\gamma$

et  $\gamma^T$ ). On rappelle que réaliser une carte EBSD sur une zone pareille avec une microstructure aussi fine prendra plusieurs heures et même des jours.

La figure V.8 contient deux micrographies : une FSD (figure V.8.a) et une BSD (figure V.8.b) de la même zone dans TiAl. Elle permet de comparer les deux modes d'imageries et de confirmer ce qui a été dit précédemment. L'image FSD est beaucoup plus nette et comporte plus d'information cristallographique grâce à la forte intensité du signal des électrons rétrodiffusés et aux couleurs. Le contraste des images FSD et BSD révèle l'existence des DO au sein des lamelles  $\gamma$ . Il serait donc possible d'imager les DO dans une lamelle  $\gamma$ . Ceci sera démontré dans la suite de ce chapitre.

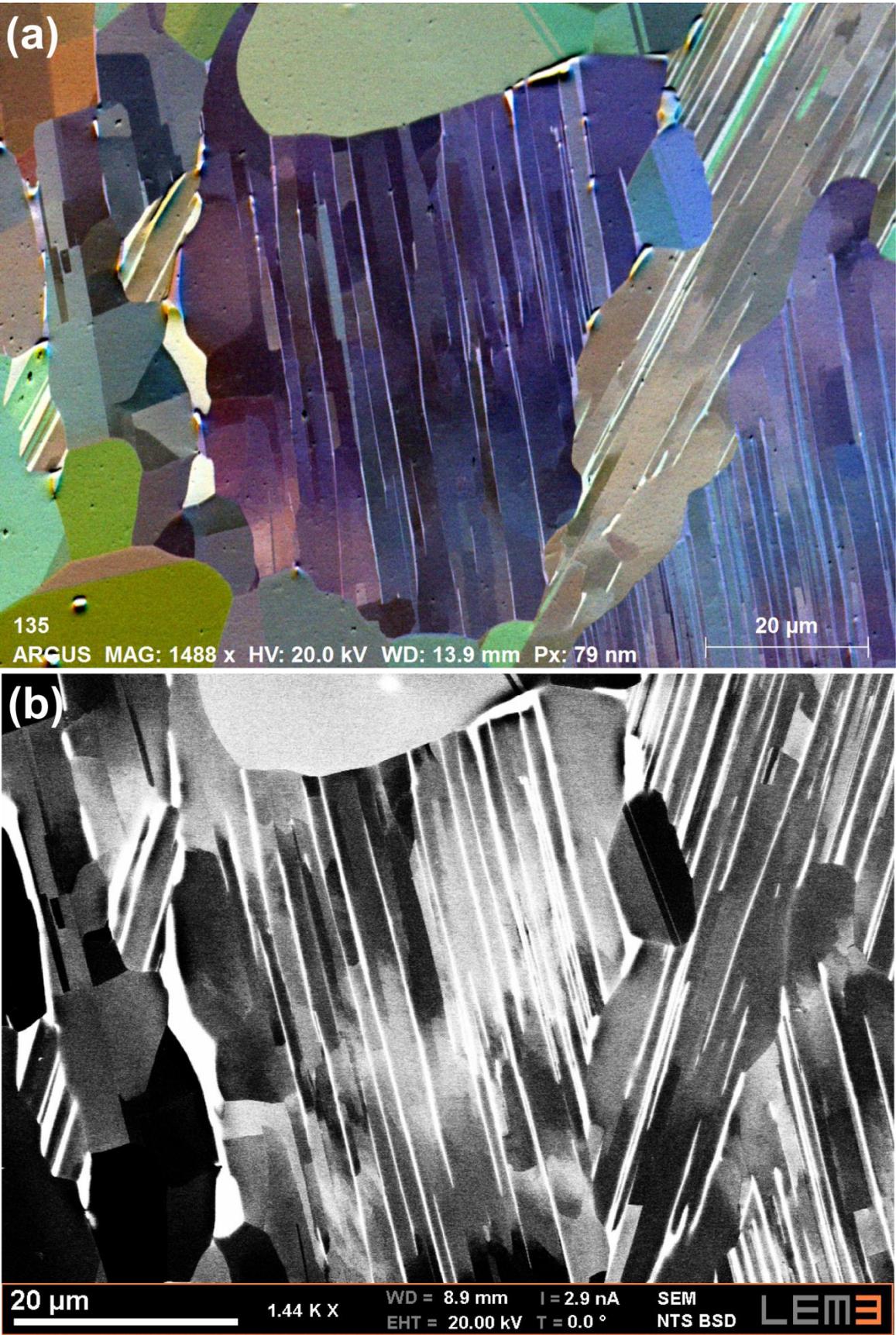


Figure V.8 Micrographie (a) FSD et (b) BSD de la même zone dans TiAl

### V.2.3 EBSD haute résolution

On a vu précédemment dans ce chapitre qu'il n'était pas possible d'indexer les DO dans  $\gamma$ -TiAl d'une manière automatique en utilisant l'EBSD conventionnel. Il est toutefois possible de détecter manuellement les bandes de sur-structure en collectant un cliché EBSD haute résolution en mode « spot » en prenant une résolution de cliché EBSP maximale (binning  $1 \times 1$ ) et en moyennant plusieurs clichés. La figure V.9 présente trois clichés EBSP haute résolution de trois DO d'une même famille de macle  $\gamma$ -TiAl (figure V.9.a-c). À première vue, les trois clichés sont identiques. Cependant, les grandissements des EBSP (figure V.9.a.1-c.1) dévoilent la présence de la bande de sur-structure (110), indiquée en traits rouges. On remarque l'augmentation de l'intensité des électrons au centre de la bande (220) et l'existence de deux traits sombres (souligné en rouge sur la figure V.9) indiquant la position de la bande (110). Les trois DO ont une orientation proche d'un axe de zone  $\{111\}$ . On remarque bien la rotation de  $120^\circ$  entre les trois clichés autour de l'axe de zone.

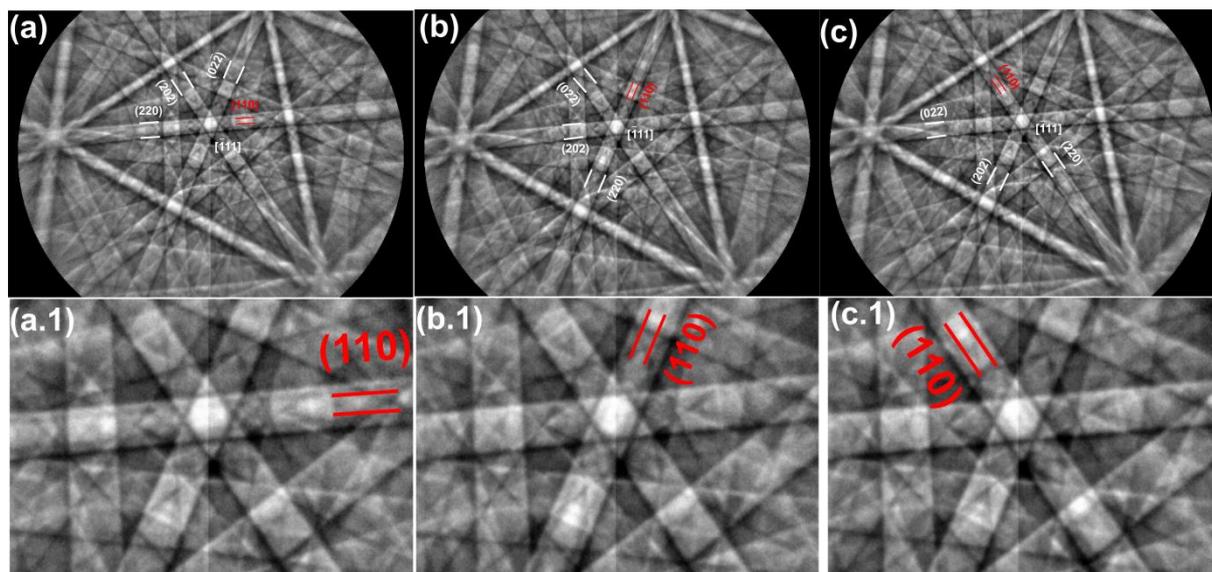


Figure V.9 (a-c) Trois clichés EBSP de trois DO d'une même lamelle. (a.1-c.1) Grandissement des EBSP mettant en évidence les bandes de sur-structure indiquées en lignes rouge.

Il convient de noter que réaliser une carte EBSD avec un binning  $1 \times 1$ , un temps d'exposition de plusieurs secondes et un pas inférieur à 100nm prendra plusieurs jours et accentuera les problèmes liés à l'instabilité du faisceau.

## V.2.4 Identification des familles de macles $\gamma$ et $\gamma^T$ dans la phase $\gamma$ -TiAl

Dans cette partie les deux familles de macles  $\gamma$  et  $\gamma^T$  sont identifiées en utilisant l'A-ECCI assisté par le HR-SACP. On a vu dans la partie précédente la dépendance du contraste observé dans les grains lamellaires à l'orientation cristallographique. La procédure utilisée pour identifier les familles de macles se base sur cet effet. Nous savons que pour certaines orientations (voir Annexe I), les deux familles de macles peuvent être contrastées. En effet, en se mettant en condition de canalisation sur l'une des deux macles, cette dernière apparaîtra sombre puisqu'il y aura un minimum d'électrons rétrodiffusés, alors que l'autre sera dans une orientation avec un contraste plus clair (pas en condition de canalisation). Il suffit donc d'appliquer la procédure permettant de se mettre en condition de canalisation pour l'une des deux familles de macles (procédure détaillée dans le chapitre II). La figure V.10 illustre bien cette méthode. La figure V.10.a est une carte EBSD standard réalisée sur un grain lamellaire. La maille utilisée pour l'indexation est une cubique face centrée puisque l'EBSD standard est incapable d'indexer la maille quadratique du TiAl. On y observe les deux familles de macles  $\gamma$  (en bleu) et  $\gamma^T$  (en orange). La phase  $\alpha_2$  est représentée en rouge.

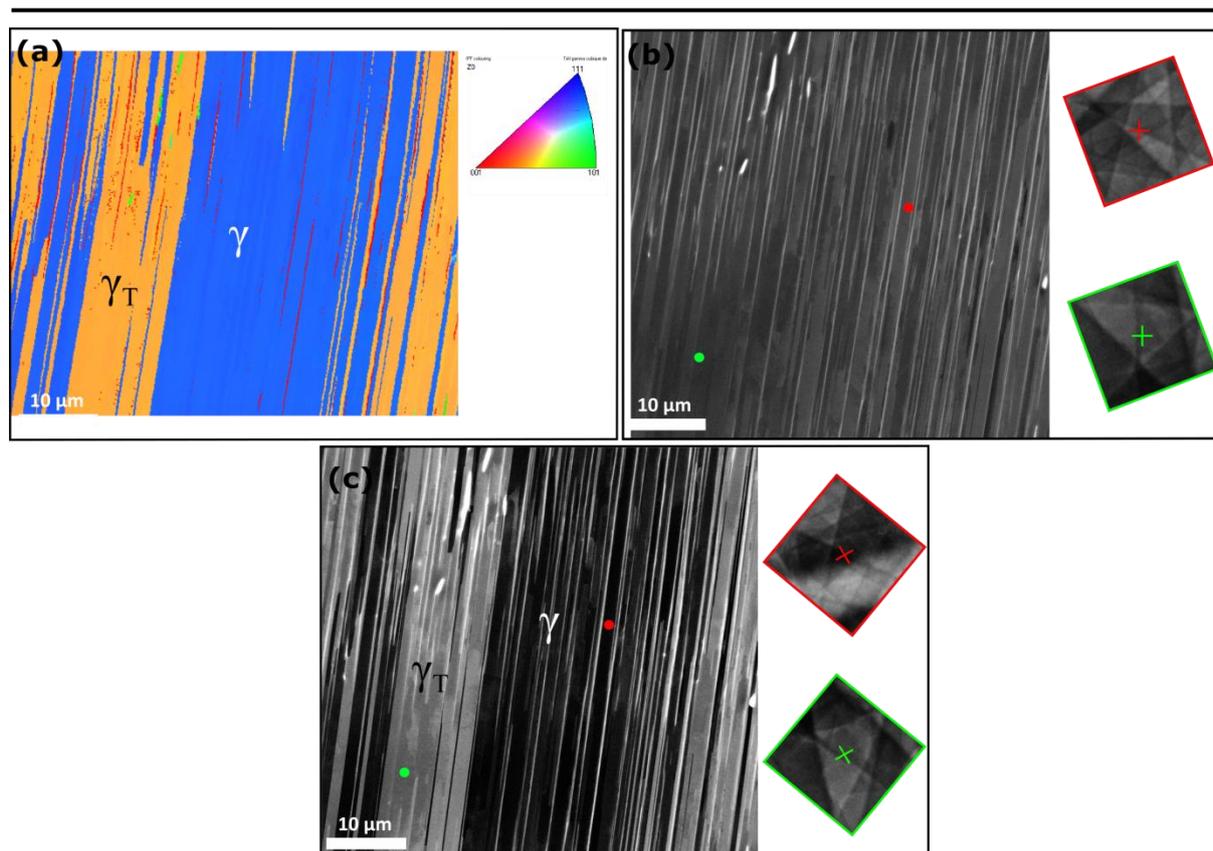


Figure V.10 Identification des deux familles de macles  $\gamma$  et  $\gamma^T$  en utilisant l'A-ECCI en configuration *low tilt*. (a) Carte EBSD acquise en considérant une maille CFC. Micrographie BSD d'une colonie lamellaire (b) en conditions d'orientation aléatoires (c) en contrôlant les conditions de canalisation (A-ECCI assisté par HR-SACP).

La figure V.10.b est une micrographie BSD du même grain lamellaire dans des conditions d'orientation aléatoires dans lesquelles aucune des deux familles de macle n'est en condition de canalisation. Deux clichés HR-SACP sont collectés des deux familles de macles montrant l'orientation cristallographique. Le contraste observé ne donne aucune information sur l'existence des deux familles de macles puisque le niveau de gris est presque le même dans cette orientation. Cependant, en se mettant en condition de canalisation sur l'une des deux familles de macle ( $\gamma$ ), dans ce cas à  $g=(111)$ , le contraste de l'image BSD dans la même zone change et révèle la distribution des deux familles de macles (voir figure V.10.c). Le résultat obtenu est similaire à celui obtenu en EBSD (figure V.10.a) ce qui prouve que la procédure permet de discerner les deux familles de macles.

Il est donc possible d'identifier les deux familles de macles rapidement et sur une large zone en utilisant l'A-ECCI. Il suffit de se mettre en condition de canalisation sur l'une des deux familles de macle et de prendre des images BSD ou FSD. Utiliser cette procédure en configuration *low tilt* permet d'être précis mais il est possible de réaliser la même chose en

*high tilt* en inclinant l'échantillon à une orientation précise permettant de contraster les deux macles, comme dans la figure V.7. Ceci permet d'avoir un signal d'électrons rétrodiffusés plus intense et de visualiser des zones larges plus rapidement. La figure V.11 est une micrographie FSD de plusieurs colonies lamellaires. L'une d'entre elles, noté A, est dans une orientation cristallographique contrastant les deux familles de macles  $\gamma$  et  $\gamma^T$  sur une zone dépassant 1 millimètre de largeur. On y observe les deux familles de macles  $\gamma$  et  $\gamma^T$ . En utilisant un logiciel de traitement d'image (GIMP), les pourcentages surfaciques des deux familles de macles sont calculés dans la colonie A :  $\gamma$  (contraste sombre) présente  $\approx 32\%$  et  $\gamma^T$  (contraste clair)  $\approx 68\%$ .

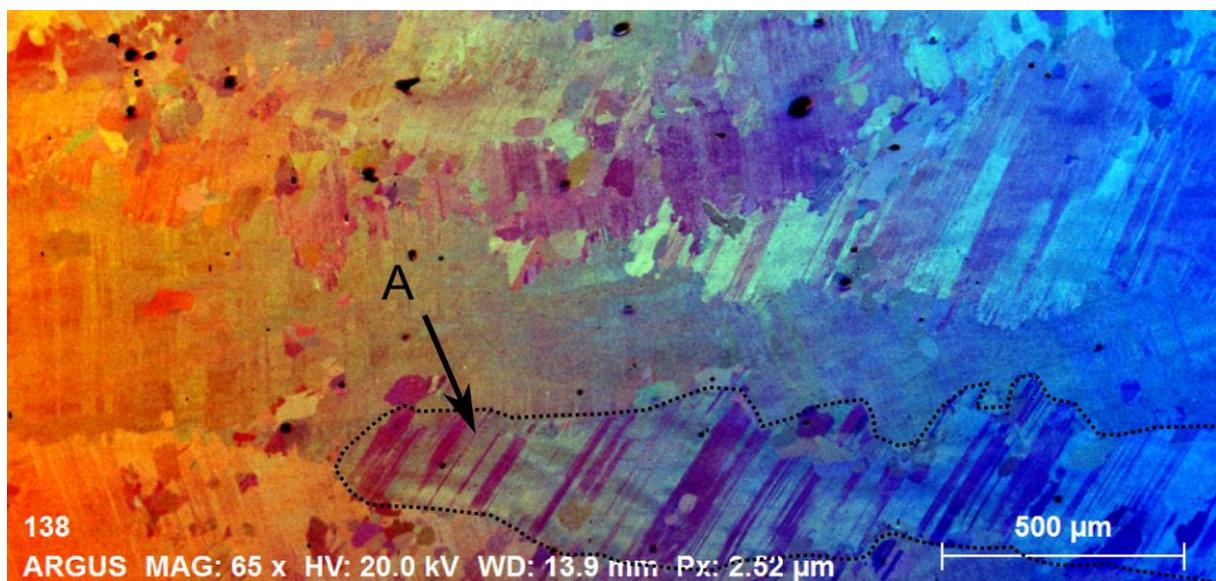


Figure V.11 Micrographie FSD permettant la quantification des deux familles de macles dans une colonie lamellaire (A délimitée par des pointillés).

### V.2.5 Étude des domaines d'ordre dans $\gamma$ -TiAl par canalisation des électrons

Les DO dans  $\gamma$ -TiAl sont étudiés dans cette partie en utilisant la canalisation d'électrons, les clichés HR-SACP et l'EBSD. Le but est de trouver un moyen fiable et rapide pour identifier les DO. Ceci se base sur l'imagerie par contraste de canalisation d'électrons et la détection des bandes de sur-structure.

### V.2.5.1 Imagerie des DO par ECCI et détection des bandes de sur-structure

Grâce à la grande sensibilité de la technique ECCI à l'orientation cristallographique, les DO sont détectables dans certaines orientations cristallographiques qui permettent de les contraster. La figure V.12 rassemble quatre micrographies : trois BSD à différents angles d'inclinaisons : (a)  $-2^\circ$  ; (b)  $-1,5^\circ$ , (c)  $-1^\circ$  et une micrographie FSD (d) à  $70^\circ$ . Elles sont toutes acquises de la même zone. Le contraste des lamelles change d'une orientation à une autre. On remarque la détection des parois des DO dans certaines orientations cristallographiques qui ne sont pas forcément en condition de canalisation. Les flèches indiquent quelques exemples de positions des parois des DO : en vert lorsqu'elles sont visibles et en rouges lorsqu'elles deviennent invisibles ou beaucoup moins bien contrastées.

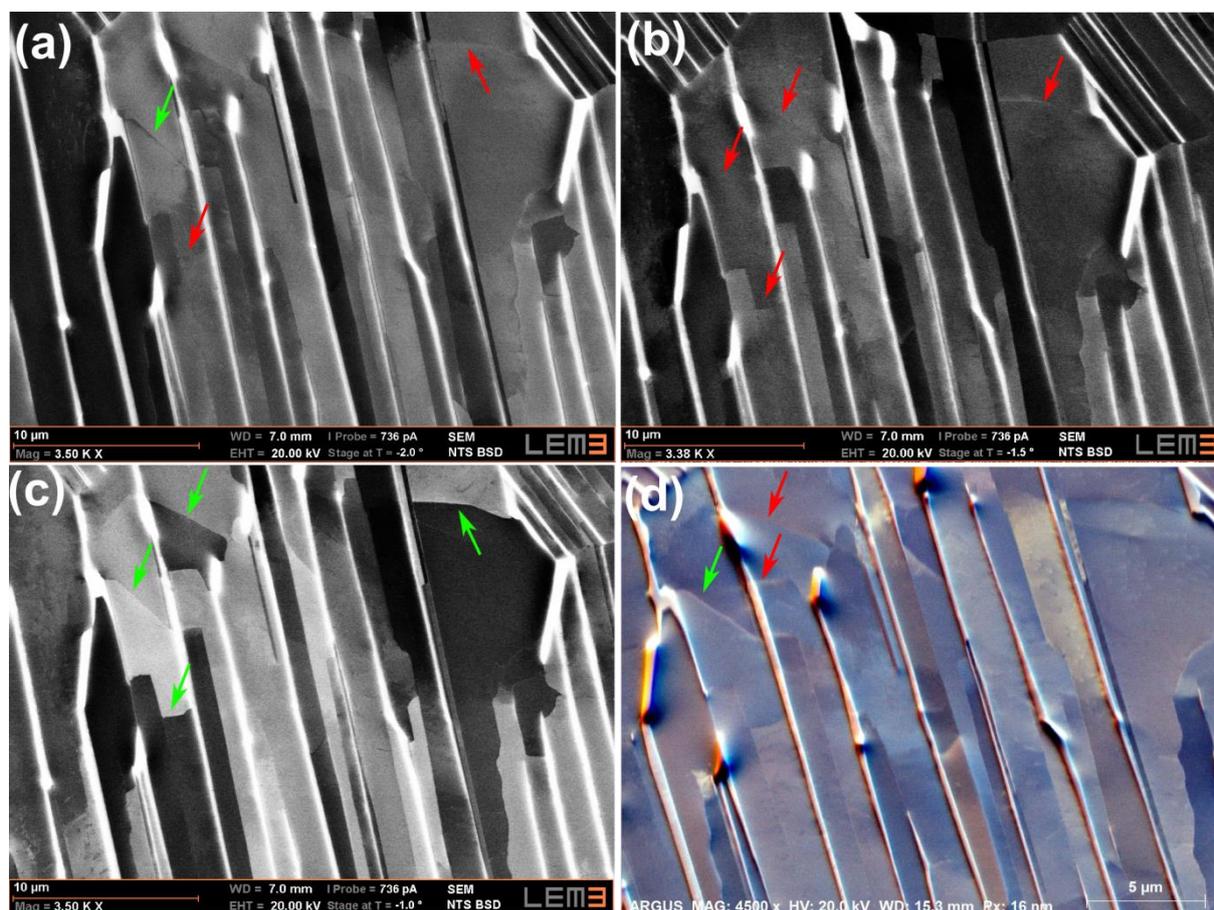


Figure V.12 3 micrographies BSE sous différent angle d'inclinaison: (a)  $-2^\circ$  (b)  $-1,5^\circ$  (c)  $-1^\circ$  et (d) une micrographie FSD à  $70^\circ$  de tilt de la même zone. Les flèches vertes et rouges montrent quelques exemples de parois des DO lorsqu'ils sont respectivement visibles et invisibles.

Il convient de noter, qu'il n'est pas possible de prévoir une seule orientation permettant de contraster les DO comme ce qui a été réalisé dans le cas des familles de macles. Ceci sera démontré dans la suite de ce chapitre. Il est cependant possible de contraster les DO en faisant une série d'images à différents angles d'inclinaisons. Reste alors de les indexer en utilisant l'une des deux techniques suivantes : l'EBS haute résolution en mode "spot" (pas de carte) ou le HR-SACP. Ceci consiste à collecter un cliché de Kikuchi de chaque DO repéré grâce au contraste ECCI (voir la figure V.12) et ensuite l'indexer en se basant sur la présence des bandes de sur-structure. Ceci permet de gagner du temps car il suffit alors de collecter un cliché ou deux de chaque DO.

En utilisant des clichés EBSP haute résolution, la détection des bandes de sur-structure est assez facile grâce à la grande ouverture angulaire du cliché EBSP ( $>50^\circ$ ) comme indiqué dans la figure V.9. Cependant, les clichés HR-SACP ont une ouverture angulaire d'environ  $4^\circ$ . Dans la majorité des cas, les HR-SACP seront alors identiques et ne suffiront pas à l'identification des DO. Il faut alors utiliser des simulations des clichés de Kikuchi pour trouver l'orientation qui permet d'avoir des bandes de sur-structure sur les clichés HR-SACP afin de distinguer les DO.

La procédure suivante est proposée pour l'identification des DO en se basant sur l'EBS ou le HR-SACP :

- Considérer une maille cubique et réaliser une carte EBSD (quelques points suffisent) de la zone d'intérêt afin d'obtenir l'orientation de la macle étudiée. (<5min)
- Une fois l'orientation de la macle trouvée, on réalise une série d'images BSD à différents angles d'inclinaison pour contraster les DO (on verra par la suite pourquoi il n'est pas possible de simuler une orientation permettant de contraster les DO comme ce qui a été fait pour les familles de macles) (voir figure V.13). (20min)
- Après avoir détecté les parois de DO grâce à l'étape précédente, on collecte des clichés HR-SACP ou EBSD de chaque DO de la macle et on les indexe manuellement. (1h-2h en EBSD mode spot, avec le HR-SACP cela prendra 10 fois plus de temps). Ceci prend moins de temps qu'une carte EBSD standard même avec un binning 1X1 car il suffit de prendre un cliché par DO, ce qui réduit considérablement le nombre de pointé.

La figure V.13 est un exemple d'application de cette procédure sur une famille de macle. Les figures V.13.a.1, 2 et 3 sont les simulations cinématiques des clichés de Kikuchi des trois DO

( $\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3$ ) dans une orientation proche de l'axe de zone  $\langle 120 \rangle$ . On remarque alors, en cette orientation particulière, l'existence de plusieurs bandes de sur-structure dans les trois clichés de Kikuchi : les bandes (112) et (1-12) pour le  $\gamma_1$ , la bande (001) pour le  $\gamma_2$  et la bande (20-1) pour le  $\gamma_3$ . Théoriquement dans cette orientation particulière, et grâce à la présence des bandes de sur-structure, le contraste de l'image BSD change d'un DO à un autre (voir contraste à la position des croix du HR-SACP). On peut penser alors qu'une seule micrographie dans cette orientation suffirait pour contraster les trois DO mais cela n'est pas possible à cause des très faibles désorientations présentes au sein même des DO et entre les DO. Ceci sera démontré et détaillé par la suite. On remarque par ailleurs que les croix indiquant l'orientation cristallographique sur les clichés simulés sont au même endroit de l'axe de zone  $\langle 120 \rangle$  car la simulation considère une relation d'orientation de DO parfaite sans désorientation.

La figure V.13.b est la micrographie BSD qui montre les parois de plusieurs DO dans des lamelles différentes. Les deux familles de macles  $\gamma$  et  $\gamma^T$  sont identifiées. La macle  $\gamma$  est orientée selon l'axe de zone  $\langle 120 \rangle$ .

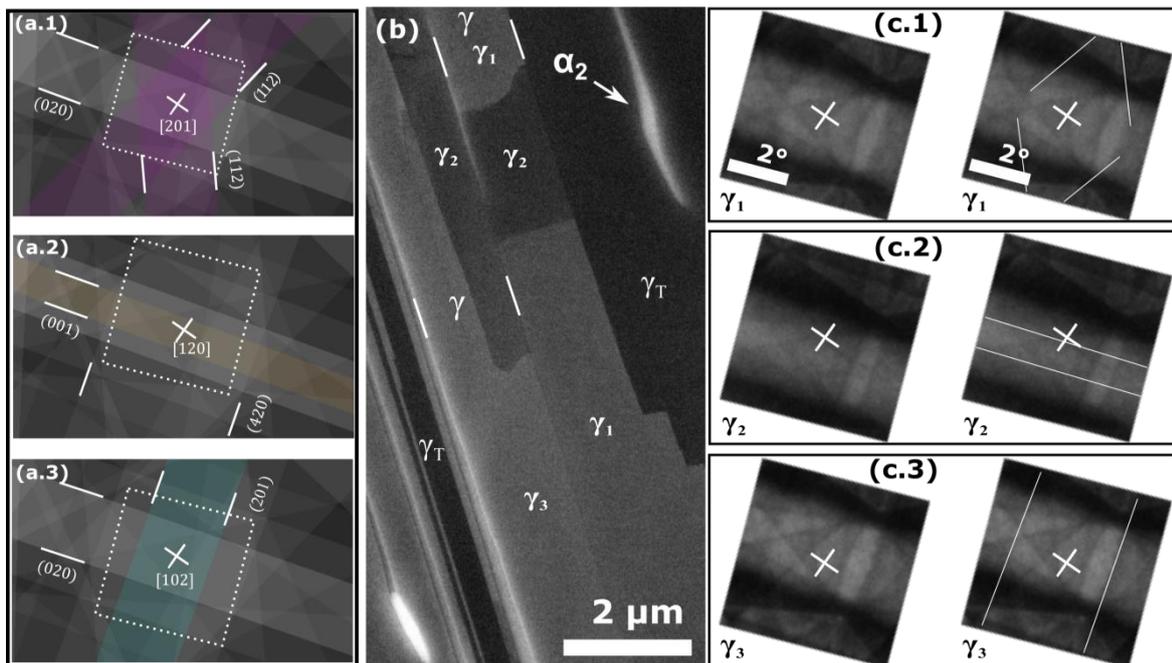


Figure V.13 Identification des trois DO avec le HR-SACP. (a.1) (a.2) (a.3) Trois clichés de Kikuchi simulés des trois DO dans l'orientation  $\langle 120 \rangle$  permettant de les contraster dans l'image BSD. (b) Micrographie BSD de plusieurs lamelles contenant plusieurs DO. (c.1), (c.2) et (c.3) les trois clichés HR-SACP collectés respectivement des domaines  $\gamma_1, \gamma_2, \gamma_3$  dans l'orientation  $\langle 120 \rangle$ .

Les clichés HR-SACP correspondants aux trois DO ( $\gamma_1$ ,  $\gamma_2$ ,  $\gamma_3$ ) sont illustrés dans les figures V.13.c.1, 2 et 3. Les traits blancs sur les clichés HR-SACP des figures V.13.c.1-3 indiquent les bandes de sur-structure.

On observe clairement les bandes de sur-structure pour le  $\gamma_1$  (2 bandes de sur-structure (112) et (1-12) formant un losange) et  $\gamma_3$  (la bande (20-1)). Pour le  $\gamma_2$ , la bande (001) à l'intérieur de la (002) n'est pas facilement observable. En la comparant à l'autre bande (020) dans le  $\gamma_1$  et  $\gamma_3$  on remarque une légère différence au niveau de la brillance à l'intérieur de la bande: la (020) possède une luminosité constante le long de la bande mais la (002) possède une luminosité plus importante à l'intérieur et paraît floue. La même chose est observée sur les clichés EBSD et aux clichés de diffraction obtenus au MET pour cette famille de plans. Ceci est dû aux effets dynamiques. Les trois DO sont identifiés sur la micrographie BSD sur deux lamelles  $\gamma$  adjacentes. Une lamelle ne contient pas forcément les trois DO. Elle peut ne contenir que deux domaines. Lorsque les DO appartiennent à deux macles adjacentes, la paroi est alors constituée d'un plan de la famille  $\{111\}$  commun aux deux DO. Quand les DO appartiennent à la même lamelle, l'interface ne présente pas une orientation spécifique.

Les superpositions des clichés HR-SACP sur les simulations des clichés sont marquées par des traits discontinus. On remarque qu'il y a un léger décalage entre les croix des trois HR-SACP et les clichés simulés correspondants. C'est-à-dire que les trois DO ne sont pas en relation de DO parfaite (rotation de  $120^\circ$  autour de la normale au plan (111)). Si cela avait été le cas, les croix blanches (indiquant l'orientation du DO par rapport au faisceau incident) dans les figures V.13.c.1, 2 et 3 se seraient superposées au même endroit sur les bandes (020) et (002) comme dans les clichés simulés. En effet, ce léger décalage entre les trois clichés HR-SACP correspond à une désorientation  $\gamma_1$ -  $\gamma_2$  d'environ  $0,7^\circ$  et entre  $\gamma_1$ -  $\gamma_3$  d'environ  $0,8^\circ$ . Ceci peut être dû à l'existence des dislocations de désaccord paramétrique (*Misfit* en anglais) entre les DO (due à la différence des paramètres de maille (c et a)) et/ou à une désorientation au sein des DO. Quelques exemples de ces défauts seront montrés ultérieurement dans ce chapitre. Ces légères désorientations entre DO ont déjà été observés au MET avec les clichés TKP par Dey et al. [Dey 2006]. Ils mesurent des désorientations du même ordre de grandeur ( $0,7^\circ$ ) qu'ils justifient par la présence de dislocations. Ce résultat reconforte ce qui a été obtenue en MET sur une zone limitée spatialement ( $5\mu\text{m}$ ) et permet de prouver que ces interfaces, jusqu'à maintenant considérées en relation de macles/pseudo macles/ DO cohérentes, sont en effet en relation d'orientation semi-cohérentes [Dey 2006]. Ce résultat n'a

pas pu être confirmé jusqu'à maintenant à cause de la difficulté d'indexation des DO dans  $\gamma$ -TiAl et la grande précision requise pour mesurer de telle désorientation ( $<1^\circ$ ).

Par ailleurs, cette légère désorientation modifie le contraste BSD prévu par les simulations des bandes de Kikuchi. Malgré ce léger décalage entre les trois clichés de Kikuchi, les trois DO sont contrastés sur l'image BSD. En effet, cela est possible à cause de la désorientation qui a fait que chaque orientation (croix sur le HR-SACP) correspond à une intensité différente de l'autre (voir Annexe I) dans cette orientation précise. Mais cela aurait pu ne pas être le cas dans une autre orientation, d'où l'intérêt de faire une série d'image BSD à différents angles d'inclinaison.

À cause de cette légère désorientation qui existe très souvent entre les DO, il devient très compliqué de prévoir le contraste BSD en utilisant des simulations des clichés de Kikuchi. Il faudra alors prendre une série d'image à différents angles d'inclinaison afin de contraster les DO puis il suffit de collecter des clichés de Kikuchi de ces derniers afin de les indexer.

La technique HR-SACP permet donc d'identifier les trois DO en se basant sur les bandes de sur-structures et en travaillant avec de petits angles d'inclinaison ( $<20^\circ$ ). Elle permet de réaliser des analyses très localisées, e.g. pour la caractérisation des défauts cristallins comme les dislocations. Cependant, elle prend beaucoup de temps contrairement à l'EBS (la collection d'un cliché HR-SACP prend 10 fois plus de temps qu'un cliché EBS en mode spot).

### **V.2.5.2 Identification des DO par EBS haute résolution combiné à l'ECCI**

Dans cette partie, on applique la procédure montrée précédemment en utilisant l'EBS haute résolution (en mode spot) combiné à l'ECCI. Ceci a permis de caractériser des lamelles  $\gamma$ -TiAl sur des zones importantes comparées à la microscopie électronique en transmission.

Les parois des DO sont d'abord identifiées, en utilisant les images BSD et FSD sous différents angles d'inclinaison, ensuite les clichés EBS haute résolution acquis de chaque DO permettent de les identifier en utilisant le mode spot de l'EBS : On pointe le faisceau manuellement dans le DO une fois délimité, et on collecte quelques clichés EBS. Les données sont ensuite traitées. Cela permet finalement de faire une carte montrant les DO à partir des images BSD.

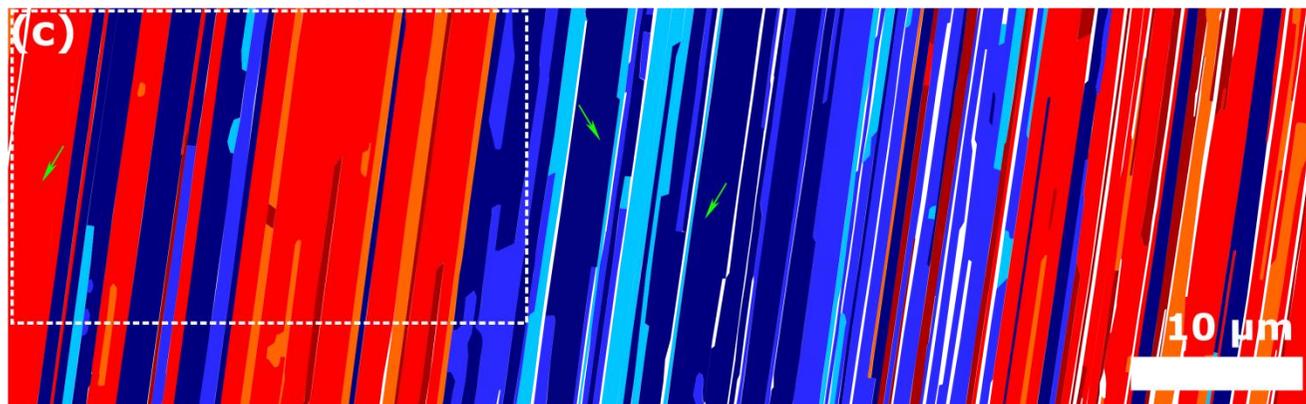
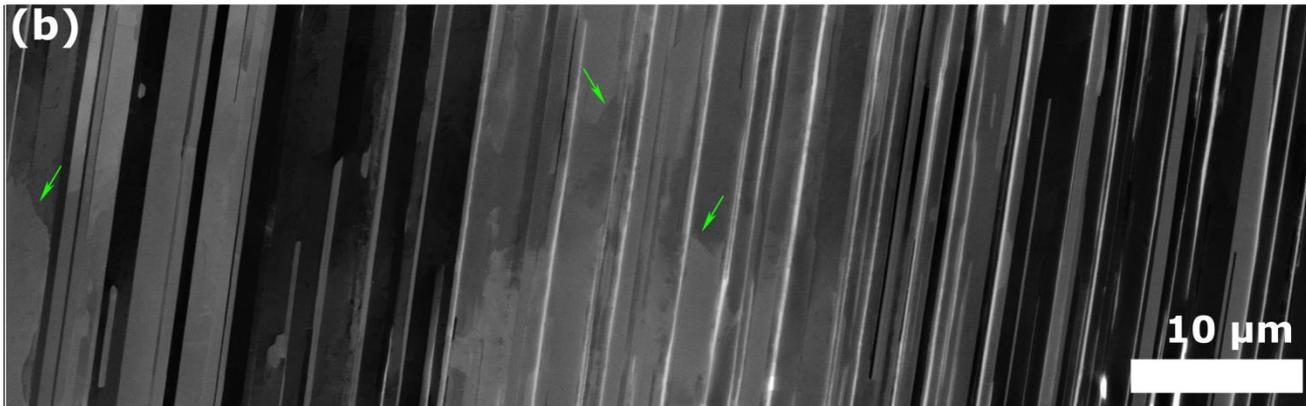
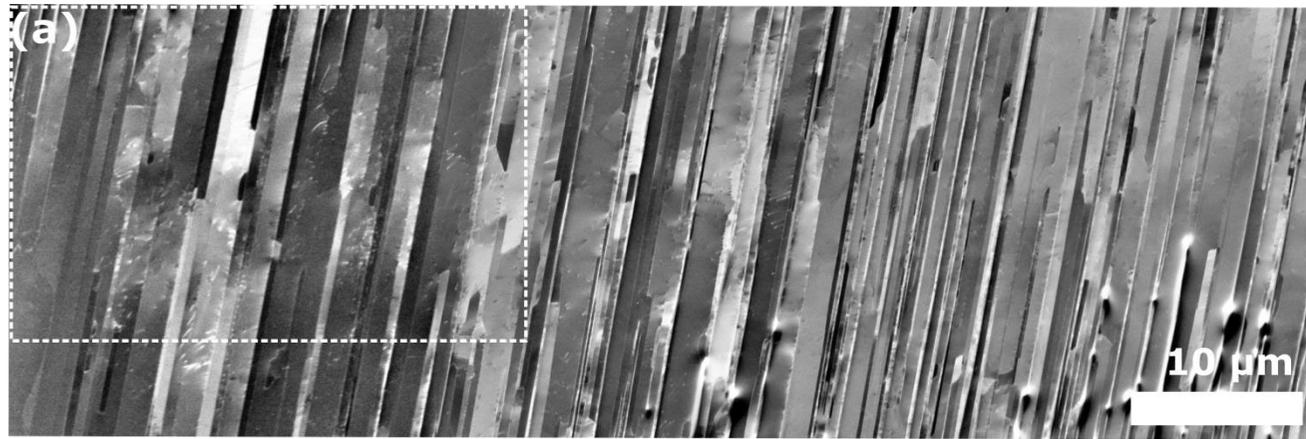


Figure V.14 Caractérisation des familles de macles et DO dans une large zone en utilisant l'EBSD et l'ECI. Micrographie (a) FSD ; (b) BSE. (c) Reconstruction manuelle de la carte à partir de l'image BSE dévoilant les six DO.

$\gamma_1$	<b>36%</b>	}	$\gamma = 46\%$
$\gamma_2$	<b>5%</b>		
$\gamma_3$	<b>5%</b>		
$\gamma_1^T$	<b>32%</b>	}	$\gamma^T = 54\%$
$\gamma_2^T$	<b>6%</b>		
$\gamma_3^T$	<b>16%</b>		

La figure V.14 est un exemple d'application de la procédure décrite dans le paragraphe précédent. Les figures 14.a et 14.b sont respectivement des assemblages d'images FSD ( $70^\circ$  d'inclinaison) et BSD ( $9^\circ$  d'inclinaison) d'une zone faisant environ  $76 \mu\text{m}$  de largeur et  $23 \mu\text{m}$  de longueur ( $1824 \mu\text{m}^2$ ). En assemblant ces images à fort grandissement on arrive à imager une large zone avec une haute résolution. Les deux familles de macles et leurs DO ont été identifiés en combinant l'ECCI et l'EBSD. Les clichés EBSP des six DO sont présentés dans la figure V.15. La carte des DO, reconstruite à partir de l'assemblage BSD, est schématisée dans la figure V.14.c. Elle possède un code couleur identifiant les deux familles  $\gamma$  avec leurs DO (Couleurs chaudes :  $\gamma_1$  : rouge  $\gamma_2$  : marron et  $\gamma_3$  : orangé) et  $\gamma^T$  (Couleurs froides:  $\gamma_1^T$ : bleu foncé,  $\gamma_2^T$ : bleu ciel et  $\gamma_3^T$ : bleu). La carte est construite en prenant comme calque l'image BSD de la figure V.14.b. Les pourcentages surfaciques des familles de macles et de leurs DO ont été déterminés dans la zone considérée :

- 46% de  $\gamma$  (36%  $\gamma_1$ , 5%  $\gamma_2$ , 5%  $\gamma_3$ )
- 54% de  $\gamma^T$  (32%  $\gamma_1^T$ , 16%  $\gamma_3^T$ , 6%  $\gamma_2^T$ )

Les pourcentages des deux familles de macles sont assez proches. On remarque par ailleurs que dans chaque famille de macle existe un DO majoritaire (36% de  $\gamma_1$  pour  $\gamma$  et 32% de  $\gamma_1^T$  pour  $\gamma^T$ ) et que ces deux DO sont en relation de macle. Ces mesures à large échelle confirment les résultats déduits d'analyses MET de façon plus fastidieuse et sur des zones moins étendues [Dey 2006] : Un des trois DO est très souvent majoritaire dans chaque famille de macle.



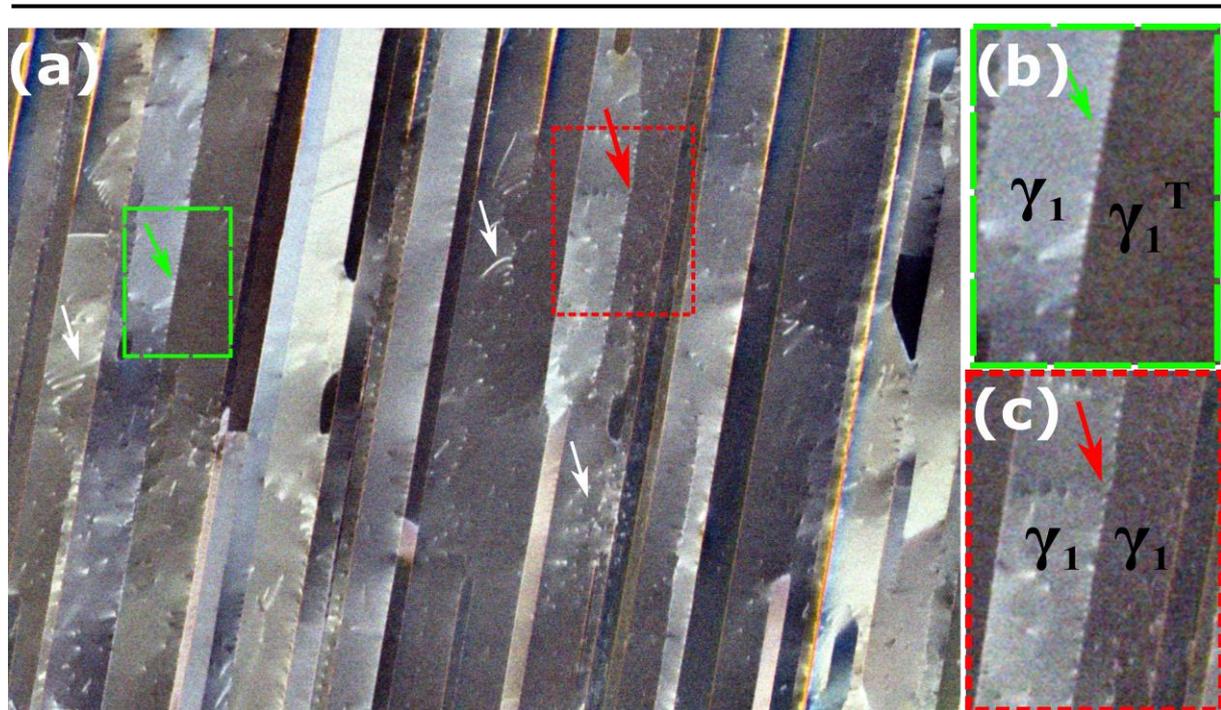


Figure V.16 (a) Micrographie FSD montrant les dislocations inter et intra DO : grandissement de la zone délimitée par des lignes discontinues dans la figure 14. (b) et (c) sont respectivement des grandissements d'un réseau de dislocations de *Misfit* inter DO et de dislocations formant un SJG (intra DO). Les flèches en blanc indiquent des dislocations libres dans les DO.

Ces réseaux de dislocations sont aussi observables en imagerie BSD à faible inclinaison. La figure V.17 est une image A-ECCI d'une famille lamellaire. On y observe deux réseaux de dislocations marqués par des flèches vertes et rouges indiquant respectivement des dislocations de Misfit (entre deux DO) et des dislocations formant un SJG.

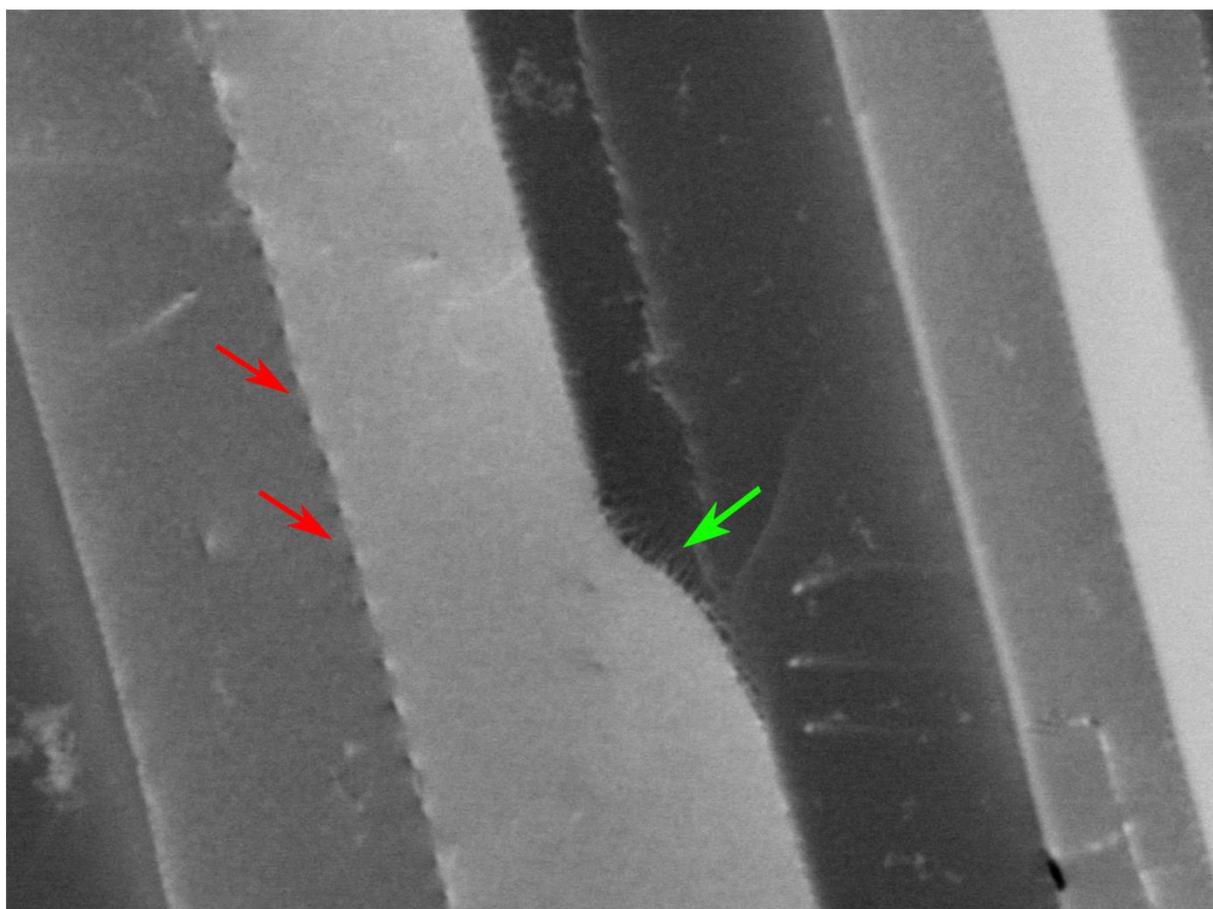


Figure V.16 Micrographie BSE illustrant les structures de dislocations inter DO indiquées en vert (dislocations de misfit) et intra DO en rouge (formant un sous joint).

Les deux micrographies BSD et FSD (Figure V.15 et V.16) des réseaux de dislocation prouvent qu'il est possible d'étudier les dislocations dans les DO au MEB grâce à l'A-ECCI et au HR-SACP et ouvrent la voie à des analyses plus fines dans le futur. Ceci démontre aussi que les interfaces macles/pseudo macles/ DO dans  $\gamma$ -TiAl ne sont pas cohérentes mais semi-cohérentes.

### V.3 Conclusion et discussion

Dans ce chapitre, la technique A-ECCI assistée par HR-SACP est utilisée pour analyser la microstructure de l'alliage TiAl et plus spécifiquement les lamelles de la phase  $\gamma$ -TiAl.

D'abord, la microstructure de TiAl est décrite en utilisant l'A-ECCI en configuration *high* et *low tilt*. Une comparaison est réalisée entre les deux configurations. L'imagerie FSD, réalisée à un angle d'inclinaison entre 50°-70°, présente quelques avantages et inconvénients par rapport à l'imagerie BSD. Collectée par trois diodes situées sous la caméra EBSD, l'imagerie

FSD a un rapport signal/bruit bien meilleur, ce qui permet de faire des images plus contrastées plus rapidement. De plus, les couleurs dans l'imagerie FSD aident à distinguer plus facilement les grains. Toutefois, ces dernières ne donnent pas d'informations quantitatives sur l'orientation cristallographique. Il faut donc être très prudent en les interprétant. Néanmoins, le contrôle des conditions de canalisation en *high tilt* n'est pas aussi évident qu'en *low tilt*. En effet, on ne peut utiliser que l'EBSD pour contrôler l'orientation en *high tilt* ce qui est moins précis que le HR-SACP. De plus, l'angle d'inclinaison et de rotation de l'échantillon est réduit à cause du risque d'impact de l'échantillon avec la caméra EBSD ou la pièce polaire.

Les familles de macles  $\gamma$  et  $\gamma^T$  ont été ensuite identifiées d'une manière innovante en utilisant l'A-ECCI : en orientant l'une des deux familles de macles en condition de canalisation on contraste les deux familles  $\gamma$  et  $\gamma^T$ . De larges zones peuvent ainsi être analysées en utilisant l'imagerie BSD sans avoir recours à l'EBSD. Le mode *high tilt* a été aussi utilisé pour identifier  $\gamma$  et  $\gamma^T$  en orientant l'échantillon dans des orientations aléatoires permettant de contraster les deux macles. Cela a permis d'avoir leur distribution sur des colonies lamellaires entières. Cette procédure ne donne aucune information sur l'orientation cristallographique mais permet de distinguer les deux familles de macles rapidement et sur de larges zones allant jusqu'à quelques millimètres.

Nous nous sommes intéressés par la suite à la caractérisation des DO en combinant les techniques A-ECCI, HR-SACP et EBSD (en mode spot). L'EBSD conventionnel ne peut pas indexer les trois DO en mode carte automatique. La procédure proposée permet de contourner ce problème et d'analyser les DO sur de larges zones mais présente quelques inconvénients. Le fait qu'elle soit manuelle nécessite de l'utilisateur un travail de 4-5 heures pour analyser une zone d'environ  $2000 \mu\text{m}^2$ . Mais cela reste plus rapide que l'EBSD.

Le fait de détecter les parois des DO avec l'imagerie ECCI permet de gagner beaucoup de temps car il suffit de collecter un cliché EBSP par DO pour les indexer.

Par ailleurs, cette analyse a permis de montrer que le changement du contraste dans les lamelles  $\gamma$ -TiAl n'est pas dû seulement aux DO mais aussi aux SJG et désorientations présents dans les DO.

Grâce à la précision des HR-SACP, nous avons pu détecter de très faibles déviations ( $<1^\circ$ ) des DO par rapport à leur orientation parfaite ont été mesuré. Ceci valide un résultat obtenu par TKP [Dey 2006] en 2006 sur de petites zones au MET. Ceci prouve que les interfaces entre

les macles dans  $\gamma$ -TiAl ne sont pas cohérentes, comme toujours reporté. Ceci est dû à la présence des dislocations de désaccord paramétrique (Misfit) observées avec l'ECCI en configuration high et low tilt.

## V.4 Références Bibliographiques

[Appel 1988] F. Appel, R. Wagner. Microstructure and deformation of two-phase  $\gamma$ -titanium aluminides. *Materials Science and Engineering :R*, 22 (5), 187-268, 1988.

[Denquin 1994] Anne Denquin. Etude de la transformation de phase et approche du comportement mécaniques des alliages biphasés à base de TiAl. Thèse de doctorat, Université des Sciences et Technologies de Lille, 1994.

[Denquin 1996] A. Denquin and S. Naka. Phase transformation mechanisms involved in two-phase TiAl-based alloys-I. Lamellar structure formation. *Acta Materialia*, 44 (1), 343-352, 1996.

[Dey 2006] S. R. Dey, A. Morawiec, E. Bouzy, A. Hazotte and J. J. Fundenberger. A technique for determination of  $\gamma/\gamma$  interface relationships in a ( $\alpha_2+\gamma$ ) TiAl base alloy using TEM Kikuchi patterns. *Materials Letters* 60, 646-650, 2006.

[Dimiduk 1998] D. M. Dimiduk, P. M. Hazzledine, T. A. Parthasarathy, M.G. Mendiratta and S. Seshagiri. The role of grain size and selected microstructural parameters in strengthening fully lamellar TiAl alloys. *Metallurgical and Materials Transactions* 1, 29 (1), 37-47, 1998.

[Dupont 1996] M.-L. Dupont, T. Baudin, R. Penelle, S. Naka and M. Thomas. Evolution de la texture et de la microstructure d'un aluminure de titane biphasé  $\gamma/\alpha_2$  en fonction des traitements thermiques. *Journal de Physique IV Colloque*, 06 (C2), 235-240, 1996.

[Inui 1992] H. Inui, M. H. Oh, A. Nakamura and M. Yamaguchi. Ordered domains in TiAl coexisting with  $Ti_3Al$  in the lamellar structure of Ti-rich TiAl compounds. *Philosophical Magazine A*, 66 (4), 1992.

[Mecking 1996] H. Mecking, Ch. Hartig and U.F. Kocks. Deformation modes in  $\gamma$ -TiAl as derived from the single crystal yield surface. *Acta Materialia*, 44 (4), 1309-1321, 1996.

[Maruyama 2002] K. Maruyama, G. Suzuki, H. Y. Kim, M. Suzuki and H. Sato. Saturation of yield stress and embrittlement in fine lamellar TiAl alloy. *Materials Science and Engineering A*, 329-331, 190-195, 2002.

[Nolze 2015] G. Nolze, A. Winkelmann and R. Hielscher. Advanced qualitative and quantitative EBSD pattern processing. Conference: PUC Symposium, Rio de Janeiro, Brazil, 2015.

[Pouchou 2004] J.-L. Pouchou, A. Denquin and A. Ferrini. Contribution of EBSD to the understanding of massive  $\gamma$  transformation in TiAl. *Microchimica Acta*, 145, 177-182, 2004.

[Simkin 2003] B. A. Simkin, B. C. Ng, T. R. Bieler, M. A. Crimp and D. E. Mason. Orientation determination and defect analysis in the near-cubic intermetallic  $\gamma$ -TiAl using SACP, ECCI and EBSD. *Intermetallics*, 11, 215-223, 2003.

[Yamaguchi 1990] M. Yamaguchi and Y. Umakoshi. The deformation behaviour of intermetallic superlattice compounds. *Progress in Materials Science*, 34 (1), 1-148, 1990.

[Zambaldi 2009] C. Zambaldi, S. Zaefferer and S. I. Wright. Characterization of order domains in  $\gamma$ -TiAl by orientation microscopy based on electron backscatter diffraction. *Applied Crystallography*, 42, 1092-1101, 2009.

[Zghal 1997] S. Zghal, S. Naka and A. Couret. A quantitative TEM analysis of the lamellar microstructure in TiAl based alloys. *Acta Materialia*, 45, 7, 3005-3015, 1997.

[Zghal 2005 ] S. Zghal, M. Thomas, S. Naka, A. Finel and A. Couret. Phase transformations in TiAl based alloys. *Acta Materialia*, 53, 2653-2664, 2005.

## *Conclusion générale et perspectives*

Ce travail de thèse visait de multiples objectifs :

- Suite à l'acquisition par le LEM3 de deux nouveaux microscopes électroniques, il fallait mettre en place la technique Imagerie par contraste de canalisation d'électrons (ECCI en anglais) reconnue pour sa capacité de caractérisation de défauts au MEB ;
- Améliorer la technique pour l'adapter à la caractérisation de microstructures et défauts cristallins dans des polycristaux à petits grains ;
- Et enfin appliquer l'ECCI aux matériaux que nous étudions pour répondre à des problématiques précises.

Cependant pour utiliser l'ECCI il est nécessaire de contrôler les conditions très strictes de canalisation d'électrons, et donc il faut pouvoir accéder à l'orientation du cristal par rapport au faisceau incident avec une précision meilleure que  $0,1^\circ$ .

Pour ce faire, un mode de balayage Précession du Faisceau (Rocking Beam en anglais) a été développé d'une manière innovante sur un MEB à émission de champ haute résolution ne s'y prêtant a priori pas. Le développement du mode Rocking Beam ainsi que l'amélioration de la technique ECCI ont été présentés dans le chapitre II. Les clichés pseudo-Kikuchi (Selected Area Channeling Patterns) acquis avec le mode Rocking Beam ont une haute résolution angulaire et spatiale d'où la nouvelle nomination High Resolution Selected Area Channeling Patterns (HR-SACP). La résolution spatiale d'environ 500 nm a été démontrée en utilisant une méthode rigoureuse qui se base sur l'acquisition des HR-SACP depuis des carrés en platine de taille contrôlée allant de 500nm à 5 $\mu$ m. Quant à la résolution angulaire, il a été démontré qu'elle est d'une précision et une répétabilité de  $0,04^\circ$ . L'obtention de ces performances est principalement due à :

1. Une calibration digitale des positions du faisceau (Beam Shift) prenant en compte les conditions de fonctionnement du MEB (tension d'accélération, courant de sonde, distance de travail).
2. Une petite ouverture angulaire de  $4^\circ$  qui réduit les aberrations sphériques.
3. Un faisceau d'électron dans la colonne GEMINI ayant : un petit diamètre et angle de convergence.

Les inconvénients de ce mode Rocking Beam sont principalement :

1. Un temps d'acquisition long d'environ 7 minutes (résolution de cliché :  $101 \times 101$  pixels) qui est dû au temps de communication de l'interface API avec le MEB.
2. Une petite ouverture angulaire d'environ  $4^\circ$  (à une distance de travail de 7mm) qui est la limite à atteindre dans la colonne GEMINI avec le diaphragme  $30\mu\text{m}$  utilisé.

Les clichés HR-SACP permettent de se mettre en condition de canalisation et de contrôler le vecteur déviation  $s$  avec une grande précision ( $0,04^\circ$ ). Contrairement à l'ECCI contrôlé uniquement par EBSD, les HR-SACP permettent d'accéder directement à l'orientation du cristal, évitant toute ambiguïté à propos des conditions de canalisation. Une comparaison entre l'EBSD standard et le HR-SACP à la fin du chapitre II montre que l'EBSD présente une erreur de mesure d'environ  $2^\circ$  de l'orientation absolue du cristal (par rapport à l'axe optique du microscope). Cela est causé d'une part par la limite de précision de la technique elle-même ( $0,5^\circ$ ) et du fait qu'elle nécessite une inclinaison de l'échantillon de  $70^\circ$  alors que les analyses ECCI sont principalement faites à faible inclinaison.

La procédure présentée dans ce travail utilise des simulations de bandes de Kikuchi basées sur des données EBSD afin de connaître l'orientation cristallographique, difficilement reconnaissable seulement en se basant sur le cliché HR-SACP à cause de sa petite ouverture angulaire ( $4^\circ$ ). Cette procédure présentée dans le chapitre II détaille les étapes à suivre afin d'établir les conditions de canalisation en utilisant les clichés HR-SACP.

L'A-ECCI assisté par HR-SACP est ensuite utilisé pour caractériser des défauts cristallins dans trois matériaux différents (Acier IF,  $\text{UO}_2$  et TiAl).

Dans le chapitre III, des dislocations vis, coins et mixtes ont été caractérisées en utilisant les critères d'invisibilités  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} = 0$  et  $\mathbf{g} \cdot \mathbf{b} \times \mathbf{u} = 0$ . Le vecteur de Burgers et les directions des dislocations vis et coins ont ainsi été déterminés. Ensuite, un sous joint de grain (SJG) de très faible désorientation a été caractérisé grâce à l'ECCI pour la première fois dans un MEB. La structure de dislocations (coin), le type (flexion), le plan, le système de glissement ( $[1-11]$  (121)) et la désorientation du SJG ont été déterminés sans ambiguïté. La procédure élaborée pour caractériser les SJG a été précisément décrite. La désorientation du SJG déduite grâce à l'analyse des dislocations a été vérifiée en utilisant le HR-SACP et l'EBSD haute précision.

Dans le chapitre IV, l'A-ECCI assistée par HR-SACP a été utilisée pour l'étude de la sous structure de déformation d'UO<sub>2</sub> après fluage à haute température. La technique a permis d'observer et d'analyser des SJG et dislocations pour la première fois dans ce matériau au MEB. Ceci a permis de déduire que la mobilité des SJG est restreinte à cause des porosités : on note que les réseaux de dislocations formant les SJG sont souvent ancrés aux pores. Un SJG de très faible désorientation est analysé avec l'A-ECCI. Il s'agit d'un SJG mixte à plusieurs facettes et où les dislocations changent de direction et de vecteur de Burgers. Il y a deux régions principales dans le SJG étudié : une de nature majoritairement de torsion (région 1) et l'autre de flexion (région 2). Ce SJG est alors beaucoup plus complexe que le SJG caractérisé dans le chapitre III. En effet, les dislocations de nature vis sont les plus faciles à analyser dans ce genre de matériau puisqu'elles satisfont parfaitement le critère d'invisibilité (disparition totale) comparées aux dislocations coins dont la disparition est plus ambiguë. Malgré cela, tous les vecteurs de Burgers des dislocations formant le réseau hexagonal du SJG (région 1) ont été déterminés grâce à la loi des nœuds. Dans la Région 2 (majoritairement de flexion), l'analyse des dislocations a prouvé que le SJG est asymétrique, c'est-à-dire qu'il est constitué de deux types de dislocations ayant des vecteurs de Burgers différents mais la même ligne de dislocation. Comme dans le chapitre III, la désorientation du SJG (dans ces deux régions) est mesurée de trois manières différentes : la formule  $\theta \approx b/D$  qui se base sur l'analyse des dislocations, le HR-SACP et l'EBSD haute précision. Les résultats sont cohérents.

Dans le chapitre V, l'ECCI en configuration *low* et *high tilt*, le HR-SACP et l'EBSD en mode spot sont utilisés pour l'analyse de la microstructure de l'alliage TiAl et plus spécifiquement les lamelles de la phase  $\gamma$ -TiAl. Dans un premier temps, cela a permis d'identifier la morphologie des différentes phases ( $\gamma$ -TiAl,  $\alpha_2$ , grains monolithiques, colonies lamellaires..). Parallèlement une étude comparative entre les configurations *low tilt* et *high tilt* a permis de déterminer les avantages et inconvénients de chacune :

*Low tilt* :

- + Possibilité du contrôle des conditions de canalisation avec le HR-SACP.
- + Signal lié principalement au phénomène de canalisation d'électron et au numéro atomique Z
- Faible signal par rapport à la configuration *high tilt*

*High tilt :*

- + Fort signal par rapport à la configuration *low tilt*
- + Meilleur rapport signal/bruit
- + La coloration de l'image FSD aide à distinguer les grains.
- Difficulté dans le contrôle des conditions de canalisation (pas de HR-SACP).
- Signal lié à plusieurs facteurs : orientation cristallographique, numéro atomique  $Z$ , topographie, plus sensible au grandissement et position du faisceau.
- Mouvement de l'échantillon limité (rotation, translation, inclinaison).

Dans un deuxième temps, l'A-ECCI assisté par HR-SACP a été utilisée en *low tilt* pour identifier d'une manière innovante les deux familles de macles  $\gamma$  et  $\gamma^I$  sur de larges zones. La procédure décrite est rapide et n'utilise que de l'imagerie A-ECCI et le HR-SACP: il suffit d'orienter l'une des familles de macles en condition de canalisation pour pouvoir les contraster. Ceci permet d'avoir des informations statistiques sur la distribution des deux familles. La procédure est aussi réalisable en configuration *high tilt* ce qui permet d'imager des zones plus large mais avec moins de précision à cause de l'impossibilité d'utiliser le HR-SACP.

Nous nous sommes intéressés par la suite à l'étude des DO par A-ECCI, HR-SACP et EBSD (en mode spot). Une procédure qui se base sur la détection des bandes de sur-structure avec le HR-SACP ou l'EBSD en mode spot (manuel) et l'utilisation du contraste ECCI (*low* ou *high tilt*) pour la détermination des parois de DO est proposée. Elle permet la distinction des DO sur de larges zones mais présente quelques inconvénients. Le fait qu'elle soit manuelle nécessite de l'utilisateur un travail de 4-5 heures pour analyser une zone d'environ  $2000 \mu\text{m}^2$ . Mais cela reste plus rapide que les solutions spéciales utilisant l'EBSD [Zambaldi 2009]. Par ailleurs, cette analyse a permis la détection de SJG, dislocations et faible désorientation au sein des DO. De plus, grâce au HR-SACP, de très faibles désorientations ( $<1^\circ$ ) des DO par rapport à leur orientation parfaite (relation de domaine d'ordre) ont été mesurées. Ceci valide un résultat obtenu par Transmission Kikuchi Pattern [Dey 2006] sur de petites zones au MET. Ceci prouve que les interfaces entre les macles dans  $\gamma$ -TiAl ne sont pas cohérentes, comme toujours reporté dans la littérature. Ceci est dû à la présence des dislocations de désaccord paramétrique (Misfit) observées avec l'ECCI en configuration *high* et *low tilt*.

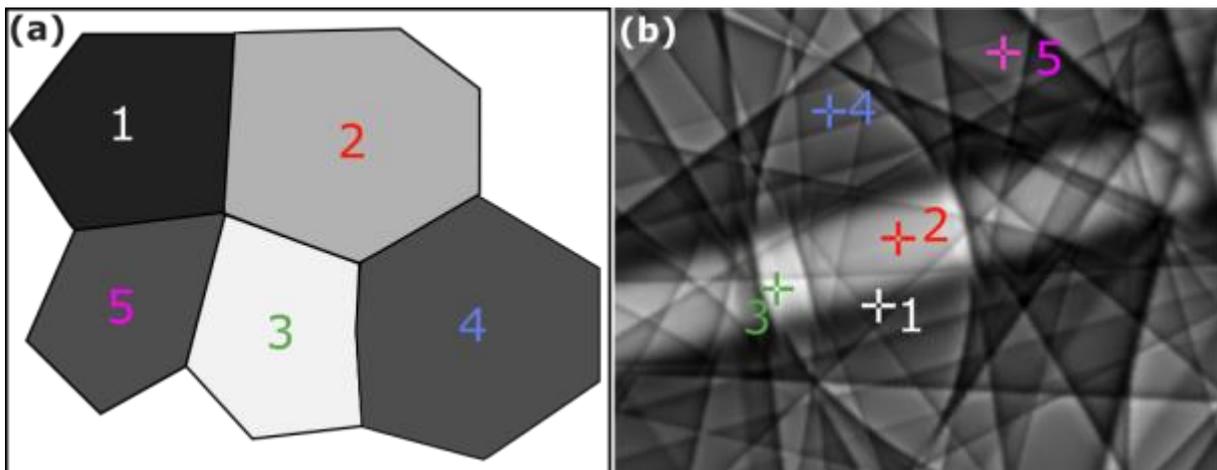
En conclusion, ce travail a permis d'améliorer considérablement la technique ECCI au MEB. Il est maintenant possible de sélectionner les conditions de canalisation, équivalentes aux conditions de diffraction au MET, avec une grande précision et de faire des analyses quantitatives et qualitatives de différents défauts cristallins (dislocations, SJG, DO) comme au MET (détermination des vecteurs de Burgers, système de glissement..). De plus, grâce à l'amélioration de la résolution spatiale de la technique ECCI, son domaine d'application est dorénavant étendu aux matériaux polycristallins à grains fins.

Pour finir, grâce aux avancées réalisées en ECCI dans ce travail qui a ouvert de nouvelles perspectives de recherche, ces voies sont déjà explorées dans le cadre d'une nouvelle thèse sur l'ECCI au laboratoire.

- Amélioration du temps d'acquisition des clichés HR-SACP via API ou en intervenant sur le Hardware de la machine.
- Simulation des rotations et inclinaisons nécessaires pour atteindre les conditions de canalisation
- Automatisation de la procédure ECCI.
- La caractérisation d'autres défauts cristallins avec l'ECCI : dipôle de dislocations, parois d'antiphase...

# *Annexe I Interprétation du contraste de canalisation d'électron*

Le contraste des électrons rétrodiffusés (BSE et FSE) observé dans un grain est lié directement à son orientation cristallographique. Puisque dans un cliché SACP (ou ECP) l'orientation cristallographique est indiquée par le pixel central (PC) du cliché (indiqué généralement par une croix correspondant au faisceau incident), l'intensité des électrons rétrodiffusés dans le grain cible sera analogue à celle du pixel central. Pour une meilleure compréhension de ce phénomène, la figure suivante illustre quelques exemples. Elle contient cinq grains (1-5) (a) avec cinq orientations différentes indiquées par des croix numérotées de 1 à 5 sur une simulation dynamique des bandes de Kikuchi (b).



**Figure annexe I.1** : Relation entre le contraste BSE des grains et l'orientation cristallographique. (a) Schématisation de 5 grains micrographiés en contraste BSE. (b) Orientation cristallographique des 4 grains indiqués par des croix sur une simulation dynamique des bandes de Kikuchi.

Chaque grain possède le même contraste BSE que le PC de la croix indiquant son orientation cristallographique. Par exemple, le grain n°1 est en condition de canalisation : sa croix est sur le bord sombre d'une bande de Kikuchi ce qui fait que le contraste dans le grain est à son tour sombre car très peu d'électrons contribuent au signal rétrodiffusé pour cette orientation particulière du grain par rapport au faisceau incident. La croix n°2 relative à l'orientation du grain 2 est située à l'intérieur de la bande (hkl). Le contraste BSE sur le grain est alors clair.

La croix 3 est aussi située à l'intérieur de la bande mais dans une zone plus brillante due à la superposition d'autres bandes  $\{hkl\}$  ce qui fait que le grain n°3 est plus clair que le grain n°2.

Il est aussi possible d'avoir deux grains avec deux orientations différentes mais un contraste BSE très proche ou identique si les deux PC ont la même intensité. Par exemple, les grains n°4 et n°5 ont deux orientations différentes mais un contraste BSD identique.

L'imagerie ECCI est un outil puissant très sensible à l'orientation cristallographique mais il faut rester vigilant dans l'interprétation des contrastes.

Par ailleurs dans le cas particulier de deux macles, il est possible de les contraster avec l'imagerie BSD assez facilement en utilisant l'ECCI. Il faut s'assurer d'orienter l'une des deux en condition de canalisation pour lui donner un contraste sombre et la contraster par rapport à l'autre. Ceci sera utilisé dans le chapitre V pour identifier les deux familles de macle dans  $\gamma$ -TiAl.

## *Annexe II : Spécificités des bandes de Kikuchi dans $UO_2$*

Il convient de noter que les images A-ECCI en condition de canalisation selon les plans réflecteurs de famille  $\{111\}$  ont une qualité inférieure à celles acquises selon les autres plans malgré que le facteur de structure soit plus grand et donc une intensité de diffraction maximale. En effet, le bord des bandes de la famille  $\{111\}$  est très épais et flou sur le cliché de Kikuchi que ce soit dans les simulations dynamiques (figure annexe II.a) ou dans le HR-SACP (figure annexe II.b et c). Les bords flous des bandes sont indiqués par des flèches noires et ceux, bien définis, de la bande (202) en vert. On note aussi l'existence de fortes atténuations d'intensité (flèches rouges) sur les bandes de Kikuchi. Par conséquent, ceci rend plus difficile le repérage des bandes de Kikuchi, le contrôle du paramètre déviation  $s$  et donc l'établissement des conditions de canalisation selon les plans de familles  $\{111\}$ .

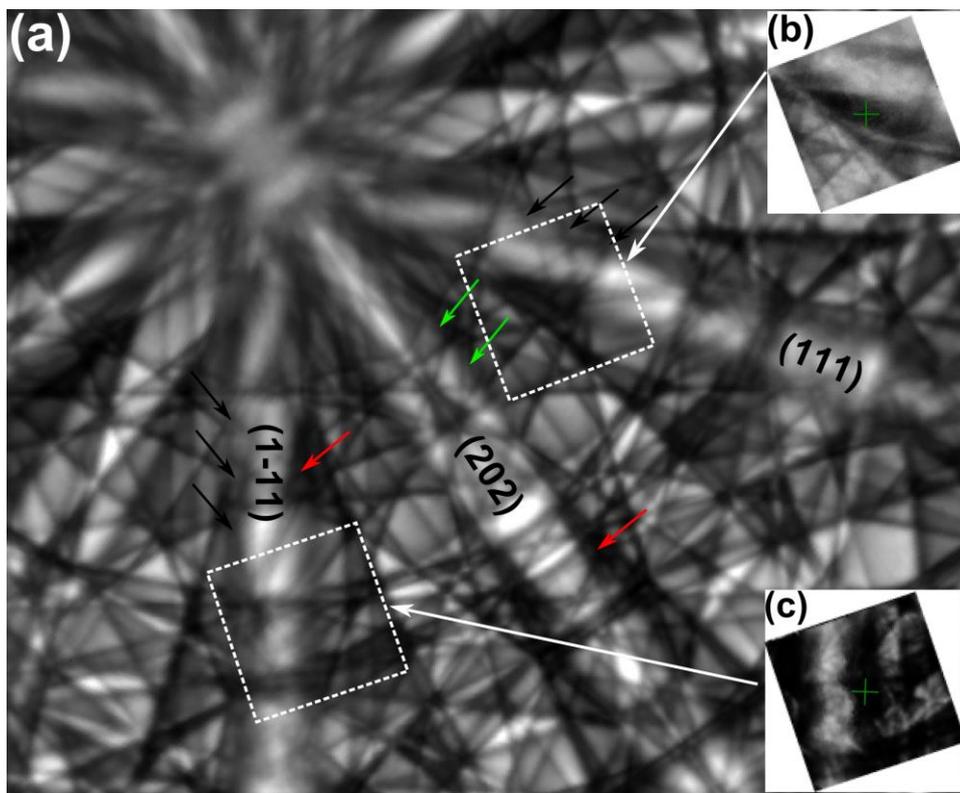


Figure annexe II.1 Simulation dynamique des bandes de Kikuchi dans  $UO_2$ . Observation de la différence entre les bords bandes  $\{111\}$  (flous et larges) et les autres bandes (bien définis).

# *Production scientifique et distinctions*

## **Distinctions**

1. Prix de la Société Américaine de Microscopie : Presidential Scholar Award, M&M Meeting 2015, pour l'article : « Characterization of a sub-grain boundary using Accurate Electron Channeling Contrast Imaging »
2. 1<sup>er</sup> prix de thèse Bodycote-SF2M 2016 de la Société Française de Métallurgie et de Matériaux.

## **Invention (réf CNRS : DI 08123-01)**

Julien Guyon, **Haithem Mansour**, Nathalie Gey, Nabila Maloufi. « *Rocking Beam sur Colonne GEMINI* » enregistrée à la SATT en janvier 2015 pour commercialisation par la société Zeiss.

## **Publications**

1. X. Iltis, M. Ben Saada, **H. Mansour**, N. Gey, A. Hazotte, N. Maloufi, A new characterization approach for studying relationships between microstructure and creep damage mechanisms of uranium dioxide, *Journal of Nuclear Materials*, Volume 474, Pages 1–7, 2016, <http://dx.doi.org/10.1016/j.jnucmat.2016.02.027>
2. **H. Mansour**, M.A. Crimp, N. Gey, N. Maloufi, *Accurate electron channeling contrast analysis of a low angle sub-grain boundary*, Scripta Materialia 109 (2015) 76-79, <http://dx.doi.org/10.1016/j.scriptamat.2015.07.023>
3. J. Guyon, **H. Mansour**, N. Gey, M.A. Crimp, S. Chalal, N. Maloufi, *Sub-micron resolution selected area electron channeling patterns*, UltraMicroscopy 149 (2015) 34-44, <http://dx.doi.org/10.1016/j.ultramic.2014.11.004>
4. **H. Mansour**, J. Guyon, M.A. Crimp, N. Gey, B. Beausir, N. Maloufi, *Accurate Electron Channeling Contrast Analysis of Dislocations in Fine Grained Bulk Material*, Scripta Materialia 84-85 (2014) 11-14, <http://dx.doi.org/10.1016/j.scriptamat.2014.03.001>

## **Conférences**

1. El Omari Zakaria, **Mansour Haithem**, Ben Saada Mariem, Gey Nathalie, Maloufi Nabila, Hazotte Alain, Iltis Xavière, *Etude des liens entre la microstructure et les mécanismes d'endommagement par fluage du dioxyde d'uranium*, Récents Progrès en Génie des Procédés, Numéro 107 – 2015, ISSN: 1775-335X ; ISBN: 978-2-910239-81-7, Ed. SFGP, Paris, France
2. **N. Maloufi**, **H. Mansour**, E. Bouzy, M.A. Crimp, N. Gey, In depth study of the microstructure by HR-SACP and A-ECCI : Low subgrain boundary in IF steel and order domains in TiAl, Oral presentation at Conference “Microscopy at the Frontiers of Science 2015” (MFS2015), 9-11 septembre 2015, Porto, Portugal,
3. **H. Mansour**, M.A. Crimp, N. Gey, N. Maloufi, Microscopy and Microanalysis, Vol. 21, Supplement S3 (2015) pp 601-602, Présentation orale, M&M Meeting 2015, Portland, OR USA
4. **H. Mansour**, **M. Ben Saada**, N. Maloufi, N. Gey, X. Iltis, Sub-boundary characterization of crept uranium dioxide fuel pellets, by EBSD and ECCI, CREEP 2015, 31 mai au 4 juin 2015, Toulouse France
5. **J. Guyon**, **H. Mansour**, N. Gey, M.A. Crimp, S. Chalal, N. Maloufi, *Développement du mode de balayage Rocking beam sur la colonne Gemini pour la mesure précise de l'orientation cristallographique*, Journées CAZAC du 14 au 16 mai 2014, Paris France
6. **H. Mansour**, M.A. Crimp, N. Gey, **J. Guyon**, N. Maloufi, Characterization of a low-angle grain boundary using Accurate Electron Channeling Contrast Imaging, Affiche à Electron Backscatter Diffraction Conference (EBSD) 2015, 30 mars au 31 mars 2015, Glasgow, UK
7. X. Iltis, Z. El Omari, **H. Mansour**, M. Ben Saada, N. Gey, N. Maloufi, Etude des liens entre la microstructure et les mécanismes d'endommagement par fluage du dioxyde d'uranium, Poster, STPMF 2015, 08 au 10 avril 2015 Nancy

8. **H. Mansour**, J. Guyon, N. Gey, B. Beusir, M.A. Crimp, S. Chalal, N. Maloufi, *SACP Collection on the GEMINI type electron column for Accurate Electron Channeling Contrast Imaging*, EBSD Symposium 2014, 21 - 22 May 2014, Bordeaux, France, Invited Lecture
9. **H. Mansour**, J. Guyon, N. Gey, B. Beusir, M.A. Crimp, S. Chalal, N. Maloufi, *SACP Collection on the GEMINI type electron column for Accurate Electron Channeling Contrast Imaging*, présentation orale, Electron Backscatter Diffraction Conference (EBSD) 2014, 31 mars au 1<sup>er</sup> avril 2014, Londres UK





**Résumé :** La technique Imagerie par Contraste de Canalisation d'Electron (ECCI) est utilisée en microscopie électronique à balayage (MEB) pour visualiser et caractériser des défauts cristallins tels que les dislocations. L'ECCI nécessite l'orientation, avec grande précision (meilleure que  $0,1^\circ$ ), du cristal à analyser par rapport au faisceau d'électrons pour satisfaire les conditions très strictes de canalisation d'électrons. À cause de la limitation en résolution spatiale et angulaire des techniques actuelles permettant de déterminer l'orientation cristallographique, la caractérisation des défauts cristallins par ECCI est actuellement appliquée à des monocristaux (ou des polycristaux possédant des gros grains) et les conditions de canalisation ne sont pas toujours satisfaites. Dans ce projet de thèse, un mode de balayage Précession de faisceau (Rocking Beam en anglais) a été développé dans un microscope électronique à balayage. Il permet l'acquisition de diagrammes pseudo-Kikuchi haute résolution spatiale (500nm) et angulaire ( $0,04^\circ$ ) (High Resolution Selected Area Channeling Pattern en anglais (HR-SACP)) et de contrôler les conditions de canalisations nécessaire à l'ECCI. Ceci a permis d'améliorer considérablement la précision de l'ECCI (Accurate ECCI A-ECCI) et d'élargir son domaine d'application aux matériaux polycristallins à grains fins. Dans un deuxième temps, l'A-ECCI assistée par HR-SACP a été utilisé pour caractériser des défauts cristallins (dislocations, sous joint de grain, domaine d'ordre) dans des matériaux massifs polycristallins (Acier IF,  $UO_2$ , TiAl). Des procédures similaires à celles utilisées dans la microscopie électronique en transmission (MET) sont alors appliquées en s'affranchissant de la préparation fastidieuse de lames minces et en profitant des autres avantages du MEB.

**Mots clés :** MEB, ECCI, diagrammes de Kikuchi, SACP, Précession du faisceau, dislocations, sous-joint de grain, domaine d'ordre, Acier IF,  $UO_2$ , TiAl

**Abstract:** Electron Channeling Contrast Imaging (ECCI) is a Scanning Electron Microscope (SEM) technique used to observe and characterize crystallographic defects. ECCI requires the crystal to be oriented relative to the electron beam with high accuracy ( $0.1^\circ$ ) in order to control the electron channeling conditions. The SEM techniques used to determine the crystallographic orientation, such as conventional Electron BackScattered Diffraction (EBSD) or Rocking Beam, don't satisfy the high accuracy required for ECCI. Therefore, the characterization of crystallographic defects by ECCI is used only in single crystals or polycrystals with large grains and channeling conditions are not always satisfied. In this thesis, a development of a new Rocking Beam mode in SEM is presented. It allows the collection of High spatial (500nm) and angular ( $0.04^\circ$ ) Resolution Selected Area Channeling Pattern (HR-SACP) and the control of channeling conditions required for ECCI with high accuracy (Accurate ECCI A-ECCI). In a second phase of this thesis, A-ECCI assisted by HR-SACP is used to characterize crystallographic defects like dislocation, sub-grains and order domains in fine grained bulk materials (IF-Steel,  $UO_2$ , TiAl). In order to achieve this, several procedures (invisibility criteria) normally used in Transmission Electron Microscopy are applied. Using A-ECCI in SEM has many advantages over TEM such as the possibility of analyzing large areas and the relative easiness in sample preparation.

**Keywords:** SEM, ECCI, Kikuchi patterns, SACP, Rocking Beam, dislocations, sub-grain boundaries, order domains, IF steel,  $UO_2$ , TiAl