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

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.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm

UNIVERSITÉ DE LORRAINE

École doctorale EMMA

THÈSE

Pour l'obtention du grade de

DOCTEUR de L'UNIVERSITÉ DE LORRAINE

École doctorale : Énergie Mécanique et Matériaux (EMMA)

Domaine de Recherche : Physique, Sciences des Matériaux

Présentée par :

Hana KRIAA

Imagerie de dislocations par contraste de canalisation des électrons. Théorie et expérience

---

Soutenue le 14 septembre 2018 devant le jury à Metz

Composition du jury

Cécile HÉBERT	Professeure, LSME, EPFL Lausanne, Suisse	*Rapporteur*
Philippe CASTANY	Maitre de conférences HDR, C-Met, INSA Rennes, France	*Rapporteur*
Patrick CORDIER	Professeur, UMET, Université de Lille 1 Lille, France	*Examinateur*
Emmanuel BOUZY	Professeur, LEM3, Université de Lorraine Metz, France	*Examinateur*
Nabila MALOUFI	Maitre de conférences HDR, LEM3, Université de Lorraine, Metz, France	*Directrice*
Antoine GUITTON	Maitre de conférences, LEM3, Université de Lorraine Metz, France	*Co-directeur*

Université de Lorraine, CNRS, Arts et Métiers ParisTech, LEM3
7 rue Félix Savart, 57073, Metz, France.

« Celui même qui veut écrire son rêve se doit d'être infiniment éveillé. »

Paul VALÉRY

(1871-1945)

Remerciements

Tout d'abord, je voudrais remercier infiniment mes directeurs de thèse Nabila MALOUFI et Antoine GUITTON, et leur exprimer ma gratitude et ma reconnaissance pour leur soutien, leur disponibilité, leurs bons conseils précieux et leur aide toujours précieuse. Merci pour nos discussions scientifiques, merci aussi pour avoir largement contribué à ce que cette thèse soit intéressante et pleine d'intérêt.

Je tiens à remercier Cécile HÉBERT et Philippe CASTANY pour avoir accepté d'être rapporteurs et accordé un temps précieux pour évaluer ma thèse.

Mes sincères remerciements s'adressent également à Patrick CORDIER et Emmanuel BOUZY de m'avoir fait l'honneur de participer à ce jury.

Bien évidemment, je dédie ce travail de thèse à mes parents pour tous les sacrifices qu'ils ont faits pour m'assurer bonheur et joie de vie. À mon mari Omar, avec qui je partage les plus beaux moments de ma vie et auprès de qui je trouve la totale complicité dans mes loisirs, et le grand soutien dans mon travail.

J'en profite également pour remercier mes beaux-parents pour leur amour et leurs encouragements.

Un grand merci à mes deux frères Seif Eddine et Ghazi qui m'aiment et que j'aime. Ils ont toujours été, pour moi, un exemple dans la persévérance, le courage et la générosité. Une pensée particulière à ma belle-sœur et mes deux anges Souna et Bitout.

Je n'oublie pas de remercier tous mes amis qui ont participé de près ou de loin à l'aboutissement de ce travail. Une dédicace spéciale à mes chers Meriem et Yassine.

Enfin, je remercie tous les membres du LEM3 pour leur contribution à la réalisation de certaines parties de mon travail et pour les discussions enrichissantes ou non.

Table des matières

Nomenclature 15

Introduction générale 21

Chapitre I : Étude bibliographique

I.1. Introduction 29

I.2. Dislocations 30

I.2.1. Effet de la surface sur les dislocations 31

I.2.2. Méthodes d'observation de dislocations 31

I.2.2.1. Méthode d'attaque surfacique 31

I.2.2.2. Méthode de la décoration 32

I.2.2.3. Topographie aux rayons X 33

I.2.2.4. Microscopie Électronique en Transmission (MET) 34

I.3. Imagerie par contraste de canalisation des électrons 36

I.3.1. Historique de l'ECCI 36

I.3.2. Mécanisme de canalisation 39

I.3.2.1. Approche particule 39

I.3.2.2. Approche ondulatoire : Ondes de Bloch....41

I.3.3. Paramètre de déviation s et condition de canalisation 42

I.3.4. Configuration géométrique de l'ECCI....44

I.4. La theorie dynamique de la diffraction....46

I.4.1. Approximation deux ondes 47

I.4.2. Approximation de la colonne....47

I.4.3. Modèles simplifiés des évènements de la diffusion électronique inélastique : diffusion unique et diffusion multiple....48

I.5. Approche « ondes de bloch » 49

I.5.1. Simulation du profil d'intensité pour un cristal parfait : modèle de Spencer 49

I.5.2. Simulation du profil d'intensité pour un cristal imparfait : contraste des dislocations 52

I.5.2.1. Effet de **g**·**b** sur le contraste des dislocations 52

I.5.2.2. Effet du paramètre d'inclinaison ω sur le contraste des dislocations 53

I.5.2.3. Effet de la relaxation des contraintes surfaciques sur le contraste des dislocations 54

I.5.2.4. Effet de de la tension d'accélération sur le contraste des dislocations 56

I.5.3. Modélisation du profil d'intensité BSE pour un cristal parfait : modèle de Reimer 58

I.5.4. Modélisation du profil d'intensité d'un cristal imparfait 60

I.6. Approche optique 62

I.7. Conclusion 65

I.7. Références 68

Chapitre II : Modélisation de l'intensité des électrons rétrodiffusés pour un cristal parfait et imparfait

II.1. Introduction 75

II.2. Modélisation de l'intensité des électrons rétrodiffusés dans le cas d'un cristal parfait 75

II.3. Coefficient des electrons retrodiffuses 77

II.4. Modelisation de l'intensite des electrons retrodiffuses en fonction de l'epaisseur dans le cas d'un cristal parfait 80

II.5. Modelisation de l'intensite des electrons retrodiffuses au voisinage d'une dislocation 84

II.5.1. Dislocation vis 85
II.5.1.1. Paramètre de déviation s=0 (condition de Bragg s=sB) 86
II.5.1.2. Paramètre de déviation s>0 87
II.5.1.3. Paramètre de déviation s<0 89
II.5.1.4. Effet de g·b sur le contraste d'une dislocation vis 90
II.5.1.4.1. Paramètre de déviation s=0 90
II.5.1.4.2. Paramètre de déviation s>0 92
II.5.1.4.3. Paramètre de déviation s<0 93

II.5.2. Dislocation coin 94
II.5.2.1. Modélisation des profils d'intensité BSE 95
II.5.2.2. Critères d'invisibilité d'une dislocation coin 96

II.6. Conclusion 97

II.7. Références 100

Chapitre III : Interprétation des contrastes des dislocations observées par ECCI à l'aide d'une nouvelle approche théorique

III.1. Introduction 105

III.2. Techniques experimentales utilisees 106

III.2.1. Le Microscope Électronique à Balayage (MEB) 106
III.2.1.1. Interaction électrons-matière 107

III.2.2. Détermination de l'orientation cristallographique 108
III.2.2.1. Electron Channeling Pattern (ECP) 108
III.2.2.2. Electron BackScattred Diffraction (EBSD) 110
III.2.2.3. Selected Area Channeling Pattern (SACP) 112
III.2.2.4. High Resolution-Selected Area Channeling Pattern (HR-SACP) 114

III.2.3. Imagerie par contraste de canalisation des électrons améliorée : *accurate- ECCI* (a-ECCI) 115

III.2.4. Préparation des échantillons 117

III.3. Materiau modele utilise : l'acier IF 117

III.3.1. Présentation générale 117

III.3.2. Caractérisation microstructurale 118

III.4. Procedure d'etablissement des conditions de canalisation 119

III.5. Étude du contraste d'une dislocation pour differentes positions du faisceau incident sur une pseudo-bande (hkl) 121

III.5.1. Au travers d'une pseudo-bande de Kikuchi 121

III.5.2. Le long d'une pseudo-bande de Kikuchi, pour un **g** donné 122

III.5.3. De part et d'autre d'une pseudo-bande de Kikuchi 124

III.6. Interpretation du contraste des dislocations a partir du modele theorique 125

III.6.1. Rappel théorique 125

III.6.2. Paramètre de déviation s=0 126

III.6.3. Paramètre de déviation s>0 128

III.6.4. Paramètre de déviation s<0 130

III.7. Ajustement des resultats 132

III.7.1. Paramètre de déviation s>0 : cas de l'acier 132

III.7.2. Paramètre de déviation s<0 : cas de TiAl 133

III.7.3. Paramètre de déviation s=0 : cas de l'acier 134

III.8. Application : dipole de dislocations 135

III.8.1. Caractérisation d'un dipôle de dislocation 135

III.8.2. Influence de l'orientation du faisceau incident sur l'invisibilité du dipôle de dislocations 138

III.9. Conclusion 140

III.10. Références 143

Chapitre IV : L'ECCI : une nouvelle voie pour comprendre l'évolution des mécanismes de déformation. Application à un alliage TiAl

IV.1. Introduction 149

IV.2. Alliages a base TiAl 149

IV.2.1. Présentation générale 149

IV.2.2. La phase γ 150

IV.2.3. La phase α_2 151

IV.3. Orientation cristallographique et relations d'interface 153

IV.4. Mecanismes de deformation dans la phase γ-tial a temperature ambiante 154

IV.4.1. Glissement des dislocations 155

IV.4.2. Maclage de déformation 156

IV.4.3. Mécanisme de déformation plastique au niveau des interfaces 159

IV.5. La nanoindentation 162

IV.6. Materiau d'etude : preparation et observation microscopique 165

IV.7. Caracterisation microstructurale de la zone selectionnée 166

IV.7.1. Caractérisation par EBSD 166

IV.7.2. Déformation plastique par nanoindentation 168

IV.7.3. Caractérisation avant et après déformation 168

IV.7.3.1. Première zone d'intérêt (ZI1) : loin de toute interface 168

IV.7.3.2. Deuxième zone d'intérêt (ZI2) : proche d'une interface grain γ/ γ 170

IV.8. Conclusion 173

IV.9. Références 175

Conclusion générale et perspectives 179

Annexe 187

Nomenclature

$\Delta\eta$, $\Delta\eta'$, Q	Coefficient des électrons rétrodiffusés
Φ_0	Amplitude de l'onde incidente
Φ_g	Amplitude de l'onde diffractée
(ϕ_1, ϕ, ϕ_2)	Angles d'Euler
Ψ	Fonction d'onde de Bloch totale
$\psi\psi^*$	Probabilité de rétrodiffusion de l'onde de Bloch
$\psi^{(j)}$	$j^{ième}$ onde de Bloch
α	Angle entre le vecteur de Burgers **b** et le vecteur directeur de la ligne de la dislocation **u**
$\varepsilon^{(j)}$	Amplitude d'excitation de la $j^{ième}$ onde de Bloch $\psi^{(j)}$
θ_B	Angle de Bragg
θ	Angle d'incidence du faisceau d'électrons sur la famille de plans {hkl}
θ_c	Angle d'incidence correspondant à la condition de canalisation
θ_{BSE}	Angle d'incidence générant une forte rétrodiffusion
λ	Longueur d'onde des électrons
$\mu^{(j)}$	Coefficient d'absorption dans le modèle de Spencer
ν	Coefficient de Poisson
ξ_g	Distance d'extinction de l'onde diffractée
ξ_0	Distance d'extinction de l'onde primaire
ξ_g'	Longueur caractéristique d'absorption pour un **g** donné
ξ_0'	Longueur caractéristique d'absorption moyenne
σ_B	Section efficace de diffusion transversale pour les rétrodiffusions avec des angles supérieurs à 90°
υ	Vitesse des électrons
χ	Coefficient de corrélation
ω	Paramètre d'inclinaison ($\omega = s\,\xi_g$)
ω_B	Paramètre d'inclinaison à la position exacte de Bragg
ω_c	Paramètre d'inclinaison correspondant à la condition de canalisation
∇^2	Opérateur Laplacien
B = f(A)	B en fonction de A
b	Vecteur de Burgers

$C_g^{(j)}$	Amplitude de la j^{ième} onde de Bloch diffractée
$C_0^{(j)}$	Coefficient de la j^{ième} onde de Bloch primaire
d	Distance de séparation d'une paire de dislocations
dz	Tranche du matériau située à une profondeur z
E	Tension d'accélération des électrons
F	Facteur de diffusion atomique
$\mathbf{g}$ ou $\mathbf{g}_{hkl}$	Vecteur de diffraction pour une famille de plans {hkl}
g	Module du vecteur de diffraction $\mathbf{g}$
h	Constante de Planck
{hkl}	Indice de Miller d'une famille de plan
$I_B^{(j)}$	Intensité de la j^{ième} onde de Bloch rétrodiffusée
$I_F^{(j)}$	Intensité de la j^{ième} onde de Bloch diffusée vers l'avant
$I^{(j)}$	Intensité de la j^{ième} onde de Bloch
$\mathbf{k}_0^{(j)}$	Vecteur d'onde de la j^{ième} onde de Bloch primaire
$\mathbf{k}_g^{(j)}$	Vecteur d'onde de la j^{ième} onde de Bloch diffractée
m	Masse d'une particule
N	Nombre d'atomes par unité de volume
$p^{(j)}$	Fraction d'intensité retirée de $I^{(j)}$
$p^{(0)}$	Fraction d'intensité retirée de $I_B^{(j)}$ et $I_F^{(j)}$
P_i	Position du faisceau incident sur le pseudo-diagramme de Kikuchi
$q^{(j)}$	Paramètre d'absorption de la j^{ième} onde de Bloch
$\mathbf{R}$	Champ de déplacement produit par un défaut
$\mathbf{R}_{vis}$	Champ de déplacement produit par une dislocation vis
$\mathbf{R}_{coin}$	Champ de déplacement produit par une dislocation coin
R	Rotation de la platine du microscope
R_0	Rotation initiale de la platine du microscope
$\mathbf{r}$	Vecteur de position spatiale
(r, ß)	Coordonnées polaires
s	Paramètre de déviation du faisceau incident par rapport à la condition de Bragg

s_B	Paramètre de déviation correspondant à la position exacte de Bragg (s_B=0)
s_D	Paramètre de déviation due à la présence d'une dislocation
s_c	Paramètre de déviation correspondant à la condition de canalisation
s'	Paramètre total de déviation (s' = s +s_D)
$T_{\mathbf{s}}$	Largeur de l'image d'une dislocation pour un s donné
$T_{\lvert\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\rvert}$	Largeur de l'image d'une dislocation pour $\lvert\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\rvert$donné
T_d	Largeur de l'image d'une dislocation pour position P_i donnée
T_{Milieu}	Largeur de l'image d'une dislocation pour un faisceau incident orienté au milieu de la pseudo-bande de Kikuchi
Tilt	Inclinaison de la platine du microscope
t	Épaisseur de l'échantillon
U	Énergie totale des électrons
u	Vecteur directeur de la ligne d'une dislocation
V	Énergie potentielle des électrons
V_c	Volume d'une maille élémentaire
x, y, z	Cordonnées cartésiennes
x	Distance à partir du cœur d'une dislocation
z_i	Profondeur de la dislocation sous la surface (z=0) de l'échantillon
z_{SF}	Profondeur d'un défaut d'empilement sous la surface (z=0) de l'échantillon

Introduction générale

"*Crystals are like people : it is the defects in them which tend to make them interesting."*

C.J.Humphreys (1979)

Les défauts cristallins jouent un rôle primordial sur les propriétés des solides cristallins. Selon leur nature, densité et/ou répartition, leur présence peut en effet améliorer ou détériorer les propriétés des matériaux. C'est la raison pour laquelle, caractériser ces défauts de façon précise permet d'optimiser les matériaux en vue de l'application envisagée.

Les études complètes à l'échelle microscopique des dislocations, par exemple, peuvent d'une part, apporter des informations précieuses pour comprendre la réponse mécanique macroscopique des matériaux et d'autre part alimenter des modèles numériques de la plasticité multi-échelle.

Cette importance incontestable des défauts cristallins, dans le domaine des sciences des matériaux, a conduit à la recherche de méthodes de plus en plus puissantes pour une caractérisation complète et à différentes échelles.

La Microscopie Électronique en Transmission (MET) est l'une des techniques les plus connues pour observer et caractériser les défauts cristallins. Cependant, elle exige l'utilisation des lames minces transparentes aux électrons. Il est donc nécessaire de procéder à une préparation d'échantillon fastidieuse et longue permettant leur amincissement jusqu'à une épaisseur d'une centaine de nanomètres. En outre, les zones étudiées au MET sont limitées à quelques micromètres carrés. Ainsi de nombreuses questions sur la représentativité des phénomènes observés sont à considérer.

Bien que la contribution du MET dans la science des matériaux soit indiscutable, les limitations, citées ci-dessus, entravent son utilisation de façon courante. C'est tout naturellement que des techniques alternatives ont vu le jour essentiellement dans un microscope bien plus flexible que le MET : le Microscope Électronique à Balayage (MEB).

Le MEB présente d'autres avantages par rapport au MET. Il peut accueillir en effet des échantillons massifs dont la préparation est relativement simple (surface polie miroir). Il offre aussi la possibilité de caractériser les défauts cristallins à travers une technique appelée imagerie par contraste de canalisation des électrons : *Electron Channeling Contrast Imaging* (ECCI). Cette technique permet d'obtenir des images de contraste de canalisation avec une résolution suffisante pour analyser, par exemple, des dislocations individuelles. Ces dernières peuvent être observées à une profondeur d'une centaine de

nanomètres sous la surface (même ordre de grandeur que l'épaisseur d'une lame MET). Une nouvelle voie s'ouvre alors pour des études quantitatives et statistiques, grâce à l'étendue des zones accessibles.

L'histoire de l'ECCI remonte à l'année 1967, où Coates a observé fortuitement pour la première fois un diagramme de canalisation (*Electron Channeling Pattern*, ECP), sur un monocristal de GaAs imagé en électrons rétrodiffusés (*BackScattred Electrons*, BSE), à faible grossissement. Le mécanisme responsable de la formation desdits ECP a été appelé canalisation des électrons.
Depuis les années 60, l'ECCI a constamment connue des améliorations grâce à différents facteurs :

- La haute performance d'imagerie des MEB modernes à émission de champ (*Field Emission Gun*, FEG) : courant élevé du faisceau, un faisceau quasi-parallèle et une très petite taille de sonde.
- L'amélioration des détecteurs BSE, etc…

Or, afin de visualiser et caractériser les dislocations par ECCI, il est nécessaire d'orienter, avec grande précision, la zone d'étude par rapport au faisceau électronique incident, c'est-à-dire contrôler précisément les conditions de canalisation. Pour relever ce défi et tirer tout le potentiel de l'ECCI, plusieurs techniques ont été mises en œuvre dans le MEB pour déterminer l'orientation du cristal par rapport au faisceau incident. À savoir, *Electron Channeling Pattern* (ECP), *Electron BackScattered Diffraction* (EBSD), *Selected Area Channeling Pattern* (SACP) et *High Resolution Selected Area Channeling Pattern* (HR-SACP). C'est cette dernière technique qui a été récemment développée au LEM3 sur une colonne GEMINI I du microscope Zeiss. Elle consiste à collecter des clichés de canalisation (nommés *High-Resolution*-SACP), par précession du faisceau incident autour de l'axe du microscope. Les diagrammes ainsi acquis présentent une résolution latérale encore inégalée aujourd'hui (500 nm). La finesse de ces clichés collectés sur des zones réduites de l'échantillon a abouti à l'*accurate-ECCI* (a-ECCI). Cette dernière ouvre la voie à la caractérisation précise et complète de défauts même dans les petits grains d'un échantillon polycristallin.

En parallèle à l'évolution incessante qu'ont connue les conditions expérimentales de l'ECCI, des modèles théoriques ont été mis en place pour interpréter quantitativement les différents contrastes d'intensité expérimentaux des défauts observés. Cependant ces

modèles ne peuvent pas être exploités directement, par manque d'expression analytique explicite de l'intensité BSE en fonction des différents paramètres physiques gouvernant une expérience ECCI.
Dans ce contexte, la présente thèse se donne pour objectif l'approfondissement de l'étude des contrastes de canalisation à travers une approche théorique confrontée par la suite à une validation expérimentale. La finalité de ce travail est d'apporter de nouveaux éléments pour une analyse complète du contraste d'intensité BSE des dislocations en proposant des conditions optimales d'observation.

Le manuscrit de cette thèse est ainsi organisé de la façon suivante :

Le premier chapitre est essentiellement bibliographique. Sa première partie s'intéresse à la présentation d'une liste non exhaustive de méthodes utilisées, au fil des années, pour observer et caractériser les dislocations. Une attention particulière sera accordée à la technique ECCI. Quant à la deuxième partie, elle résume les différentes approches théoriques développées pour modéliser et/ou simuler les contrastes produits par un cristal parfait et imparfait contenant des dislocations.

Le deuxième chapitre présente le développement d'une nouvelle approche théorique. Cette approche permettra, dans un premier temps d'étudier l'effet de l'épaisseur de l'échantillon sur la formation des profils d'intensité BSE pour un cristal parfait. Dans un second temps, des modélisations du contraste d'intensité BSE pour des dislocations vis et coin, parallèles à la surface de l'échantillon, sont envisagées.

Le troisième chapitre aborde une analyse détaillée des contrastes d'image des dislocations dans un acier IF (matériau modèle). La dernière partie de ce chapitre confronte les résultats théoriques du chapitre II à ceux obtenus expérimentalement dans cette thèse.

Le quatrième et dernier chapitre présente une nouvelle approche pour comprendre l'évolution des microstructures de la déformation plastique à température ambiante de l'alliage titane aluminium (TiAl). Cette procédure expérimentale consiste à caractériser les zones d'intérêt par ECCI avant et après avoir introduit localement une déformation plastique par nanoindentation. Ceci permettra de proposer un scénario de mécanisme de déformation pouvant expliquer la faible ductilité de ces alliages à température ambiante.

En conclusion de ce manuscrit, un bilan synthétise les résultats essentiels et propose des perfectives à ce travail.

Chapitre I

Étude bibliographique

I.1. Introduction

Le concept mathématique des dislocations a été introduit, au début du XX^{ième} siècle, afin d'expliquer le comportement mécanique des matériaux en plasticité. Depuis, les études de ces défauts linéaires ont fait l'objet d'intenses recherches. L'avancement considérable de ces dernières au fil du temps, a doté les chercheurs de moyens pour les observer et les caractériser expérimentalement.

Parmi ces moyens, il existe l'imagerie par contraste de canalisation des électrons, ou *Electron Channeling Contrast Imaging* (ECCI). C'est une technique de Microscopie Électronique à Balayage (MEB) qui permet de contraster des dislocations situées jusqu'à une profondeur d'une centaine de nanomètres sous la surface d'un matériau massif. Elle tire avantage de la forte dépendance de l'intensité des électrons rétrodiffusés, *BackScattered Electrons* (BSE), à l'orientation du cristal par rapport au faisceau incident. Selon les conditions expérimentales, les dislocations peuvent générer différents contrastes : dislocation brillante sur un fond sombre, dislocation noire sur un fond clair… Afin d'interpréter analytiquement les contrastes d'intensité BSE produits par ces défauts, des modèles, basés sur la théorie dynamique de la diffraction, ont été développés. Ils ont permis de modéliser et/ou simuler des profils d'intensité pour un cristal parfait et imparfait.

La 1ère partie de ce chapitre bibliographique sera consacrée à la présentation non exhaustive de méthodes développées au cours du temps pour observer et caractériser les dislocations. Nous aborderons la méthode d'attaque surfacique, la méthode de la décoration, la topographie des rayons X, la Microscopie Électronique en Transmission (MET) et enfin l'ECCI. Comme cette dernière est la technique principale de cette thèse, elle sera naturellement très détaillée, tant du point de vue pratique que du point de vue théorique.

La deuxième partie, quant à elle, sera dédiée à la présentation des différentes approches théoriques développées pour modéliser et/ou simuler les contrastes obtenus par ECCI dans les cas d'un cristal parfait et imparfait.

I.2. Dislocations

Tous les cristaux contiennent des imperfections qui perturbent localement la disposition régulière des atomes. Ces imperfections sont classées en quatre catégories suivant leur dimension. Elles peuvent être des défauts ponctuels (0 dimension), linéaires (1 dimension), surfaciques (2 dimensions) ou volumiques (3 dimensions). Leur présence peut modifier de manière significative les propriétés des solides cristallins. Par exemple, la déformation plastique des matériaux est principalement contrôlée par la nucléation et la propagation de dislocations (défauts à 1 dimension) [Hirth, 1982]. Dans cette thèse, nous nous intéresserons particulièrement à l'étude de ces défauts linéaires.

Une dislocation est créée par un déplacement d'une partie du cristal d'un vecteur **b**, dit vecteur de Burgers. La zone ainsi déformée est localisée autour d'une ligne de vecteur directeur **u**. À partir de l'angle entre **b** et **u**, trois types de dislocations ont été définis (figureI.1) : dislocation vis (**b**// **u**), coin (**b**⊥ **u**) et mixte (angle quelconque entre **b** et **u**).

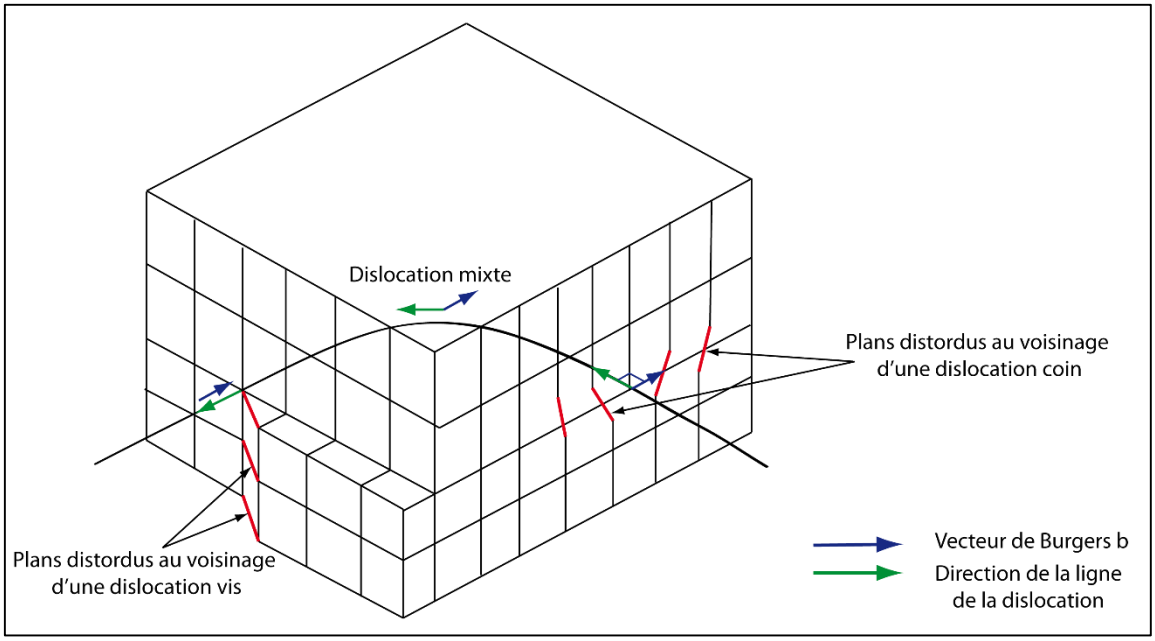


Figure.I.1. Schématisation d'une dislocation vis, coin et mixte.

La présence d'une dislocation dans un cristal entraîne une distorsion des plans cristallins au voisinage de son cœur. Cette déformation locale est décrite par un champ de déplacement noté **R**, caractéristique de la dislocation [Read, 1957]. Dans le cas d'un cristal continu, isotrope et infini, **R** est donné par la théorie de l'élasticité des dislocations [Hirth, 1982] :

$$\mathbf{R}_{vis} = \frac{\mathbf{b}\,ß}{2\pi}$$

$$\mathbf{R}_{coin} = \frac{\mathbf{b}}{2\pi}\left[ß + \frac{\sin 2ß}{2(1-\nu)}\right] + \frac{\mathbf{b}\wedge\mathbf{u}}{2\pi}\left[\frac{1-2\nu}{2\,(1-\nu)}\ln|r| + \frac{\cos 2ß}{4\,(1-\nu)}\right]$$

Où **b** et **u** représentent, respectivement, le vecteur de Burgers et la direction de la ligne d'une dislocation repérée en coordonnées polaires (r, ß). ν est le coefficient de Poisson.
Dans le cadre de la même théorie, le champ de déplacement d'une dislocation mixte peut être décrit par la somme de $\mathbf{R}_{vis}$ et $\mathbf{R}_{coin}$.

I.2.1. Effet de la surface sur les dislocations

Une surface libre attire les dislocations, qui lui sont proches, par l'application d'une force appelée force image [Groves, 1970]. Cette dernière se modélise comme une dislocation virtuelle, de vecteur de Burgers opposé et localisé en dehors du matériau. Les deux dislocations (réelle et virtuelle) sont situées à la même distance de la surface. L'effet de la force image diminue lorsque la profondeur de la dislocation augmente [Hull, 2001].
D'autre part, le champ de déplacement **R** d'une dislocation proche de la surface est modifié en raison de la relaxation des contraintes surfaciques afin de minimiser l'énergie de la surface [Zielinski, 1996].

I.2.2. Méthodes d'observation de dislocations

Afin d'observer les dislocations, plusieurs méthodes, présentant à la fois des avantages et des inconvénients, ont été développées au cours des années. Pour illustrer l'importance que revêt la caractérisation des dislocations, une liste non exhaustive de ces méthodes est présentée dans cette partie.

I.2.2.1. Méthode d'attaque surfacique

Cette méthode consiste à tremper le cristal dans une solution chimique, adaptée au matériau étudié. L'attaque se fait préférentiellement au point d'émergence des dislocations [Gilman, 1956] [Gilman, 1958]. Ensuite, l'observation par microscope optique révèle des piqûres d'attaque renseignant sur la position et la densité de ces défauts linéaires.
La figure.I.2 montre un exemple de figure d'attaque réalisée sur la surface d'un monocristal déformé de silicium. Les dislocations, mises en évidence par les piqûres d'attaque, sont

regroupées sur deux familles de plans de glissement, dont les traces sur la surface sont respectivement A et B.

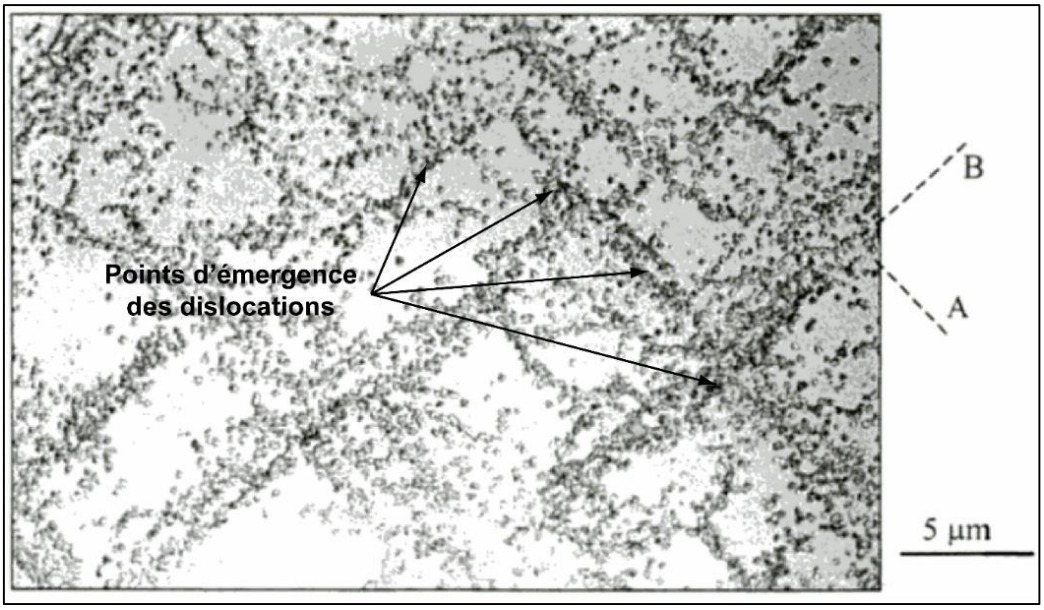


Figure.I.2. Mise en évidence des dislocations, dans un monocristal déformé de silicium, par la méthode d'attaque surfacique [Martin, 2000].

L'inconvénient principal de cette technique est qu'elle endommage la surface de l'échantillon (méthode destructive). De plus, comme les piqûres d'attaque sont larges, il est difficile de les distinguer lorsqu'elles se chevauchent. De ce fait, cette méthode est limitée aux cristaux de faibles densités de dislocations, moins de 10^{10} m^{-2} [Martin, 2000].

I.2.2.2. Méthode de la décoration

La méthode de la décoration est utilisée pour observer les dislocations dans les cristaux transparents à la lumière visible et au rayonnement infrarouge. Elle consiste à introduire des atomes de précipités dans le matériau lors d'un traitement thermique. Ces atomes se fixent préférentiellement dans les régions distordues du cristal, en particulier au voisinage du cœur de la dislocation [Hedges, 1953] [Amelinckx, 1955]. En microscopie optique, ces précipités diffusent la lumière permettant ainsi l'observation directe des dislocations.
Cette méthode a permis, par exemple, d'observer un réseau de dislocations sur un monocristal déformé de chlorure de potassium (KCl) (figure.I.3) [Amelinckx, 1958]. Elle a été aussi largement utilisée dans l'étude des dislocations dans les semi-conducteurs [Authier, 1960].

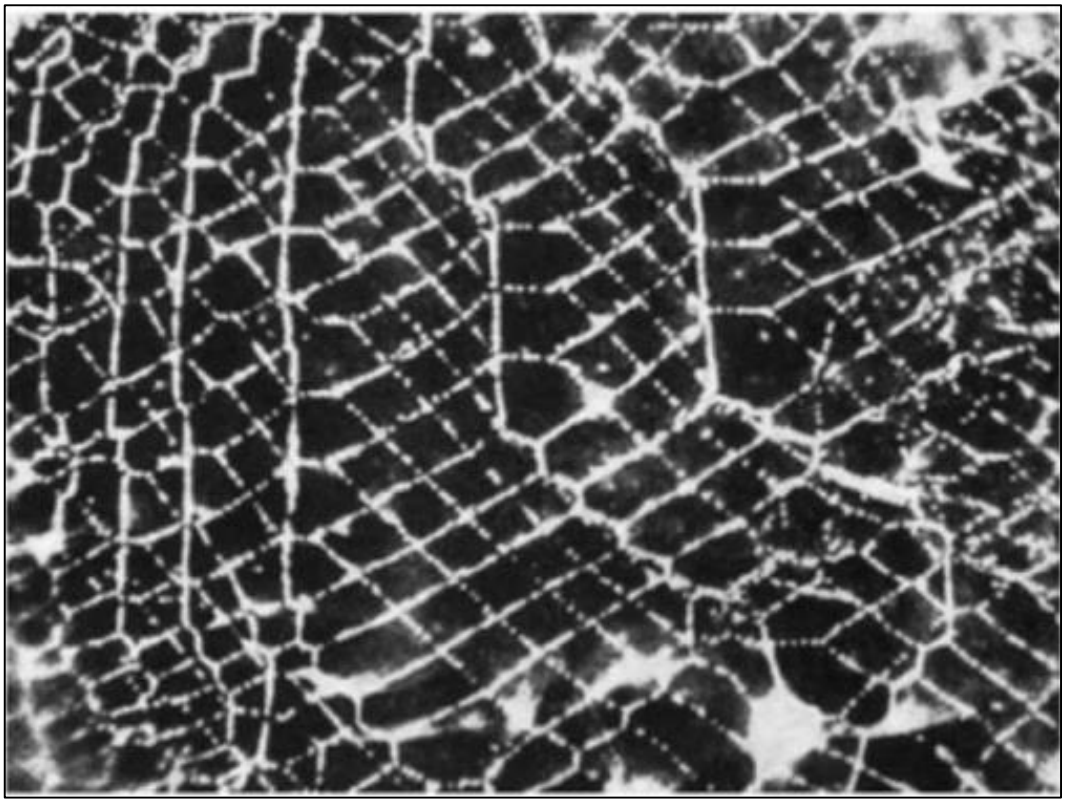


Figure.I.3. Mise en évidence des dislocations, dans un cristal KCl, par la méthode de la décoration. Les précipités utilisés sont des particules d'argent [Amelinckx, 1958].

I.2.2.3. Topographie aux rayons X

Une observation directe des dislocations peut être réalisée par la méthode de topographie des rayons X [Schwuttke, 1962]. Pour ce faire, l'échantillon doit être orienté de manière à ce qu'une famille de plans soit en condition de Bragg par rapport au faisceau de rayons X. Toute déformation locale associée à une dislocation entraine un changement de ces conditions de réflexion (la réflexion diminue ou disparait). Ceci mène à une variation de l'intensité du faisceau réfléchi et constitue ainsi le contraste du défaut.

La figure.I.4 illustre une topographie des rayons X montrant des dislocations dans un monocristal de silicium [Jenkinson, 1962]. L'image obtenue est ainsi enregistrée sur une plaque photographique. Néanmoins cette méthode présente une résolution réduite de l'ordre de 1 µm. C'est la raison pour laquelle cette technique n'est appliquée, généralement, que pour les cristaux de faible densité de dislocations ($<10^{10}$ m^{-2}) [Hull, 2001].

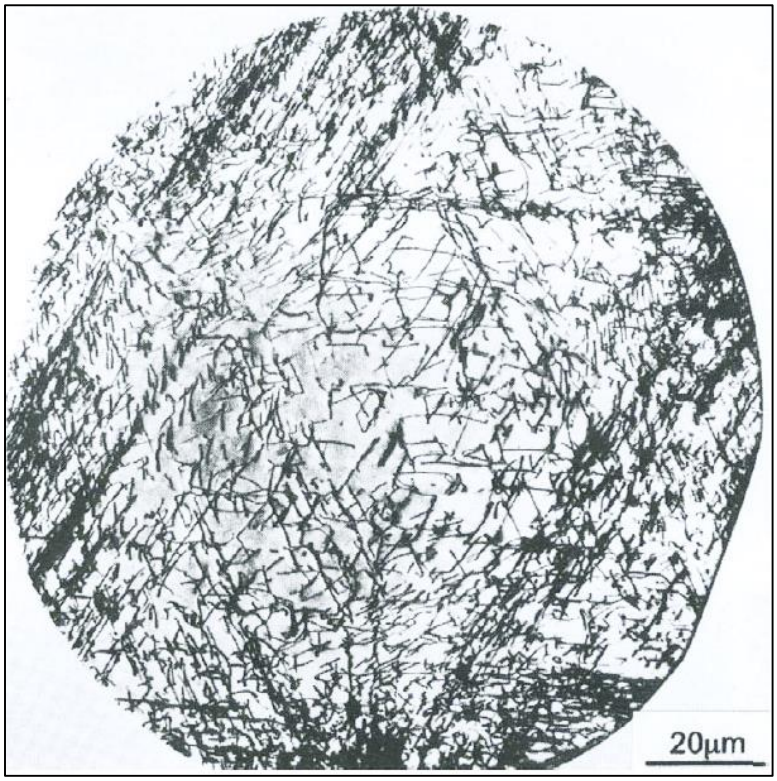


Figure.I.4. Topographie des rayons X montrant des dislocations dans un monocristal de silicium [Jenkinson, 1962].

I.2.2.4. Microscopie Électronique en Transmission (MET)

En plus des méthodes décrites ci-dessus, les dislocations ont été aussi finement observées et caractérisées en MET. Cette méthode est la plus couramment utilisée. Cependant, elle nécessite la préparation d'une lame transparente aux électrons, d'une centaine de nanomètres d'épaisseur [Hirsch, 1956] [Reimer, 2008].

En MET, le contraste d'image est formé par la diffraction des électrons selon la loi de Bragg. Afin d'observer les dislocations, le cristal est incliné légèrement par rapport à la condition de Bragg. La déformation locale associée à ces défauts a pour effet d'amener les plans distordus en condition de Bragg. Ceux-ci génèrent, par conséquent, un signal diffracté. Différents modes d'imagerie peuvent, ainsi, être utilisés :

- Champ clair : ce mode consiste à sélectionner le faisceau transmis uniquement. Seuls les électrons transmis contribuent à la formation de l'image. Les dislocations apparaissent alors noires sur un fond clair (figure.I.5 a).
- Champ sombre : dans ce cas, seul le faisceau diffracté est sélectionné. Les dislocations apparaissent, alors, claires sur un fond sombre (figure.I.5 b).

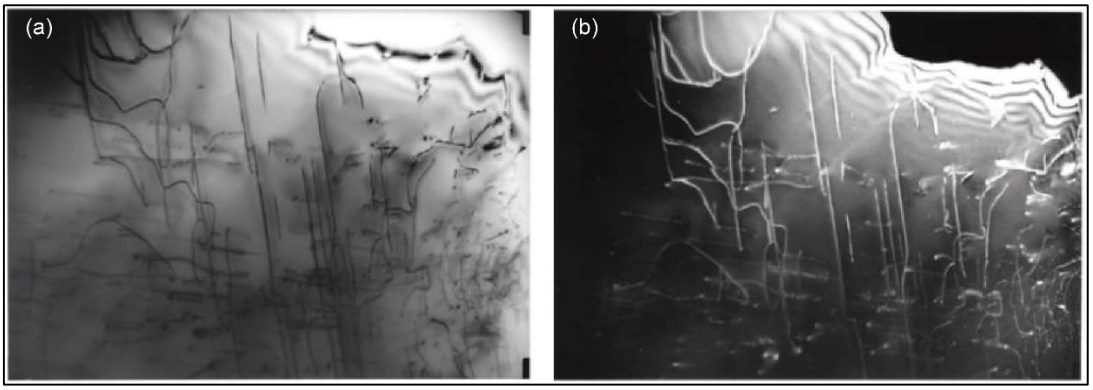


Figure.I.5. Micrographies MET des dislocations observées dans un échantillon de diopside ($CaMgSi_2O_6$) en mode (a) champ clair et (b) champ sombre [Colliex, 1996].

Les observations en MET se font généralement en condition particulière d'orientation dite deux ondes. À cette condition, en plus du faisceau transmis un seul faisceau diffracté est excité (une seule famille de plans {hkl} diffracte). Il est à noter qu'il existe une autre condition de diffraction, dite multi-ondes, sous laquelle le faisceau transmis et plusieurs faisceaux diffractés sont excités : plusieurs familles de plans {hkl} peuvent, simultanément, vérifier les conditions de Bragg. Cependant, dans cette condition le contraste des dislocations est de mauvaise qualité [Edington, 1976].

En 1969, Cockayne *et al.* [Cockayne, 1969] ont développé un troisième mode d'imagerie en champ sombre, appelé imagerie par contraste de faisceau faible (connu sous l'appellation *weak beam* en anglais). Il consiste à orienter l'échantillon en dehors des conditions de Bragg de sorte que seuls les plans distordus autour du cœur de la dislocation soient en condition de Bragg et donc vont diffracter. La dislocation apparait alors blanche et très fine (largeur d'environ 1,5 nm) sur un fond sombre comme le montre la figure.I.6.

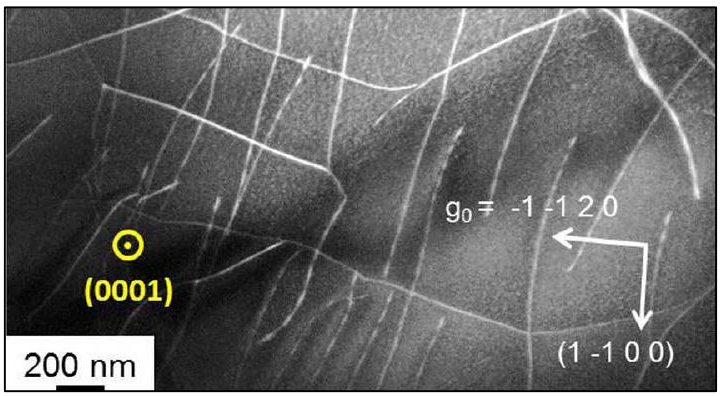


Figure.I.6. Micrographie MET des dislocations observées, en mode faisceau faible, dans un échantillon Ti_2AlN déformé [Guitton, 2014].

Les caractéristiques principales des dislocations (**b** et **u**), sont, généralement, déterminées en utilisant le mode de faisceau faible (deux ondes) :

- Le vecteur de Burgers est ainsi déterminé en appliquant les critères d'invisibilité $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$ et $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\wedge\mathbf{u}=0$ [Hirth, 1982].
- La direction de la ligne de dislocation est définie comme étant l'intersection des plans non parallèles qui la contiennent. Ces derniers peuvent être déterminés à partir de l'observation de la dislocation dans différentes orientations de la lame mince.

Bien que la contribution du MET dans la science des matériaux soit incontestable et qu'il soit couramment utilisé pour observer et caractériser finement les défauts cristallins, de nombreuses limitations entravent son utilisation :

- Il est nécessaire de procéder à une préparation fastidieuse et longue de lame mince d'épaisseur d'une centaine de nanomètres [Edington, 1976].
- Pour une faible épaisseur, les défauts cristallins ressentent alors l'effet de deux surfaces libres : modification importante du contraste généré par ces défauts (cf. partie.I.2.1).
- La lame mince doit rester stable lors de son exposition au faisceau d'électrons à haute énergie (200 kV pour un TEM conventionnel) dans un vide poussé.
- La manipulation de l'échantillon, extrêmement mince, nécessite un grand soin puisqu'il est sujet à la flexion et à la rupture.
- Les zones étudiées au MET sont limitées à quelques micromètres carrés, ce qui ne permet pas d'effectuer des études statistiquement représentatives de la microstructure du matériau [Williams, 1996].

Ces limitations ont conduit à développer des techniques équivalentes comme l'ECCI dans un MEB, microscope bien moins contraignant.

I.3. Imagerie par contraste de canalisation des électrons

I.3.1. Historique de l'ECCI

En 1967, Coates [Coates, 1967] a imagé, à faible grandissement (échelle millimétrique), un monocristal massif d'arséniure de gallium (GaAs) dans un MEB. La détection du signal BSE lui a permis d'observer un contraste d'intensité particulier. Ce dernier est présenté par

la figure.I.7. Il est semblable à celui d'un diagramme de paires de lignes de Kikuchi observé en MET. C'est pourquoi, le diagramme ainsi obtenu dans un MEB a été nommé pseudo-diagramme de Kikuchi.

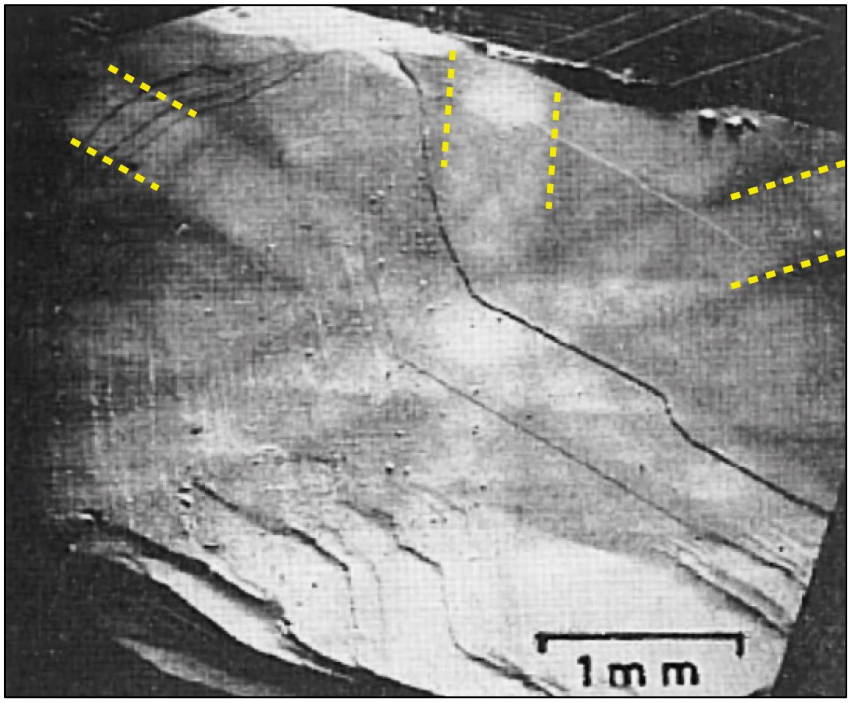


Figure.I.7. Pseudo-diagramme de Kikuchi acquis sur un monocristal de GaAs. La normale à la surface est orientée près de l'axe [111]. Les traits en pointillés (jaunes) marquent les bords de certaines bandes [Coates, 1967].

Lors du balayage d'une zone large sur un monocristal, l'angle d'incidence θ, entre le faisceau primaire et les différents plans cristallins, varie suffisamment pour amener les différents plans en condition de Bragg (θ_B). Pour une famille de plans {hkl} donnée, orientée au voisinage de la condition de Bragg correspondante, le rendement d'intensité des BSE passe par un minimum (figure.I.8). Ce minimum d'intensité correspond à la canalisation des électrons et il est obtenu pour une déviation légèrement positive $\theta>\theta_B$ par rapport à la position de Bragg. Conventionnellement, cette déviation est représentée par un paramètre d'inclinaison ω [Reimer, 1998] :

$$\omega = s\,\xi_g = g(\theta-\theta_B)\xi_g$$

Où s est le paramètre de déviation ou l'écart par rapport à la position de Bragg et ξ_g est la distance d'extinction (présentée ultérieurement), g est le module du vecteur de diffraction **g**, θ est l'angle d'incidence du faisceau primaire sur les plans cristallins et θ_B est l'angle d'incidence de Bragg.

Pour $\theta<\theta_B$ (une déviation s négative), le signal BSE tend vers des valeurs croissantes. Cette modulation de l'intensité en fonction de l'incidence du faisceau par rapport aux plans cristallins est à l'origine de la formation d'une pseudo-bande de Kikuchi. Chaque pseudo-bande (hkl) est associée aux plans (hkl), l'ensemble de ces bandes constitue le pseudo-diagramme de Kikuchi. Le mécanisme responsable de la formation de ces bandes est appelé canalisation des électrons. Le diagramme est, ainsi, nommé cliché de canalisation des électrons *Electron Channeling Pattern* (ECP).

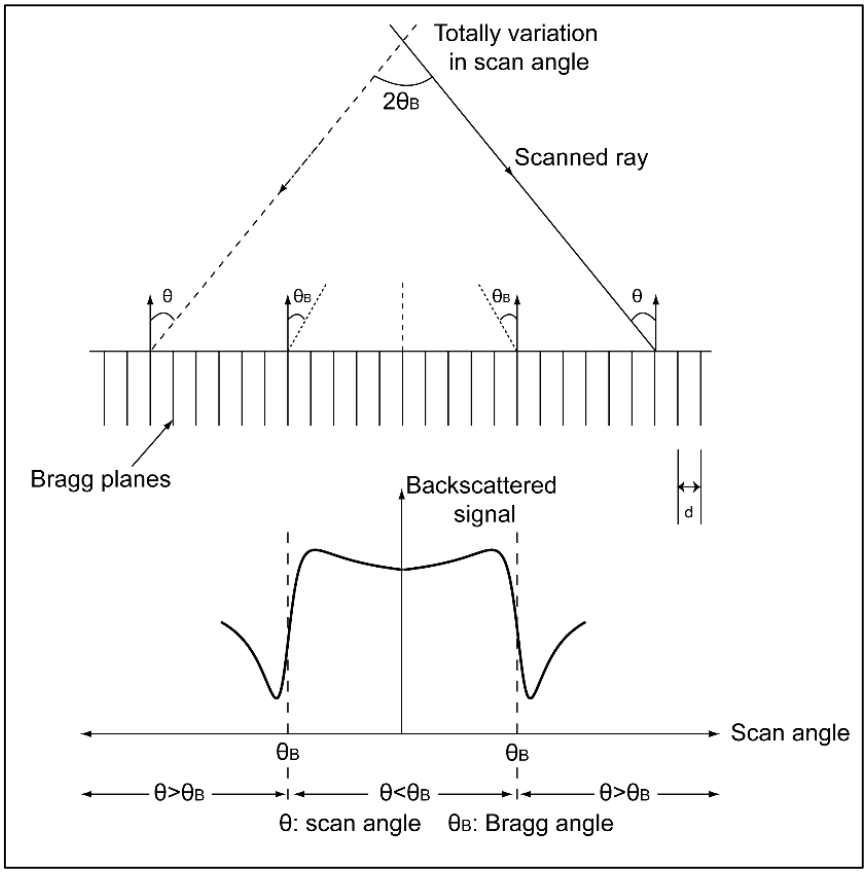


Figure.I.8. Variation de l'intensité BSE en fonction de l'angle d'incidence [Figure d'après Joy, 1982].

La même année, Booker *et al*. [Booker, 1967] ont confirmé les observations de Coates. Ils ont expliqué le mécanisme de la canalisation des électrons en utilisant l'approche des ondes de Bloch (expliquée ultérieurement). De plus, les auteurs ont suggéré que ce mécanisme pourrait être utilisé pour contraster les défauts cristallins, près de la surface d'un échantillon massif, tels que les dislocations. Au voisinage de la condition de Bragg, l'intensité BSE varie en effet considérablement en fonction de l'orientation (la figure.I.8). Toute déformation locale associée à une dislocation entraine une modulation de l'intensité

produisant ainsi le contraste de ce défaut linéaire. Cette idée a abouti, quelques années plus tard, au développement de la technique ECCI.

L'ECCI a reçu beaucoup d'attention, dans la mesure où elle ouvre la voie à des études quantitatives et statistiquement significatives, grâce à l'étendue des zones accessibles en MEB. Avec une bonne maîtrise des conditions de canalisation, cette technique permet d'imager des dislocations situées à une profondeur de l'ordre de la centaine de nanomètres en dessous de la surface polie miroir d'un échantillon massif. Notons toutefois, que cette profondeur est du même ordre de grandeur que l'épaisseur d'une lame mince observable par MET [Wilkinson, 1993].

En outre, pour caractériser les dislocations (**b** et **u**) observées par ECCI, les critères d'invisibilité valables en MET peuvent être appliqués [Crimp, 2001].

I.3.2. Mécanisme de canalisation

Le mécanisme de canalisation a été interprété par deux approches selon la description de l'électron :

- Une approche particule : elle permet d'expliquer simplement le contraste d'orientation et le contraste des défauts cristallins [Kamaladasa, 2010].
- Une approche onde ou ondulatoire : elle est appliquée pour des analyses plus fondamentales à savoir, les modélisations et les simulations des pseudo-bandes de Kikuchi [Reimer, 1986] [Reimer, 1998] [Dudarev, 1995] [Rossouw, 1994] et du contraste des défauts [Spencer, 1972] [Goldstein, 1975] [Wilkinson, 1997].

I.3.2.1. Approche particule

La figure.I.9 schématise l'approche particule de la canalisation des électrons. Dans cette approche, les électrons sont assimilés à des particules dont la probabilité de rétrodiffusion dépend de l'angle entre le faisceau incident et les différents plans réflecteurs {hkl} :

- Lorsque le faisceau primaire, indiqué par les flèches vertes sur la figure.I.9.a, fait un angle quelconque avec une famille de plans {hkl}, le rendement en BSE (flèches rouges) est important : une image BSE brillante de la zone observée est obtenue en utilisant le détecteur BSE.
- Pour une certaine trajectoire du faisceau incident parallèle aux plans {hkl}, les électrons pénètrent profondément entre les rangées atomiques (canaux de

canalisation) sans avoir la possibilité d'être rétrodiffusés vers la surface d'entrée. Ceci est indiqué par les flèches bleues de la figure.I.9.b. Dans ce cas, la canalisation est favorisée. L'image BSE est donc très sombre.

- Pour un cristal imparfait imagé en conditions de canalisation et contenant une dislocation (figure.I.9.c), les plans déformés au voisinage de son cœur empêchent la canalisation des électrons, en d'autre termes, une fermeture locale des canaux de canalisation se produit. Par conséquent, le taux des BSE collecté sur la zone déformée est plus important que celui émergeant du cristal parfait loin de ce défaut linéaire. Ceci génère une modulation de l'intensité BSE formant le contraste de l'image de la dislocation qui apparait brillante sur un fond sombre.

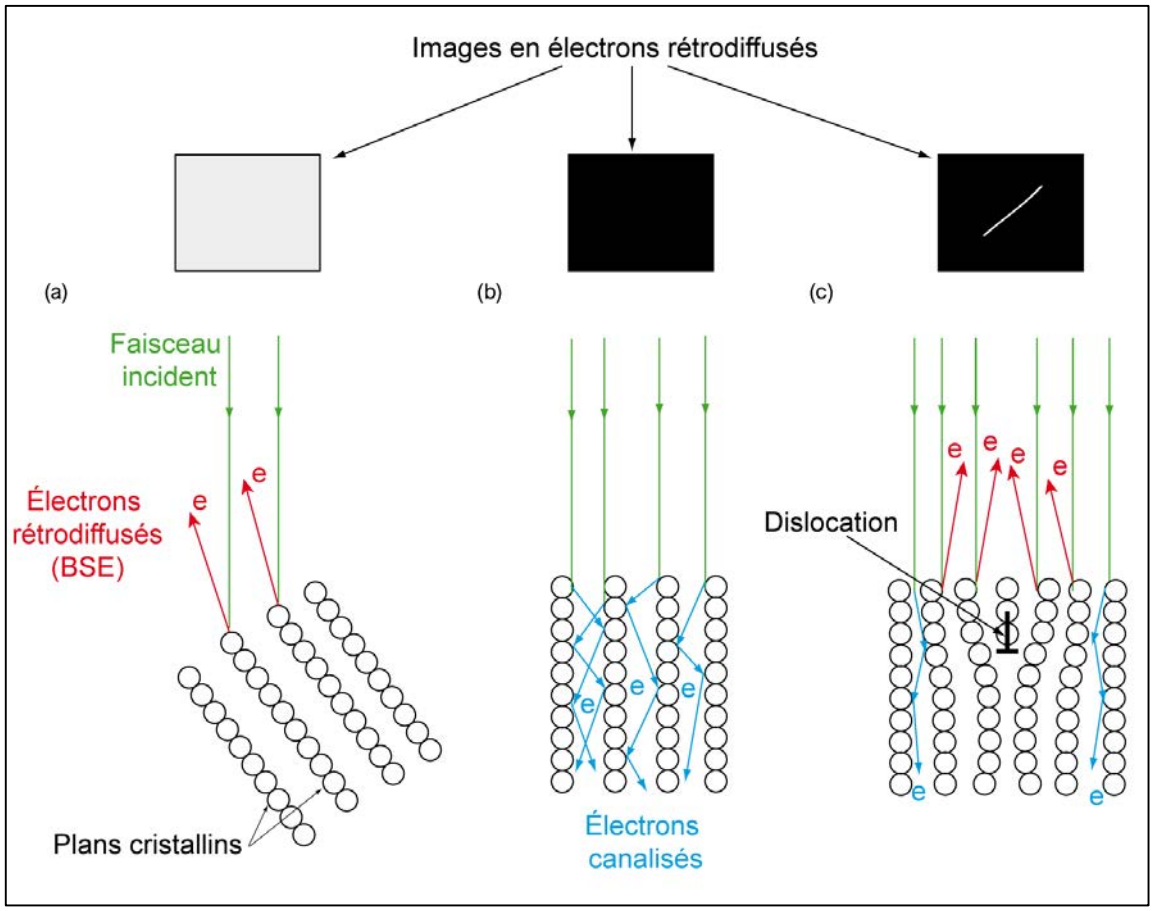


Figure.I.9. Schéma de la trajectoire des électrons dans le cas (a), (b) d'un cristal parfait et (c) d'un cristal contenant une dislocation.

I.3.2.2. Approche ondulatoire : Ondes de Bloch

D'après Félix Bloch [Bloch, 1928], la pénétration des électrons dans un potentiel périodique peut être décrite, quantitativement, par les ondes de Bloch : ondes planes modulées par une fonction de la même périodicité que le réseau cristallin. Elles traversent le cristal avec un front d'onde parallèle à la normale à la surface. Le carré de l'amplitude de leur fonction d'onde, en n'importe quel point, correspond à la probabilité de trouver un électron en ce point.

Booker *et.al*. [Booker, 1967] ont utilisé ce concept d'ondes de Bloch afin d'expliquer le contraste de canalisation observé par Coates [Coates, 1967]. Ils ont rapporté, qu'au voisinage des conditions de Bragg, pour une famille de plan quelconque, les électrons incidents sont décrits, à l'intérieur du cristal, par une superposition de deux types d'ondes de Bloch : onde de Bloch type 1 et onde de Bloch type 2 comme le schématise la figure.I.10.

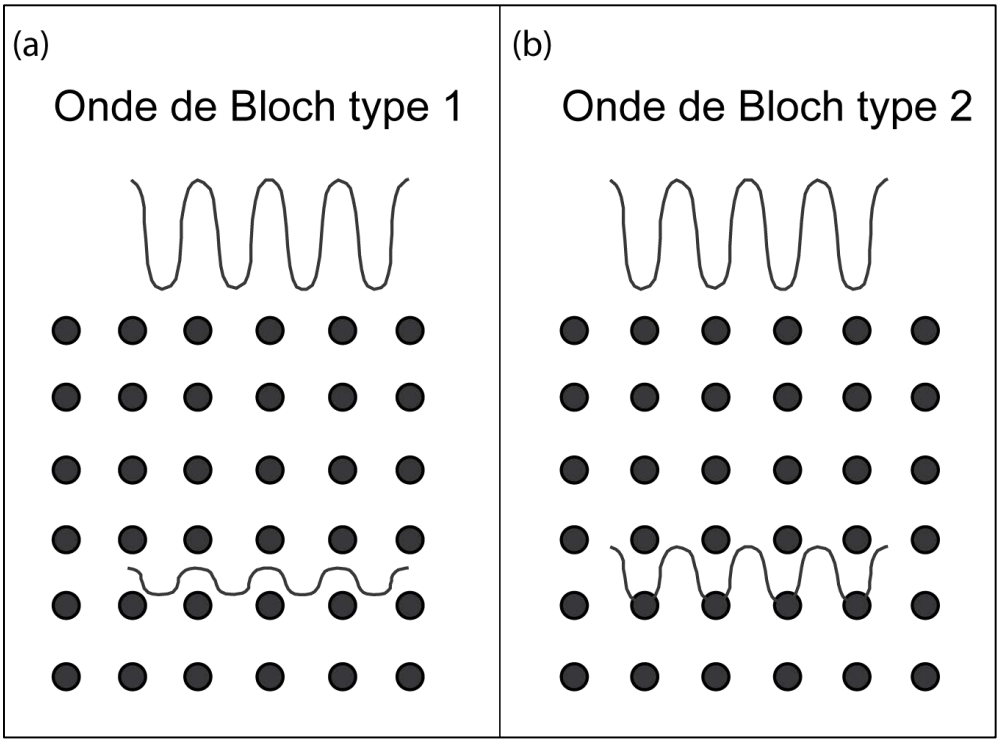


Figure.I.10. Approche onde de Bloch du mécanisme de canalisation : (a) onde de Bloch type 1 et (b) onde de Bloch type 2 [Figure d'après Wilkinson, 1997].

Les électrons de l'onde de Bloch type 1 ont une grande probabilité de se trouver en interaction avec les atomes du cristal (figure.I.10.a). Ceci génère une rétrodiffusion relativement forte accompagnée d'une atténuation importante de l'onde. Ce phénomène d'atténuation s'accentue jusqu'à l'extinction totale de l'onde à quelques distances

d'extinction notée ξ_g (un tableau des valeurs ξ_g est présenté en annexe). ξ_g est donnée comme suit [Reimer, 1998] :

$$\xi_g = \frac{\pi m \upsilon V_c}{h\, F(\theta_B)}$$

m et υ représentent, respectivement la masse et la vitesse de l'électron, V_c est le volume d'une maille élémentaire, h est la constante de Planck, F est le facteur de diffusion atomique et θ_B est l'angle de Bragg.

En ce qui concerne les électrons correspondants à l'onde de Bloch type 2, leur probabilité de se trouver entre les rangées atomiques est importante (figure.I.10.b), ce qui favorise la pénétration sur une longue distance : canalisation des électrons. De ce fait, les chances de rétrodiffusion sont très réduites.

I.3.3. Paramètre de déviation s et condition de canalisation

Le paramètre de déviation peut être illustré géométriquement dans le cas de la transmission (MET) par la construction d'Ewald comme le montre la figure.II.11.

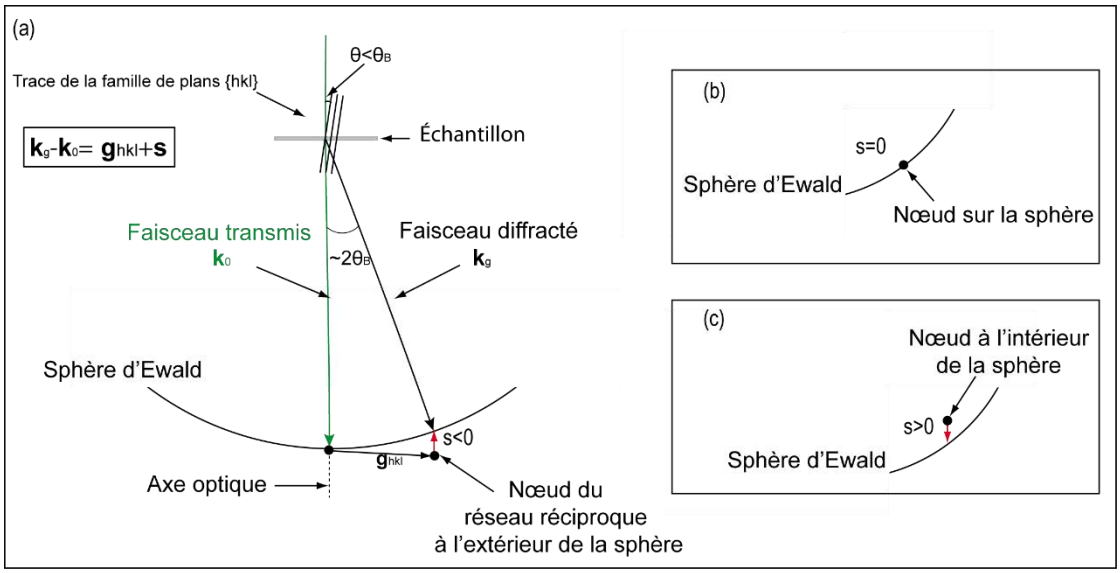


Figure.II.11. Construction d'Ewald dans le cas de la diffraction électronique (a) pour une famille de plans {hkl} en position proche de Bragg pour l'onde incidente (a) s<0, (b) s=0 et (c) s>0 [Figure d'après Morniroli, 1998].

La construction d'Ewald est en effet un moyen de représentation du phénomène de la diffraction prenant en compte à la fois le réseau direct et son réseau réciproque. La figure.II.11 schématise ses principaux éléments :

- une sphère de rayon égal à $\frac{1}{\lambda}$,où λ est la longueur d'onde du faisceau incident.
- Le faisceau transmis (la flèche verte).
- Les plans cristallins (hkl) de l'échantillon qui est placé au centre de la sphère.
- Le réseau réciproque, constitué par des nœuds associés aux familles de plans réticulaires {hkl} (cercles noirs dans la figure.II.11).

Pour obtenir un faisceau diffracté, le cristal doit être, en effet, incliné de façon à ce que les nœuds de son réseau réciproque interceptent la sphère d'Ewald. Ceci correspond à la diffraction de Bragg. En diffraction électronique, deux particularités font que le faisceau diffracté peut être observé selon un angle de diffraction très proche de Bragg :

- La faible valeur de λ, qui rend le rayon de la sphère d'Ewald très grand par rapport à la norme du vecteur de diffraction $\mathbf{g}_{hkl}$.
- La faible épaisseur de l'échantillon MET : les nœuds du réseau réciproque se transforment en domaines de diffraction plus ou moins allongés avec relâchements des conditions de diffraction (la condition de Bragg peut ne pas être parfaitement respectée).

Dans ces conditions proches de Bragg, les nœuds sont situés à une certaine distance caractéristique de la sphère d'Ewald. Cette distance correspond ainsi au vecteur **s** écart de la position exacte de Bragg (paramètre de déviation). Cet écart peut être :

- $s<0$: dans ce cas **s** est dans le sens opposé de $\mathbf{k}_0$. Le nœud est alors situé en dehors de la sphère d'Ewald (figure.II.11.a).
- $s=s_B=0$: ceci correspond à un nœud situé exactement sur la sphère d'Ewald : condition exacte de Bragg (figure.II.11.b).
- $s>0$: **s** est dans la même sens que $\mathbf{k}_0$. Le nœud du réseau réciproque est ainsi situé à l'intérieur de la sphère d'Ewald (figure.II.11.c).

Le paramètre s influe en effet sur la répartition des électrons entre les deux types d'onde de Bloch 1 et 2 [Booker, 1967]. Dans ce sens, le contraste généré d'un pseudo-diagramme de Kikuchi peut être interprété de la façon suivante :

- Pour une déviation légèrement négative $s<0$ (ceci correspond à $\theta<\theta_B$), les ondes de Bloch type 1 sont préférentiellement dominantes. Une forte rétrodiffusion se produit formant ainsi la partie brillante de la pseudo-bande de Kikuchi.
- À la position exacte de Bragg, où $s=0$, les électrons incidents sont divisés équitablement entre les deux types d'ondes de Bloch (type 1 et type2).

- Dans le cas d'une déviation légèrement positive s>0 ($\theta>\theta_B$), les ondes de Bloch type 2 sont majoritaires. La canalisation des électrons est favorisée : le signal BSE décroit formant, ainsi le bord sombre de la pseudo-bande.

L'écart par rapport à la position de Bragg joue également un rôle important pour l'observation des dislocations par ECCI ; les conditions de canalisation pour une famille de plans {hkl}, nécessaires pour contraster ces défauts, sont en effet établies avec un s>0 [Mansour, 2014].

Il convient de noter aussi qu'en fonction de cet écart par rapport à la position de Bragg, une dislocation peut produire différents contrastes (noir/blanc sur un fond sombre, noir sur un fond clair…). Ces contrastes seront interprétés théoriquement et observés expérimentalement, respectivement, dans les chapitres II et III.

I.3.4. Configuration géométrique de l'ECCI

Afin d'observer les dislocations par ECCI, deux configurations géométriques ont été utilisées dans un MEB : une configuration à faible inclinaison *low tilt* et une configuration à forte inclinaison *hight tilt*.

La figure.I.12.a présente la configuration expérimentale de l'ECCI à forte inclinaison. Elle consiste à incliner l'échantillon à plus que 40° par rapport au faisceau incident pour optimiser le rendement en BSE. Le signal ainsi rétrodiffusé est détecté par le *ForScattered electron Detector* (FSD). Ce dernier est inséré face à l'échantillon.

Pitaval *et al.* [Pitaval, 1976] et Morin *et al.* [Morin, 1979], ont été les premiers à avoir utilisé cette configuration pour la caractérisation des défauts cristallins. Ils ont travaillé avec les conditions suivantes : (i) une inclinaison d'environ 50° à 70° (ii) un MEB équipé d'une source à haute énergie pour optimiser la fraction des BSE et (iii) un filtre d'énergie permettant de ne garder que les BSE à haute énergie. Ce filtre a, en effet, conduit à l'amélioration du signal et du contraste de canalisation.

Les équipes de Wilkinson [Wilkinson, 1997] [Wilkinson, 1993] [Trager-Cowan, 2007] et de Twigg [Twigg, 2009] ont adopté, également, cette configuration afin d'analyser les dislocations dans les semi-conducteurs (Si, SiGe/Si et GaN).

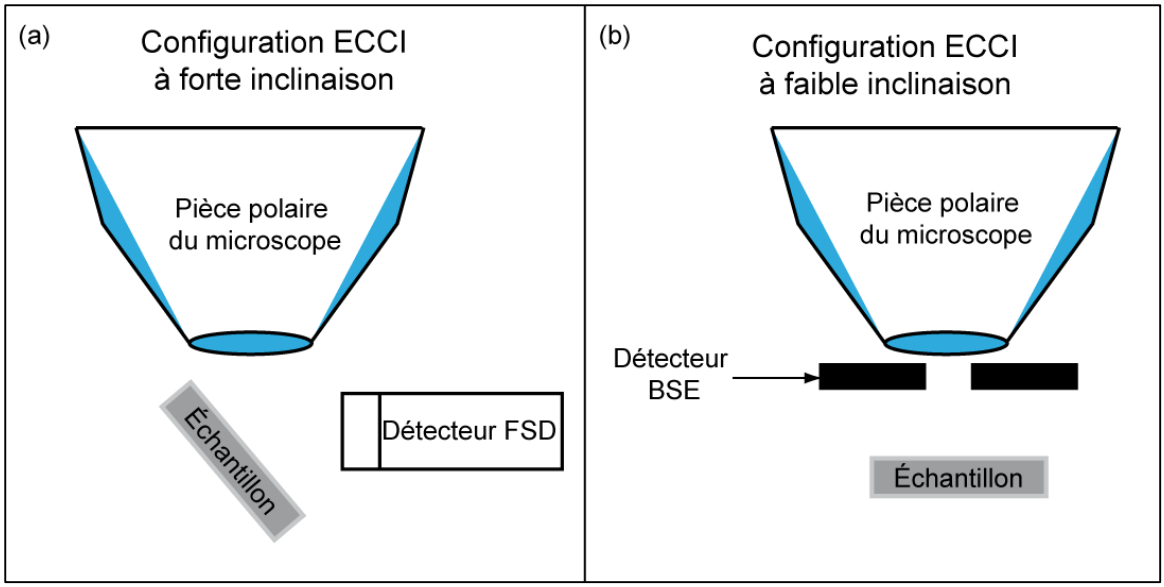


Figure.I.12. Configurations expériementales de l'ECCI à (a) forte et (b) faible inclinaison.

En 1999, Simkin *et al.* [Simkin, 1999] ont démontré que les études ECCI peuvent être réalisées aussi avec une configuration à faible inclinaison. Cette configuration est schématisée par la figure.I.12.b. L'échantillon est placé presque perpendiculairement au faisceau incident d'électrons. Le signal généré est recueilli par un détecteur BSE conventionnel. Ce dernier est constitué par quatre diodes en silicium et positionné en dessous de la pièce polaire.

La configuration à faible inclinaison a été utilisée par Gutierrez-Urrutia *et al.* [Gutierrez-Urrutia, 2009] [Gutierrez-Urrutia, 2013] et Mansour *et al.* [Mansour, 2014] afin d'observer et caractériser finement des défauts cristallins (dislocations, défauts d'empilement, macles…) dans des échantillons massifs d'acier. Ils ont, aussi, utilisé un détecteur BSE conventionnel rétractable.

Les deux configurations citées ci-dessus ont été comparées par Simkin et Crimp [Simkin, 1999]. Pour ce faire, ils ont imagé une même zone d'un échantillon de silicium à faible et forte inclinaison. Afin de garder les mêmes conditions expérimentales, les auteurs ont utilisé un porte-échantillon permettant d'alterner entre les deux géométries.

Les figures.I.13.a et b présentent les micrographies ECC et leurs ECP correspondants, respectivement, pour les configurations à faible et à forte inclinaison. Pour l'ECCI à faible inclinaison (figure.I.13.a), les lignes de dislocations sont clairement identifiables et l'ECP fournit les informations nécessaires pour établir les conditions de canalisation (des bandes de différentes intensités sont identifiées). En revanche, pour l'ECCI à forte inclinaison

(figure.I.13.b), l'image est déformée et les dislocations sont à peine observables avec un très faible contraste. De plus, un ECP déformé et de faible ouverture angulaire a été obtenu. Ces observations ont donc permis de prouver que la meilleure qualité d'image aussi bien que d'ECP est obtenue pour la configuration *low tilt*. Cette dernière géométrie, présente, l'avantage de minimiser l'effet topographique généré par la haute inclinaison lors de l'acquisition d'une l'image.

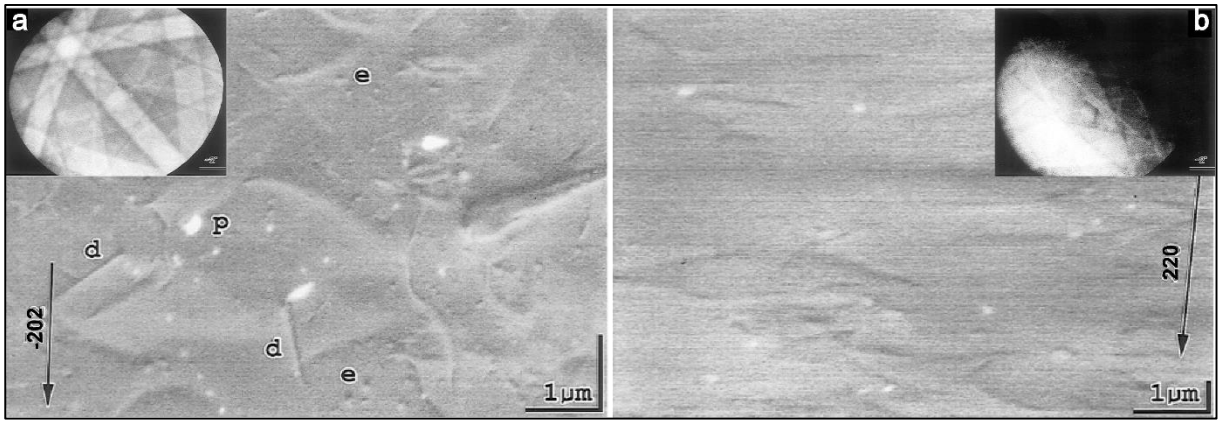


Fig.I.13. Comparaison entre les micrographies ECC et ECP acquis avec (a) la configuration à faible inclinaison et (b) la configuration à forte inclinaison [Figure d'après Simkin, 1999].

Grâce aux progrès que connait continuellement la MEB au fil des années et aux optimisations incessantes des conditions expérimentales, l'ECCI s'est beaucoup améliorée depuis les années 60. Ceci a permis de réaliser des analyses approfondies des contrastes de défauts cristallins. En parallèle à l'évolution de cette technique, des modèles théoriques ont été mis en place pour interpréter quantitativement les différents contrastes d'intensité expérimentaux. Ces modèles, basés sur la théorie développée en MET (cas de lame mince), ont été adaptés dans le cas d'un échantillon massif. Ils ont eu pour objectif de modéliser et/ou simuler le contraste de l'intensité BSE. Certaines approches théoriques seront présentées dans la partie suivante de ce chapitre.

I.4. La théorie dynamique de la diffraction

Les principales théories utilisées pour interpréter les contrastes d'intensité en MET sont la théorie cinématique du contraste [Hirsch, 1960] et la théorie dynamique de la diffraction [Howie, 1961] [Howie, 1962] [Amelinckx, 1970]. La première est une version simplifiée

de la seconde ; elle considère que l'absorption des faisceaux incident et diffracté est négligeable. De plus, elle suppose que l'électron ne diffracte qu'une seule fois lors de sa traversée dans l'échantillon. Cette hypothèse est raisonnable quand l'épaisseur traversée est très faible ou quand le faisceau diffracté est de faible intensité par rapport au faisceau transmis. Quant à la théorie dynamique, elle traite le cas des échantillons relativement épais dans lesquels les électrons sont diffractés plusieurs fois.

De ce contexte, la théorie dynamique de la diffraction a été adaptée pour développer des modèles d'interprétation des contrastes d'intensité expérimentaux produits par des échantillons massifs [Clarke, 1971] [Spencer, 1972] [Wilkinson, 1993] [Reimer, 1998] [Twigg, 2009] [Picard, 2014] [Zaefferer, 2014]. Cette théorie se présente selon deux approches : une approche faisant appel aux ondes de Bloch, et une autre basée sur le principe de l'optique physique. Pour des raisons de simplification des calculs, deux approximations peuvent être ainsi utilisées [Howie, 1968] : l'approximation deux ondes et l'approximation de la colonne.

I.4.1. Approximation deux ondes

À l'approximation deux ondes, en plus de l'onde transmise, une seule onde diffractée est excitée (cf. partie.I.2.2.4). Ce qui permet d'aboutir à des relations mathématiques relativement simples et bien établies. Dans l'étude des échantillons massifs, l'équivalent de cette approximation est d'orienter le cristal de façon à ce qu'une seule famille de plans {hkl} soit en condition de canalisation [Zaefferer, 2014]

La théorie dynamique peut être aussi appliquée dans le cas multi-ondes (cf. partie.I.2.2.4) [Spencer, 1972]. Là, toutes les ondes excitées interagissent. Par conséquent, il semble difficile d'interpréter l'information provenant d'une seule onde sélectionnée, car son intensité est fonction de toutes les autres. Afin d'éviter cette ambiguïté et simplifier les calculs, l'approximation deux ondes est la plus souvent utilisée expérimentalement et théoriquement.

I.4.2. Approximation de la colonne

L'approximation de la colonne consiste à diviser l'échantillon en colonnes étroites, de quelques nm de large, et parallèles à la direction de l'onde incidente. L'intensité générée d'une colonne ne dépend que des évènements diffractant qui ont lieu dans cette même

colonne (aucune interaction avec les colonnes voisines) permettant d'effectuer les calculs suivant une seule direction (généralement la direction des z, normale à la surface de l'échantillon). L'image finale est, donc, une carte d'intensité provenant de toutes les colonnes [Williams, 1996]. L'utilisation de cette approximation dans la MET est justifiée par le fait que les angles de diffraction sont faibles : l'onde diffractée, par la surface inférieure, est presque parallèle à l'onde incidente [Hull, 2001] [De Graef, 2003].

Dans le cas d'un échantillon massif, cette approximation permet aussi d'effectuer les calculs selon une seule direction. En outre, Picard *et al.* [Picard, 2014] ont rapporté que la largeur de la colonne doit être choisie de manière à ce que les électrons diffractés ne la quittent pas le long de la profondeur d'étude. Par conséquent, ils ont suggéré que la largeur de la colonne va être probablement plus grande que celle habituellement utilisée pour les calculs théoriques en MET, et ceci en raison des angles de diffraction plus importants en MEB.

I.4.3. Modèles simplifiés des évènements de la diffusion électronique inélastique : diffusion unique et diffusion multiple

En plus des approximations, citées ci-dessus, d'autres simplifications ont été proposées par Wilkinson *et al.* [Wilkinson, 1997] afin de décrire les différents évènements de la diffusion électronique inélastique à l'intérieur du cristal. Ils ont présenté deux modèles de la diffusion dans lesquels les électrons sont décrits par des fonctions d'ondes de Bloch : le modèle de la diffusion unique (*single scattering*) et le modèle de la diffusion multiple (*multi-sacttering*), schématisés dans la figure.I.14.

La figure.I.14.a illustre le modèle de la diffusion unique. Les flèches épaisses de différentes couleurs indiquent la trajectoire des électrons. Ces particules sont, en effet, retirées du champ d'onde de Bloch primaire soit :

- sous un angle supérieur à 90°, formant une onde rétrodiffusée vers la surface supérieure de l'échantillon (flèches rouges),
- sous un angle inférieur à 90° formant, ainsi, une onde qui se propage vers la surface inférieure de l'échantillon (flèches bleues). Cette onde est appelée l'onde diffusée vers l'avant ou *forward travelling wave* en anglais.

En outre, dans ce même modèle, les électrons peuvent être retirés du champ de l'onde diffusée vers l'avant vers l'onde rétrodiffusée comme l'indique les flèches noires en trait plein (la figure.I.14.a).

Le modèle de la diffusion multiple est présenté par la figure.I.14.b. Il est presque similaire à celui de la diffusion unique. Il inclut en plus des diffusions multiples entre l'onde rétrodiffusée et l'onde diffusée vers l'avant comme l'indiquent les flèches noires : les électrons sont retirés de l'onde diffusée vers l'avant vers l'onde rétrodiffusée (les flèches noires en trait plein), une fraction similaire d'électrons étant retirée dans le sens inverse (flèches noires en trait pointillés).

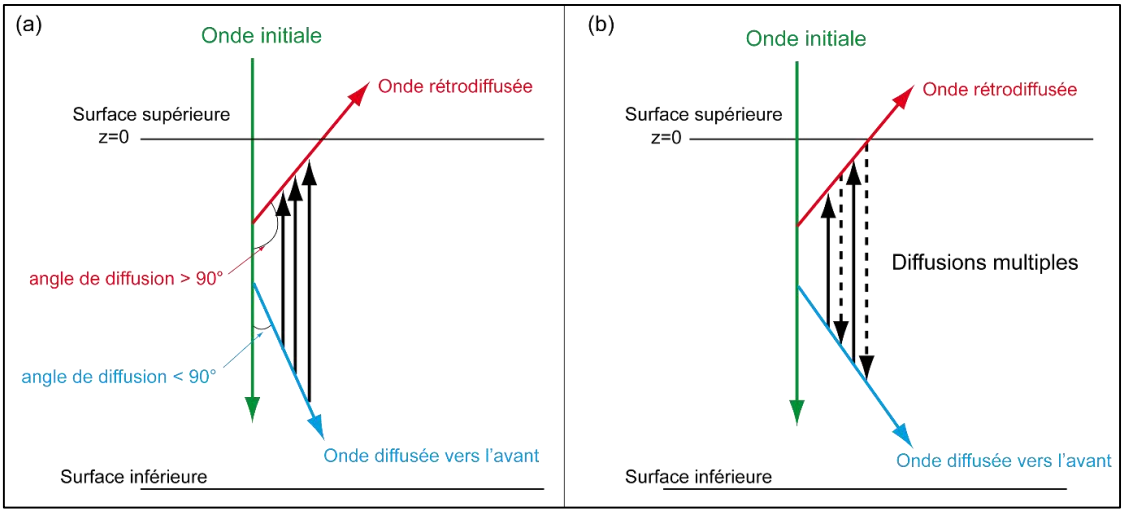


Figure.I.14. Schématisation des modèles de la diffusion : (a) unique et (b) multiple. Les flèches épaisses de différentes couleurs indiquent la trajectoire des électrons.

I.5. Approche « ondes de Bloch »

Comme cela a été mentionné dans la partie.I.3.2.2 de ce chapitre, l'approche ondulatoire consiste à décrire le faisceau des électrons, à l'intérieur du cristal massif, par la superposition d'un ensemble des ondes de Bloch. Les modèles théoriques basés sur cette approche sont présentés dans la partie suivante.

I.5.1. Simulation du profil d'intensité pour un cristal parfait : modèle de Spencer

En 1972, Spencer *et al.* [Spencer, 1972] ont utilisé l'approche des ondes de Bloch afin de simuler les contrastes d'intensité BSE produits par un cristal parfait et imparfait. Ils ont tenu compte de l'approximation multi-ondes et du modèle de la diffusion multiple. Les notations utilisées pour ce modèle sont présentées à la figure.I.15.

L'intensité de la j^{ième} onde de Bloch, nommée $I^{(j)}(z)$, est représentée par la flèche épaisse noire (figure.I.15). Pour un cristal parfait, elle s'écrit [Spencer, 1972] :

$I^{(j)}(z)=I^{(j)}(0)\ e^{(-\mu^{(j)}z)}$

À une tranche d'épaisseur dz située à une profondeur z, les électrons sont retirés du champ d'onde par les évènements de la diffusion inélastique. Ces évènements, sont , en effet, analytiquement mis en évidence par le coefficient d'absorption, $\mu^{(j)}(z)$, dans l'expression de $I^{(j)}(z)$. Ils engendrent des électrons rétrodiffusés (angle de diffusion supérieur à 90°) et des électrons diffusés vers l'avant (angle de diffusion inférieur à 90°), d'intensités respectives $I_B^{(j)}(z)$ (B pour *Backscattered*) et $I_F^{(j)}(z)$ (F pour *Forward scattered*).

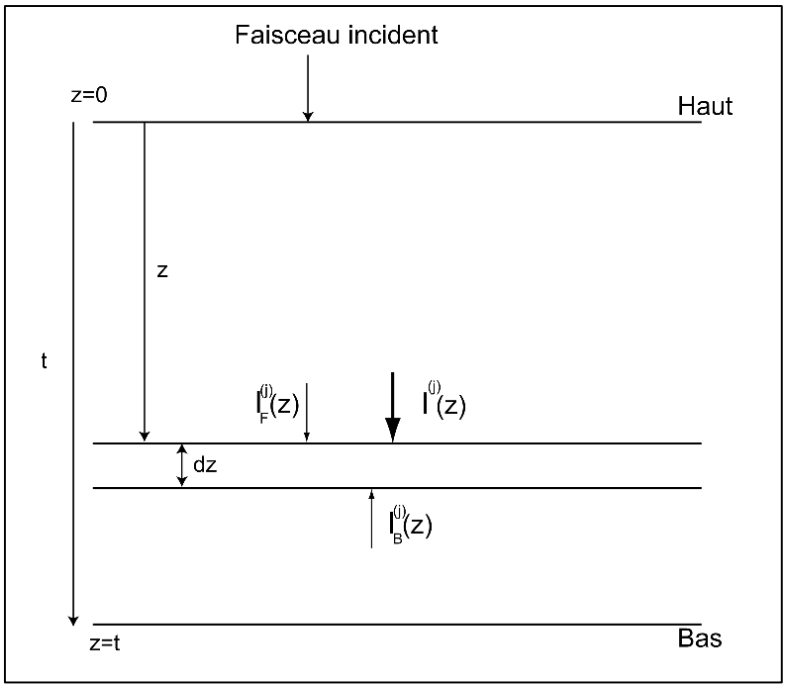


Figure.I.15. Diagramme d'illustration des notations utilisées par Spencer *et al.* [Figure d'après Spencer, 1972].

En se basant sur le diagramme de la figure.I.15, Spencer *et al.* [Spencer, 1972] ont exprimé l'intensité BSE, quittant la surface d'entrée du cristal et issue de la j^{ième} onde de Bloch, $I_B^{(j)}(z=0)$, comme suit [Spencer, 1972] :

$$I_B(0)=\frac{1}{1+p^{(0)}(t)}\left(p^{(0)}(t)+\sum_j I^{(j)}(0)\ \frac{\left(p^{(j)}-p^{(0)}\right)}{\mu^{(j)}}\left(1-e^{(-\mu^{(j)}t)}\right)\right)$$

- $p^{(0)}$ est la fraction d'intensité retirée de $I_F^{(j)}$ et $I_B^{(j)}$.
- $p^{(j)}$ est la fraction d'intensité retirée de $I^{(j)}(z)$.

- t représente l'épaisseur du cristal.

Le coefficient d'absorption a été déterminé à l'aide des paramètres d'absorption donnés par Humphreys et Hirsch [Humphreys, 1968]. Quant aux coefficients $p^{(0)}$et $p^{(j)}$, ils ont été calculés en utilisant l'approximation multi-ondes de la théorie dynamique de la diffraction. Les différents calculs ont permis d'obtenir la variation de l'intensité BSE d'une pseudo-bande de Kikuchi en fonction du vecteur de diffraction **g** comme l'illustre le profil de la figure.I.16.

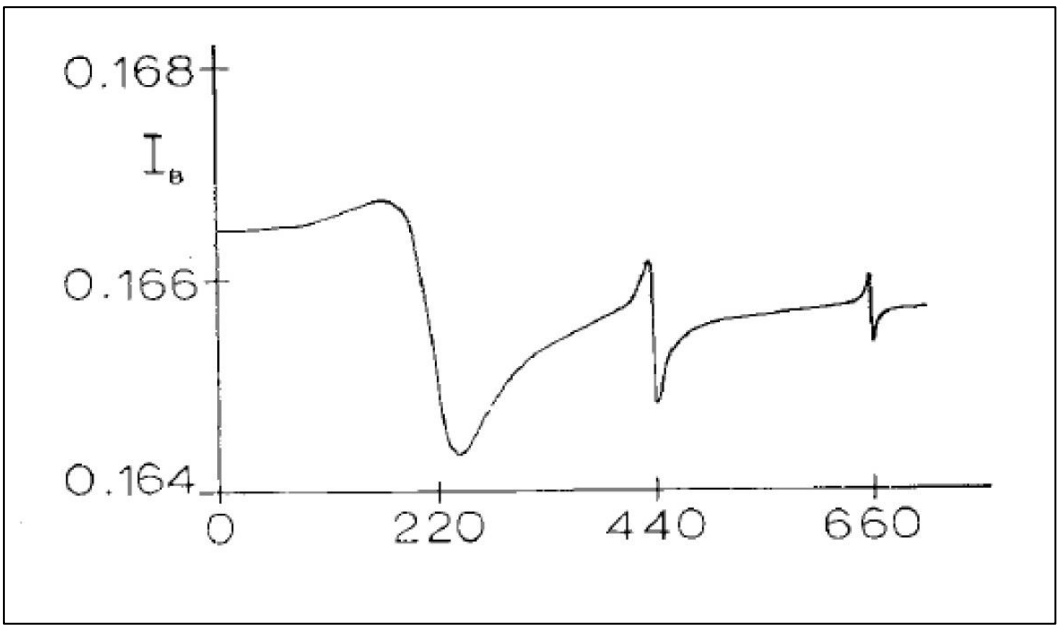


Figure.I.16. Variation de l'intensité BSE en fonction du vecteur de diffraction **g** pour des pseudo-bandes de Kikuchi dans le cas d'un cuivre [Spencer, 1972].

La figure.I.16 présente les profils d'intensité BSE calculés pour des pseudo-bandes de Kikuchi successives (220), (440) et (660). Ils sont obtenus, à une tension d'accélération de 20 kV, dans le cas d'un échantillon massif de cuivre. Les auteurs ont montré que ces profils reproduisent les principales caractéristiques d'un diagramme de canalisation expérimental : la partie centrale de la bande est brillante, le bord de la bande de premier ordre est plutôt large et sombre par rapport aux autres bords d'ordre supérieur.

I.5.2. Simulation du profil d'intensité pour un cristal imparfait : contraste des dislocations

Dans le cas d'un cristal imparfait, Spencer *et al.* [Spencer, 1972] ont supposé qu'en plus de la rétrodiffusion des électrons, la diffusion élastique survenant entre les différents champs d'ondes de Bloch (dite diffusion d'interbranche) participe à la formation du contraste des défauts. De ce fait, ils ont ajouté un terme qui exprime cette diffusion d'interbranche dans l'expression de l'intensité de la $j^{ième}$ onde de Bloch, $I^{(j)}(z)$.

Pour un cristal contenant une dislocation, Spencer *et al.* [Spencer, 1972] n'ont présenté ni le calcul détaillé aboutissant à $I_B^{(j)}(z)$ ni son expression finale. Ils ont en effet mentionné que cette intensité peut être évaluée en utilisant une équation dite l'équation de multi-ondes (prise du livre de Hirsch *et al.* [Hirsch, 1965]) sur laquelle des intégrations numériques doivent être effectuées à l'aide de :

- Soit la routine Runge Kutta : méthode d'analyse numérique permettant de résoudre les équations différentielles. Son principe consiste à utiliser la première estimation de la solution pour calculer une seconde estimation plus précise est ainsi de suite [Abramowitz, 1964] [Jedrzejewski, 2005].
- Soit la méthode de Simpson : cette méthode consiste à remplacer une fonction donnée par un polynôme de degré 2 sur un intervalle défini. Ce dernier est subdivisé en n sous intervalles, de longueur donnée, où le polynôme sera intégré [Jedrzejewski, 2005].

I.5.2.1. Effet de g·b sur le contraste des dislocations

Les différents calculs ont permis à Spencer *et al.* [Spencer, 1972] de simuler des profils d'intensité BSE pour des dislocations vis et coin. La figure.I.17 présente les profils simulés, en condition exacte de Bragg, pour une dislocation vis.

Les figures.I.17.a et b présentent, respectivement, la variation de l'intensité BSE en fonction de la distance à partir du cœur de la dislocation, pour deux conditions de diffraction : $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=1$ et $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=2$. Rappelons que **g** est le vecteur de diffraction et **b** le vecteur de Burgers. Pour la première condition de diffraction ($\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=1$), la courbe est symétrique par rapport au cœur de la dislocation (situé à l'origine des axes). Elle comporte un pic et un creux d'intensité. Pour $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=2$, la même allure de courbe est obtenue. En revanche, une oscillation supplémentaire d'épaisseur 4 nm environ, est visible presque au milieu du profil.

Il est à noter qu'aucune explication n'a été accordée à cette oscillation. Par ailleurs, les auteurs ont rapporté (sans le démontrer) que le contraste obtenu s'inverse avec l'inversion de signe de **g** (où le pic devient creux et vice versa), et qu'aucun contraste ne se produit pour les conditions **g**·**b** =0 et **g**·**b**∧**u** =0.

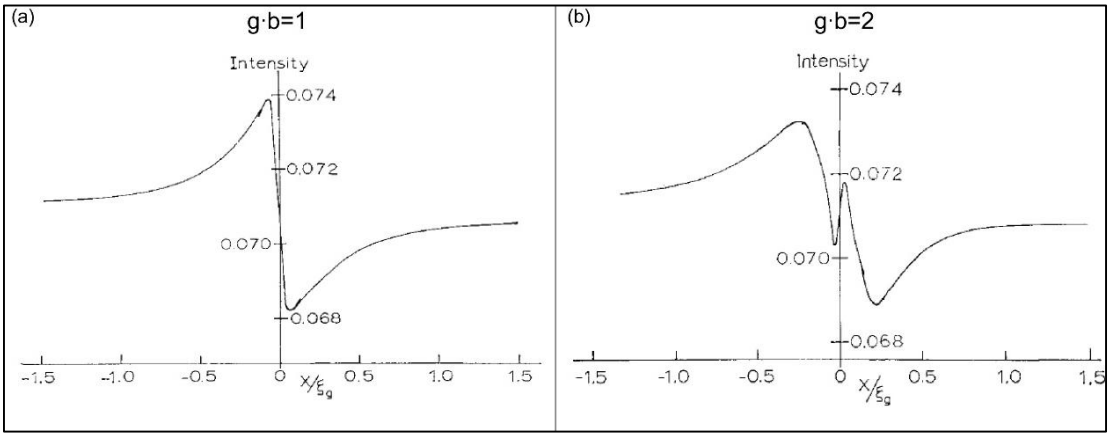


Figure.I.17. Profils d'intensité, pour une dislocation vis, obtenus en condition exacte de Bragg pour (a) **g**·**b**=1 et (b) **g**·**b**=2 [Spencer, 1972].

Quelques années plus tard, le modèle théorique, présenté ci-dessus, a été adapté par l'équipe de Wilkinson *et al.* [Wilkinson, 1993], appartenant à la même université d'Oxford que Spencer. Ils ont ainsi étudié les différents facteurs expérimentaux qui influent sur le contraste des dislocations, à savoir le paramètre d'inclinaison ω [Wilkinson, 1993], les relaxations surfaciques [Wilkinson, 1995] et la tension d'accélération E [Wilkinson, 1997].

I.5.2.2. Effet du paramètre d'inclinaison ω sur le contraste des dislocations

Les profils d'intensité BSE, présentés par la figure.I.18, sont calculés dans le cas de dislocations vis pour différents ω. Rappelons que ω correspond à la déviation du faisceau incident par rapport à la condition exacte de Bragg. Le contraste maximal de l'image de la dislocation est obtenu en condition exacte de Bragg (ω=0). Lorsque ω devient de plus en plus négatif, le contraste diminue tandis que le niveau du bruit de fond (l'intersection de la courbe avec l'axe des ordonnées) augmente (le fond devient clair). Au fur et à mesure que ω devient positif, une diminution du niveau de bruit de fond (fond sombre) ainsi que du contraste se produit. À partir de ω=0,8 les auteurs ont rapporté une inversion du contraste : l'image de la dislocation qui était initialement noire devient blanche. Un comportement similaire des contrastes d'intensité BSE de dislocations coin a été rapporté.

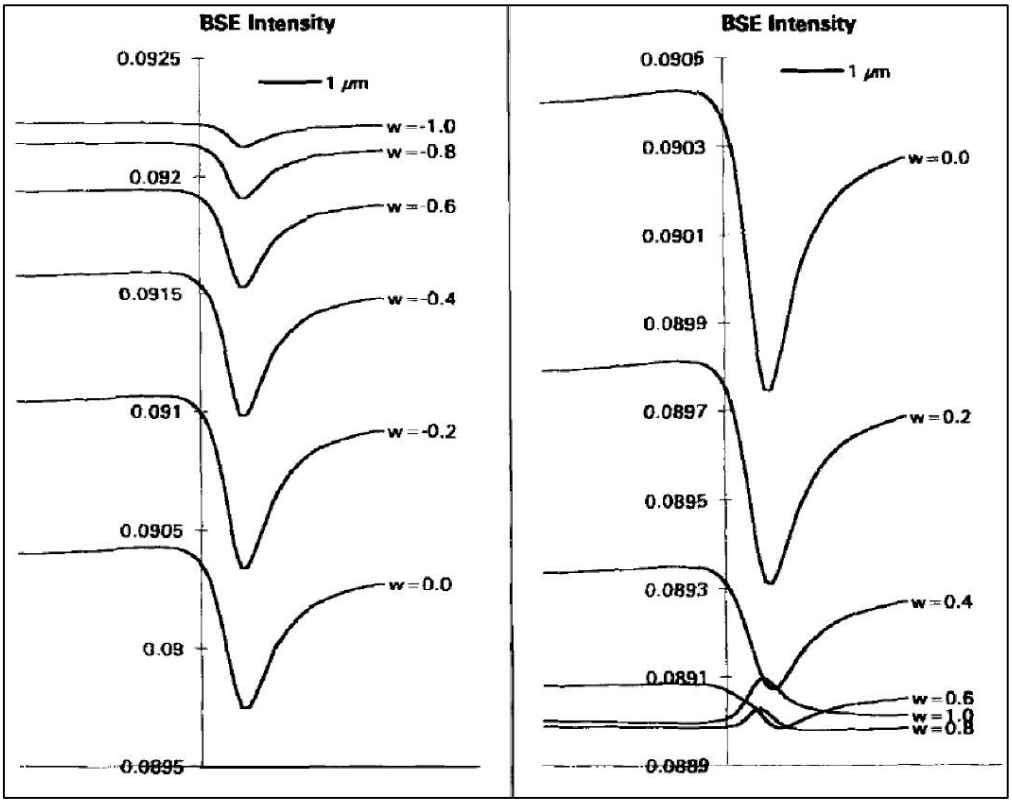


Figure.I.18. Effet de la déviation par rapport à la position de Bragg sur les profils d'intensité BSE calculés pour des dislocations vis [Wilkinson, 1993].

I.5.2.3. Effet de la relaxation des contraintes surfaciques sur le contraste des dislocations

Comme il a été mentionné dans la partie.I.2.1 de ce chapitre, les dislocations sont influencées par les relaxations des contraintes surfaciques. Ce phénomène génère une modification du champ de déplacement **R**. Le contraste s'en trouve alors modifié comme l'illustre la figure.I.19. Cette dernière comporte deux profils d'intensité superposés :

- Un profil en pointillés. Il ne met en évidence que le contraste de l'intensité BSE produit par la déformation locale des plans cristallins.
- Un profil en trait plein où les effets de la relaxation des contraintes surfaciques sur le contraste de l'intensité BSE sont en plus pris en compte.

Les deux courbes sont simulées pour une dislocation coin proche de la surface (située à une profondeur de quelques dixièmes de distance d'extinction, soit $0{,}2\xi_g$) et de vecteur de Burgers parallèle à la surface.

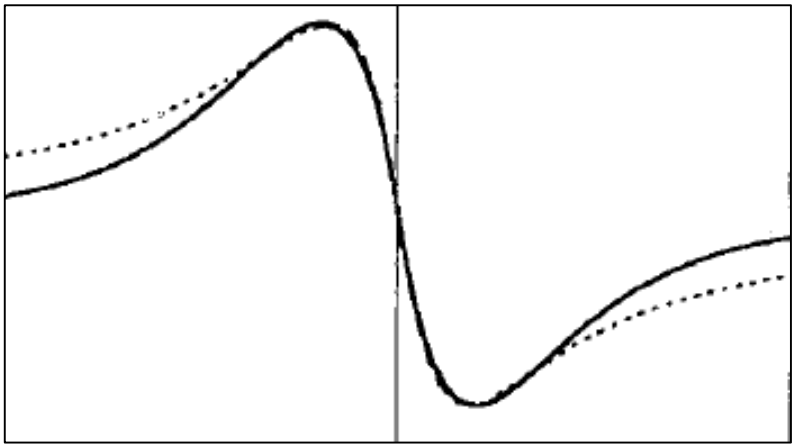


Figure.I.19. Profils d'intensité calculés pour une dislocation coin située à une profondeur $0{,}2\xi_g$ sous la surface. La courbe en pointillés ne met en évidence que les effets de la déformation locale des plans cristallins sur le contraste d'intensité BSE. La courbe en trait plein tient compte à la fois des effets de la déformation locale et de ceux de la relaxation des contraintes surfaciques sur le contraste [Wilkinson, 1995].

Aucune différence d'allure n'est constatée entre les deux profils au niveau du centre de l'image de la dislocation, contrairement aux flancs. De ce fait, Wilkinson *et al.* [Wilkinson, 1995] ont conclu que les effets de la relaxation surfacique sont plus importants loin du cœur de la dislocation ; proche du cœur du défaut, la déformation des plans cristallins est, en effet, très importante ce qui rend les effets surfaciques négligeables sur le contraste.

Dans le même article, Wilkinson *et al.* [Wilkinson, 1995] ont étudié l'influence de ces relaxations surfaciques sur le contraste d'une dislocation située plus profondément par rapport à la surface. Pour ce faire, ils ont simulé les profils d'intensité BSE pour une dislocation coin située à une profondeur de 1 µm en dessous de la surface comme le montre la figure.I.20. Les mêmes codes de traçage des courbes que ceux de la figure.I.19 ont été utilisés. Dans le cas où les relaxations surfaciques sont prises en compte (courbe en trait plein), le profil montre un large creux et un large pic d'intensité. Cependant, dans le cas contraire, un profil anti-symétrique de très faible contraste inversé est obtenu (courbe en trait interrompu).

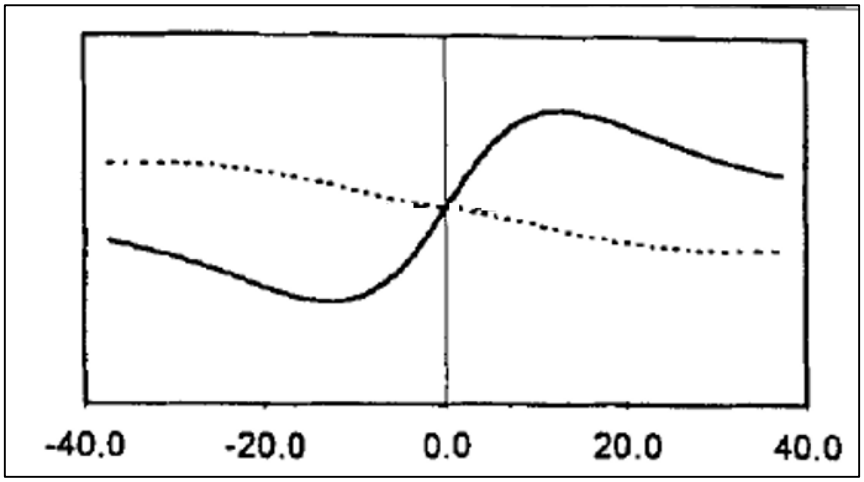


Figure.I.20. Profils d'intensité calculés pour une dislocation coin située à une profondeur de 1 μm en dessous de la surface. La courbe en pointillé et celle en trait plein présentent, respectivement, le profil ne tenant compte que de l'effet du champ de déplacement et le profil tenant compte en plus de l'effet de la relaxation des contraintes surfaciques [Wilkinson, 1995].

À partir de ces constatations, les auteurs ont conclu que les effets des relaxations surfaciques sont négligeables pour une dislocation située à quelques dixièmes de distance d'extinction ξ_g en dessous de la surface. En revanche, et de façon surprenante, ces effets s'accentuent pour une dislocation plus profonde (au-delà de ξ_g). Ils doivent donc être pris en compte lors du calcul des profils d'intensité.

I.5.2.4. Effet de de la tension d'accélération sur le contraste des dislocations

Les profils d'intensité de la figure.I.21 sont calculés pour une dislocation vis, parallèle à la surface. Ils sont obtenus pour $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=1$ pour différentes tensions d'accélération E=100 kV, E=30 kV et E=5 kV. Ces trois courbes théoriques comportent chacune un pic et un creux d'intensité (même allure que les profils de la figure.I.17). Cependant, elles ne présentent pas la même largeur de l'image de la dislocation. Cette dernière diminue avec la diminution de E de 100 kV à 5 kV. En outre, Wilkinson *et al.* [Wilkinson, 1997] ont rapporté que pour une faible tension E, une inversion du contraste de la dislocation se produit (le creux devient pic et vice versa) comme le montre la figure.I.21.c. De même, ils ont montré que cette inversion se produit, également, suite à l'augmentation de la profondeur de la dislocation.

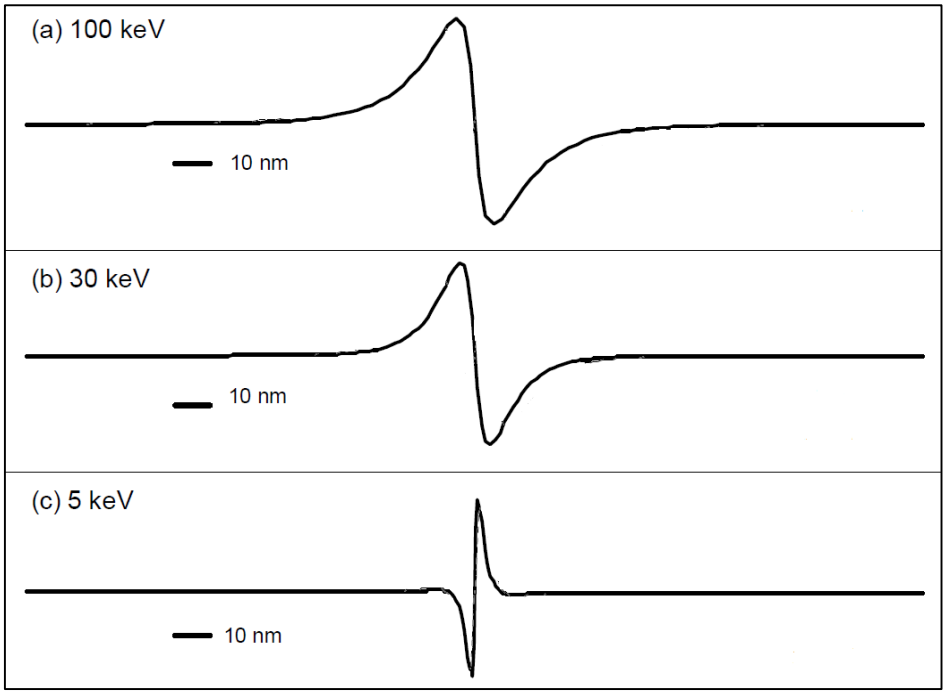


Figure.I.21. Profils d'intensité simulés, pour une dislocation vis avec différentes valeurs de la tension d'accélération (a) E=100 kV, (b) E=30 kV et (c) E=5 kV [Wilkinson, 1997].

En résumé, ce modèle théorique, basé sur l'approche des ondes de Bloch de la théorie dynamique de la diffraction a permis de montrer que :

- Pour un cristal parfait le modèle théorique conforte les principales caractéristiques expérimentales d'un diagramme de canalisation.
- Les simulations des profils d'intensité pour une dislocation, vis ou coin, en condition de Bragg, présentent un creux et un pic d'intensité. En revanche, pour $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}$ =2, ces profils comportent, au milieu de la courbe, une oscillation supplémentaire d'épaisseur 4 nm environ.
- Le contraste d'une dislocation s'inverse en passant d'un paramètre d'inclinaison négatif à un paramètre positif (la dislocation noire devient blanche).
- Pour des faibles tensions d'accélération le contraste de la dislocation s'inverse aussi (le creux devient pic et vice versa).
- L'effet des relaxations des contraintes surfaciques est négligeable pour une dislocation proche de la surface (située à quelques dixièmes de distance d'extinction de la surface libre).

En dépit de l'apport de Spencer et Wilkinson dans la théorie des contrastes d'intensité BSE produits par un cristal parfait et imparfait, leur approche ne traite pas les points suivants :

(1) Un calcul détaillé et une expression analytique de la variation du signal BSE en fonction de l'orientation du cristal.
(2) Des profils d'intensité BSE montrant l'inversion du contraste des dislocations avec l'inversion de signe de **g**.
(3) Une interprétation de l'oscillation supplémentaire apparue au milieu du profil pour **g**·**b** =2.
(4) Confrontation des résultats théoriques aux micrographies ou profils expérimentaux.

I.5.3. Modélisation du profil d'intensité BSE pour un cristal parfait : modèle de Reimer

Reimer [Reimer, 1998] a également utilisé la théorie dynamique de la diffraction pour modéliser des profils de contrastes d'intensité BSE produits par un cristal parfait. Il a utilisé l'approche des ondes de Bloch en considérant que les diffusions multiples intermédiaires sont incohérentes. Son modèle se base sur l'équation de Schrödinger indépendante du temps pour une particule libre de masse m [Reimer, 1998] :

$$\left[-\frac{h^2}{8\pi^2 m}\nabla^2+V(\mathbf{r})\right]\Psi(\mathbf{r}) = U\,\Psi(\mathbf{r})$$

Entre crochets, le premier terme (facteur de l'opérateur Laplacien ∇^2) représente l'énergie cinétique des électrons primaires où h est la constante de Planck, $V(\mathbf{r})$ est l'énergie potentielle et **r** est le vecteur position spatiale de la particule. U et Ψ sont, respectivement, l'énergie totale et la fonction d'onde des électrons.

En se basant sur cette approche ondulatoire, l'auteur a résolu l'équation de Schrödinger moyennant certaines approximations. Ce qui lui a permis, par la suite, d'obtenir une expression analytique de la variation du coefficient des électrons rétrodiffusés, Δη, en fonction du paramètre d'inclinaison, ω, dans le cas d'un cristal parfait [Reimer, 1998] :

$$\Delta\eta = \frac{N\sigma_B}{4\pi}\,\xi_0'\left(-\frac{\omega+\frac{\xi_0'}{\xi_g'}}{1+\omega^2-\left(\frac{\xi_0'}{\xi_g'}\right)^2}+\frac{\omega}{1+\omega^2+\left[(1+\omega^2)\left(\frac{\xi_0'}{\xi_g}\right)\right]^2}\right)$$

Où Δ indique que seule la partie d'intensité BSE due au contraste d'orientation est calculée, tandis que les contributions du nombre atomique ou de l'inclinaison de surface ne sont pas prises en compte. N est le nombre d'atomes par unité de volume, σ_B est la section efficace de diffusion pour les rétrodiffusions avec des angles supérieurs à 90° et ξ_g est la distance

d'extinction de l'onde diffractée. $\xi_0^{'}$ et $\xi_g^{'}$ sont les longueurs caractéristiques d'absorption, elles sont dues aux diffusions inélastiques (quelques valeurs de $\xi_0^{'}$ et $\xi_g^{'}$ sont données en annexe).

Il convient de noter que le calcul détaillé correspondant à ce modèle sera présenté dans le chapitre suivant. Nous lui accordons, en effet, une attention particulière car il est le point de départ du développement de notre modèle théorique.

La courbe de $\Delta\eta = f(\omega)$ est présentée par la figure.I.22, rappelons que ω est le paramètre d'inclinaison par rapport à la position de Bragg ($\omega = s\,\xi_g = g(\theta-\theta_B)\xi_g$). Elle montre que pour des valeurs négatives de ω, une rétrodiffusion intense se produit. Quand ω tend vers zéro, l'intensité BSE passe rapidement d'une valeur maximale à une valeur minimale, où il n'y a que très peu de rétrodiffusion. Pour ω légèrement supérieur à zéro, le signal BSE passe par un minimum : ω_c où l'indice c désigne la canalisation. Ces différentes modulations du signal ainsi générées forment la moitié d'un profil d'intensité d'une pseudo-bande de Kikuchi isolée. Le profil total est obtenu en traçant le symétrique de la courbe par rapport à l'axe des ordonnées.

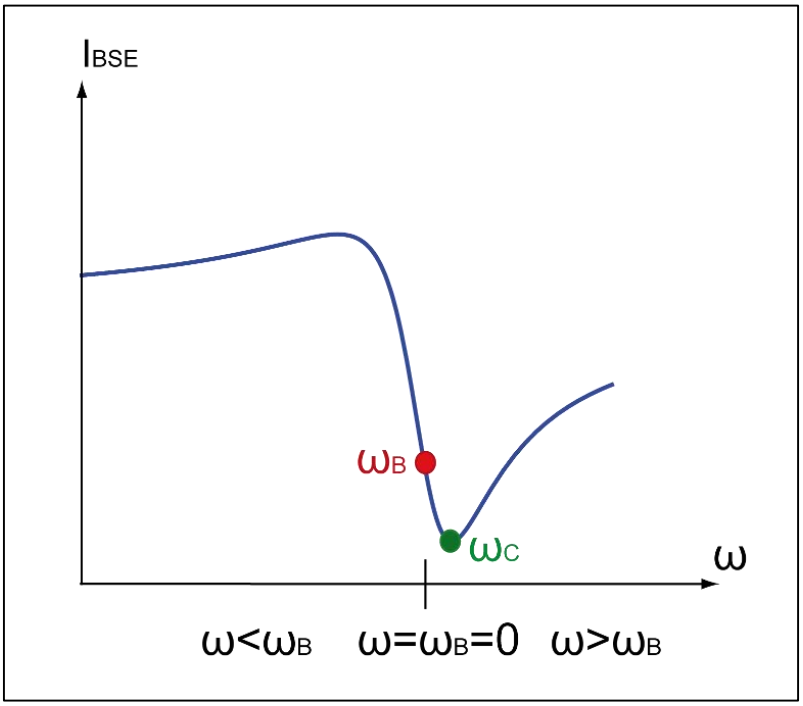


Figure.I.22. Variation du signal BSE en fonction du paramètre d'inclinaison ω. La condition de Bragg et de canalisation correspondent, respectivement, à $\omega = \omega_B = 0$ et ω_c.

I.5.4. Modélisation du profil d'intensité d'un cristal imparfait

En 2014, Zaefferer et Elhami [Zaefferer, 2014] ont étendu le modèle de Reimer au cas d'un cristal imparfait contenant un défaut d'empilement situé à une profondeur z_{SF}. Dans ce cas, les auteurs ont considéré que les colonnes atomiques au-dessus et en dessous du plan de ce défaut sont décalées les unes par rapport aux autres. Pour des raisons de simplification, ils ont supposé que ce décalage vaut la moitié d'un plan atomique, comme le montre le schéma de la figure.I.23.

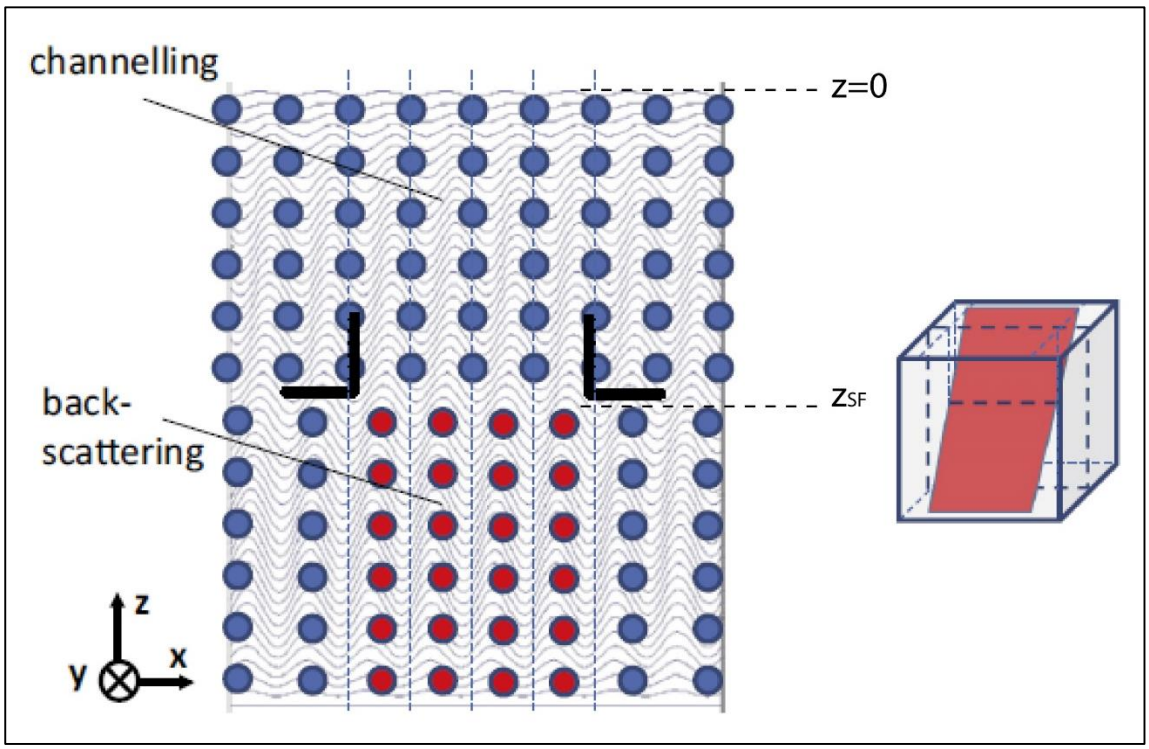


Figure.I.23. Schéma d'un défaut d'empilement situé à une profondeur z_{SF} en dessous de la surface. Les cercles bleus et rouges représentent, respectivement, les plans atomiques loin et au voisinage du défaut. Les champs des ondes de Bloch sont indiqués par les profils sinusoïdaux [Figure d'après Zaefferer, 2014].

Dans la figure.I.23, les cercles de couleurs bleus et rouges représentent, respectivement, les plans atomiques loin et au niveau du défaut d'empilement. Les profils sinusoïdaux schématisent les champs des ondes de Bloch. À partir de la surface (z=0) jusqu'à la profondeur z_{SF}, le cristal est non déformé, la densité des électrons est importante entre les colonnes atomiques (l'onde de Bloch de type 1 est dominante). Ceci montre que cette partie du cristal est en condition de canalisation ($\omega=\omega_C$). En revanche, au voisinage du défaut (à partir d'une profondeur z_{SF}), le cristal est déformé. Les électrons sont ainsi en interaction

avec les atomes (l'onde de Bloch de type 2 est majoritaire). Il en résulte une forte rétrodiffusion ($\omega<\omega_B$).

Dans ce contexte, les auteurs ont rapporté que l'intensité des BSE provenant d'un défaut d'empilement à une position x donnée et à une profondeur z_{SF} peut être calculée comme suit :

$$\Delta\eta\ (x\ (z_{SF}))=\Delta\eta(\omega_C)|_0^{z_{SF}}+\Delta\eta(\omega<\omega_B)|_{z_{SF}}^{\infty}$$

Le coefficient des BSE, $\Delta\eta$, est la somme de deux termes :

- Le premier terme correspond au signal des BSE produit par le cristal parfait en condition de canalisation : ω_C.
- Le deuxième terme désigne le signal BSE provenant du défaut ($\omega<\omega_B$). En revanche, la déformation générée par le défaut d'empilement n'y est pas explicitée.

Le profil résultant est présenté par la figure.I.24.a.

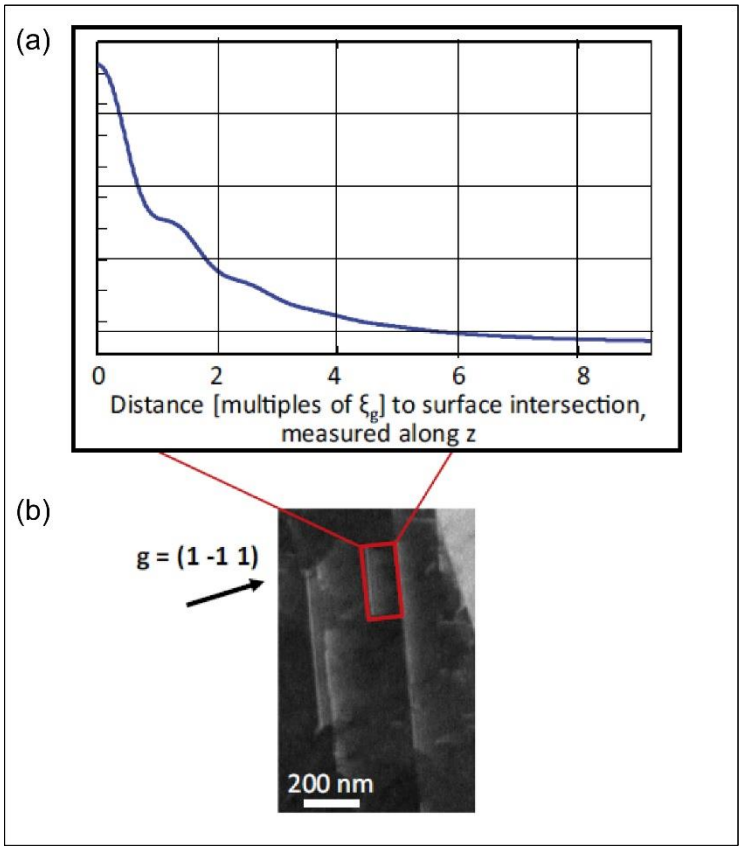


Figure.I.24. (a) Profil d'intensité BSE calculé pour un défaut d'empilement. (b) Micrographie ECC du défaut d'empilement observé pour **g**= (1-11) [Zaefferer, 2014].

Le contraste calculé commence par un maximum d'intensité (figure.I.24.a) correspondant à l'intersection du défaut d'empilement avec la surface de l'échantillon : ceci est mis en

évidence par la ligne brillante sur l'image expérimentale (figure.I.24.b). Ensuite, ce contraste décroit rapidement avec des faibles oscillations.

En ce qui concerne les dislocations, Zaefferer *et al.* [Zaefferer, 2014] ont supposé, mais sans le démontrer, que leur contraste est similaire à celui d'un défaut d'empilement, mais confiné à une largeur (dans la direction d'axe des x) beaucoup plus étroite.

Pour résumer, Reimer a développé un modèle théorique qui a permis de :

- Exprimer analytiquement et par un calcul détaillé $\Delta\eta$ en fonction de ω.
- Modéliser le profil d'intensité BSE pour une pseudo-bande de Kikuchi (cas du cristal parfait).

Ce modèle a été adapté, par la suite, dans le cas d'un cristal contenant un défaut d'empilement. Cependant, l'effet de la déformation engendrée par ce défaut, n'a pas été explicitement présenté dans l'expression finale du signal BSE total.

De ce fait, plusieurs aspects fondamentaux restent à éclaircir, parmi lesquels, on peut lister :

(5) Une expression analytique de l'intensité BSE dans laquelle l'effet du défaut cristallin est présenté explicitement.

(6) L'étude de l'influence de l'épaisseur d'un échantillon sur le signal BSE pour un cristal parfait.

(7) La modélisation des profils d'intensité des dislocations en différentes conditions de diffraction (profils pour $\pm\mathbf{g}$ par exemple).

(8) Confrontation des résultats théoriques avec ceux obtenus expérimentalement.

I.6. Approche optique

L'approche optique a été développée par les physiciens Howie et Whelan dans les années 60 [Howie, 1961] [Howie, 1962]. Elle consiste à traiter la propagation des électrons dans le matériau selon le principe de Huygens et Fresnel, comme le montre la figure.I.25. Cette dernière schématise l'arrangement linéaire des atomes dans une couche d'épaisseur dz située à une profondeur z. Chaque atome, atteint par l'onde incidente (flèche bleue), se comporte comme une source secondaire d'ondes sphériques. Les ondes ainsi émises interfèrent et forment l'onde diffractée. La sommation des toutes les diffractions successives sur toute l'épaisseur du cristal permet d'obtenir l'intensité diffractée en un point P situé sur la surface de sortie.

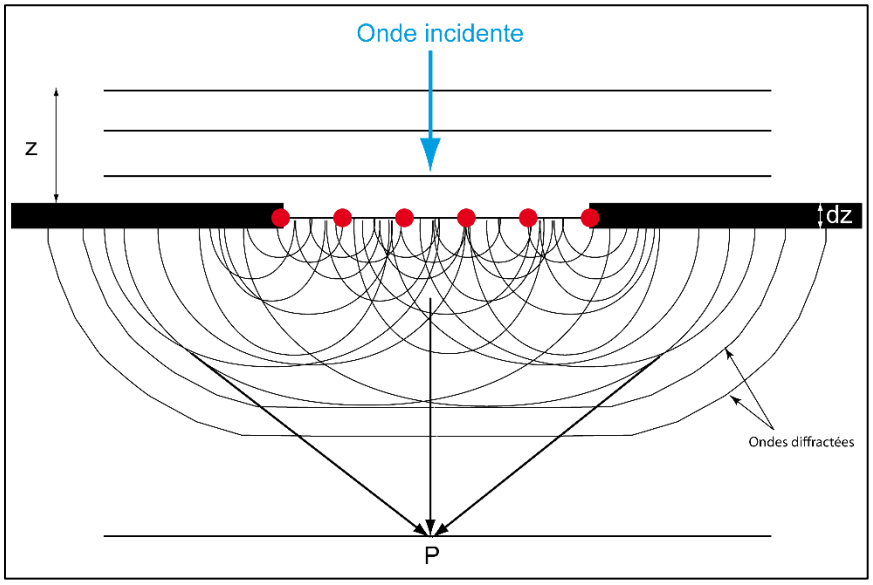


Figure.I.25. Principe de la diffraction de Huygens et Fresnel.

En se basant sur ce principe de la diffraction, le bilan de la contribution à l'intensité diffractée par une tranche d'épaisseur dz, située à une profondeur z, peut être exprimé par le système d'équations suivantes :

$$\frac{d\Phi_g}{dz} = \frac{\pi i}{\xi_g}\,\Phi_0\, e^{[-2\pi i s z]} + \frac{\pi i}{\xi_0}\,\Phi_g$$

$$\frac{d\Phi_0}{dz} = \frac{\pi i}{\xi_g}\,\Phi_g\, e^{[-2\pi i s z]} + \frac{\pi i}{\xi_0}\,\Phi_0$$

Φ_0 et $\Phi_\mathbf{g}$ sont, respectivement, l'amplitude de l'onde primaire et l'onde diffractée. À chaque onde correspond une distance d'extinction ξ_0 et ξ_g. s représente la déviation de l'onde primaire par rapport à la position exacte de Bragg et i est l'unité imaginaire.

Ces équations différentielles, appelées équations de Howie et Whelan, décrivent l'équilibre dynamique entre l'onde directe et l'onde diffractée dans le cas d'un cristal parfait [Howie, 1961].

Elles peuvent être étendues à un cristal imparfait en tenant compte du champ de déplacement **R** associé au défaut [Howie, 1961] :

$$\frac{d\Phi_g}{dz} = \frac{\pi i}{\xi_g}\,\Phi_0\, e^{[-2\pi i(sz+\mathbf{g}\cdot\mathbf{R})]} + \frac{\pi i}{\xi_0}\,\Phi_g$$

$$\frac{d\Phi_0}{dz} = \frac{\pi i}{\xi_g}\,\Phi_g\, e^{[-2\pi i(sz+\mathbf{g}\cdot\mathbf{R})]} + \frac{\pi i}{\xi_0}\,\Phi_0$$

Dans le but de simuler le contraste des dislocations traversantes (quasi perpendiculaires à la surface), l'équipe de Picard a eu recours à cette approche optique [Twigg, 2009]. Ils ont

intégré numériquement les équations de Howie et Whelan par l'approche matricielle de diffusion de Sturkey en tenant compte du modèle de la diffusion multiple [Sturkey, 1962] [Wilkinson, 1997].

Les résultats de leurs calculs sont présentés par la figure.I.26 : images de dislocations simulées pour différentes déviations angulaires par rapport à la position de Bragg. Pour une déviation angulaire positive, la dislocation génère un contraste noir/blanc qui s'inverse dans le cas d'une déviation négative (blanc/noir). En position exacte de Bragg, la dislocation apparait sous forme de deux petits taches blanches séparées par une ligne noire. Les auteurs, ont rapporté que cette approche fournit une correspondance étroite entre les contrastes simulés et ceux obtenus expérimentalement (micrographies ECC).

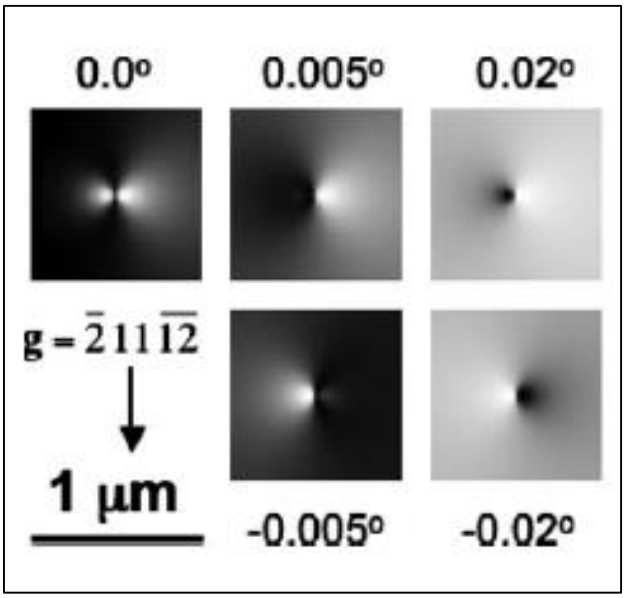


Figure.I.26. Images simulées des dislocation traversantes pour différentes déviations angulaires par rapport à la position de Bragg [Twigg, 2009].

En 2014, Picard *et al.* [Picard, 2014] ont développé un algorithme, basé sur une description matricielle de la diffraction dynamique des électrons, qui leur a permis de résoudre les équations différentielles d'Howie-Whelan citées ci-dessus.

À partir de cet algorithme les auteurs ont simulé, dans un premier temps, des images de contraste de canalisation des électrons (ECP). Un exemple d'un pseudo-diagramme simulé est présenté par la figure.I.27. Les auteurs ont rapporté que l'excellent accord entre le cliché simulé et celui obtenu expérimentalement permet de mesurer quantitativement la

déformation élastique : toutes distorsions au niveau des lignes, formant le cliché, peuvent être reliées à la déformation du cristal.

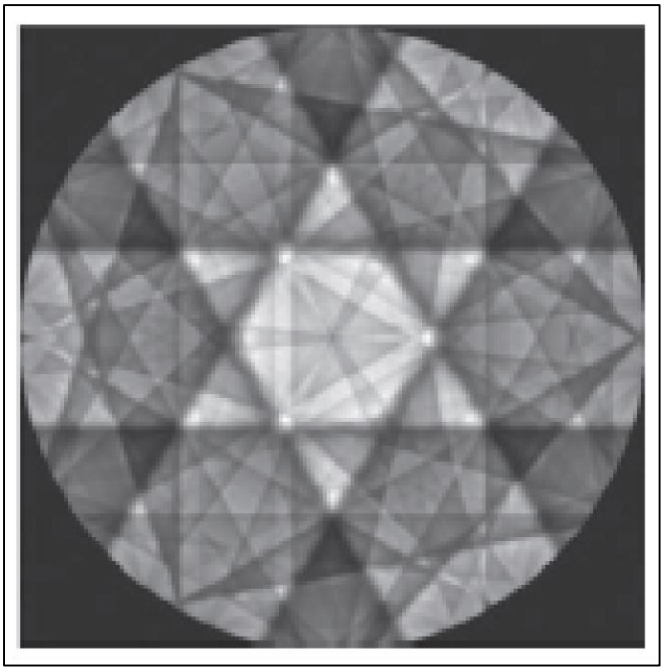


Figure.I.27. Pseudo-diagramme de Kikuchi simulé dans le cas d'un échantillon d'Al [111] pour une tension d'accélération E=18 kV [Figure d'après Picard, 2014].

Ensuite, ce même algorithme a été appliqué dans le cas d'un cristal contenant des dislocations quasi-perpendiculaires à la surface. Les images des dislocations ainsi obtenues sont similaires à celles présentées par la figure.I.26.

I.7. Conclusion

L'influence incontestable et importante des dislocations sur les propriétés des matériaux a amené au développement de méthodes pour les observer et les caractériser. Parmi ces méthodes d'observation nous avons présenté la méthode d'attaque surfacique, la méthode de la décoration, la topographie des rayons X et les techniques de la microscopie électronique MET et MEB. Dans un MEB, les dislocations sont observées et caractérisées à l'aide de l'ECCI. Cette dernière sera utilisée dans cette thèse afin de contraster les défauts cristallins. Nous avons, alors, présenté l'état de l'art sur le mécanisme de canalisation et les différentes configurations géométriques de l'ECCI.

Avec l'évolution des MEB et des détecteurs, au fur et à mesure de l'amélioration des conditions expérimentales pour réaliser des expériences ECCI, des modèles théoriques ont été développés pour interpréter les différents contrastes d'intensité BSE générés par des échantillons massifs. Ces modèles sont, en effet, basés sur l'approche ondulatoire ou l'approche optique de la théorie dynamique de la diffraction.

L'approche ondulatoire a permis, par exemple, à l'équipe de Spencer et à celle de Wilkinson de développer des simulations du contraste d'intensité BSE produits par des échantillons massifs cristallins parfaits ou imparfaits. Toutefois, il faut signaler que certains points fondamentaux n'ont été pas abordés à savoir :

- Un calcul détaillé et une expression analytique de la variation du signal BSE en fonction des paramètres expérimentaux.
- Des profils d'intensité BSE montrant l'inversion du contraste des dislocations avec l'inversion de signe de **g**.
- La confrontation des résultats théoriques aux micrographies ou profils expérimentaux…

D'autre part, Reimer a tiré profit de l'approche ondes de Bloch afin de modéliser le profil d'intensité BSE pour un cristal parfait. Ensuite, ce même modèle a été étendu par Zaefferer et Elhami à un cristal contenant un défaut d'empilement.
En ce qui concerne l'approche optique, elle a été utilisée par l'équipe de Picard, pour simuler des images des dislocations traversantes, aussi bien que des clichés de canalisation.

Dans cette thèse, nous proposons de présenter les différents aspects fondamentaux, non abordés par la littérature, par le développement d'une approche théorique originale et simple permettant d'établir une expression analytique de l'intensité BSE en fonction des différents paramètres physiques gouvernant une expérience ECCI (chapitre II). Dans un deuxième temps et afin de comprendre les mécanismes de formation des images ECC des dislocations, nous confrontons nos résultats expérimentaux aux profils théoriques obtenus. L'ajustement de ces résultats nous permet d'aboutir à des ordres de grandeur des paramètres fondamentaux comme la distance d'extinction ξ_g et les longueurs d'absorption $\xi_0^{'}$ et $\xi_g^{'}$.

En résumé les questions auxquelles nous tenterons de répondre dans les chapitres II et III sont donc :

- Quel est l'effet de l'épaisseur de l'échantillon sur la formation d'un profil d'intensité BSE pour un cristal parfait ?
- Comment varie analytiquement l'intensité BSE au voisinage d'une dislocation parallèle à la surface pour différentes conditions de diffraction ?
- Comment influent les conditions de diffraction sur le contraste expérimental produit par des dislocations observées par ECCI ?

Enfin dans le chapitre IV, nous exploiterons tout le potentiel de l'ECCI dans des conditions optimales pour amorcer une étude fondamentale sur les mécanismes de déformation à température ambiante de TiAl.

I.7. Références

[Abramowitz, 1964] M. Abramowitz, I. A. Stegun, I.A. Handbook of Mathematical Functions, Applied Mathematics Series, Washington (1964).

[Amelinckx, 1955] S. Amelinckx. The direct observation of dislocation nets in rock salt single crystals. The Philosphical Magazine, 1, 269-290 (1955).

[Amelinckx, 1958] S. Amelinckx. Dislocation patterns in potassium chloride. Acta Metallurgica, 6, 34- 58 (1958).

[Amelinckx, 1970] S. Amelinckx. Modern Diffraction and Imaging Techniques in Material Science. North Holland Publishing Company (1970).

[Authier, 1960] A. Authier. Observation des dislocations dans le silicium à l'aide des rayons x dans le cas de la transmission anormale. Le Journal de Physique et le Radium, 21 (9-8), 655- 659 (1960).

[Booker, 1967] G. R. Booker, A. M. B. Shaw, M. J. Whelan, P. B. Hirsch. Some comments on the interpretation of the Kikuchi-like reflection patterns observed by scanning electron microscopy. Philosphical Magazine, 16, 1185-1191 (1967).

[Bloch, 1928] F. Bloch. Über die Quantenmechanik der Elektronen in Kristallgittern. Zeitschrift für. Physik, 52, 555-600 (1928).

[Clarke, 1971] D. R. Clarke. A. Howie. Calculations of lattice defect images for scanning electron microscopy. Philosophical Magazine, 24 (190), 959-971 (1971).

[Coates, 1967] D.G. Coates. Kikuchi-like reflection patterns obtained with the scanning electron microscope. Philosphical Magazine, 16, 1179–1184 (1967).

[Cockayne, 1969] D. J. H. Cockayne, I. L. F. Ray, I.L.F. M. J. Whelan. Investigations of dislocation strain fields using weak beams. Philosphical Magazine, 20, 1265 (1969).

[Colliex, 1996] C. Colliex. La microscopie Électronique. Presse Universitaire de France (1996).

[Crimp, 2001] M. A. Crimp, B. A. Simkin, B. C. Ng. Demonstration of the g·bxu=0 edge dislocation invisibility criterion for electron channelling contrast imaging. Philosphical Magazine Letter, 81 (12), 833-837 (2001).

[De Graef, 2003] M. De Graef. Introduction to conventional transmission electron microscopy. Cambridge (2003).

[Dudarev, 1995] S. L. Dudarev, P. Rez, M. J. Whelan. Theory of electron backscattering from crystals. Physical Review B, 51 (6), 3397-3412 (1995).

[Edington, 1976] J. W. Edington. Interpretation of Transmission Electron Micrographs. London (1976).

[Gilman, 1958] J. J. Gilman, W. G. Johnston, G. W. Sears. Dislocation Etch Pit Formation in Lithium Fluoride. Journal of Applied Physics, 29 (5) 747 (1958).

[Gilman, 1956] J. J. Gilman et W. G. Johnston. Observations of dislocation glide and climb in lithium fluoride crystals. Journal of Applied Physics, 27 (9), 1018 (1956).

[Goldstein 1975] J. I. Goldstein, H. Yakowitz. Practical scanning electron microscopy. Plenum, New York (1975).

[Groves, 1970] P. P. Groves, D. J. Bacon. The dislocation loop near a free surface, Philosophical Magazine, 22 (175), 83-91 (1970).

[Guitton, 2014] A. Guitton, A. Joulain, L. Thilly, C. Tromas. Evidence of dislocation cross-slip in MAX phase deformed at high temperature. Scientific Reports, 4 (6358), 1-4 (2014).

[Gutierrez-Urrutia 2009] I. Gutierrez-Urrutia, S. Zaefferer, 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).

[Gutierrez-Urrutia 2013] I. Gutierrez-Urrutia, S. Zaefferer, 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).

[Hedges, 1953] J. M. Hedges, J. W. Mitchell. Some experiments on photographic sensitivity. The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science, 44 (351), 357-388 (1953).

[Hirsch, 1956] P. B. Hirsch, R. W. Horne, M. J. Whelan. Direct observations of the arrangement and motion of dislocations in aluminium. Philosophical Magazine, 1, 677-684 (1956).

[Hirsch, 1960] P. B. Hirsch, A. Howie, M. J. Whelan. A Kinematical Theory of Diffraction Contrast of Electron Transmission Microscope Images of Dislocations and other defects. Philosophical Transactions of the Royal Society, 252, 499-529 (1960).

[Hirsch, 1965] P. B. Hirsch, A. Howie, R. Nicholson, D. W. Pashley, M. J. Whelan. Electron Microscopy of Thin Crystals. New York, Plenum (1965).

[Hirth, 1982] J. P. Hirth, J. Lothe. Theory of dislocations. A Wiley-Interscience Publication, 2nd edition (1982).

[Howie, 1961] A. Howie, M. J. Whelan. Diffraction contrast of electron microscope images of crystal lattice defects. II. The development of a dynamical theory. Proceedings of the Royal Society, 263, 217-237 (1961).

[Howie, 1962] A. Howie, 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. Proceedings of the Royal Society, 267, 206-230 (1962).

[Howie, 1968] A. Howie, Z. S. Basinski. Approximations of the dynamical theory of diffraction contrast. Philosophical Magazine, 17 :149, 1039-1063 (1968).

[Hull, 2001] D. Hull and D.J. Bacon, Introduction to Dislocations, Butterworth-Heinemann, Oxford (2001).

[Humphreys, 1968] C. J. Humphreys, P. B. Hirsch. Absorption parameters in electron diffraction theory. Philosophical Magazine, 18 (151), 115-122 (1968).

[Jedrzejewski, 2005] F. Jedrzejewski. Introduction aux méthodes numériques. Springer-Verlag France, Paris, 2ème édition (2005).

[Jenkinson, 1962] A. E. Jenkinson, A. R. Lang. In Direct Observations of Imperfections in Crystals. Interscience Publishers, New York (1962).

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

[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).

[Mansour, 2014] H. Mansour, J. Guyon, M. A. Crimp, N. Gey, B. Beausir, N. Maloufi. Accurate electron channeling contrast analysis of dislocations in fine grained bulk materials. Scripta Materialia, 84-85, 11-14 (2014).

[Martin, 2000] J. L. Martin. Dislocations et plasticité des cristaux. Première édition, Lausanne (2000).

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

[Morniroli, 1998] J. P. Morniroli. Diffraction électronique en faisceau convergent à grand angle (LACBED) : Application aux défauts scristallins. Sociétés Française des Microscopies, Paris (1998).

[Picard, 2014] Y. N. Picard, M. Liu, J. Lammatao, R. Kamaladasa, M. De Graef. Theory of dynamical electron channeling contrast images of near-surface crystal defects. Ultramicroscopy, 146, 71-78 (2014).

[Pitaval 1976] M. Pitaval, P. Morin, J. Baudry, E. G. Fountaine. Observation de défauts cristallins en microscope électronique à balayge. Journal de Physique Lettres, 37 (11), 309-312 (1976).

[Read, 1957] W. T. Read. Les dislocations dans les cristaux. Dunod, Paris (1957).

[Reimer, 1986] L. Reimer, U. Heilers, G. Saliger. Kikuchi band contrast in diffraction patterns recorded by transmitted and backscattered electrons. Scanning, 8, 101-118 (1986).

[Reimer, 1998] L. Reimer. Scanning Electron Microscopy. Physics of image formation and microanalysis. Springer-Verlag Berlin Heidelberg GmbH, 2nd edition (1998).

[Reimer, 2008] L. Reimer, H. Kohl. Transmission Electron Microscopy. Physics of image formation and microanalysis. Springer Science+ Business Media, Germany, 5th edition (2008).

[Rossouw, 1994] C. J. Rossouw, P. R. Miller, T. W. Josefsson, L. J. Allen. Zone-axis back-scattered electron contrast for fast electrons. Philosophical Mgazine, 70 (6), 985-998 (1994).

[Schwuttke, 1962] G. H. Schwuttke. X-Ray Diffraction Microscopy Study of Imperfections in Silicon Single Crystals. Journal of The Electrochemical Society, 109 (1), 27-32 (1962).

[Simkin 1999] B.A. Simkin, 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, P. B. Hirsch. A dynamical theory for the contrast of perfect and imperfect crystals in the scanning electron microscope using backscattered electrons. Philosphical Magazine, 26:1, 193-213 (1972).

[Sturkey, 1962] L. Sturkey. The Calculation of Electron Diffraction Intensities. Proceedings of the Physical Society, 80, 321- 354 (1962).

[Trager-Cowan 2007] C. Trager-Cowan, F. Sweeney, P. Trimby, A. Day, A. Gholinia, N.-H. Schmidt, I. Watson. Electron backscatter diffraction and electron channeling contrast imaging of tilt and dislocations in nitride thin films. Physical Review B, 75, 8, (2007).

[Twigg, 2009] M. E. Twigg, Y. N. Picard. Simulation and analysis of electron channeling contrast images of threading screw dislocations in 4H-SiC. Journal of Applied Physics, 105, 093520 (2009).

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

[Wilkinson, 1995] A. J. Wilkinson, P. B. Hirsch. The effects of surface stress relaxation on electron channelling contrast images of dislocations. Philosophical Magazine A, 72:1, 81-103 (1995).

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

[Williams, 1996] D.B. Williams and C. Carter. Transmission Electron Microscopy. Springer, New York (1996).

[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).

[Zielinski, 1996] P. Zielinski. Review of surface relaxation and reconstruction phenomena. Acta Physica Polonica A, 89 (2), 251-263 (1996).

Chapitre II

Modélisation de l'intensité des électrons rétrodiffusés pour un cristal parfait et imparfait

II.1. Introduction

Dans ce chapitre, nous développerons une approche originale basée sur la théorie dynamique de la diffraction. Cette approche permettra, dans un premier temps, d'étudier l'effet de l'épaisseur de l'échantillon sur les contrastes d'intensité BSE produits par un cristal parfait. Ensuite, elle sera étendue au cas d'un cristal contenant des dislocations. Une modélisation des profils d'intensité BSE sera ainsi envisagée pour différentes conditions de diffraction : $s=0$, $s>0$ et $s<0$ pour $\pm\mathbf{g}$. Rappelons que s est la déviation du faisceau incident par rapport à l'incidence de Bragg et **g** est le vecteur de diffraction.

La 1ère partie de ce chapitre sera dédiée à la présentation détaillée de la théorie de Reimer sur laquelle nous nous sommes basés pour développer notre modèle de calcul d'intensité BSE dans le cas d'un cristal imparfait.

Ensuite, nous étudierons l'effet de l'épaisseur de l'échantillon sur la formation des profils d'intensité BSE dans le cas d'un cristal parfait.

Finalement, nous présenterons notre modèle théorique aboutissant aux modélisations de l'intensité BSE dans différentes conditions de diffraction pour deux types de dislocations : vis et coin.

Il convient de noter que pour simplifier la lecture de ce chapitre, nous redéfinirons l'ensemble des paramètres physiques utilisés pour la modélisation de l'intensité rétrodiffusée.

II.2. Modélisation de l'intensité des électrons rétrodiffusés dans le cas d'un cristal parfait

Dans son modèle, Reimer, a utilisé l'approche des ondes de Bloch de la théorie dynamique de la diffraction. Il a considéré, de plus, que les évènements de la diffusion multiple sont incohérents [Reimer, 1998] [Reimer, 1986]. Cette approche lui a servi pour résoudre l'équation de Schrödinger indépendante du temps pour une particule libre de masse m [Reimer, 1998] :

$$\left[-\frac{h^2}{8\pi^2 m}\nabla^2+V(\mathbf{r})\right]\Psi(\mathbf{r}) = U\,\Psi(\mathbf{r}) \qquad (1)$$

Rappelons que le premier terme, facteur de l'opérateur Laplacien ∇^2, représente l'énergie cinétique des électrons primaires, h est la constante de Planck, $V(\mathbf{r})$ est l'énergie potentielle

et **r** est le vecteur position spatiale de la particule. Ψ et U sont, respectivement, la fonction d'onde et l'énergie totale des électrons.

Une solution de cette équation de Schrödinger est donnée par la fonction d'onde de Bloch totale à l'intérieur du cristal [Reimer, 1998] :

$$\Psi(r) = \sum_j \varepsilon^{(j)} \psi^{(j)}$$

$$\Psi(r) = \sum_j \varepsilon^{(j)} \sum_g C_g^{(j)} \exp\left[2\pi i \left(\mathbf{k}_0^{(j)}+\mathbf{g}\right)\cdot\mathbf{r}\right] e^{[-2\pi q^{(j)} z]} \quad (2)$$

L'indice j réfère à la j^{ième} onde, $\varepsilon^{(j)}$ sont les amplitudes d'excitation de l'onde de Bloch $\psi^{(j)}$, $C_g^{(j)}$ sont les amplitudes des ondes diffractées de vecteur d'onde $\mathbf{k}_g^{(j)} = \mathbf{k}_0^{(j)}+\mathbf{g}$ où $\mathbf{k}_0^{(j)}$ est le vecteur d'onde de la j^{ième} onde primaire et **g** est le vecteur de diffraction (vecteur du réseau réciproque). **r** est le vecteur de position spatiale à laquelle l'intensité des électrons est évaluée. Le dernier facteur de l'équation (2) contient le paramètre d'absorption $q^{(j)}$ qui exprime l'atténuation exponentielle de l'amplitude de l'onde avec l'augmentation de la profondeur z. L'axe des z est le long d'une direction perpendiculaire à la surface (l'origine de cet axe est prise au niveau de la surface de l'échantillon).

Afin d'exprimer analytiquement les coefficients de la fonction d'onde Ψ(r), l'approximation deux ondes est utilisée. Dans ce cas, en plus de l'onde primaire – d'amplitude $C_{\mathbf{g}=0}^{(j)}$ notée $C_0^{(j)}$ dans l'équation (3) – une seule onde diffractée est excitée. Il en résulte que [Reimer, 1998] :

$$C_0^{(j)} C_0^{(j)} = \left|C_0^{(j)}\right|^2 = \frac{1}{2}\left[1+(-1)^j \frac{\omega}{\sqrt{1+\omega^2}}\right] \quad (3)$$

$$C_0^{(j)} C_g^{(j)} = -\frac{1}{2}\frac{(-1)^j}{\sqrt{1+\omega^2}} \quad (4)$$

$$q^{(j)} = \frac{1}{2}\left(\frac{1}{\xi_0'} - \frac{(-1)^j}{\xi_g'\sqrt{1+\omega^2}}\right) \quad (5)$$

Rappelons que ω est le paramètre d'inclinaison, sans dimension. Il s'écrit [Reimer, 1998] :

$$\omega = s\,\xi_g = g\,(\theta-\theta_B)\xi_g \quad (6)$$

Les différents paramètres mentionnés dans les équations précédentes (de l'équation 3 jusqu'à l'équation 6) sont définis comme suit :

- ξ_0' : longueur caractéristique d'absorption moyenne [Humphreys, 1968] [Humphreys, 1979].
- ξ_g' : longueur caractéristique d'absorption pour une famille donnée de plans (pour un **g** donné) [Humphreys, 1979].

Ces deux derniers paramètres décrivent les absorptions dues aux diffusions inélastiques [Humphreys, 1979].

- ξ_g : la distance d'extinction de l'onde diffractée. Il s'agit de la distance à partir de laquelle l'amplitude de l'onde diffractée devient nulle [Reimer, 1998].
- g : le module du vecteur de diffraction **g**.
- θ : l'angle d'incidence du faisceau primaire sur les plans cristallins.
- θ_B : l'angle d'incidence de Bragg pour une famille de plans {hkl}.
- s : le module du vecteur de déviation du faisceau incident (ou de l'onde primaire de vecteur d'onde $\mathbf{k}_0$) par rapport à la position exacte de Bragg.

Les différents coefficients intervenant dans l'expression de la fonction d'onde de Bloch, $C_{\mathbf{g}}^{(j)}$, $C_0^{(j)}$ et $q^{(j)}$, sont utilisés pour déterminer le signal rétrodiffusé total issu d'un échantillon massif.

II.3. Coefficient des électrons rétrodiffusés

La figure.II.1 schématise la contribution à l'intensité rétrodiffusée totale d'une couche d'épaisseur dz située à une profondeur z. Rappelons qu'à l'intérieur du cristal, les électrons sont retirés de l'onde de Bloch primaire à travers les différents évènements de la diffusion. Il en résulte un signal diffusé (angles de diffusion inférieurs à 90°, flèches bleues de la figure.II.1) dans l'échantillon et un signal rétrodiffusé (angles de diffusion supérieurs à 90°, flèches rouges). La variation de l'intensité totale rétrodiffusée par la tranche dz est donnée par la formule suivante [Reimer, 1998] :

$$\frac{d\eta}{dz} = N\sigma_B \{\psi\psi^* + (1 - \sum_j \left|C_0^{(j)}\right|^2 e^{[-4\pi q^{(j)} z]})\} \quad (7)$$

Où N est le nombre d'atomes par unité de volume, σ_B est la section efficace de diffusion pour les rétrodiffusions avec des angles supérieurs à 90° et $\psi\psi^*$est la probabilité de rétrodiffusion de l'onde de Bloch à la profondeur z. Les termes entre parenthèses décrivent les électrons retirés du champ d'onde de Bloch, par diffusion, avant d'atteindre la tranche dz :

- Le terme unitaire représente les électrons rétrodiffusés.
- Le terme soustrait désigne les électrons diffusés dans l'échantillon et qui ne participent pas à l'intensité BSE.

Il importe de noter que pour expliquer la contribution à l'intensité rétrodiffusée totale d'une couche d'épaisseur dz, située à une profondeur z, Clarke *et al.* [Clarke, 1971] ont fourni un raisonnement équivalent à celui présenté par Reimer. Ils ont considéré que cette intensité se constitue d'une part par la contribution des électrons qui restent, à la profondeur z, dans le champ d'onde de Bloch primaire et d'autre part par ceux qui ont été déjà diffusés à travers un angle supérieur à 90°. Les électrons diffusés à moins de 90° dans l'échantillon sont soustraits.

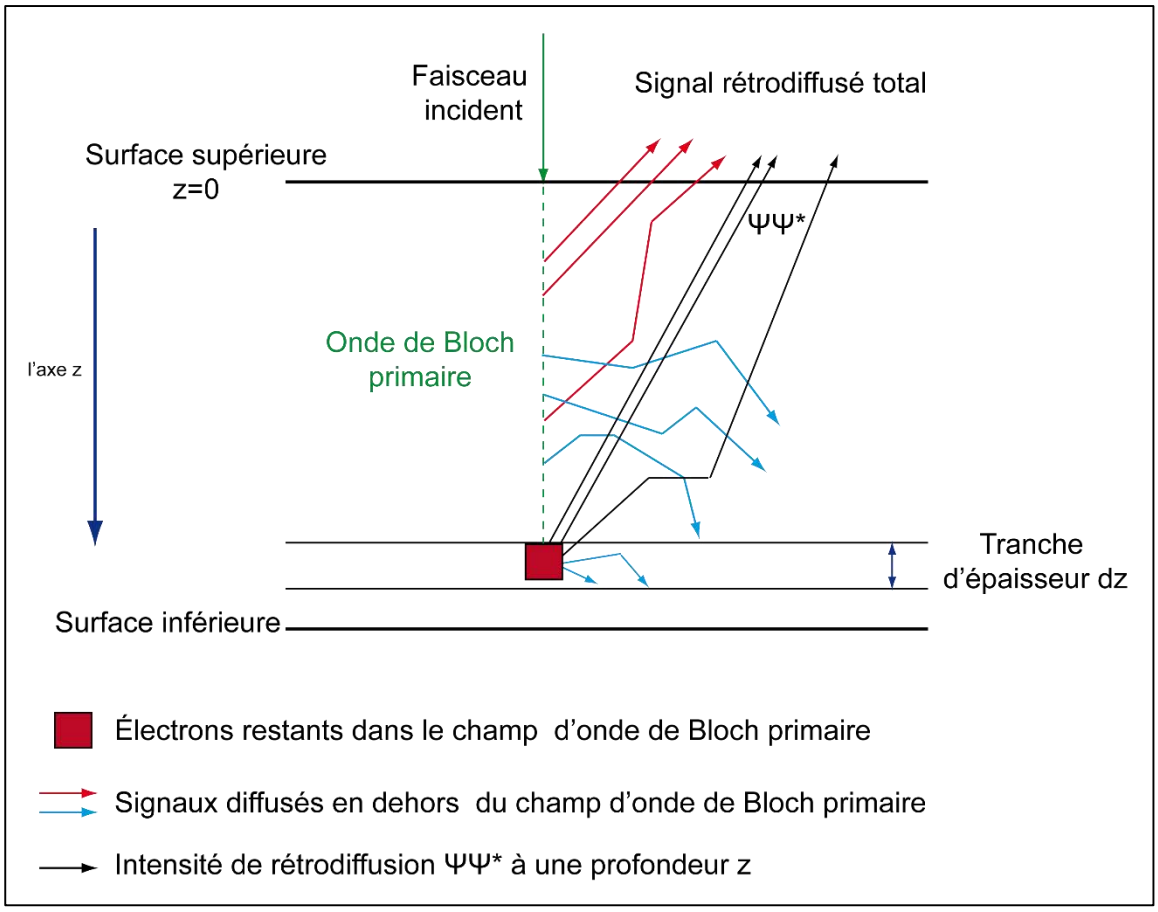


Figure.II.1. Schéma explicatif de la contribution d'une tranche d'épaisseur dz au signal BSE total. Les flèches rouges et bleues représentent les signaux retirés de l'onde de Bloch primaire (flèche verte). L'intensité de rétrodiffusion d'onde de Bloch à la profondeur z est indiquée par les flèches noires.

L'intégration de l'équation (7) sur la profondeur totale d'interaction de z=0 à z=∞, pour un échantillon massif, permet d'obtenir le coefficient des électrons rétrodiffusés Δη en unité arbitraire (a.u). Δ indique que seule la partie d'intensité BSE due au contraste d'orientation est calculée, tandis que les contributions du nombre atomique ou de l'inclinaison de surface ne sont pas prises en compte [Reimer, 1998] :

La variation de Δη en fonction de ω est présentée par la figure.II.2. Étant donnée l'expression de ω dans l'équation (6), la même allure de courbe est obtenue en représentant Δη = f(s) ou Δη = f(θ). Cette courbe correspond à un profil d'intensité BSE à travers une pseudo-bande de Kikuchi isolée (dans le chapitre précédent nous n'avons présenté qu'une moitié du profil).

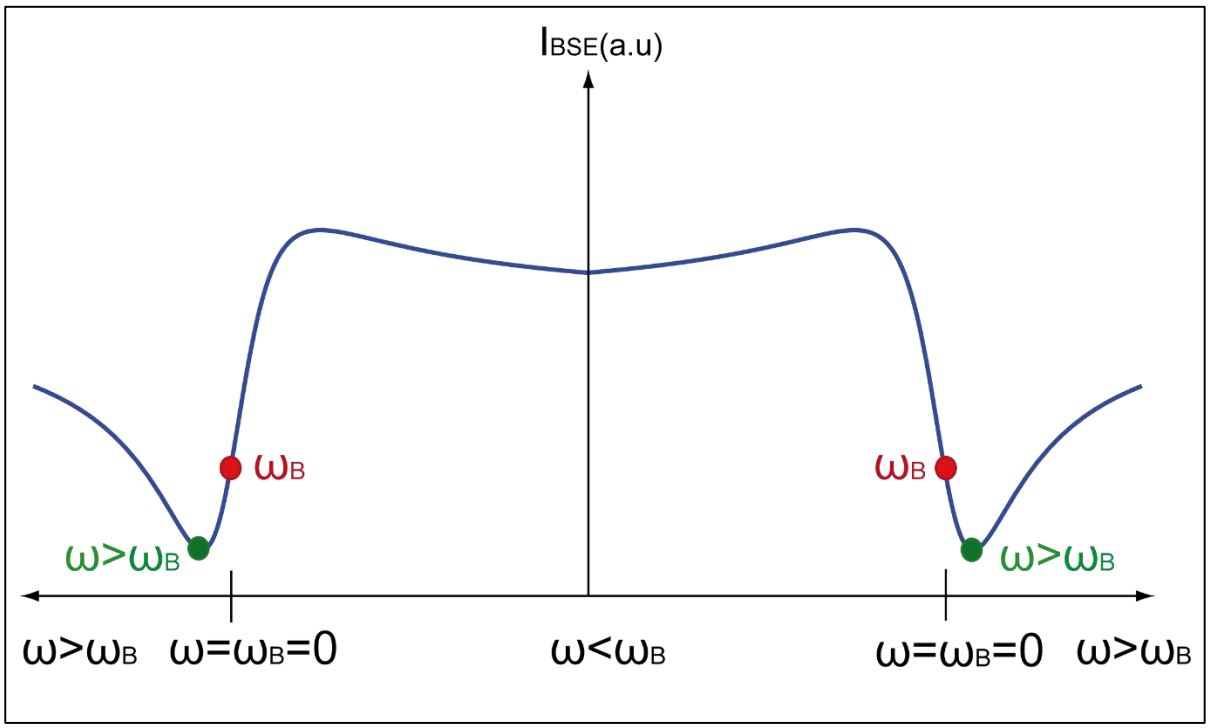


Figure.II.2. Courbe de la variation du signal BSE en fonction du paramètre d'inclinaison ω. La condition de Bragg correspond à $\omega = \omega_B = 0$, sachant que $\omega = s\,\xi_g = g\,(\theta-\theta_B)\xi_g$ [Figure d'après Clarke, 1971].

Spencer *et al.* [Spencer, 1972] ainsi que Clarke *et al.* [Clarke, 1971] ont obtenu cette même allure de Δη=f(ω), en utilisant, respectivement, l'approximation multi-ondes avec le modèle de la diffusion multiple et l'approximation deux ondes avec le modèle de la diffusion unique. Ceci permet de conclure que pour un cristal parfait les différentes approches théoriques sont équivalentes pour décrire le profil d'une bande isolée.

II.4. Modélisation de l'intensité des électrons rétrodiffusés en fonction de l'épaisseur dans le cas d'un cristal parfait

Dans la partie précédente l'équation (7) a été intégrée sur une profondeur totale d'interaction (z=0 à z=∞) correspondant à la contribution d'un échantillon massif au signal BSE. Afin d'étudier maintenant la variation de ce signal en fonction de l'épaisseur t de l'échantillon ou par exemple la contribution d'une couche mince à ce même signal, nous avons intégré l'équation (7) de z=0 à z=t. Nous obtenons ainsi un nouveau coefficient $\Delta\eta'$ des BSE. Ce dernier peut se mettre sous forme d'une somme de deux termes :

$$\Delta\eta'(\omega, t) = \Delta\eta(\omega) + Q(\omega, t) \quad (9)$$

Où $\Delta\eta$ est le coefficient des BSE donné par l'équation (8). Il est indépendant de l'épaisseur t. Alors que le terme Q, qui s'exprime en fonction de ω et t.

Notons que la limite du terme Q quand t tend vers l'infini est nulle.

Rappelons que la représentation de $\Delta\eta=f(\omega)$ correspond à la partie droite du profil d'une pseudo-bande de Kikuchi (la moitié droite de la courbe de la figure.II.2). En revanche le terme $Q(\omega, t)$ génère différents profils selon l'épaisseur de matériau considérée. De ce fait, comme $\Delta\eta'(\omega, t) = \Delta\eta(\omega) + Q(\omega, t)$, il en résulte différentes courbes, $\Delta\eta'=f(\omega)$ selon l'épaisseur t choisie (figure.II.3).

Afin de tracer $\Delta\eta'=f(\omega)$, nous avons besoin des paramètres propres au matériau : ξ_g, ξ_0' et ξ_g'. Ces derniers sont tabulés dans les ouvrages de Reimer, pour une tension d'accélération E et un vecteur de diffraction **g** donnés, pour les matériaux suivants : Al, Si, Cu, Ge et Au [Reimer, 1998]. Comme dans la littérature très peu d'articles donnent les valeurs de ξ_0' et ξ_g', notre choix du matériau a été assez limité [Humphreys, 1968] [Reimer, 2008].

Dans cette thèse, nous ne présentons que les profils calculés dans le cas d'Al avec les paramètres suivants : une tension d'accélération E=20 kV, un vecteur de diffraction **g**= (220), ξ_g=50 nm, ξ_0'=140 nm et ξ_g'=600 nm. Notons que nous avons obtenu les mêmes allures des profils d'intensité BSE pour les autres matériaux (Si, Cu, Ge et Au).

Il convient de mentionner aussi que :

- Les mêmes paramètres, cités ci-dessus, seront utilisés pour modéliser les profils d'intensité BSE pour un cristal imparfait.

- Dans tous les profils modélisés le niveau du bruit du fond sera pris comme référence (au niveau du zéro de l'axe des ordonnées). Toutes les valeurs négatives correspondent alors à des intensités BSE inférieures à celle du bruit de fond.

Dans la figure.II.3, la variation de l'intensité BSE est présentée pour différentes épaisseurs de l'échantillon :

- Pour une épaisseur $t=0,02\xi_g$ (1 nm), la courbe de $\Delta\eta'=f(\omega)$ correspond à une fonction constante proche de 0 (figure.II.3.a). Ceci est dû au fait que pour une telle épaisseur, les valeurs de $Q(\omega, t)$ compensent celles de $\Delta\eta(\omega)$. Dans la figure.II.4, les courbes rouge et bleue représentent, respectivement, $Q(\omega, t)$ et $\Delta\eta(\omega)$ pour $t=0,02\xi_g$.
- Pour une épaisseur $t\sim0,12\xi_g$ (t=6 nm), $\Delta\eta'$ commence à varier légèrement entre - 0,58 (a.u) et 0,58 (a.u) comme l'illustre la figure.II.3.b. Cette variation provient de la légère diminution de la contribution de $Q(\omega)$. Rappelons que les valeurs négatives sont dues au fait que nous avons pris le bruit du fond au niveau du zéro de l'axe des ordonnées.
- Pour une épaisseur $t=0,2\xi_g$ (10 nm) (figure.II.3.c), un pic (pour les valeurs négatives de ω) et un creux (pour les valeurs positives de ω) étalés commencent à apparaitre. En outre, nous remarquons que plus l'épaisseur augmente plus l'amplitude de $|\Delta\eta'|$ augmente. Ces mêmes constatations s'accentuent pour les épaisseurs suivantes.

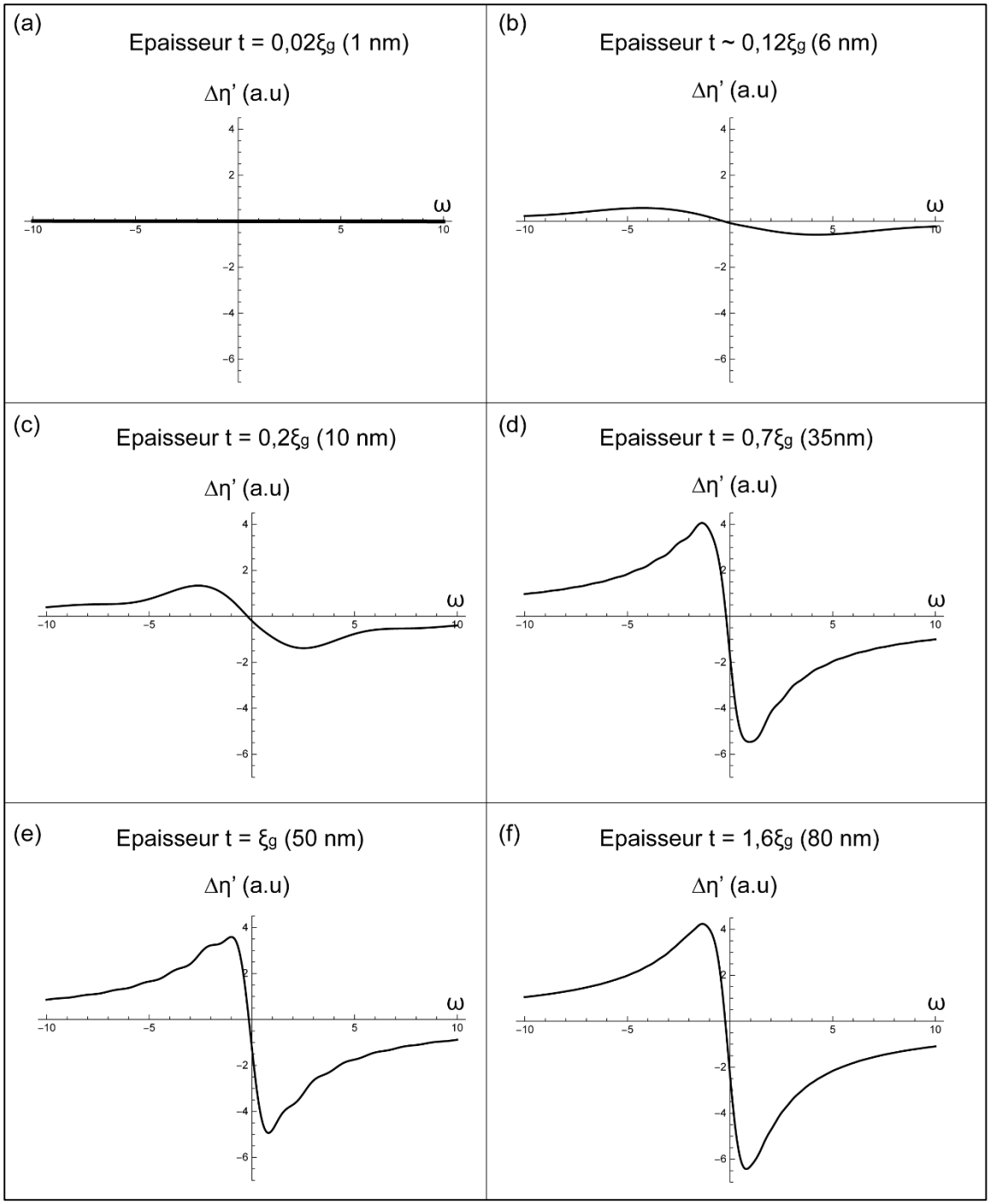


Figure.II.3. Profils d'intensité BSE de la partie droite d'une pseudo-bande de Kikuchi générés pour différentes épaisseurs de l'échantillon (a) $t=0,02\xi_g$, (b) $t\sim0,12\xi_g$, (c) $t=0,2\xi_g$, (d) $t=0,7\xi_g$ (e) $t=\xi_g$ et (f) $t=1,6\xi_g$.

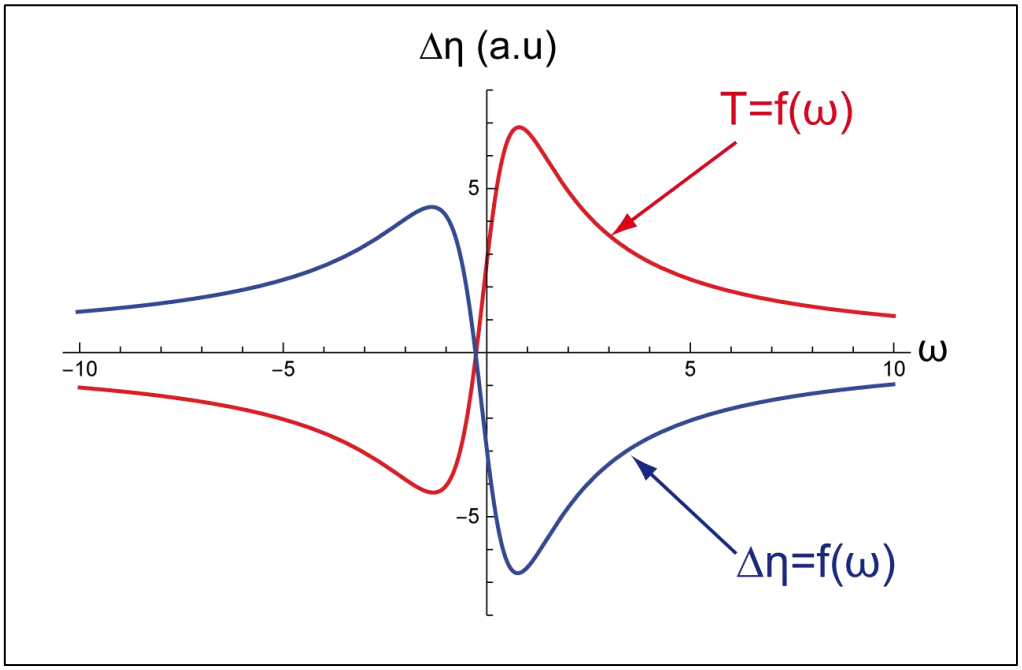


Figure.II.4. Représentations graphiques de Q(ω) et Δη(ω) pour une épaisseur t=0,02ξ_g (1 nm).

- Pour les épaisseurs t=0,7ξ_g (35 nm) et t=ξ_g (50 nm), les deux courbes possèdent, presque, la même allure : pic et creux mais moins étalés que ceux obtenus pour t=0,2ξ_g. De plus, des oscillations apparaissent sur les flancs de ces courbes (figures.II.3.d et e).
- À partir d'une épaisseur t=1,6ξ_g (80 nm) (figure.II.3.f), l'allure de la courbe totale Δη' devient identique à celle de Δη : ceci correspond à un régime stable marqué par l'absence des oscillations. Dans ce cas la contribution du terme Q à la formation du contraste de la bande devient nulle (Δη l'emporte totalement puisque $\lim_{t\to\infty} Q(\omega, t)=0$).

En résumé, la formation du profil d'intensité BSE pour un cristal parfait se produit selon différents régimes. Dans un premier temps, aucun contraste de bande n'est observé en dessous d'une épaisseur t=0,2ξ_g. Ceci semble en effet raisonnable, car pour des très faibles épaisseurs, les électrons sont transmis par différents processus ; canalisation, diffraction de Bragg et diffusions inélastiques. Il en résulte une rétrodiffusion trop faible pour former le profil de la bande. Ensuite, un régime transitoire est obtenu dans lequel nous avons observé sur les flancs des courbes, des oscillations qui disparaissent à t≈1,6ξ_g. Cette dernière épaisseur est en effet suffisante pour générer une quantité appréciable d'électrons

rétrodiffusés dont l'intensité va être gouvernée par la canalisation. Il en résulte une modulation d'intensité BSE permettant la formation d'un profil de la pseudo-bande de Kikuchi avec ses principales caractéristiques (bords sombres, milieu brillant).

Un raisonnement analogue a été expérimentalement rapporté par Brodu *et al.* [Brodu, 2017] sur la formation d'un cliché de diffraction à travers une lame mince par la technique de Diffraction de Kikuchi en Transmission : *Transmission Kikuchi diffraction* (TKD). Les auteurs ont, en effet, rapporté que pour une épaisseur faible (t=45 nm), le cliché de Kikuchi présente seulement des spots de diffraction comme l'illustre la figure.II.5.a. Au fur et à mesure que l'épaisseur augmente, des bandes commencent à apparaitre (t=100 nm, figure.II.5.b). Pour un échantillon assez épais, t=1000 nm (figure.III.5.c), un cliché des bandes de défauts a été obtenus : bords blanches et milieu sombre.

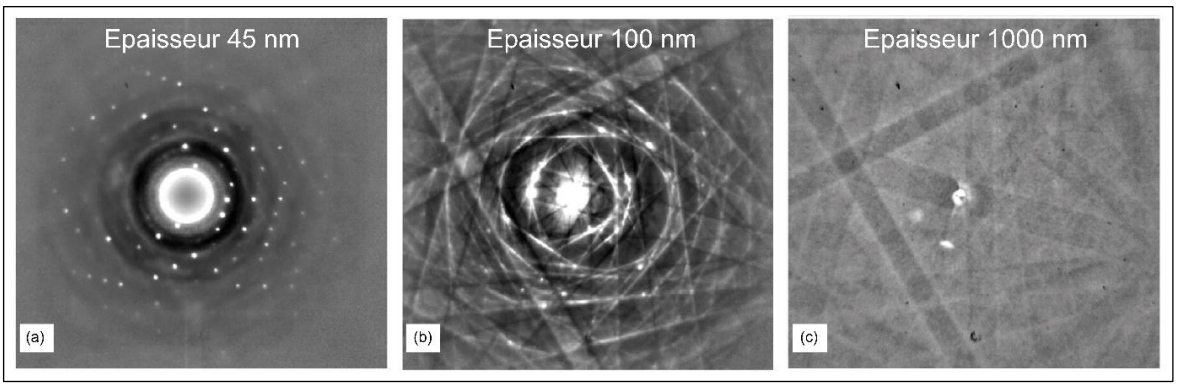


Figure.II.5. Clichés de diffraction produits par la technique de Diffraction de Kikuchi en Transmission pour différentes épaisseurs de la lame mince (a) t=45 nm, (b) t=100 nm et (c) t=1000 nm [Brodu, 2017].

II.5. Modélisation de l'intensité des électrons rétrodiffusés au voisinage d'une dislocation

Comme il a été mentionné dans le chapitre I, la présence d'une dislocation dans un cristal perturbe localement l'arrangement des atomes. Elle entraine la déformation des plans cristallins au voisinage de son cœur. Cette déformation, décrite par le champ de déplacement **R**, introduit une déviation supplémentaire du faisceau incident par rapport à la condition de Bragg. Le nouveau paramètre de déviation peut alors s'écrire :

$$s' = s + s_D \qquad (11)$$

Où s est la déviation par rapport à la position exacte de Bragg et elle est fixée expérimentalement (les conditions expérimentales seront abordées dans le chapitre III). Le produit scalaire $\mathbf{g}\cdot\frac{d\mathbf{R}}{dz}$ représente la déviation supplémentaire, s_D, due à la variation de l'angle d'incidence entre le faisceau incident et les plans cristallins distordus au voisinage du cœur de la dislocation. Loin de ce défaut linéaire, le cristal est considéré comme parfait. Les plans ne sont donc pas déformés et la déviation s_D devient ainsi nulle.

Le contraste d'une dislocation est généré suite à une modulation de l'intensité BSE collectée au voisinage de son cœur. Du point de vue analytique, cette modulation est due au terme s_D qui contient l'effet de **R**. De ce fait, nous avons traduit la présence de ce défaut linéaire par la substitution du nouveau paramètre de déviation s' à la place de s (ce s figure dans l'expression de ω) dans l'équation (7). Rappelons que cette dernière équation présente la variation de l'intensité BSE avec l'angle d'incidence dans un cristal parfait.

Étant donné qu'à chaque type de dislocation (vis, coin ou mixte) correspond un champ de déplacement **R** déterminé, les variations du signal BSE générées ne sont pas les mêmes. De ce fait, nous pouvons conclure que l'équation (12) peut être utilisée afin de distinguer les modulations de Δη dans le cas de ces trois types de dislocations.

II.5.1. Dislocation vis

Le schéma de la figure.II.6 illustre la situation d'une dislocation vis parallèle à la surface d'un échantillon massif et située à une profondeur z_1. Ce défaut est caractérisé par son vecteur de Burgers **b** et la direction de sa ligne **u**. À une distance x à partir du cœur de la dislocation (en x=0) le plan cristallin est déformé. Dans ce cas, le champ de déplacement des atomes $\mathbf{R}_{vis}$ est défini par rapport au cœur du défaut en coordonnées polaires r et ß [Hirth, 1982] :

$$\mathbf{R}_{vis} = \frac{\mathbf{b}\,ß}{2\pi} = \frac{\mathbf{b}}{2\pi}\,\tan^{-1}\left(\frac{z_2-z_1}{x}\right) \qquad (13)$$

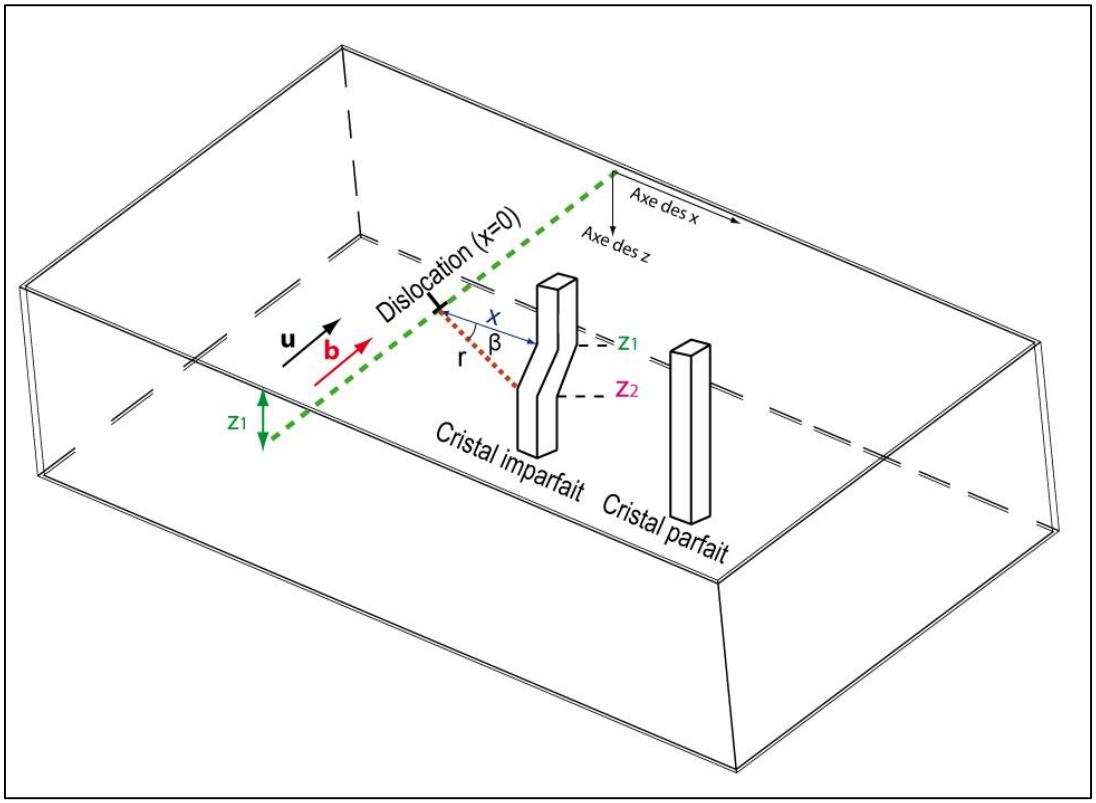


Figure.II.6. Schéma illustrant les différents paramètres repérant la dislocation dans le cristal : cas d'une dislocation vis parallèle à la surface et située à une profondeur z_1 en dessous de la surface. Le plan déformé, perpendiculaire à la surface, est repéré par une distance x à partir du cœur de la dislocation.

À cette étape nous supposons que la déformation n'affecte qu'une partie négligeable du plan cristallin située à une distance x du cœur de la dislocation. Par conséquent, nous pouvons considérer que ß est faible : ceci mène à des valeurs faibles de la distance entre z_1 et z_2.

En se basant sur notre raisonnement, la substitution de l'équation (15) dans l'équation (12) nous permet d'obtenir l'expression de $\Delta\eta$.

Cette équation donne la variation du signal BSE, en unité arbitraire (a.u), en fonction de la distance x (en nanomètre) à partir du cœur de la dislocation. $\Delta\eta$ s'écrit en fonction des paramètres expérimentaux s et **g**, ce qui nous permet d'obtenir des profils d'intensité pour différentes conditions de diffraction, telles que : s=0, s>0 et s<0 pour ±**g**.

II.5.1.1. Paramètre de déviation s=0 (condition de Bragg $s=s_B$)

Les profils d'intensité calculés, au voisinage d'une dislocation vis, pour les conditions de diffraction s=0 et ±**g** sont présentés par la figure.II.7. Pour la diffraction +**g**, le profil

d'intensité obtenu (figure.II.7.a) est antisymétrique de part et d'autre du cœur de la dislocation située en x=0 nm. Il comporte un creux et un pic correspondant, respectivement, à un minimum et un maximum d'intensité BSE. Pour la diffraction en –**g**, le profil modélisé (figure.II.7.b) est symétrique à celui obtenu en diffraction +**g** : les extrema sont inversés (le pic devient creux et vice versa).

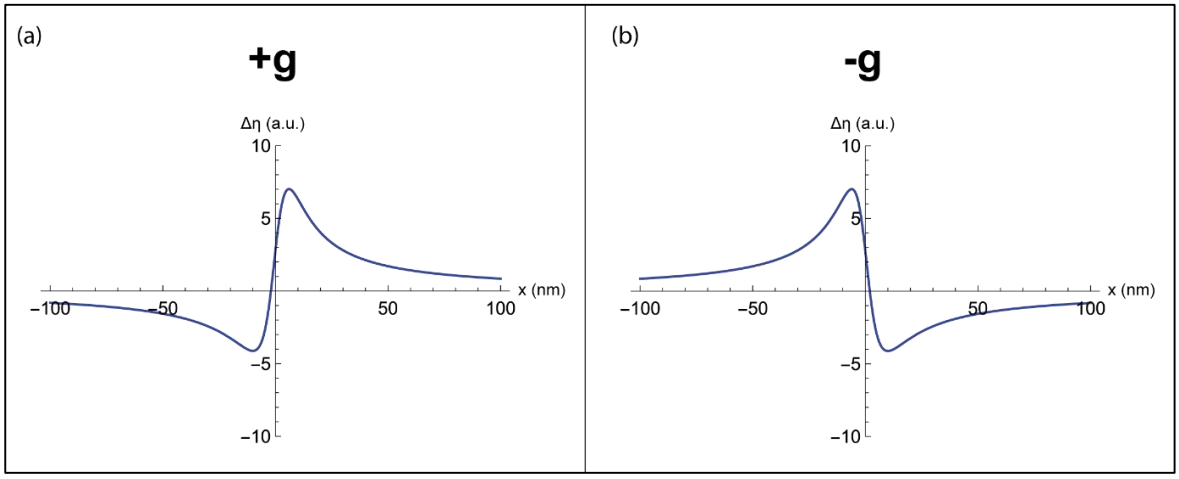


Figure.II.7. Profils d'intensité BSE modélisés pour une dislocation vis, avec un paramètre de déviation s=0 pour les diffractions (a) +**g** et (b) –**g**.

Ceci nous permet de conclure qu'à la condition de Bragg, une dislocation vis produit une image BSE avec un contraste noir/blanc qui s'inverse (blanc/noir) avec l'inversion du signe de **g**. Ce phénomène d'inversion du contraste a été rapporté par la littérature [Spencer, 1972]. Néanmoins, à notre connaissance, aucun profil théorique d'intensité BSE pour une dislocation, n'a été rapporté.

II.5.1.2. Paramètre de déviation s>0

La modélisation des profils d'intensité, au voisinage de la dislocation vis, est réalisée, dans cette partie, avec un paramètre de déviation légèrement positif (un faible écart par rapport à la position de Bragg), soit s=0.01 nm^{-1}. Rappelons que cette condition correspond à la condition de canalisation. Les courbes, ainsi, obtenues sont présentées par les figures.II.8.a et b, respectivement, pour la diffraction en +**g** et –**g**. Elles montrent des maxima d'intensité dont les pics ne coïncident pas avec la position exacte de la dislocation (x=0 nm) : soit un pic situé en x≈4 nm pour la diffraction +**g** et en x≈-4 nm pour la diffraction –**g**. Cette

distribution d'intensité avec un maximum correspond, en effet, à l'image ECC de la dislocation (ligne brillante sur un fond sombre).

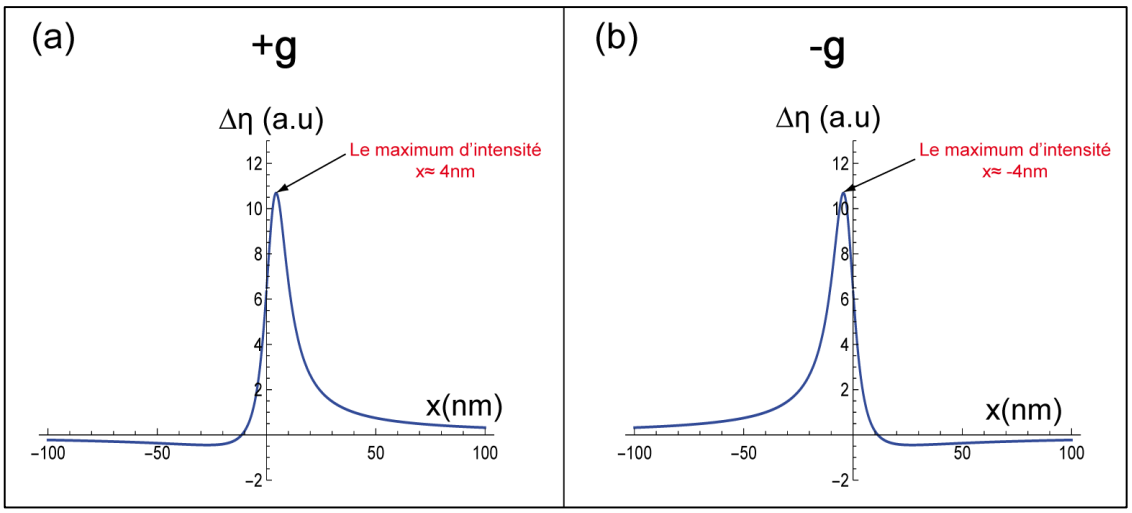


Figure.II.8. Profils d'intensité BSE pour une dislocation vis, modélisés avec un paramètre de déviation s>0 pour les diffractions (a) +**g** et (b) –**g**. Le maximum d'intensité ne coïncide pas avec la position exacte de la dislocation (x=0 nm).

La figure.II.9 schématise une dislocation sous les conditions de diffraction $s=s_c$ (où l'indice c correspond à la canalisation) pour ±**g**. Les déplacements atomiques des côtés opposés autour de la position de ce défaut sont dans des sens opposés, comme illustré par la figureII.9. Par conséquent, au voisinage de la dislocation, les plans cristallins ne sont plus en conditions de canalisation :

- Pour la diffraction +**g** (figure.II.9.a), la déformation locale a amené les plans 1 et 3 respectivement, en condition $s>s_c$ et $s<s_c$. À partir de la courbe de Δη en fonction de s (figure.II.9.c), nous constatons que l'intensité BSE est relativement importante lorsque $s<s_c$ (côté du plan 3) : l'image de la dislocation se situe, alors, du côté droit à partir de son cœur (plan 2).
- Pour la diffraction –**g**, le plan 1 génère une intensité BSE plus importante que le plan 3 : l'image la dislocation se situe, alors, du côté gauche à partir du plan 2.

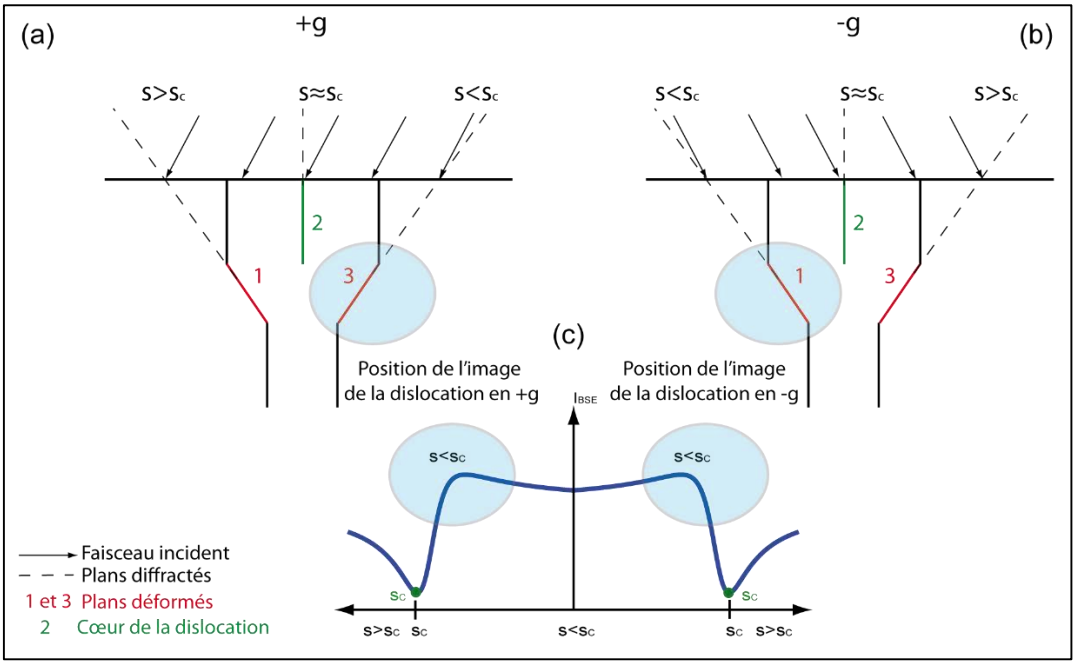


Figure.II.9. Représentations schématiques d'une dislocation en condition de diffraction ±**g** pour $s=s_c$ (l'indice c indique la canalisation). L'image de la dislocation est à gauche et à droite de son cœur, respectivement, pour les conditions (a) +**g** et (b) –g. (c) La courbe $\Delta\eta=f(s)$.

Dans cette partie nous pouvons conclure que pour un paramètre de déviation légèrement positif, la dislocation génère un contraste brillant, indépendamment du signe de **g**. En outre, nous avons montré, pour la première fois, qu'en ECCI l'image de la dislocation ne coïncide pas avec sa position exacte, et qu'elle passe au côté opposé quand le signe de **g** s'inverse. Ce dernier résultat est analogue à celui trouvé en MET dans le cas d'une lame mince en *weak beam* [Williams, 1996].

II.5.1.3. Paramètre de déviation s<0

Dans le chapitre précédent, nous avons mentionné qu'avec un paramètre de déviation légèrement négatif, une forte rétrodiffusion se produit : la zone d'étude correspondante apparait alors claire. La modélisation des profils d'intensité BSE d'une dislocation vis pour un tel paramètre de déviation (s<0, s=-0.01 nm^{-1}) et pour les diffractions ±**g** a permis d'obtenir les courbes de la figure.II.10. Ces profils se caractérisent par un creux et un léger pic d'intensité. De ce fait, comme l'illustrent ces courbes théoriques, une dislocation imagée par ECCI, dans ces conditions, génère alors un contraste noir/blanc. Ce dernier s'inversera avec l'inversion de signe de **g**.

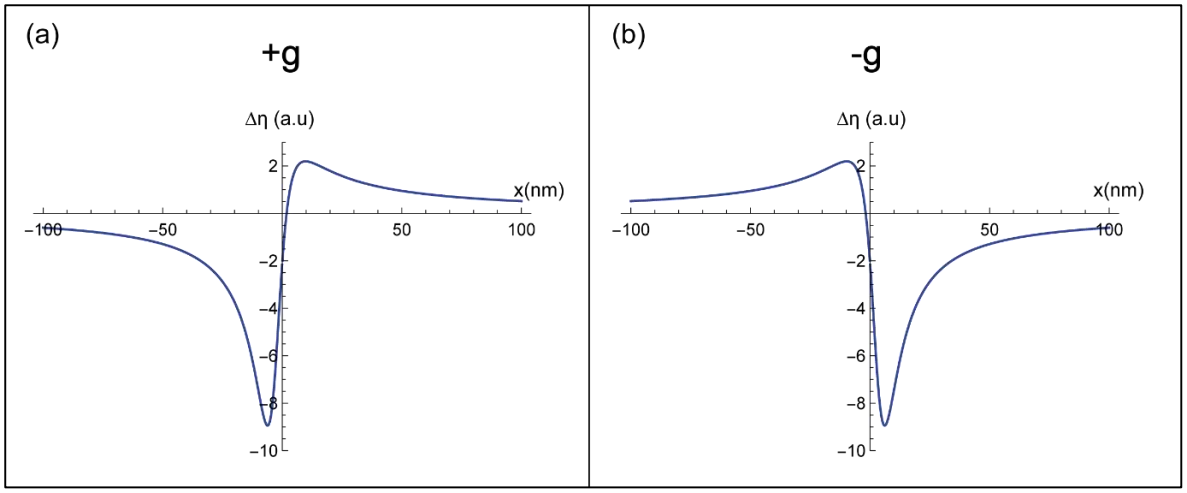


Figure.II.10. Profils d'intensité BSE, au voisinage d'une dislocation vis, modélisés avec un s<0 pour les diffractions (a) +**g** et (b) –**g**.

À partir de notre modèle théorique, nous avons donc montré que pour un paramètre de déviation s légèrement négatif, une dislocation produit une image BSE avec un contraste noir/blanc qui s'inverse avec l'inversion du signe de **g** (comme c'est le cas pour s>0)

II.5.1.4. Effet de |g·b| sur le contraste d'une dislocation vis

II.5.1.4.1. Paramètre de déviation s=0

La modélisation du profil d'intensité BSE pour une dislocation vis avec **g**·**b**=0 est présentée par la figure.II.11. Nous obtenons une ligne droite, parallèle à l'axe des abscisses, dont l'intensité BSE est nulle : Δη=0 (a.u). Aucun contraste n'est généré par la dislocation dans cette condition de diffraction : dislocation invisible.

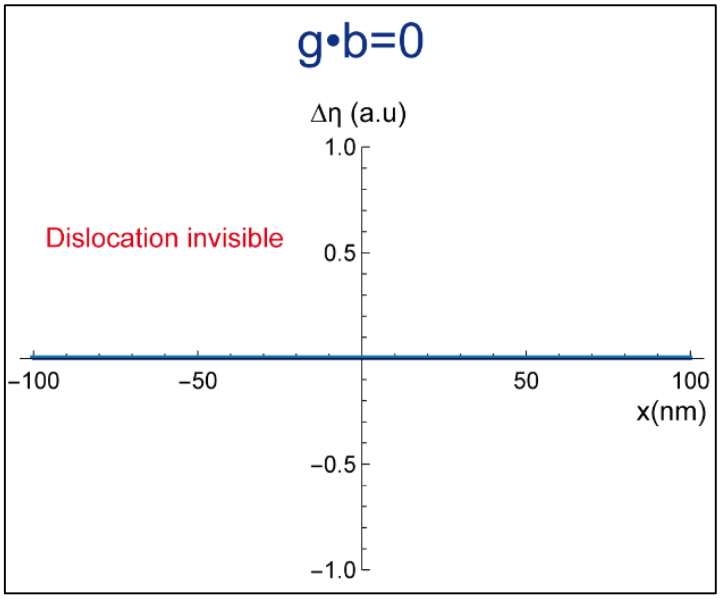


Figure.II.11. Profil d'intensité BSE modélisé pour **g**·**b**=0.

Dans la figure.II.12 les courbes bleue et rouge correspondent, respectivement, aux profils d'intensité calculés pour |**g**·**b**|=1 et |**g**·**b**| =2. Nous avons obtenu la même allure des courbes pour les deux conditions sauf que le creux et le pic sont plus larges pour |**g**·**b**| =2. Ceci implique que la largeur de l'image de la dislocation n'est pas la même pour les deux conditions de diffraction : $T_{|\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}|=1}\approx 15$ nm et $T_{|\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}|=2}\approx 31$ nm. Il convient de noter que pour s=0 cette largeur est mesurée entre le maximum et le minimum d'intensité.

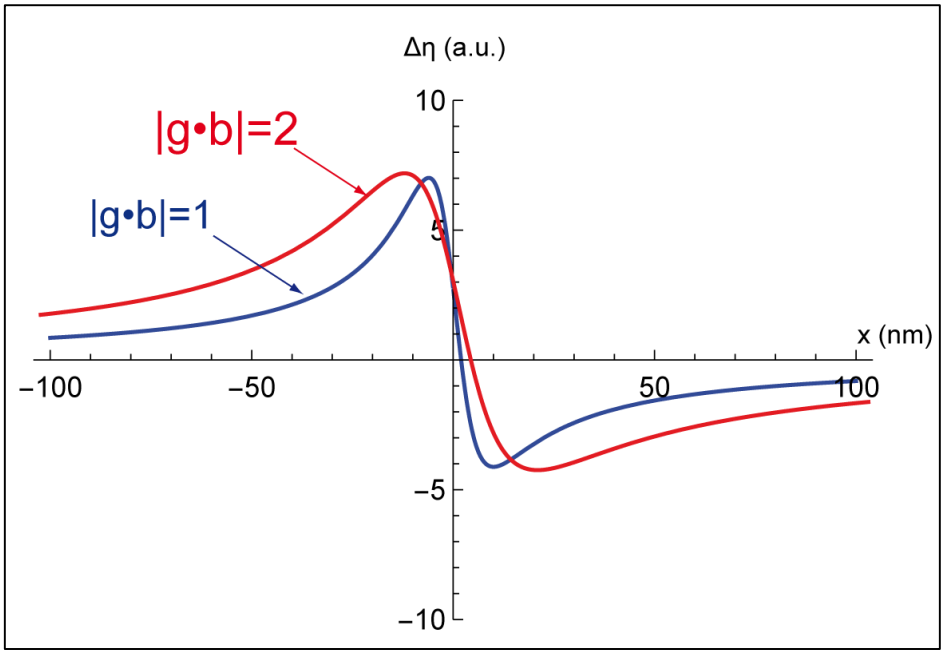


Figure.II.12. Influence de |**g**·**b**| sur le contraste d'une dislocation vis. Profils d'intensité BSE modélisés avec un paramètre de déviation s=0 pour |**g**·**b**|=1 et |**g**·**b**|=2.

Les profils d'intensité simulés, à partir du modèle de Spencer (cf. chapitre I), pour $|\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}|=1$ et $|\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}|=2$ sont présentés dans la figure.II.13 [Spencer, 1972] [Wilkinson, 1997] . Rappelons que ces auteurs ont tenu compte de l'approximation multi-ondes et du modèle de la diffusion multiple. Nous constatons que ces profils sont similaires à ceux que nous avons obtenus grâce à notre modèle. En revanche, pour $|\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}|=2$, à la différence de nos courbes, une oscillation supplémentaire, d'épaisseur d'environ 4 nm, apparaît presque au milieu du profil d'intensité BSE reporté par ces auteurs [Spencer, 1972] [Wilkinson, 1997]. Or comme nous le verrons, dans le chapitre suivant, cette oscillation n'est pas mise en évidence expérimentalement malgré la résolution suffisante.

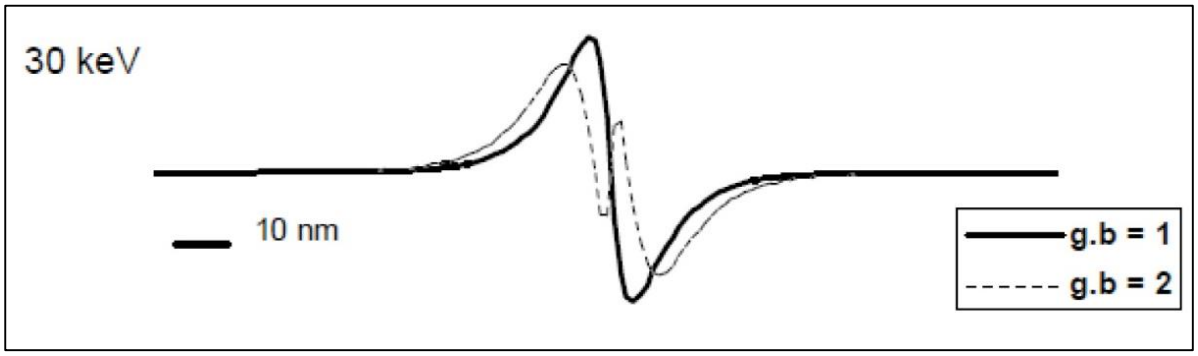


Figure.II.13. Profils d'intensité BSE pour une dislocation vis pour les conditions de diffractions respectives $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=1$ et $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=2$ [Spencer, 1972] [Wilkinson, 1997].

II.5.1.4.2. Paramètre de déviation s>0

Les figures.II.14.a et b représentent les profils d'intensité BSE calculés avec un s>0, respectivement, pour $|\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}|=1$ et $|\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}|=2$. Nous remarquons que comme dans le cas de s=0, ce produit scalaire influe sur la largeur de l'image de la dislocation. Cette dernière est mesurée à partir de la largeur à mi-hauteur des pics d'intensité. Pour $|\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}|=1$, par exemple, la largeur vaut $T_{|\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}|=1}\approx 11$ nm (figure.II.13.a), elle est presque deux fois plus importante, $T_{|\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}|=2}\approx 23$ nm, pour $|\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}|=2$ (figure.II.14.b).

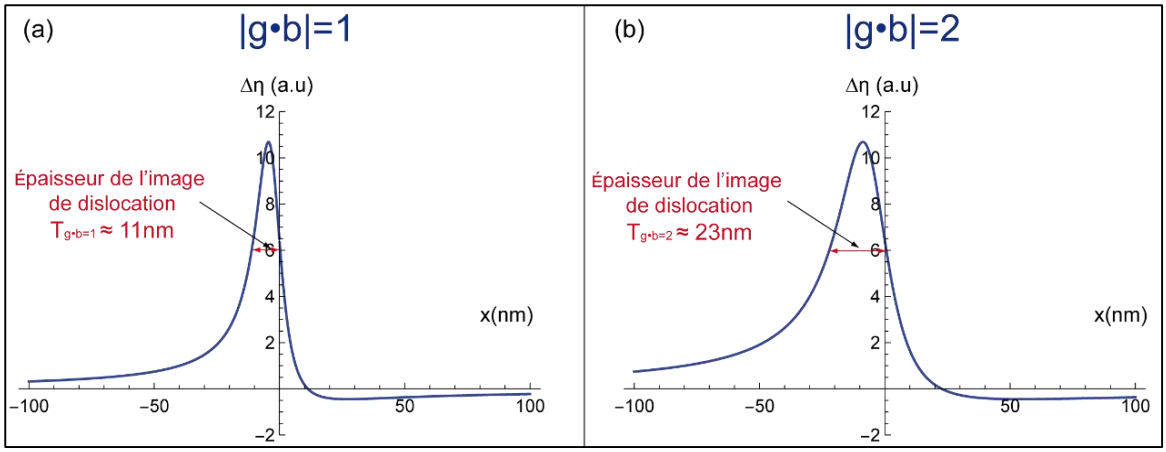


Figure.II.14. Influence de **|g·b|** sur le contraste d'une dislocation vis. Profils d'intensité BSE modélisés avec un paramètre de déviation s>0 pour (a) **|g·b|**=1 et (b) **|g·b|**=2.

II.5.1.4.3. Paramètre de déviation s<0

La figure.II.15 présente l'effet de **|g·b|** sur le contraste d'une dislocation vis dans le cas de s<0. Comme dans les cas précédents, la largeur de l'image de la dislocation suit la même évolution que le **|g·b|** : $T_{|\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}|=1}$≈14 nm et $T_{|\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}|=2}$≈26 nm.

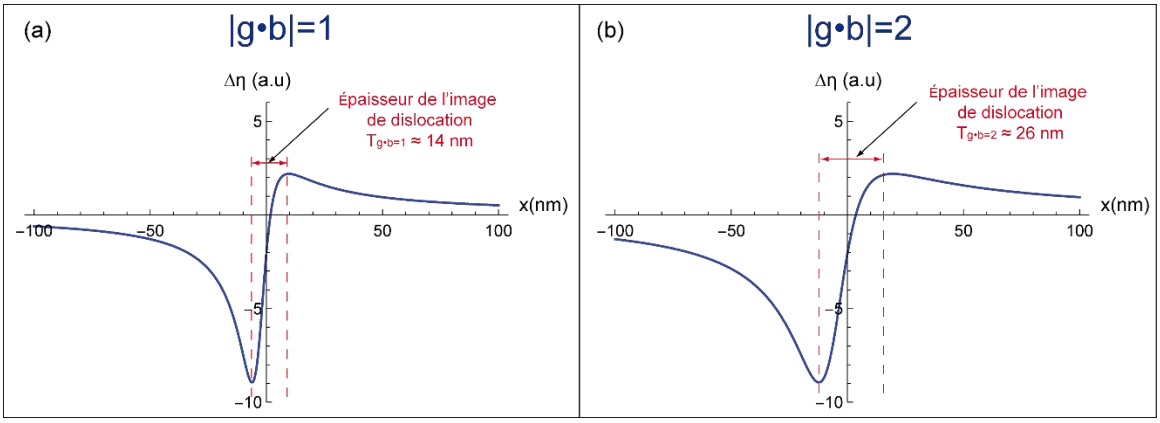


Figure.II.15. Influence de **|g·b|** sur le contraste d'une dislocation vis. Profils d'intensité BSE modélisés avec un paramètre de déviation s<0 pour (a) **|g·b|**=1 et (b) **|g·b|**=2.

Concernant l'étude de l'effet de **|g·b|** sur le contraste d'une dislocation vis, notre modèle théorique nous a permis de :

- Mettre en évidence le critère d'invisibilité d'une dislocation vis pour **g·b** =0.
- Montrer que la largeur de l'image de la dislocation augmente quand **|g·b|** augmente quel que soit le paramètre de déviation s.

II.5.2. Dislocation coin

La figure.II.16 est une représentation schématique de l'ensemble des paramètres intervenant dans l'expression de **R** pour une dislocation coin parallèle à la surface et située à une profondeur z_1. Comme précédemment pour une dislocation vis, la dislocation coin entraine la déformation locale des plans cristallins au voisinage de son cœur. Loin de la dislocation, nous retrouvons le cristal parfait.

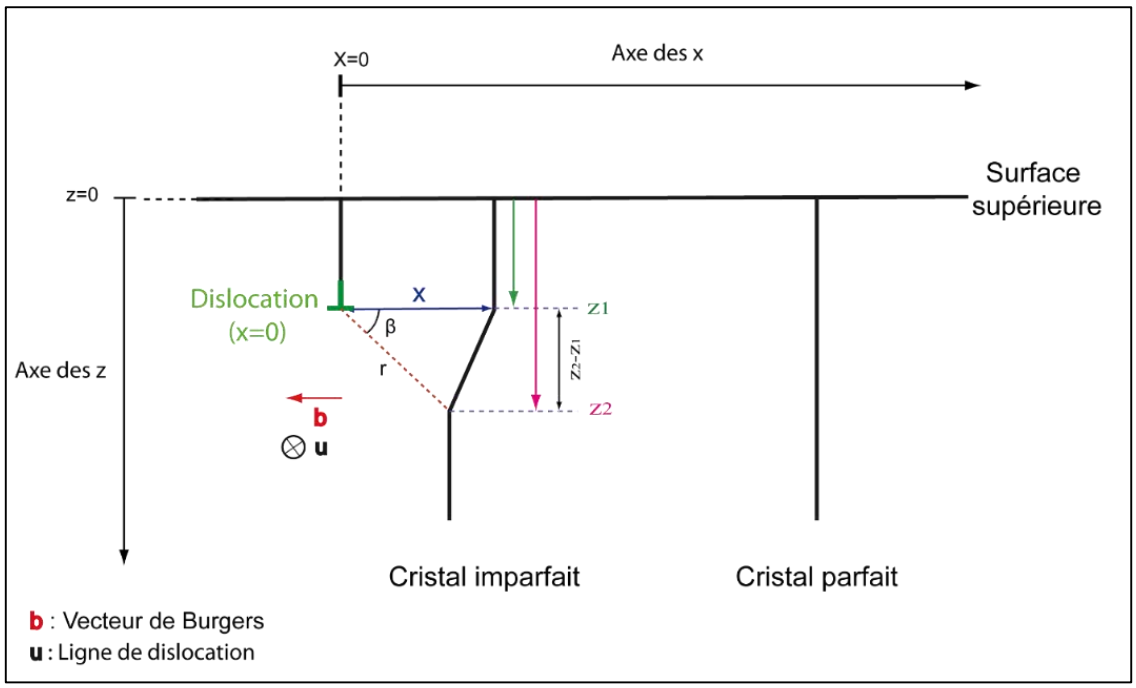


Figure.II.16. Représentation schématique d'une dislocation coin parallèle à la surface et située à une profondeur z_1 en dessous de la surface. Le plan déformé est repéré par une distance x à partir du cœur de la dislocation.

Le champ de déplacement $\mathbf{R}_{coin}$ produit par la présence d'une dislocation coin s'écrit comme suit [Hirth, 1982] :

$$\mathbf{R}_{coin} = \frac{\mathbf{b}}{2\pi}\left[ß + \frac{\sin 2ß}{2(1-\nu)}\right] + \frac{\mathbf{b}\wedge\mathbf{u}}{2\pi}\left[\frac{1-2\nu}{2(1-\nu)}\ln|r| + \frac{\cos 2ß}{4(1-\nu)}\right] \quad (17)$$

Où ν est le coefficient de Poisson, **u** est la direction de la ligne de la dislocation et r représente la position du défaut repérée par les coordonnées polaires (r, ß).

À partir de ces deux dernières équations, $\mathbf{R}_{coin}$ peut être exprimé en fonction de la distance x à partir du cœur de la dislocation en substituant ß et r, obtenus par l'équation (18), dans l'équation (17). Ensuite, afin de trouver la déviation totale, s', du faisceau incident par

rapport à la position de Bragg en présence de la dislocation, nous avons eu recours à la même approximation que celle utilisée dans le cas d'une dislocation vis : faible angle ß qui mène à faible distance (z_2-z_1).

II.5.2.1. Modélisation des profils d'intensité BSE

Analytiquement, l'effet de la présence d'une dislocation coin sur l'intensité BSE se traduit par l'insertion de l'équation (19) dans l'équation (12). Ceci permet de tracer les profils d'intensité BSE au voisinage de ce défaut pour différentes conditions de diffraction s=0, ±**g**, s>0, ±**g** et s<0, ±**g**. Les courbes obtenues sont présentées à la figure.II.17.

Pour la diffraction +**g**, en condition de Bragg (s=0), la courbe d'intensité BSE calculée se caractérise par un maximum et un minimum (figure.II.17.a). La dislocation coin génère, alors, un contraste blanc/noir. En revanche pour s>0 (s=0,01 nm^{-1}), la courbe de la figure.II.17.c présente un seul pic mettant en évidence le contraste brillant de la dislocation. Ce maximum d'intensité est située à une position x≈-6 nm à partir du cœur du défaut. En ce qui concerne le cas de s<0, nous avons obtenu les mêmes profils d'intensité que ceux obtenus dans le cas d'une dislocation vis (figure.II.17.e) : un creux avec un léger pic.
Les différents profils d'intensité modélisés pour une dislocation coin sont, en effet, semblables à ceux obtenus dans le cas d'une dislocation vis. Ils s'inversent aussi, suite à l'inversion de signe de **g** quel que soit le signe du paramètre s (figures.II.17.b, d et f).

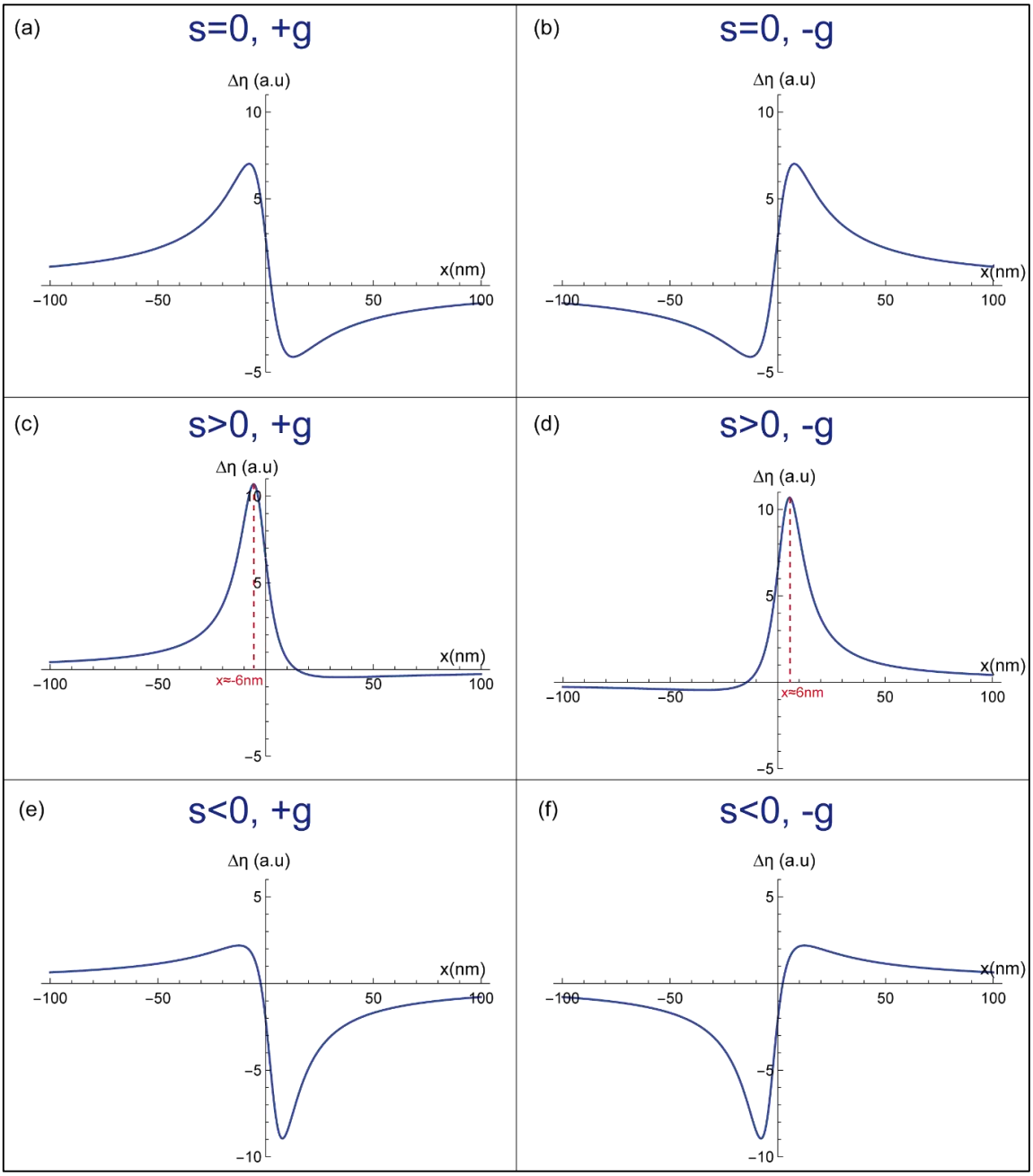


Figure.II.17. Modélisation des profils d'intensité BSE, pour une dislocation coin dans différentes conditions de diffraction : s=0 (a)+**g** (b)–**g**, s>0 (c)+**g** (d)–**g** et s<0 (e)+**g** (f)–**g**.

II.5.2.2. Critères d'invisibilité d'une dislocation coin

Les conditions $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$ et $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\wedge\mathbf{u}=0$ sont les critères d'invisibilité totale d'une dislocation coin [Hirsch, 1965] [Hirth, 1982] [Crimp, 2001]. La ligne, apparaissant dans la figure.18.a, correspond à un profil d'intensité BSE modélisé dans ces conditions de diffraction. Elle est parallèle à l'axe des abscisses, avec un $\Delta\eta=0$ (a.u). Aucun contraste n'est ainsi généré par la dislocation. Cependant, lorsque $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$ et $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\wedge\mathbf{u}\neq0$, le profil calculé et présenté dans la

figure.II.18.b présente un pic entouré par deux creux. Ce pic est de faible intensité, Δη≈2,7 (a.u), par rapport au niveau du bruit du fond. Un tel contraste est caractéristique de la dislocation coin et appelé contraste résiduel. Il a déjà été observé pour ce type de défaut en MET [Edington, 1976].

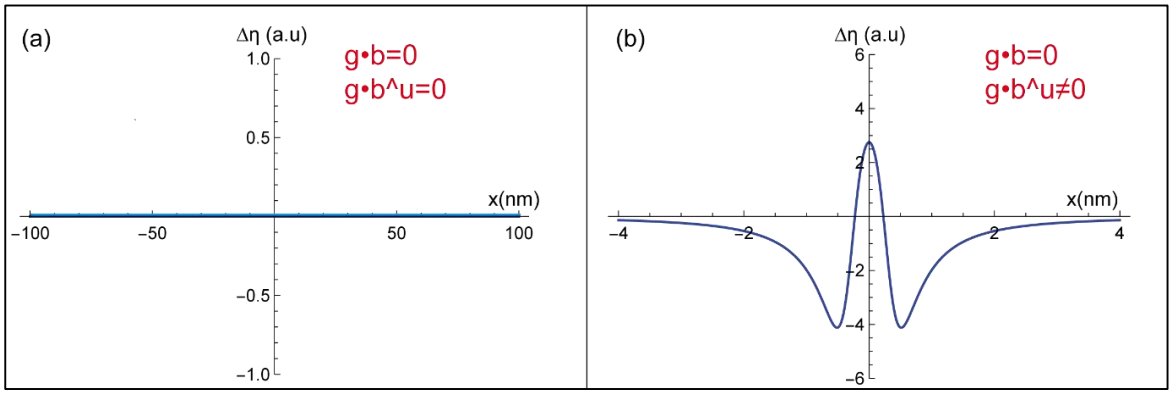


Figure.II.18. Modélisation des profils d'intensité BSE pour les conditions d'extinction : (a) $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$, $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\wedge\mathbf{u}=0$ et (b) $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$, $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\wedge\mathbf{u}\neq0$.

Dans le cas d'une dislocation coin nous pouvons déduire à partir de notre calcul théorique que :

- Une dislocation coin génère les mêmes contrastes qu'une dislocation vis : un contraste noir/blanc pour s=0 qui s'inverse avec l'inversion de signe de **g**, un contraste brillant pour s>0 et enfin pour s<0, la dislocation apparait noire ou bien plus sombre que le reste du cristal.
- Les critères d'invisibilité totale et le contraste résiduel, obtenus, respectivement, pour les conditions $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$, $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\wedge\mathbf{u}=0$ et $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$, $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\wedge\mathbf{u}\neq0$ ont été confirmés.

II.6. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté un modèle théorique, basé sur l'approche des ondes de Bloch de la théorie dynamique de la diffraction (diffusions multiples incohérentes, approximations deux ondes et de la colonne).

Pour un cristal parfait

Notre modèle a permis d'étudier, l'effet de l'épaisseur de l'échantillon sur la formation du profil de la pseudo-bande de Kikuchi. Nous avons ainsi constaté que le contraste d'intensité BSE se produit selon différents régimes :

- Aucun contraste de bande n'a été observé en dessous d'une épaisseur $t=0,2\xi_g$. Dans ce cas, l'échantillon est suffisamment mince pour faciliter la transmission des électrons par différents processus (canalisation, diffraction de Bragg, diffusions inélastiques). Par conséquent, la rétrodiffusion est limitée pour former un profil d'intensité correspondant à celui d'une pseudo-bande de Kikuchi.
- Un régime transitoire, dans lequel, apparaissent des oscillations au niveau des flancs du profil de la pseudo-bande de Kikuchi. Au cours de ce régime, l'intensité BSE a augmenté au fur et à mesure de l'augmentation de l'épaisseur.
- Un régime stable, marqué par la disparition des oscillations, est obtenu à partir d'une épaisseur de $1,6\xi_g$. Cette dernière épaisseur est en effet suffisante pour générer une quantité appréciable d'électrons rétrodiffusés dont l'intensité va être modulée par la canalisation permettant ainsi la formation d'un profil de la pseudo-bande de Kikuchi.

Pour un cristal imparfait

Nous avons modélisé les profils d'intensité BSE dans un cristal contenant des dislocations, vis et coin, parallèles à la surface. Pour compléter la littérature sur ce sujet, nous avons présenté un calcul détaillé aboutissant à une expression analytique explicite de la variation du signal BSE produit par les dislocations. De ce fait, nous avons envisagé des modélisations pour différentes conditions expérimentales de diffraction : $s=0$, $\pm\mathbf{g}$, $s>0$, $\pm\mathbf{g}$ et $s=0$, $\pm\mathbf{g}$. Des conclusions analogues peuvent être faites pour les deux types de dislocations (vis et coin) :

- En condition d'incidence de Bragg, $s=s_B$, le profil d'intensité BSE obtenu est antisymétrique de part et d'autre du cœur de la dislocation située en x=0 nm. Il comporte un creux et un pic correspondant, respectivement, à un minimum et un maximum d'intensité BSE. Ce résultat est en accord avec la littérature. En outre nous avons obtenu une inversion du contraste (le creux devient pic et vice versa) avec l'inversion de signe de **g** : cette inversion du contraste est aussi rapportée par la littérature, elle n'était pas démontrée.
- Pour $s>0$, nous avons obtenu des courbes théoriques ne présentant qu'un seul pic d'intensité qui ne coïncide pas avec la position exacte de la dislocation (x=0 nm). Ce maximum d'intensité se situe, respectivement, d'un côté ou de l'autre de l'axe des ordonnées selon la condition de diffraction $+\mathbf{g}$ ou $-\mathbf{g}$.

- Lorsque s<0, nous avons obtenu des profils d'intensité comportant un creux et un pic pas très intense. Ce contraste s'inverse avec l'inversion de signe de **g**.
- La largeur de l'image de la dislocation augmente quand **|g·b|** augmente.

De plus, nous avons mis en évidence les conditions d'extinction pour :

- Dislocation vis : le profil d'intensité BSE calculé, en tenant compte du champ de déformation de cette dislocation, pour **g·b** =0, montre une ligne parallèle à l'axe des abscisses, avec un $\Delta\eta$=0 (a.u). Par conséquent, la dislocation vis est hors contraste pour ces conditions de diffraction.
- Dislocation coin : la même allure de profil, $\Delta\eta$=0 (a.u), est obtenue dans le cas d'une dislocation coin lorsque **g·b** =0 et **g·b∧u** =0 (dislocation totalement invisible). En revanche, pour les conditions de diffraction **g·b** =0 et **g·b∧u** ≠0, le profil d'intensité théorique présente un pic de faible intensité entouré par deux creux. Un tel contraste est caractéristique de la dislocation coin et il s'agit du contraste résiduel.

En résumé notre approche théorique nous a permis d'obtenir d'une part des résultats en accord avec la littérature et d'autre part des résultats inédits tel que :

- Une expression explicite de $\Delta\eta$=f(s, **g**, **R**). Elle peut être utilisée afin de modéliser les profils d'intensité dans le cas d'autres défauts cristallins : dislocation mixte, défauts d'empilements...
- Une étude fondamentale du contraste d'intensité BSE produit par un cristal parfait et imparfait.

Ces résultats seront exploités dans le chapitre suivant afin de comprendre les mécanismes de formation des images ECC des dislocations en confrontant nos profils théoriques aux résultats expérimentaux.

II.7. Références

[Brodu, 2017] E. Brodu, E. Bouzy, J-J. Fundenberger. Diffraction contrast dependence on sample thickness and incident energy in on-axis Transmission Kikuchi Diffraction in SEM. Ultramicroscopy, 181, 123-133 (2017).

[Clarke, 1971] D. R. Clarke. Observation of crystal defects using the scanning electron microscope. Philosophical Magazine, 24:190, 973-979 (1971).

[Crimp, 2001] M. A. Crimp, B. A. Simkin, B. C. Ng. Demonstration of the g·bxu=0 edge dislocation invisibility criterion for electron channelling contrast imaging. Philosphical Magazine Letter, 81 (12), 833-837 (2001).

[Edington, 1976] J. W. Edington. Interpretation of Transmission Electron Micrographs. London (1976).

[Hirsch, 1965] P. Hirsch, A. Howie, R. Nicholson, D. W. Pashley, M. J. Whelan. Electron Microscopy of Thin Crystals. New York, Plenum (1965).

[Hirth, 1982] J. P. Hirth, J. Lothe. Theory of dislocations. A Wiley-Interscience Publication, 2nd edition (1982).

[Humphreys, 1968] C. J. Humphreys, P. B. Hirsch. Absorption parameters in electron diffraction theory. Philosophical Magazine, 18 :151, 115-122 (1968).

[Humphreys, 1979]. C. J. Humphreys. The scattering of fast electrons by crystals. Reports on Progress in Physics, 42, 1825- 1887 (1979).

[Reimer, 1986] L. Reimer, U. Heilers, G. Saliger. Kikuchi band contrast in diffraction patterns recorded by transmitted and backscattered electrons. Scanning, 8, 101-118 (1986).

[Reimer, 1998] L. Reimer. Scanning Electron Microscopy. Physics of image formation and microanalysis. Springer-Verlag Berlin Heidelberg GmbH, 2nd edition (1998).

[Reimer, 2008] L. Reimer, H. Kohl. Transmission Electron Microscopy. Physics of image formation and microanalysis. Springer Science+ Business Media, Germany, 5th edition (2008).

[Spencer, 1972] J. P. Spencer, C. J. Humphreys, P. B. Hirsch. A dynamical theory for the contrast of perfect and imperfect crystals in the scanning electron microscope using backscattered electrons. Philosphical Magazine, 26:1, 193-213 (1972).

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

[Williams, 1996] D.B. Williams and C. Carter. Transmission Electron Microscopy. Springer, New York (1996).

Chapitre III

Interprétation des contrastes d'intensité des dislocations observées par ECCI à l'aide d'une nouvelle approche théorique

Les parties III.6 et III.7 de ce chapitre ont fait l'objet de la publication : H. Kriaa, A. Guitton, N. Maloufi. « Fundamental and experimental aspects of diffraction for characterizing dislocations by electron channeling contrast imaging in scanning electron microscope ». Scientific Reports, 7, 9742 (2017).

III.1. Introduction

Dans ce chapitre, nous présenterons l'analyse des intensités rétrodiffusées des images de dislocations contrastées par ECCI, à l'aide du modèle théorique que nous avons développé et présenté dans le chapitre II. Les images ECCI seront acquises dans différentes conditions de diffraction, sélectionnées à l'aide des clichés Kikuchi. Un défaut est, en effet, bien contrasté quand le faisceau électronique incident est orienté en condition de Bragg par rapport à une famille donnée de plans réflecteurs {hkl}, c'est-à-dire pour un vecteur de diffraction **g** précis. Cette condition est satisfaite lorsque l'axe optique du microscope, ou le faisceau d'électrons primaires non dévié, coïncide avec le bord d'une pseudo-bande de Kikuchi (hkl). C'est la raison pour laquelle nous étudierons l'effet de la position du faisceau incident sur le contraste de la dislocation : la position le long du même bord d'une bande (hkl) puis la position de part et d'autre de la bande, soit pour ±**g**. Nous allons également interpréter les contrastes obtenus, lorsqu'on applique une légère déviation s ($s=g\,(\theta-\theta_B)$), par rapport à la position de Bragg : $s>0$ en ±**g** et avec $s<0$ en ±**g**. L'intérêt des observations en ±**g** est de caractériser des configurations complexes comme par exemple un dipôle de dislocations.

Il importe de noter que toutes les micrographies des dislocations seront acquises avec la technique améliorée d'imagerie par contraste de canalisation des électrons développée au LEM3 (*accurate*-ECCI).

La 1ère partie de ce chapitre sera dédiée à la présentation des techniques expérimentales généralement utilisées pour déterminer l'orientation cristallographique et contrôler ainsi les conditions ECCI. L'accent est mis sur celles adoptées dans cette thèse telles que la procédure *accurate-ECCI* (a-ECCI) et la technique de précession du faisceau ou *Rocking Beam*. Cette dernière est développée sur la colonne GEMINI I du microscope Zeiss, elle permet de générer des diagrammes nommés *High Resolution Selected Area Channeling Pattern* (HR-SACP). Les pseudo-diagrammes de Kikuchi HR-SACP présentent les

meilleures résolutions latérales jamais obtenues à ce jour, de l'ordre de 500 nm [Guyon, 2015].

Ensuite la 2ème partie de ce chapitre sera consacrée à la présentation du matériau modèle que nous avons choisi pour étudier les dislocations : l'acier IF.

La dernière partie, quant à elle, s'attardera à une analyse très précise des contrastes d'images de dislocations obtenues par a-ECCI.

III.2. Techniques expérimentales utilisées

III.2.1. Le Microscope Électronique à Balayage (MEB)

Un MEB est constitué d'une colonne électronique verticale maintenue sous vide. Elle comporte un canon à électrons, des lentilles électromagnétiques, des bobines de balayage et une chambre où est placé l'échantillon à analyser (figure.III.1). Les MEB utilisés dans cette étude sont dotés de canons à émission de champ (*Field Emission Gun*, FEG). Les électrons produits au niveau du canon sont accélérés dans la colonne. Au niveau de la chambre se trouvent les différents détecteurs qui collectent divers signaux provenant de l'interaction des électrons avec l'échantillon. Certains MEB récents, plus performants, sont aussi dotés de détecteurs dans la colonne.

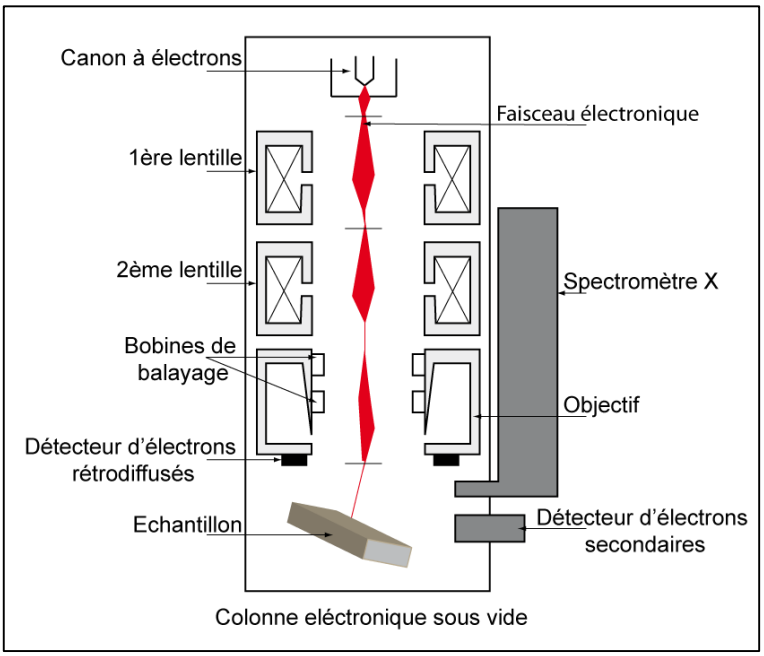


Figure.III.1. Schéma d'une colonne d'un MEB.

III.2.1.1. Interaction électrons-matière

Différentes informations peuvent être déduites de l'analyse des signaux (électrons et photons) émis par l'échantillon suite à l'interaction électrons-matière. Ces signaux proviennent de différentes profondeurs de la matière, comme le montre la figure.III.2. Le volume affecté est appelé « poire d'interaction ».

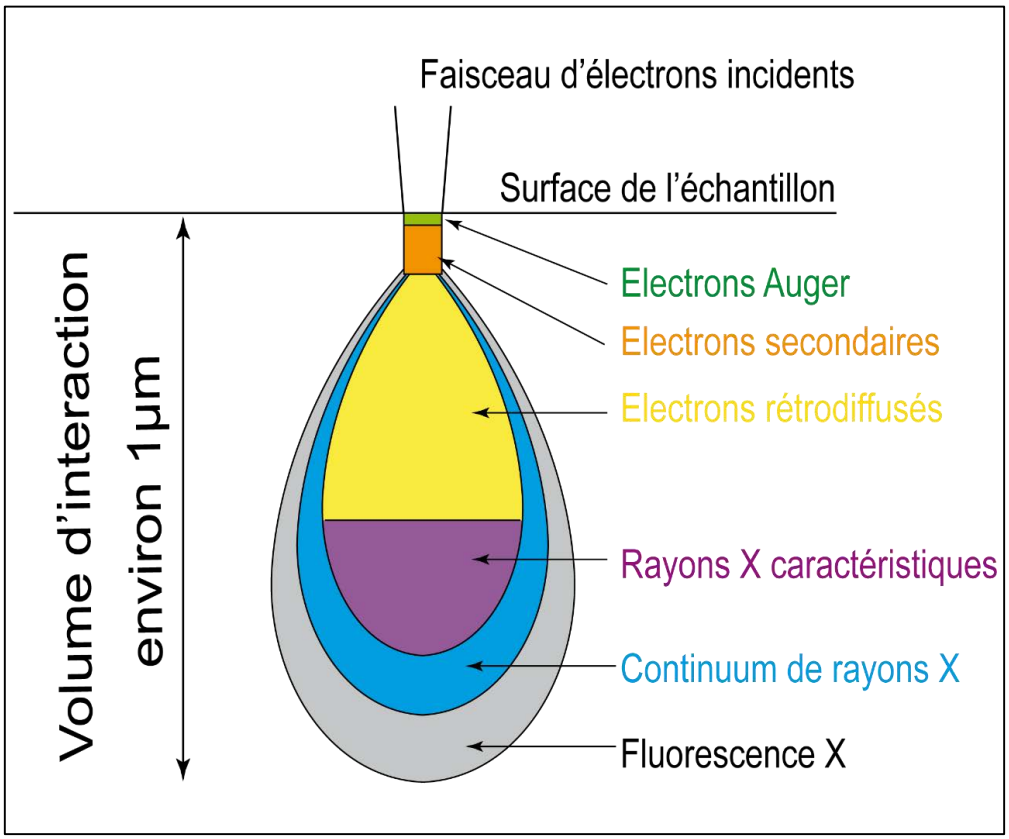


Figure.III.2. Schéma de la poire d'interaction.

Les informations sur la topographie de la surface sont données par les électrons secondaires, de faible énergie, dont le rendement est très sensible à la morphologie de la surface. Les détecteurs d'électrons secondaires sont situés dans la colonne (*Inlens)* ou dans la chambre (*Secondary Electrons,* SE). Les électrons rétrodiffusés (BSE), d'énergie comparable à celle du faisceau primaire, sont à l'origine des informations cristallographiques et sont liées à la nature du matériau [Reimer, 1998]. Ils sont ainsi utilisés pour générer des images de contraste d'orientation ou de phase sur un échantillon poli miroir. Les rayons X, quant à eux, révèlent la composition chimique de la zone analysée sur l'échantillon.

Sous certaines conditions et orientations de l'échantillon, la détection des BSE permet de contraster les défauts cristallins comme les dislocations, les nano-macles et les défauts d'empilement à l'aide de la technique ECCI. Ces conditions nécessitent le contrôle précis de l'orientation de l'échantillon par rapport au faisceau incident. C'est la raison pour laquelle nous présentons dans un premier temps l'ensemble des techniques mises en œuvre dans un MEB pour déterminer l'orientation d'un cristal et contrôler ainsi les conditions ECCI. À savoir, *Electron Channeling Pattern* (ECP), *Electron BackScattered Diffraction* (EBSD), *Selected Area Channeling Pattern* (SACP) et *High Resolution Selected Area Channeling Pattern* (HR-SACP).

III.2.2. Détermination de l'orientation cristallographique

III.2.2.1. Electron Channeling Pattern (ECP)

Dans le chapitre.I, nous avons présenté le premier pseudo-diagramme de Kikuchi ou ECP observé, dans un MEB, par Coates en 1967 [Coates, 1967]. La figure.III.3 présente un ECP équivalent collecté sur un monocristal de silicium (100) [Maloufi, 2018]. Sur ce digramme, se superpose la courbe de modulation de l'intensité BSE en fonction de l'incidence du faisceau par rapport aux plans cristallins.

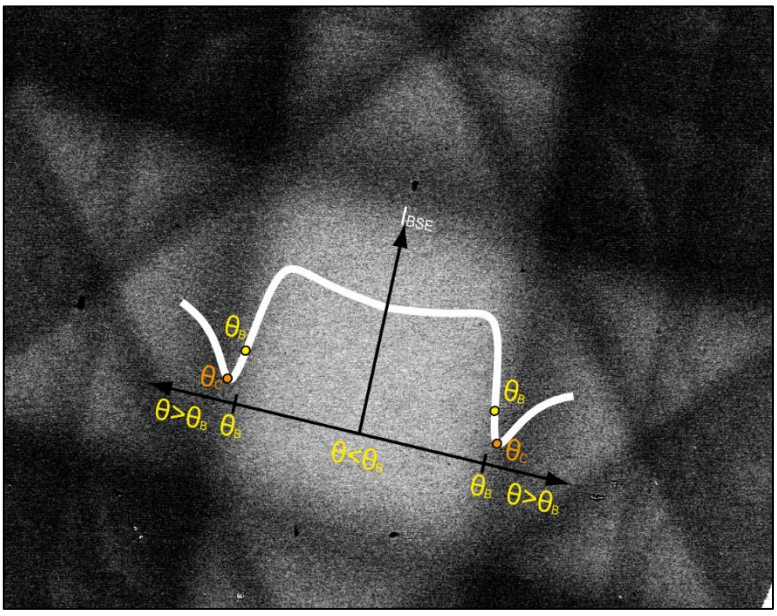


Figure.III.3. Pseudo-diagramme de Kikuchi acquis sur un monocristal de silicium (100). La courbe de la modulation de signal BSE en fonction de l'angle d'incidence est superposée dessus [Maloufi, 2018].

En raison de la grande sensibilité du rendement en BSE à l'orientation relative du cristal par rapport au faisceau primaire (courbe de la figure.III.3), ces ECP peuvent être exploités pour déterminer avec précision l'orientation du cristal étudié. Leur précision angulaire de l'ordre de 0,1° est ainsi suffisante pour contrôler les conditions ECCI [Wilkinson, 1997]. Pour ce faire, il suffit, alors, d'orienter (par rotation et/ou inclinaison) l'échantillon de façon à ce que le bord de la bande de la famille de plans réflecteurs souhaités coïncide avec le centre de l'ECP.

Quelques années après l'observation de ces diagrammes, Geoffrey E. Lloyd les a utilisés pour observer et caractériser des sous-joints de grains (interface limitant deux zones de faible désorientation) dans des minéraux comme le feldspath, le quartz, la muscovite… [Lloyd, 1987]. Durant la dernière décennie, de nombreux travaux ont été publiés concernant l'utilisation des ECP pour étuder de défauts cristallins dans les matériaux monocristallins comme les semi-conducteurs [Trager-Cowan, 2007] [Naresh-Kumar, 2012] [Kamaladasa, 2011]. Par exemple, Kamaladasa *et al.* [Kamaladasa, 2010] ont proposé une méthode pour identifier les vecteurs de Burgers des dislocations traversantes dans le nitrure de galium (GaN) (figure.III.4) en utilisant l'ECCI assistée par ECP.

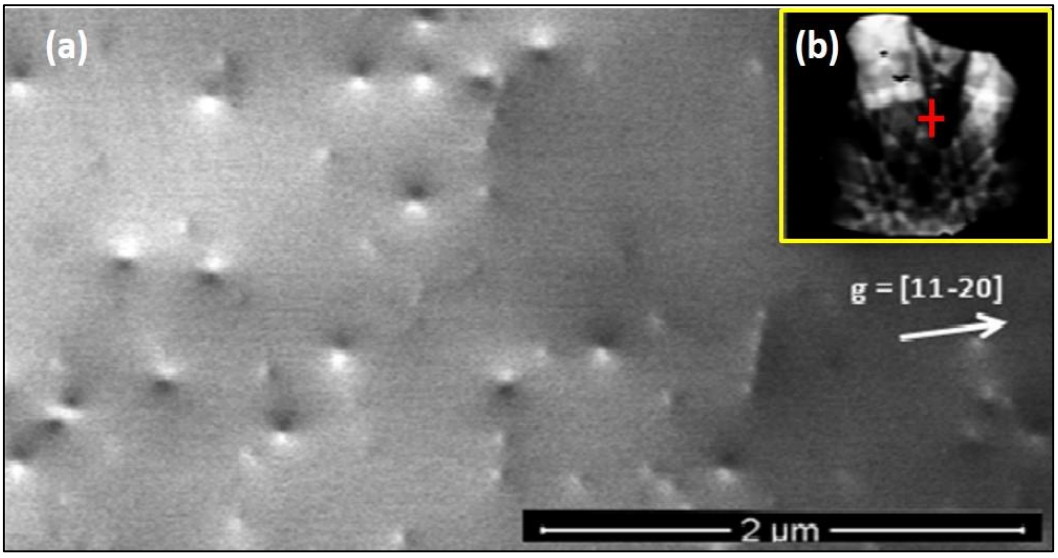


Figure.III.4. Micrographie ECC des dislocations traversantes observées dans le GaN sous la diffraction **g**= (11-20), (b) l'orientation de la zone d'intérêt est déterminée par la croix rouge sur l'ECP [Figure d'après Kamaladasa, 2010].

Cependant, la résolution spatiale des diagrammes ECP est d'au moins 1 mm (la réalisation d'un ECP nécessite donc une surface importante). Par conséquent, cette méthode est limitée

à la détermination de l'orientation des monocristaux ou des polycristaux à très gros grains (de taille >2 mm).

III.2.2.2. Electron BackScattred Diffraction (EBSD)

Afin de surmonter la limitation de la faible résolution spatiale de l'ECP pour la détermination de l'orientation, la technique EBSD peut être utilisée. Cette technique du MEB fournit des informations microstructurales quantitatives sur la nature cristallographique de la plupart des matériaux cristallins (métaux, minéraux, semi-conducteurs, céramiques). Elle permet de déterminer l'orientation cristallographique, la taille des grains, la désorientation au niveau des joints de grains et les différentes phases du matériau [Maithland, 2007] [Schwazer, 2008] [Adam, 2009].

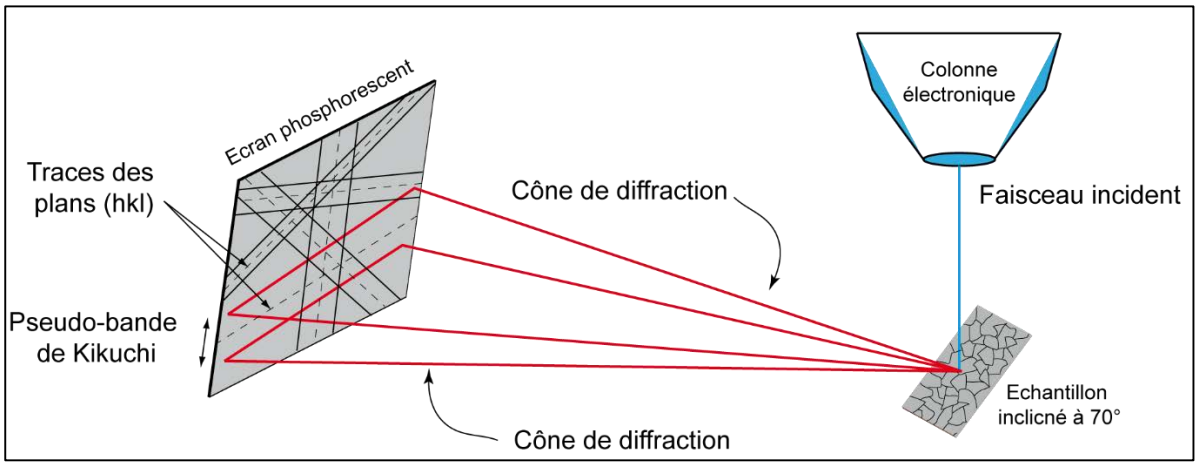


Figure.III.5. Configuration expérimentale de la technique EBSD. Schéma simplifié du principe de la projection des cônes de diffraction et la formation de pseudo-diagramme de Kikuchi en EBSD. Les traits interrompus représentent les traces de différents plans (hkl) [Figure d'après Schwazer, 2008].

La figure.III.5 représente la configuration expérimentale nécessaire pour réaliser des analyses EBSD. L'échantillon est placé dans la chambre du MEB, où le faisceau primaire des électrons est focalisé sur la zone d'étude. Les électrons rétrodiffusés au sein de l'échantillon sont diffractés s'ils sont en incidence de Bragg avec les plans réflecteurs environnants. Pour une famille des plans {hkl}, les électrons diffractent selon deux cônes de diffraction qui sont symétriques par rapport au plan (hkl). La projection de ces cônes sur l'écran phosphorescent de la camera EBSD produit des lignes hyperboliques quasi-parallèles assimilables aux droites formant une bande de Kikuchi. L'axe médian de cette bande correspond à la trace du plan (hkl). L'ensemble de ces lignes génère un pseudo-

diagramme de Kikuchi, où les angles entre les bandes correspondent aux angles entre les plans cristallins. Ainsi, l'indexation automatique de ce diagramme de diffraction permet de déterminer l'orientation cristallographique des grains. Il convient de préciser que l'échantillon est incliné d'un angle de 70° par rapport à l'horizontale afin d'optimiser le rendement en électrons rétrodiffusés.

Chaque « point » ou zone de l'échantillon, impacté par le faisceau d'électrons, produit un diagramme de Kikuchi révélant sa propre orientation. L'amélioration des caméras et des logiciels d'acquisition permet actuellement l'enregistrement de 1600 points par seconde, ce qui fait de l'EBSD, la méthode la plus rapide pour la détermination de l'orientation cristallographique [Meisnar, 2015]. En terme de résolution, l'EBSD offre des avantages supplémentaires par rapport à l'ECP, elle possède une résolution spatiale entre 20 et 70 nm. Cette résolution dépend du matériau et de la tension d'accélération des électrons. Par exemple à 20 kV, elle est d'environ 50 nm pour un acier [Wilkinson, 1997]. Quant à la résolution angulaire, elle est d'environ 0,05° (Système Oxford Instruments) [Thomson, 2013]. Cependant, l'EBSD est limité en résolution angulaire absolue : l'orientation du cristal par rapport à l'axe optique du microscope est donnée de 1 à 2° près [Mansour, 2014] [Guyon, 2015] [Wilkinson, 1997]. Cette imprécision est due à la particularité géométrique de la technique (inclinaison de l'échantillon à 70°).
Récemment, une nouvelle configuration pour l'ECCI nommée cECCI (*controlled ECCI*) a été développée par Gutierrez-Urrutia *et al.* [Gutierrez-Urrutia, 2009] [Gutierrez-Urrutia, 2013]. Elle tire son avantage de la haute résolution spatiale de l'EBSD pour la détermination de l'orientation cristallographique d'une zone réduite. À partir des données EBSD, des simulations des pseudo- diagrammes de Kikuchi sont réalisées [Zaefferer, 2000]. Elles sont utilisées pour établir les conditions de canalisation pour une famille de plans {hkl}, tout en inclinant et/ou tournant l'échantillon (figure.III.6). Avec le cECCI les conditions de canalisation sont réalisées avec une précision angulaire absolue de l'ordre de 0,5° [Zaefferer, 2014].

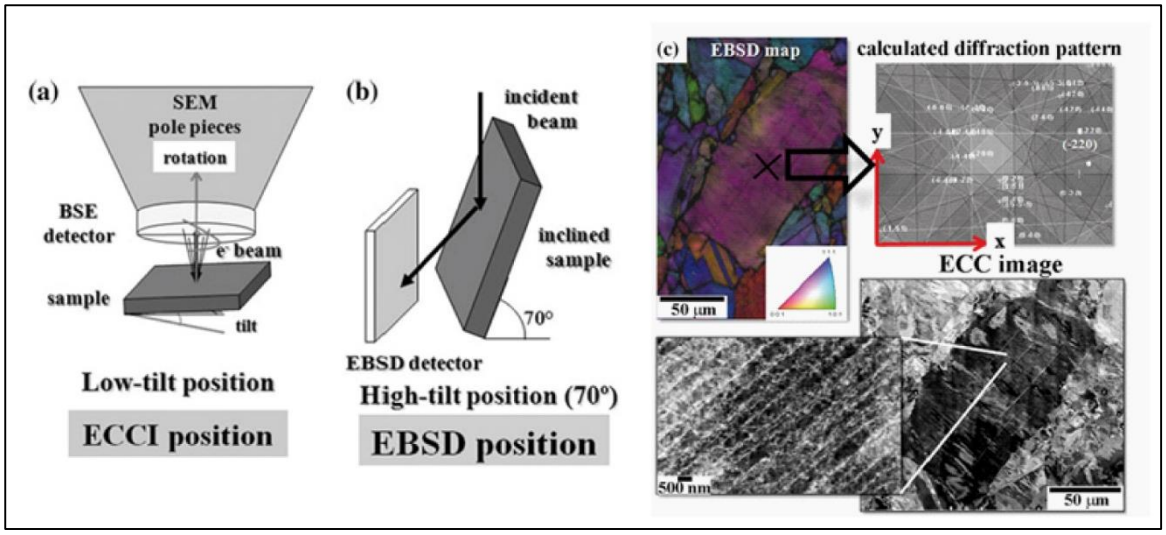


Figure.III.6. Configuration géométrique de (a) l'ECCI et de (b) l'EBSD. (c) Les différentes étapes pour la réalisation de la cECCI [Gutierrez-Urrutia, 2013].

III.2.2.3. Selected Area Channeling Pattern (SACP)

Le SACP est un diagramme ECP généré sur une zone réduite de diamètre entre 10 et 50 µm. Il est acquis par le mode de précession du faisceau appelé *Rocking Beam* (RB). Ce mode a été mis en place dans un MEB par Van Essen *et al.* [Van Essen, 1969] en 1969 tout en s'inspirant de la technique RB qui existait déjà au MET.

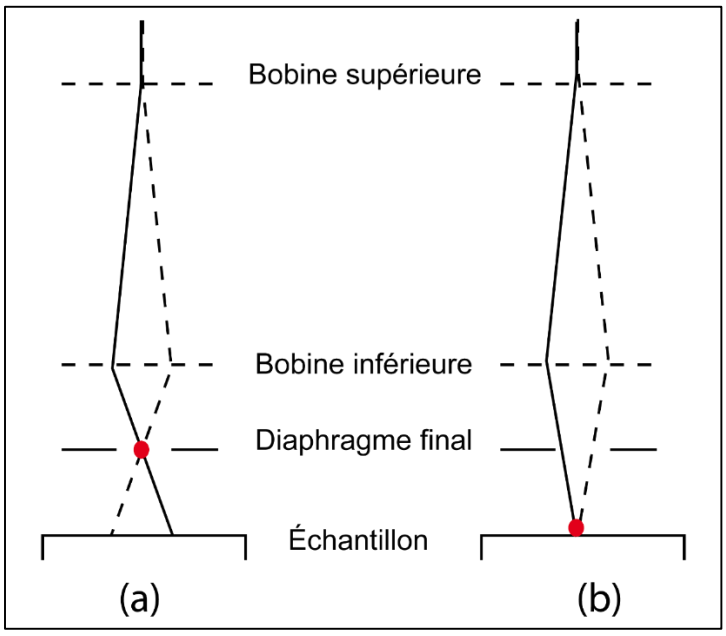


Figure.III.7. (a) Schéma du mode de balayage standard et (b) du mode de précession du faisceau (RB) [Figure d'après Van Essen, 1969].

La figure.III.7.a montre le mode de balayage standard dans le MEB utilisé par Van Essen et Schulson. Pour ce mode, le point pivot de balayage, indiqué par le point rouge, se trouve au niveau du diaphragme final. Par conséquent, le faisceau balaie une large zone sur la surface de l'échantillon. Une modification du courant des deux bobines déflectrices, bobine inférieure et la bobine supérieure, a entrainé le déplacement de ce point pivot directement sur la surface de l'échantillon (figure.III.7.b). Ceci a permis de réaliser le RB et de collecter des SACP dont la résolution spatiale a été estimée entre 50 µm et 100 µm [Van Essen, 1969].

Le SACP présente une meilleure résolution spatiale, comparé à l'ECP, ce qui lui a permis d'être utilisé pour plusieurs applications : la détermination de la désorientation au niveau des joints de grains [Van Essen,1970], le contrôle des conditions ECCI [Dluhos, 2012], la détection des zones déformées plastiquement [Tekin, 1989]…
En ce qui concerne l'établissement des conditions ECCI, Dluhos *et al.* [Dluhos, 2012] ont utilisé les SACP pour déterminer l'orientation cristallographique de la zone d'intérêt et observer, par la suite, les défauts dans un acier inox. Le cliché SACP présenté dans la figure.III.8.a indique que le faisceau incident est orienté près du bord d'une pseudo-bande de Kikuchi (condition de canalisation). Pour cette orientation, les dislocations de la zone d'étude apparaissent brillantes sur un fond sombre comme le montre la figure.III.8.b.

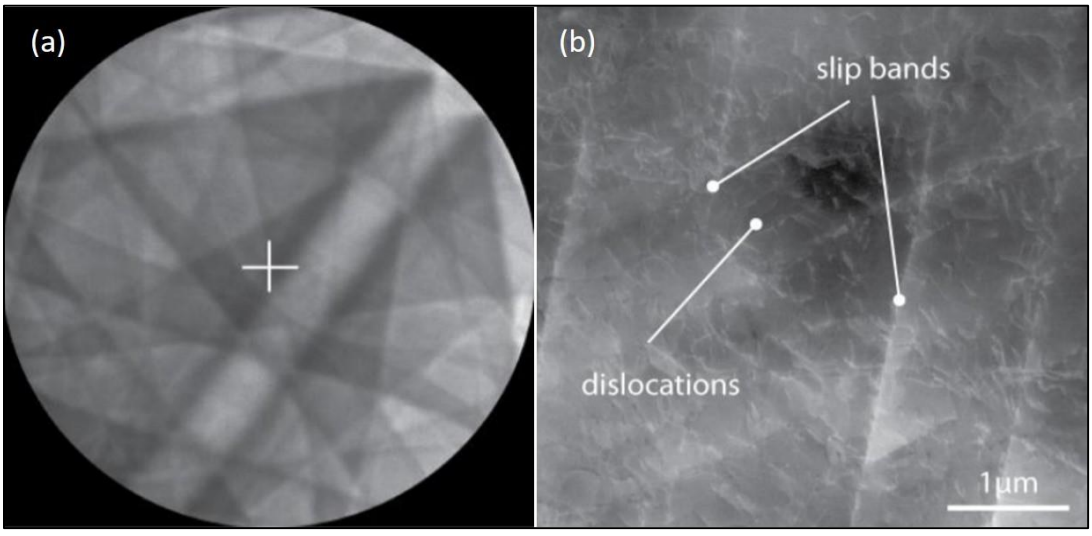


Figure.III.8. (a) Accès aux conditions de canalisation en utilisant un cliché SACP. (b) Micrographie ECC sur la zone d'intérêt : des dislocations isolées sont observées [Dluhos, 2012].

III.2.2.4. High Resolution-Selected Area Channeling Pattern (HR-SACP)

En 2015, Guyon *et al.* [Guyon, 2015] ont développé le mode RB sur la colonne GEMININ I, d'un MEB FEG Zeiss, non conçue initialement pour la précession du faisceau électronique. La procédure développée consiste à créer un point pivot du faisceau d'électrons sur la surface de l'échantillon tout en combinant l'effet des bobines de diaphragme et de balayage. La figure.III.9.a montre le mode standard d'imagerie dans le MEB, où le faisceau reste parallèle à l'axe optique dans la colonne électronique. Dans la figure.III.9.b, la trajectoire de ce faisceau a été modifiée sous l'action des bobines d'alignement du diaphragme (*Aperture Coil*, ApC) et la bobine de balayage (*Scanning Coil,* SC) : le faisceau est défléchi de l'axe optique du microscope, puis il est ramené en un point sur la surface de l'échantillon.

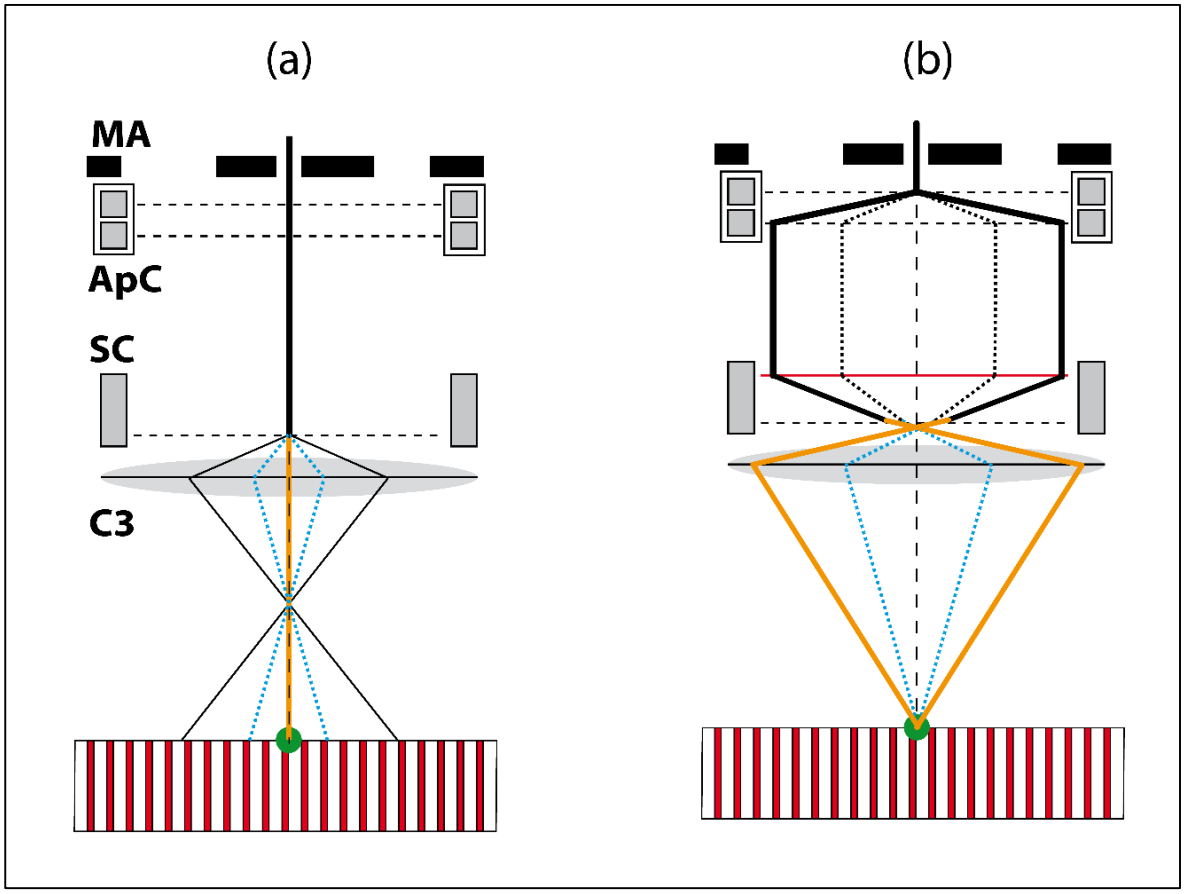


Figure.III.9. Configuration de colonne électronique du microscope FEG Zeiss (a) en mode d'imagerie conventionnelle et (b) en mode de RB [Guyon, 2015].

Grâce à cette procédure, une amélioration significative en terme de résolution spatiale de cliché SACP a été atteinte : la résolution spatiale obtenue est meilleure que 0,5 µm,

l'ouverture angulaire est d'environ 4° et la résolution angulaire est d'environ 0,04°. D'où la justification de la nouvelle dénomination *High Resolution-Selected Area Channeling Pattern* (HR-SACP).

Mansour *et al.* [Mansour, 2014] ont ainsi exploité ces HR-SACP pour mettre au point une nouvelle procédure de contrôle des conditions d'ECCI avec une précision de 0,1° près : l'*accurate-ECCI* (a-ECCI).

III.2.3. Imagerie par contraste de canalisation des électrons améliorée : *accurate- ECCI* (a-ECCI)

Dans le chapitre I, deux configurations géométriques de l'ECCI ont été décrites : la configuration *low tilt* et la *high tilt* [Wilkinson, 1997] [Simkin, 1999]. Pour l'a-ECCI, Mansour *et al.* [Mansour, 2014] ont utilisé la configuration *low tilt*. Elle présente l'avantage de minimiser l'effet topographique (généré par la grande inclinaison de l'échantillon en *high tilt*) sur le signal rétrodiffusé durant l'acquisition de l'image. Une représentation schématique de cette configuration (de l'a-ECCI) est donnée dans la figure.III.10. Les auteurs ont utilisé un détecteur d'électrons rétrodiffusés insérable sous la pièce polaire, de diamètre 10 mm. Le même détecteur a servi à l'acquisition des clichés HR-SACP. La distance de travail optimale (distance entre l'échantillon et la pièce polaire) pour la collection de signal BSE est d'environ 7 mm.

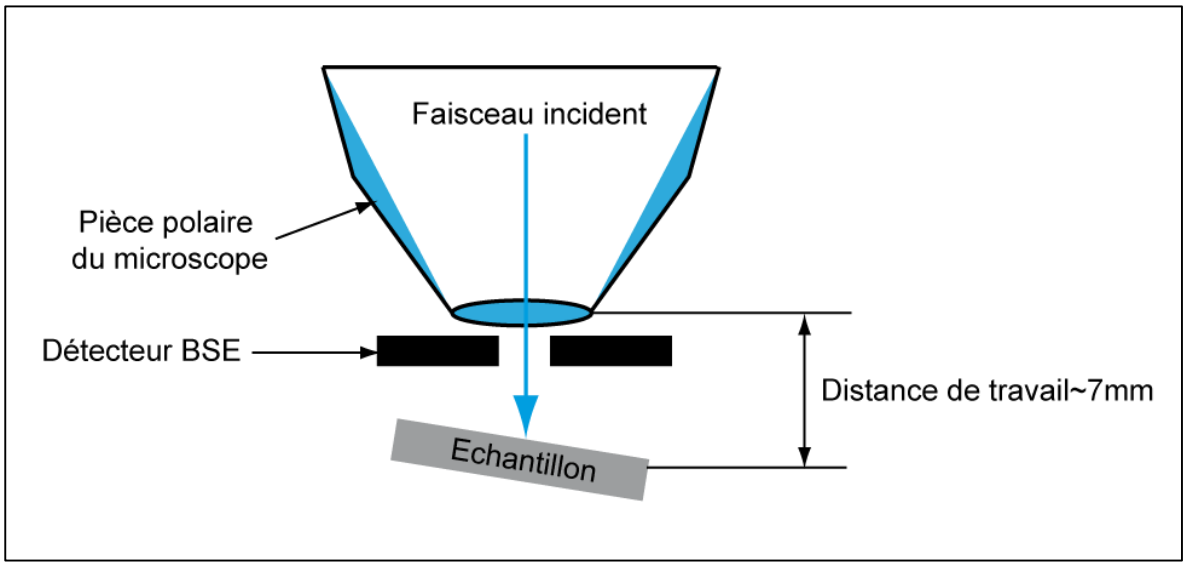


Figure.III.10. Schéma de la configuration expérimentale de l'a-ECCI.

La procédure de l'a-ECCI consiste à acquérir dans un premier temps une carte EBSD sur la zone d'intérêt. Cette carte est générée expérimentalement à partir d'un échantillon incliné à 70° par rapport à l'horizontale (paragraphe III.2.2.2). Dans un deuxième temps, les données EBSD (angles d'Euler ϕ_1, ϕ, ϕ_2) sont utilisées pour simuler, à 0°, un pseudo-diagramme de Kikuchi avec le logiciel de Bruker : *Esprit Dynamics*. Cette étape permet de connaitre approximativement l'orientation du cristal par rapport au faisceau incident avec une erreur d'environ 2°. Ensuite, un HR-SACP est collecté sur la même zone d'intérêt. Il convient de préciser que la simulation a été réalisée à 0°, car la configuration de l'a-ECCI utilisée est la *low tilt* et que les HR-SACP sont collectés avec l'échantillon placé face au détecteur BSE. Finalement, comme l'ouverture angulaire du HR-SACP est réduite à 4°, ce cliché est superposé sur le pseudo-diagramme de Kikuchi simulé à 0° dont l'ouverture angulaire est beaucoup plus large. Cette combinaison, HR- SACP et diagramme EBSD simulé, donne l'orientation absolue du cristal avec une précision meilleure que le 0,1° nécessaire pour l'établissement des conditions ECCI.

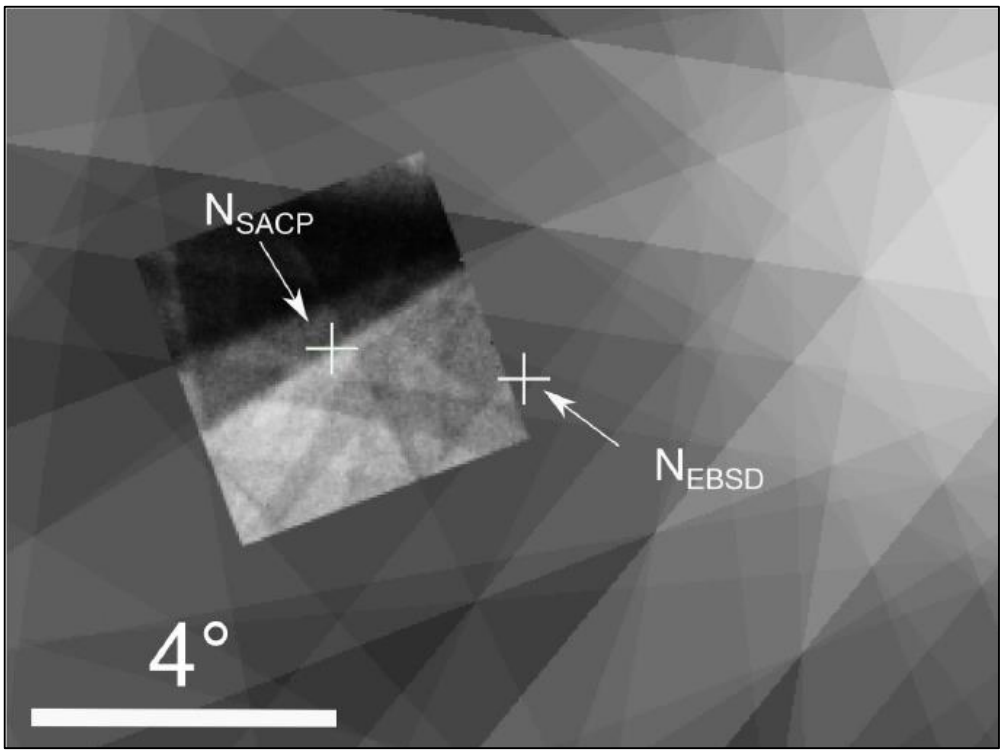


Figure.III.11. Ecart angulaire entre les normales déduites respectivement d'un HR-SACP (N_{SACP}) et d'un pseudo-digramme de Kikuchi simulé (N_{EBSD}) [Mansour, 2016].

Dans la figure.III.11, l'orientation cristallographique obtenue par HR-SACP est comparée à celle obtenue à partir du diagramme simulé. Un écart angulaire d'environ 2° est observé

entre les normales déduites respectivement d'un HR-SACP enregistré avec un échantillon à plat et d'un diagramme EBSD simulé à 0°.

Dans cette thèse, la procédure expérimentale de l'a-ECCI a été adoptée pour observer les défauts cristallins (le MEB utilisé est doté d'un mode RB). Les HR-SACP ont été acquis dans un MEB FEG Zeiss Auriga 40 sous une tension de 20 kV, avec un diaphragme de diamètre 30 µm et une distance de travail de 7 mm. Le temps d'acquisition est d'environ 20 secondes.

III.2.4. Préparation des échantillons

La préparation de la surface de l'échantillon est une étape nécessaire pour les différentes caractérisations par les techniques expérimentales citées précédemment. Les échantillons massifs subissent, en général, un polissage mécano-chimique. Le protocole consiste en une succession de polissages mécaniques avec des papiers abrasifs, de granulométries décroissantes, lubrifiés à l'eau, suivi d'un polissage avec des solutions diamantées (9 µm, 3 µm et 1 µm). Finalement, pour l'étape de finition, un polissage mécano-chimique, électrolytique ou ionique peut être effectué.

III.3. Matériau modèle utilisé : l'acier IF

III.3.1. Présentation générale

Les aciers sans interstitiels (*Interstitial Free,* IF) sont en général produits par le processus de dégazage sous vide. Le terme sans interstitiel se réfère au fait que leur réseau atomique ne contient pas d'atomes de solutés interstitiels. L'absence de ces atomes leur permet d'avoir une ductilité idéale pour les opérations d'emboutissage [Madeleine, 2012]. En plus, ils sont largement utilisés en tant que pièces de structures dans l'industrie automobile : ils permettent en effet la minimisation de la masse des véhicules sans perdre en rigidité ou en résistance aux chocs. Le pourcentage massique du carbone dans l'acier IF est de 0,005% et les autres éléments interstitiels sont stabilisés par ajout de titane et de niobium. La faible teneur en carbone donne aux aciers IF une structure cubique centrée (cc) purement ferritique.

Afin d'améliorer, entre autres, les performances de ces aciers, il est indispensable de comprendre le lien entre leurs propriétés mécaniques et la microstructure, c'est-à-dire étudier les défauts cristallins, tels que les dislocations, et comprendre les mécanismes de déformation. Généralement, ces études sont réalisées par MET et elles ont montré que ces métaux contiennent des configurations complexes des défauts cristallins comme les dipôles de dislocations [Caillard, 2013] [Haghighat, 2015]. Cependant, avec une microstructure purement ferritique, ces aciers sont magnétiques et ils génèrent une forte déviation du faisceau électronique dans le MET (astigmatisme). En effet, à chaque inclinaison d'échantillon, un réalignement du faisceau est nécessaire. De ce fait, des études de défauts dans les aciers ont été réalisées par ECCI dans des MEB Zeiss [Mansour, 2014] [Zaefferer, 2014]. Dans ces derniers, la configuration de la colonne est telle que les lignes de champ magnétique, produites par les bobines, n'atteignent pas l'échantillon.

Pour les aciers IF de structure cc, les dislocations ont un vecteur de Burgers $\mathbf{b}=\frac{1}{2}<111>$. Leur système de glissement principal est le {110} <111>.

III.3.2. Caractérisation microstructurale

L'acier IF utilisé dans cette étude a subi d'abord un laminage à chaud dans un intervalle de température entre 1000°C et 1120°C pour atteindre une épaisseur de 2,8 mm. Il a été ensuite laminé à froid pour avoir une épaisseur finale de 1,4 mm suivi par un traitement de recristallisation.

Notre échantillon est coupé à partir d'une éprouvette légèrement déformée (1%) en traction. La surface de l'échantillon étudié est préparée en suivant le même protocole décrit dans le paragraphe III.2.4. Pour l'étape de finition, un polissage mécano-chimique avec une solution basique de silice colloïdale (OPU) d'une granulométrie de 50 nm est effectué.

La micrographie BSE de la figure.III.12 présente la microstructure de l'acier IF (contraste d'orientation, taille et forme des grains). Les différents contrastes (clairs et sombres) visibles dans cette figure sont liés à l'orientation cristallographique. Les grains sombres ont leurs plans denses orientés par rapport au faisceau incident exactement (grains noirs) ou presque (grains gris) en condition de canalisation : les électrons du faisceau incident sont canalisés par ces plans et le rendement BSE est faible (courbe de la figure.III.3). En revanche les grains apparaissant clairs émettent un signal BSE important.

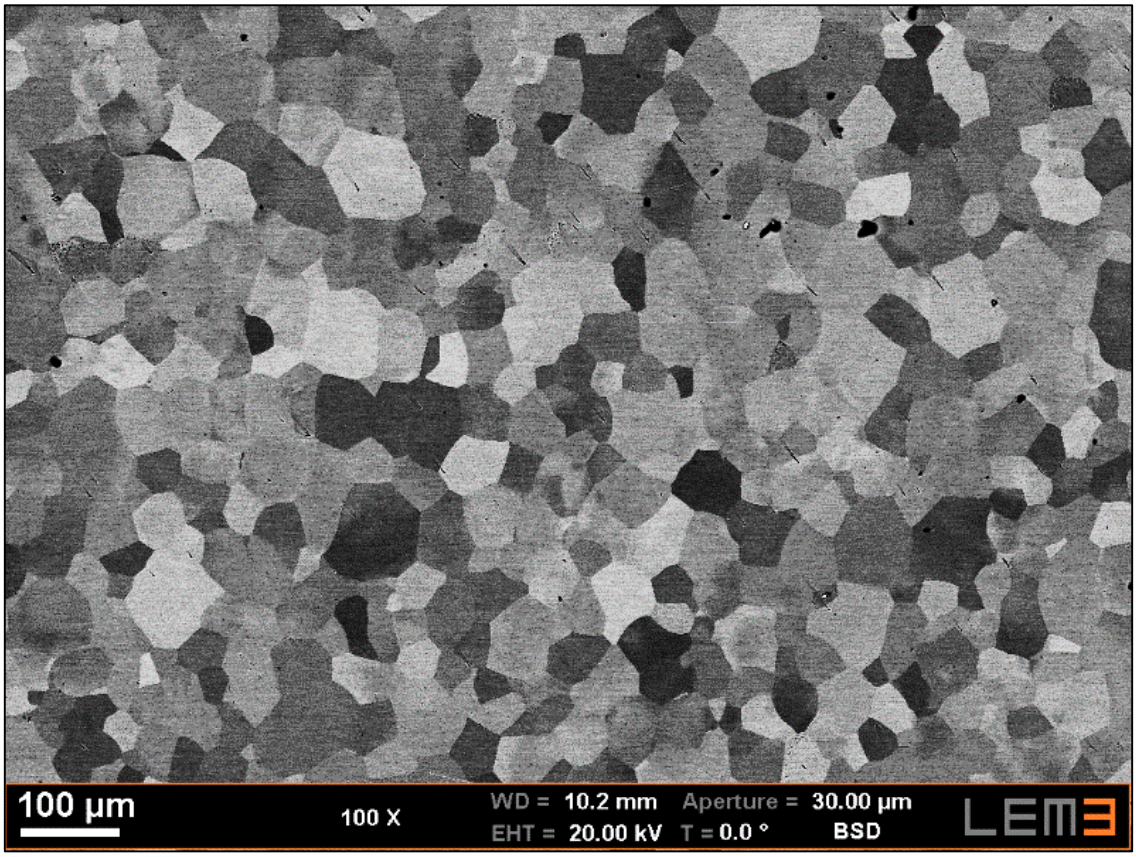


Figure.III.12. Micrographie BSE de la surface de l'acier IF.

Dans ce qui suit, l'acier IF est utilisé pour interpréter le contraste issu des dislocations observées par l'a-ECCI. Les résultats expérimentaux sont discutés en se basant sur notre modèle théorique présenté dans le chapitre II.

III.4. Procédure d'établissement des conditions de canalisation

Pour réaliser une caractérisation fine de défauts dans un cristal par ECCI, les conditions de canalisation doivent être satisfaites pour une famille de plans {hkl}. La figure.III.13 illustre la procédure utilisée pour trouver les angles d'inclinaison (*tilt*) et de rotation R nécessaires pour atteindre ces différentes conditions de canalisation.

Dans un premier temps, l'orientation initiale du cristal est déterminée. Ensuite, afin d'accéder aux différentes conditions ECCI, l'échantillon (ou la platine) est réorienté par rotation et/ou inclinaison. Pour une position donnée, l'orientation est obtenue par superposition du HR-SACP (acquis à cette position) sur le diagramme EBSD simulé. Il est à noter que l'inclinaison de l'échantillon se traduit par une translation rectiligne du centre

du HR-SACP sur un axe dit l'axe d'inclinaison. La rotation (sans aucune inclinaison) se traduit par une rotation du cliché HR-SACP.

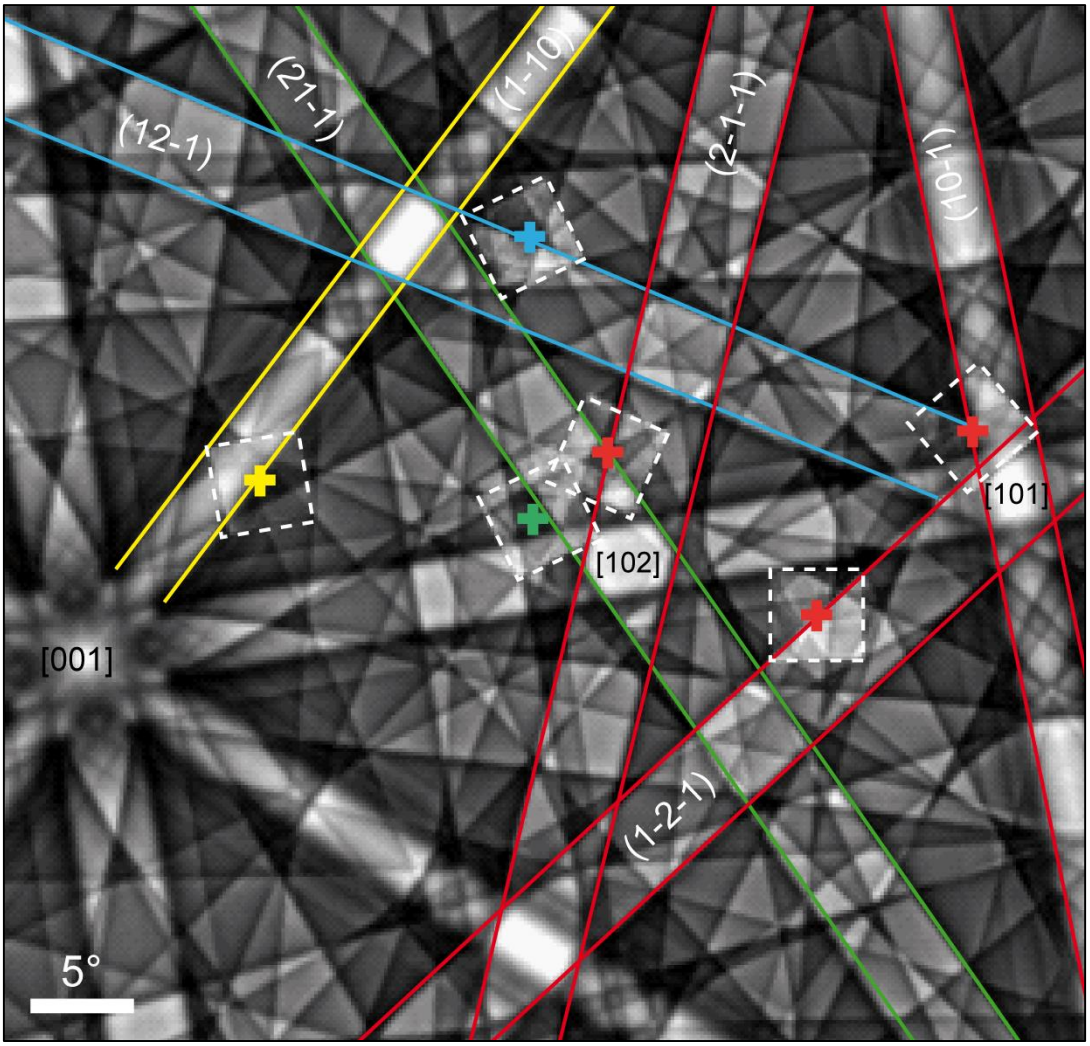


Figure.III.13. Schéma montrant les diagrammes SACP relatifs aux positions de l'échantillon. Les HR-SACP sont superposés sur le diagramme pseudo-Kikuchi simulé. L'orientation du cristal est donnée par les centres des HR-SACP (les croix).

Le pseudo-diagramme de Kikuchi simulé à 0° d'inclinaison présenté dans la figure.III.13 est obtenu pour un acier IF à partir des données EBSD. L'orientation initiale du cristal sélectionné (échantillon à plat), repérée par la croix verte, est proche d'un axe de zone [102]. Elle est déterminée par le HR- SACP acquis à Tilt=0° et R=R_0. R_0 représente la rotation initiale de la platine (autour de l'axe optique du microscope) et elle est la même lors de l'acquisition de la carte EBSD. Par exemple, pour atteindre la condition **g**= (12-1), l'échantillon est incliné de 14° sans appliquer de rotation (R fixe). L'orientation obtenue est repérée par la croix bleue. Pour atteindre la croix jaune, nous avons effectué une rotation

R=90° (dans le sens antihoraire) et une inclinaison Tilt=14°. La même procédure est appliquée pour accéder aux autres conditions de canalisation (croix rouges). L'inclinaison maximale pouvant être atteinte sans risque de collision majeure avec le détecteur BSE est d'environ 20° pour une distance de travail de 7 mm.

III.5. Étude du contraste d'une dislocation pour différentes positions du faisceau incident sur une pseudo-bande (hkl)

III.5.1. Au travers d'une pseudo-bande de Kikuchi

Les figures.III.14.a, b et c présentent des micrographies ECC de la même dislocation observée avec différents paramètres de déviation s : s>0, s=s_B=0 et s<0. Rappelons que s est la déviation de la position exacte de Bragg (s_B). La figure.III.14.d est acquise quand le faisceau incident est orienté au milieu de la bande. Les différentes orientations du faisceau incident à travers une pseudo-bande de Kikuchi sont repérées par les croix sur le schéma (figure.III.14.e) et sur les HR-SACP.

Pour un paramètre de déviation s légèrement positif, le faisceau est orienté près du bord de la pseudo-bande de Kikuchi (croix verte). Cette orientation correspond à la condition de canalisation où l'intensité des BSE passe par un minimum. Si aucun autre bord du bande intense n'intercepte le bord de la bande d'étude au point considéré, les dislocations apparaitront brillantes et fines sur un fond sombre (figure.III.14.a) : contraste optimal de canalisation.

Les dislocations peuvent aussi être contrastées, même si le faisceau est orienté avec un paramètre de déviation s=s_B=0 ou s<0 [Simkin, 1999] [Morin, 1979]. Par exemple, la dislocation présente un contraste noir/blanc sur un fond sombre (figure.III.14.b) quand le faisceau incident est orienté exactement sur la position de Bragg (croix rouge). Le même contraste, noir/blanc, est obtenu sur un fond clair quand le paramètre de déviation est légèrement négatif (figure.III.14.c). En outre, un contraste noir sur un fond clair (figure.III.14.d) est obtenu quand le faisceau incident est orienté au milieu de la bande (croix noire).

À partir des micrographies ECC (figure.III.14), il semblerait que la position du faisceau incident au travers de la bande influe non seulement sur le contraste de la dislocation mais aussi sur la largeur de son image. Afin de mesurer cette largeur, plusieurs profils d'intensité

perpendiculaires à la ligne de dislocation ont été obtenus par ImageJ [Schneider, 2012]. Ensuite, la moyenne de ces profils est ajustée par une courbe Gaussienne afin d'obtenir la largeur à mi-hauteur. À partir de cette dernière, la largeur de l'image de dislocation est estimée pour chaque position du faisceau incident. Les valeurs obtenues sont : $T_{s>0}$≈22 nm, $T_{s=0}$≈33 nm, $T_{s<0}$≈34 nm et T_{Milieu}≈17 nm. L'image de la dislocation la plus fine est obtenue pour un faisceau orienté au milieu de la bande.

Il importe de noter que l'image ECC de la dislocation correspond à une projection sur le plan d'observation (sur le détecteur).

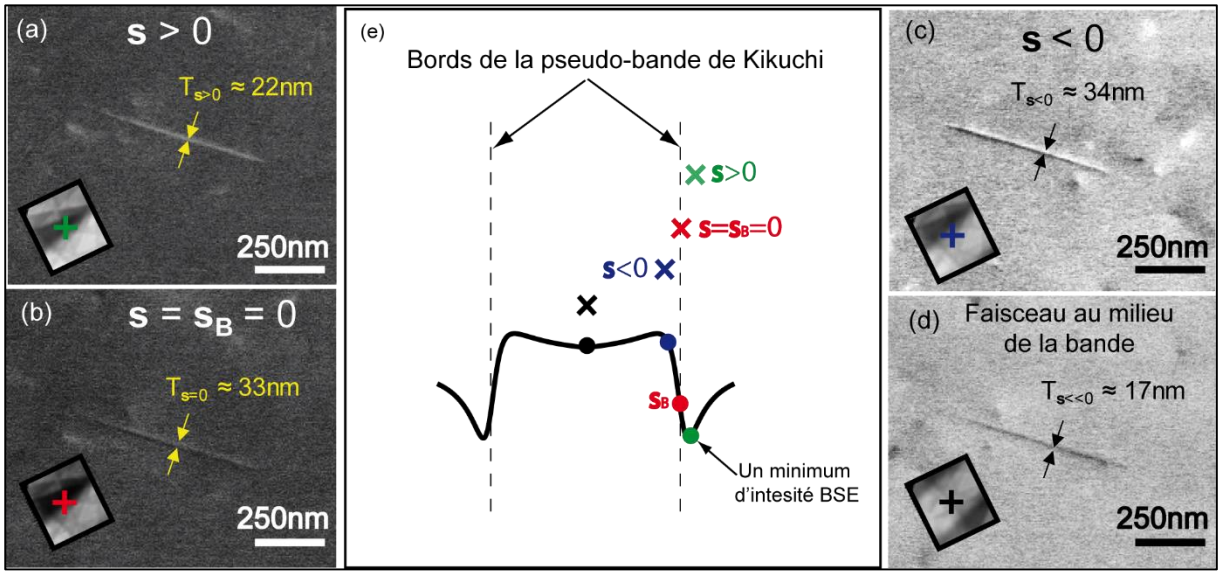


Figure.III.14. Micrographies ECC de la même dislocation acquises avec un paramètre de déviation (a) s>0, (b) s=0, (c) s<0 et (d) quand le faisceau incident est orienté au milieu de la bande. (e) Différentes orientations correspondantes du faisceau incident.

III.5.2. Le long d'une pseudo-bande de Kikuchi, pour un g donné

Les figures III.15.a-e présentent des micrographies ECC de la même dislocation. Elles sont acquises avec la même condition de diffraction **g**= (2-1-1). Afin d'obtenir le contraste optimal (dislocation fine et brillante sur un fond sombre), les conditions de canalisation sont établies avec un s>0. Sur le pseudo-diagramme de Kikuchi simulé (figure.III.15.f), les différentes positions du faisceau incident, nommées P_i, sont repérées sur le bord de la bande (2-1-1). Pour chaque position P_i, la largeur de l'image de dislocation est mesurée par la même procédure décrite dans la partie précédente. L'incertitude sur la mesure est estimée

comme l'écart entre la moyenne et les valeurs extrêmes obtenues à partir des profils perpendiculaires à la ligne de dislocation.

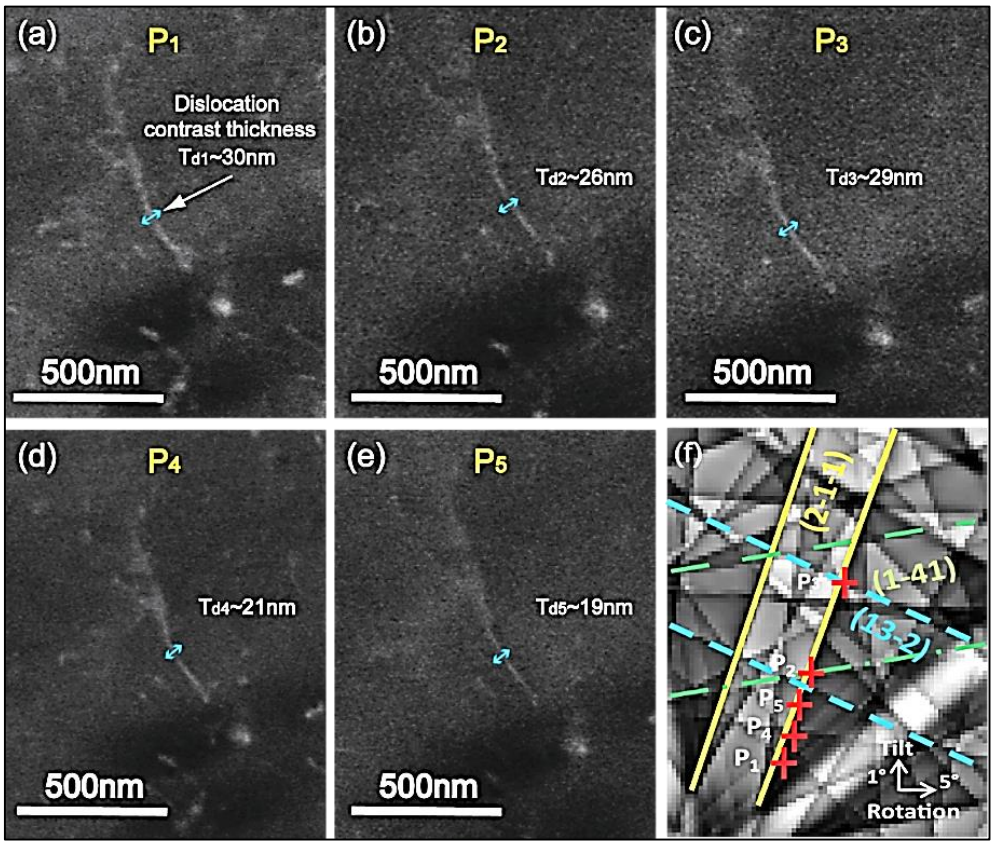


Figure.III.15. (a-e) Micrographies ECC de la même dislocation observée sous la même condition de diffraction **g**= (2-1-1) et s>0. (f) Pseudo-diagramme de Kikuchi simulé à 0° sur lequel sont indiquées les différentes positions du faisceau incident P_i. Les lignes vertes et bleues repèrent, respectivement, les bandes (1-41) et (13-2).

Pour les positions P_1, P_2 et P_3, les largeurs de l'image de la dislocation, T_d, sont respectivement T_{d1}≈30±4 nm, T_{d2}≈26±4 nm et T_{d3}≈29±4 nm, les micrographies ECC correspondantes sont bruitées. La figure.III.15.f montre qu'à ces positions, la bande principale (2-1-1) intercepte d'autres bandes. Elle croise une bande (1-41), colorée en vert, en P_2 et une bande (13-2), colorée en bleu, en P_3 (l'intersection à la position P_1 n'est pas présentée pour des raisons de simplification de la figure). Pour les positions P_4 et P_5, les largeurs de la dislocation sont respectivement T_{d4}≈21±4 nm et T_{d5}≈19±4 nm et le faisceau incident est orienté loin des intersections des bords de bandes. Compte tenu de l'incertitude (d'environ 4 nm), les contrastes de la dislocation obtenus pour P_1, P_2 et P_3 sont plus épais que ceux obtenus pour P_4 et P_5.

La différence en terme de largeur des images de dislocations (entre P_1, P_2, P_3 et P_4, P_5) peut être expliquée par la contribution de plus d'une bande au niveau des positions P_1, P_2 et P_3: à l'intersection, toutes les bandes contribuent à l'intensité BSE totale. Il est donc important de tenir compte de l'effet des autres bandes et de leur contribution au signal total. Le meilleur contraste de dislocations et la bonne qualité de micrographies sont obtenus quand le faisceau incident est orienté loin de l'intersection des bords de bandes. Il s'agit de la condition deux-ondes.

III.5.3. De part et d'autre d'une pseudo-bande de Kikuchi

Les figures.III.16.a-d présentent des micrographies ECC de la même dislocation. Elles sont acquises avec la même condition de diffraction **g**= (2-1-1). Afin d'étudier l'influence de la position de part et d'autre de la pseudo-bande sur le contraste de la dislocation, les observations ont été réalisées avec un paramètre de déviation s=0.

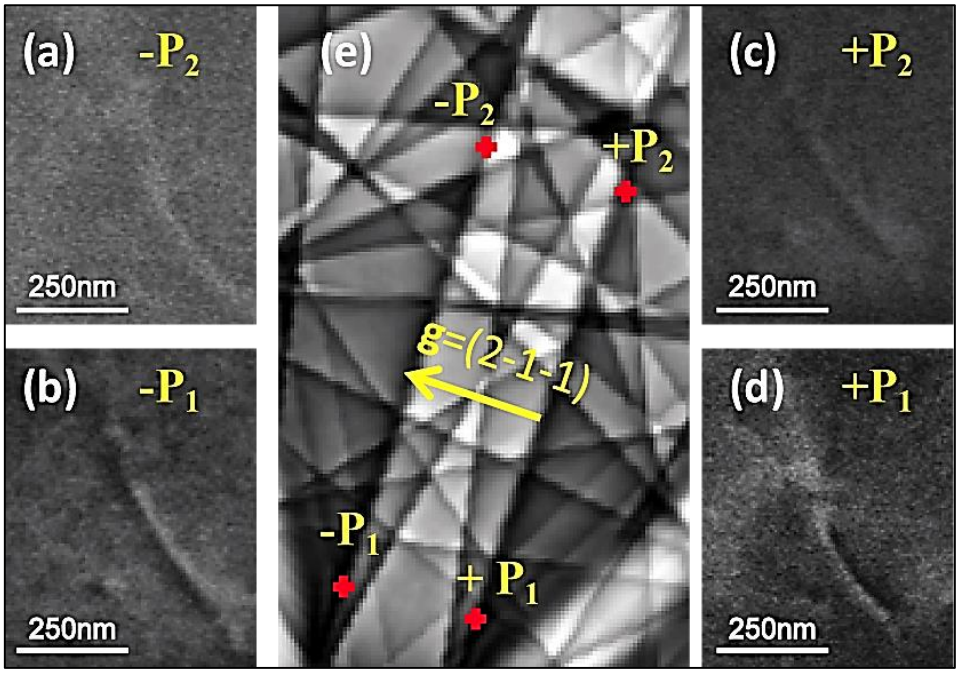


Figure.III.16. (a-d) Micrographies ECC de la même dislocation observée avec **g**= (2-1-1) et s=0.(e) Les différentes positions $\pm P_1$et $\pm P_2$ du faisceau incident sont indiquées par des croix rouges sur le pseudo-diagramme de Kikuchi.

Sur le pseudo-diagramme de Kikuchi simulé (figure.III.16.e), les différentes positions du faisceau incident $+P_1$, $+P_2$ et leurs opposés respectifs $-P_1$, $-P_2$ sont repérées par des croix placées sur les bords de la bande (2-1-1). Il faut noter que les signes « + » et « – »

correspondent respectivement à la diffraction en +**g** et –**g**. Ces signes, et donc les sens des vecteurs de diffraction **g**, sont arbitrairement attribués aux bords de la bande. Pour les positions $\pm P_1$, la dislocation a un contraste noir/blanc qui s'est inversé avec l'inversion de signe de **g**. Le même contraste de la dislocation est obtenu à la position $+P_2$. Cependant, à la position $-P_2$, ce défaut linéaire présente un contraste faible sur un fond clair où les bords noir/blanc ne sont pas discernables : dans ce cas le faisceau incident est orienté sur une zone claire du pseudo-diagramme de Kikuchi.

III.6. Interprétation du contraste des dislocations à partir du modèle théorique

III.6.1. Rappel théorique

Dans le chapitre précédent, nous avons établi la variation du coefficient des électrons rétrodiffusés $\Delta\eta$ en fonction du paramètre d'inclinaison ω, et comme $\omega = s\,\xi_g = g\,(\theta-\theta_B)\xi_g$ (équation (6) chapitre II), nous pouvons ainsi écrire :

$$\Delta\eta=\frac{N\sigma_B}{4\pi}\,\xi_0'\left(-\frac{g(\theta-\theta_B)\xi_g+\frac{\xi_0'}{\xi_g'}}{1+(g(\theta-\theta_B)\xi_g)^2-(\frac{\xi_0'}{\xi_g'})^2}+\frac{g(\theta-\theta_B)\xi_g}{1+(g(\theta-\theta_B)\xi_g)^2+[(1+(g(\theta-\theta_B)\xi_g)^2)(\frac{\xi_0'}{\xi_g'})^2]}\right) \quad (8)$$

Où N est le nombre d'atomes par unité de volume, σ_B est la section de diffusion transversale pour les rétrodiffusions avec des angles supérieurs à 90°, ξ_0' et ξ_g' sont les longueurs d'absorption, θ et θ_B sont, respectivement, l'angle d'incidence et l'angle de Bragg, g est la norme du vecteur de diffraction et ξ_g est la distance d'extinction.

Cette relation donne en fait le profil d'intensité BSE à travers une pseudo-bande de Kikuchi isolée comme le montre la courbe de la figure.III.3. Ensuite, pour déterminer la variation de l'intensité due à la présence d'un défaut dans le cristal, nous avons pris en compte le champ de déplacement **R**, produit par la présence de la dislocation. Ceci nous a permis de modéliser les profils d'intensité des images des dislocations observées pour différentes conditions de diffraction et pour différentes natures de dislocations. La variation de l'intensité BSE au voisinage d'une dislocation, parallèle à la surface, s'écrit ainsi (équation (12) du chapitre II) :

Rappelons que s est la déviation par rapport à la position exacte de Bragg, elle est fixée expérimentalement. Le produit scalaire $\mathbf{g}\cdot\frac{d\mathbf{R}}{dz}$ représente la déviation supplémentaire s_D due à la variation de l'angle d'incidence entre le faisceau incident et les plans cristallins distordus au voisinage du cœur de la dislocation. Loin de ce défaut, le cristal est supposé parfait et donc les plans ne sont pas déformés. La déviation s_D devient nulle.

Afin de comprendre les mécanismes de formation des images ECC de dislocations et de vérifier notre modèle, nous avons confronté nos résultats expérimentaux aux profils théoriques obtenus pour différentes conditions de diffraction (s=0, s>0 et s<0, pour chaque s nous avons présenté les cas de diffraction en ±**g**).

III.6.2. Paramètre de déviation s=0

Quand le faisceau incident est orienté exactement sur le bord d'une bande, soit en incidence de Bragg, le paramètre de déviation s est égal à 0 ($s=s_B=0$). Pour cette condition, les plans (hkl) du cristal parfait sont sous incidence θ égale à θ_B. Les plans déformés autour d'une dislocation sont en incidence soit légèrement inférieure ou légèrement supérieure à θ_B. Cette différence d'angle d'incidence influe sur le rendement BSE et donc sur le contraste de la dislocation.

Les figures.III.17.a et b montrent deux représentations schématiques d'une dislocation sous les conditions de diffraction +**g**= (2-1-1) et –**g**= (-211). Pour ces conditions, deux micrographies ECC de la même dislocation (figures.III.17.a' et b') ont été réalisées selon la procédure expérimentale décrite dans le paragraphe III.2.3. Les profils d'intensité expérimentaux correspondants sont également présentés sur les figures.III.17.a'' et b''. La courbe au centre de la figure.III.17 est théorique, elle a été générée à partir de l'équation (8) du chapitre II. Elle présente la variation de Δη en fonction de l'angle d'incidence θ.

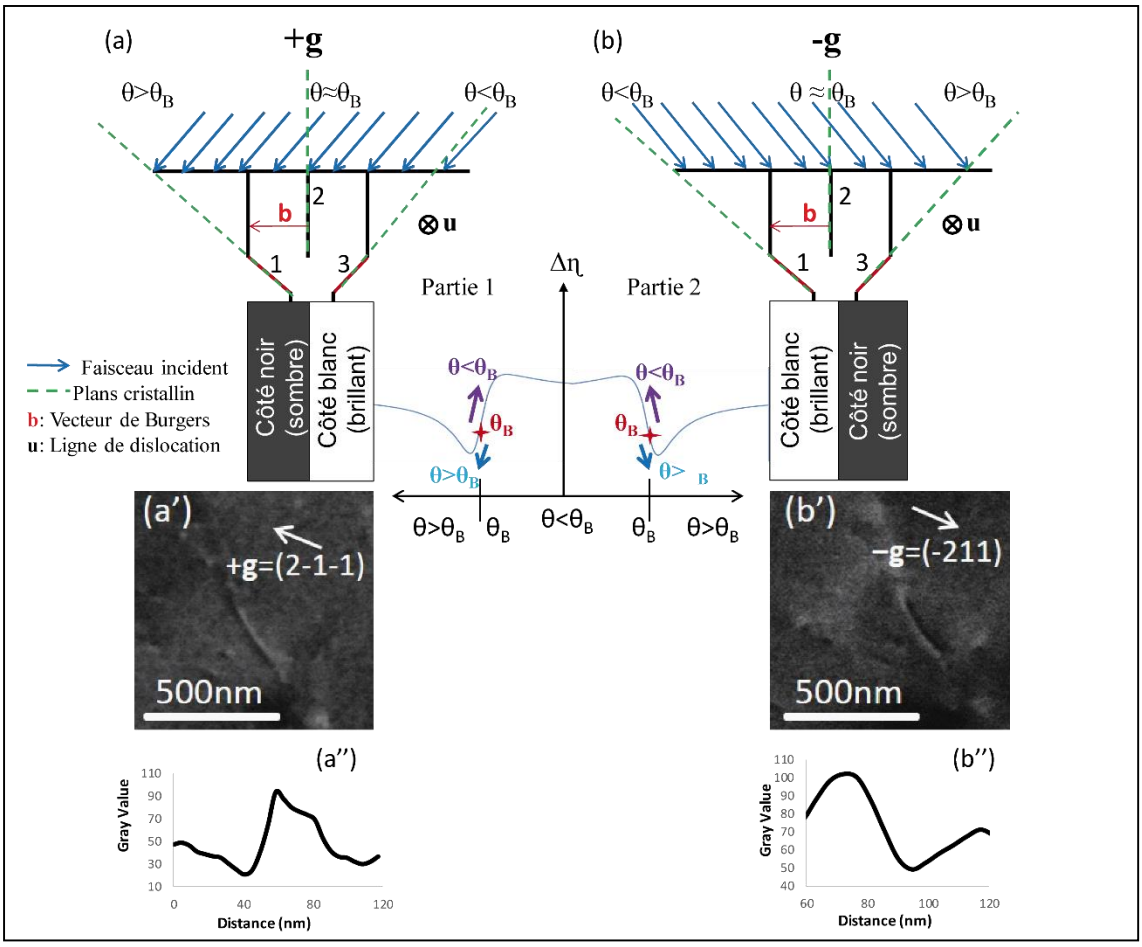


Figure.III.17. Présentations schématiques d'une dislocation en condition de diffraction s=0 avec (a) +**g**= (2-1-1) et (b) –**g**= (-211). Les micrographies ECC, de la même dislocation, et les profils d'intensité correspondants sont présentés, respectivement, par (a') (b') et (a'') (b''). La courbe théorique ($\Delta\eta=f(\theta)$) décrit la modulation de l'intensité BSE en fonction de l'angle d'incidence.

Pour la diffraction en +**g**, les plans 1 et 3 sont, respectivement, en incidence $\theta>\theta_B$ et $\theta<\theta_B$. Pour une incidence $\theta>\theta_B$ l'intensité BSE diminue comme l'indique la flèche bleue de la partie 1 de la courbe. Le plan 1 génère, alors, un signal BSE décroissant : ceci permet d'expliquer pourquoi l'image de la dislocation présente un côté noir (figure.III.17.a' et a''). Cependant, avec une incidence $\theta<\theta_B$, le plan 3 génère un signal BSE croissant (flèche violette de la partie 1 de la courbe) : le côté blanc de la dislocation est, ainsi, obtenu.
Inversement avec la diffraction –**g**, les plans 1 et 3 sont, respectivement, en incidence $\theta<\theta_B$ et $\theta>\theta_B$. Le plan 1 génère, alors, un fort signal BSE par rapport au plan 3 (flèches de la partie 2 de la courbe). Dans ce cas, la micrographie ECC montre une dislocation de contraste blanc/noir (symétrique à celui obtenu en diffraction +**g**) comme le montre les figures.III.17.b' et b''. La partie brillante de la dislocation est située du côté du plan 1.

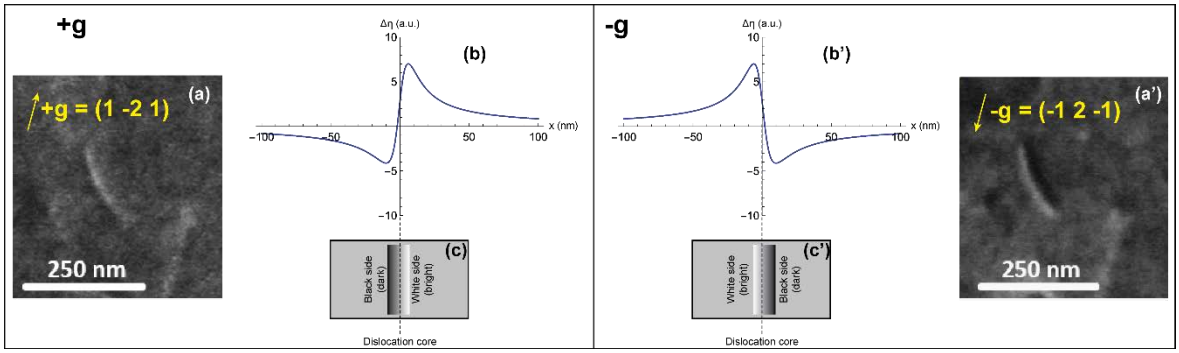


Figure.III.18. (a) et (a') Micrographies ECC, de la même dislocation, acquises en diffraction ±**g** et s=0. Les profils d'intensité et les schémas correspondants sont présentés respectivement par (b), (b'), (c) et (c').

Les profils d'intensité théoriques calculés, à partir de l'équation (12) du chapitre II, au voisinage d'une dislocation pour les conditions de diffraction s=0 et ±**g**, sont présentés par la figure.III.18. Sur cette figure, nous avons également rapporté les images ECC expérimentales de la dislocation vis observée dans les mêmes conditions de diffraction (s=0 et ±**g**). Rappelons que pour la diffraction +**g**, le profil d'intensité obtenu (figure.III.18.b) est antisymétrique de part et d'autre du cœur de la dislocation située en x=0 nm. Il comporte un creux et un pic correspondant, respectivement, à un minimum et un maximum d'intensité BSE. Ceci met en évidence le côté noir/blanc de la dislocation présenté dans les figures.III.18.a et c. Pour la diffraction en –**g**, le profil modélisé (figure.III.18.b') est symétrique à celui obtenu en diffraction +**g** : les extrema sont inversés (le pic devient creux et vice versa), tout à fait en accord avec la micrographie ECC de la figure.III.18.a' qui montre une dislocation de côté blanc/noir.

Il faut rappeler que le signal BSE est exprimé en unité arbitraire (a.u) et que la distance, x, à partir du cœur de la dislocation est exprimée en nm.

III.6.3. Paramètre de déviation s>0

Comme il a déjà été mentionné, le contraste optimal des dislocations sur un fond sombre est obtenu avec s>0. L'origine de ce contraste est interprétée par la figure.III.19. Pour cette condition, un ensemble des plans cristallins {hkl}, comme le plan 2, sont en incidence $\theta=\theta_c$ légèrement supérieure à θ_B (où l'indice c indique la canalisation). Les plans au voisinage de la dislocation, tels que les plans 1 et 3, sont en incidence légèrement supérieure ou légèrement inférieure à θ_c. D'après la courbe $\Delta\eta=f(\theta)$, ces plans 1 et 3 génèrent un signal

croissant de BSE quel que soit le vecteur de diffraction +**g** ou –**g**. La dislocation apparait, à chaque fois, fine et brillante sur un fond sombre (figures.III.19.a', a'', b' et b'').

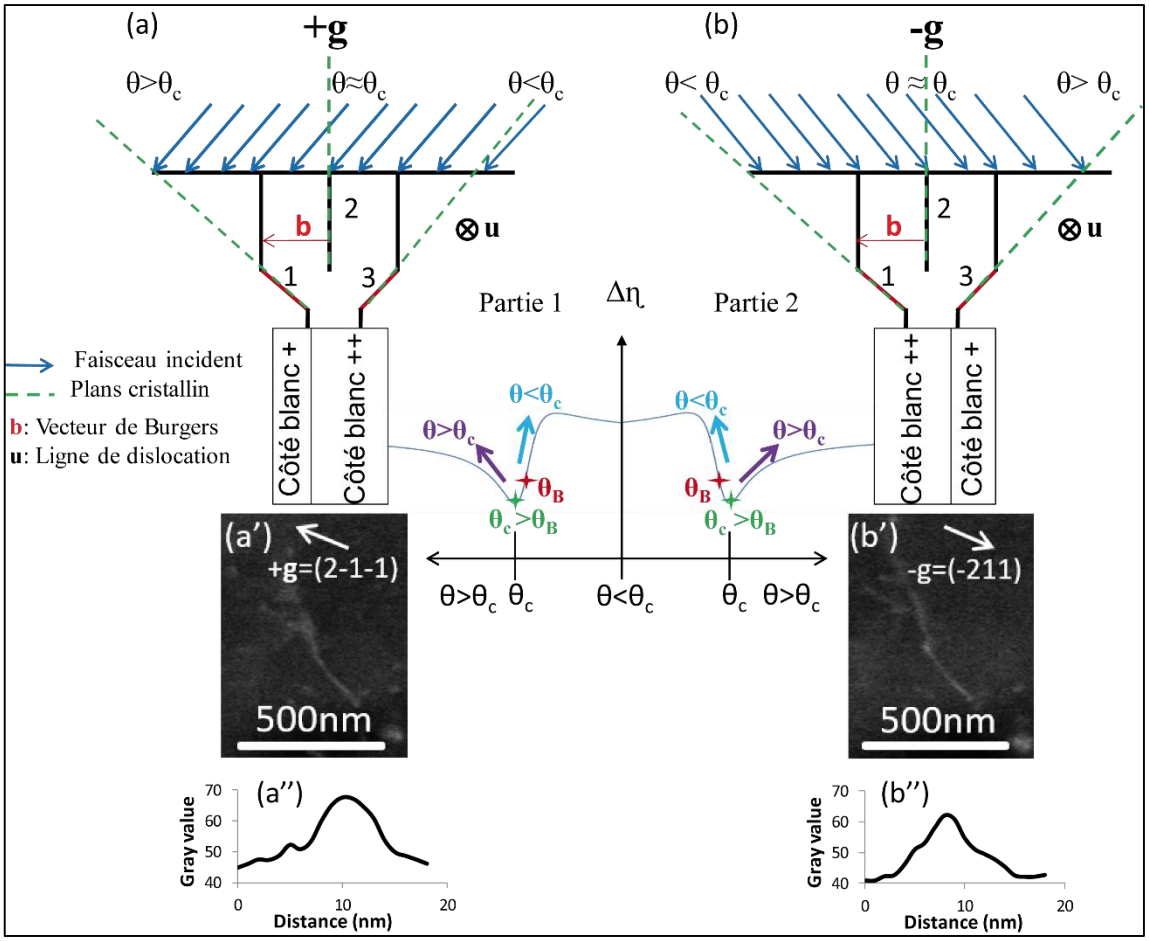


Figure.III.19. Présentations schématiques d'une dislocation en condition de diffraction s>0 avec (a) +**g**= (2-1-1) et (b) –**g**= (-211). Les micrographies ECC, de la même dislocation, et leurs profils d'intensité correspondants sont présentés, respectivement, par (a') (b') et (a'') (b''). La courbe théorique (Δη=f(θ)) décrit la modulation de l'intensité BSE en fonction de l'angle d'incidence.

Les profils théoriques d'intensité BSE au voisinage de la dislocation pour un paramètre de déviation s>0 sont présentés par les figures.III.20.a et b, respectivement, pour la diffraction en +**g** et –**g** (cf. chapitre II). Ces courbes déduites de notre modèle théorique ne présentent qu'un seul pic. Ils sont en accord avec les profils expérimentaux déduits des micrographies ECC (figures.III.19.a' et b') sur lesquelles l'image de la dislocation est brillante sur un fond sombre. Le maximum d'intensité, apparaissant sur les courbes théoriques, ne coïncide pas avec la position exacte de la dislocation (x=0 nm) mais il se situe, respectivement, d'un côté ou de l'autre (x≈±4 nm) de l'axe des ordonnées selon la condition de diffraction +**g** ou –**g** (même constatation pour les profils expérimentaux de la figure.III.19.a'' et b'').

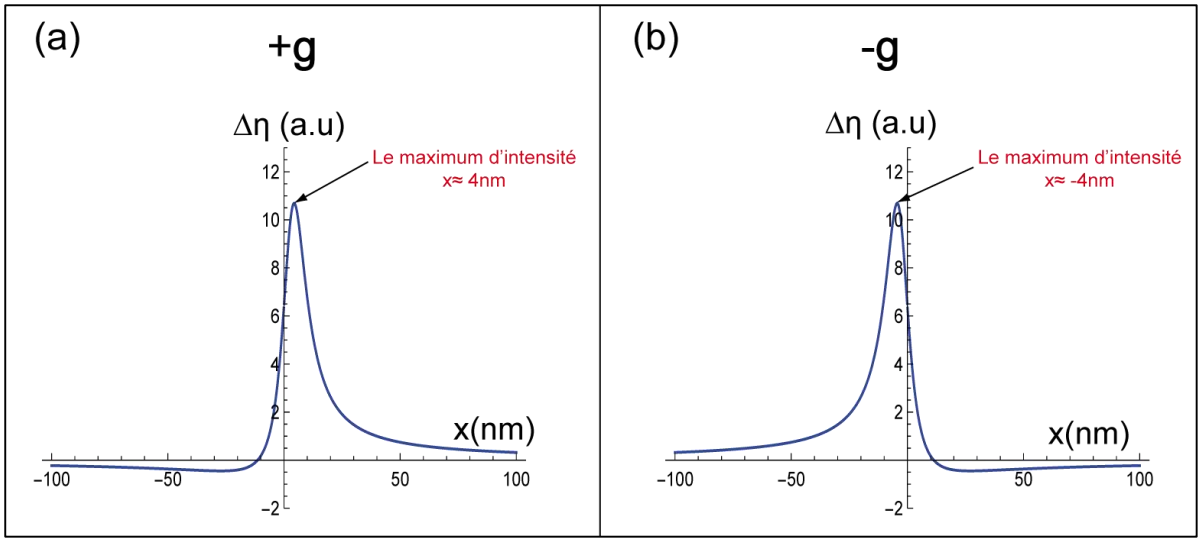


Figure.III.20. Profils théoriques d'intensité BSE, au voisinage d'une dislocation, obtenus avec s>0 pour la diffraction (a) +**g** et (b) –**g**. La position exacte de la dislocation est située en x=0 nm.

III.6.4. Paramètre de déviation s<0

Un paramètre de déviation légèrement négatif correspond à un faisceau incident orienté au voisinage du bord intérieur de la pseudo-bande de Kikuchi. Pour cette orientation du cristal par rapport au faisceau incident d'électrons le signal BSE émis est élevé, la zone d'étude correspondante apparait, alors, claire. Néanmoins, comme le montrent les figures.III.21.a et b, nous avons observé une ligne fine contrastée en noir/blanc. Elle correspond à la trace d'une dislocation. Les contrastes de cette dislocation sont inversés sur les deux images acquises avec les conditions de diffraction +**g** et –**g**.

Prenons l'exemple de la diffraction en +**g**, le cœur de la dislocation (plan 2) est en incidence $\theta=\theta_{BSE}<\theta_B$ (schéma de la figure.III.21). Sachant que θ_{BSE} se situe à peu près au point d'inflexion de la courbe théorique $\Delta\eta=f(\theta)$. Les plans 1 et 3 sont, respectivement, en incidence $\theta>\theta_{BSE}$ et $\theta<\theta_{BSE}$. Dans ce cas, le plan 1 génère un faible signal BSE (flèche bleue sur la courbe) qui est à l'origine du côté noir de l'image de la dislocation. Les plans, de la même famille que le plan 1, canalisent les électrons car ils se trouvent sous incidence proche ou égale à θ_c. En revanche, le côté blanc de la dislocation provient du fort signal BSE généré par le plan 3. Un raisonnement équivalent permet d'expliquer l'inversion de contraste observée pour la diffraction –**g** (la même constatation que pour s=0).

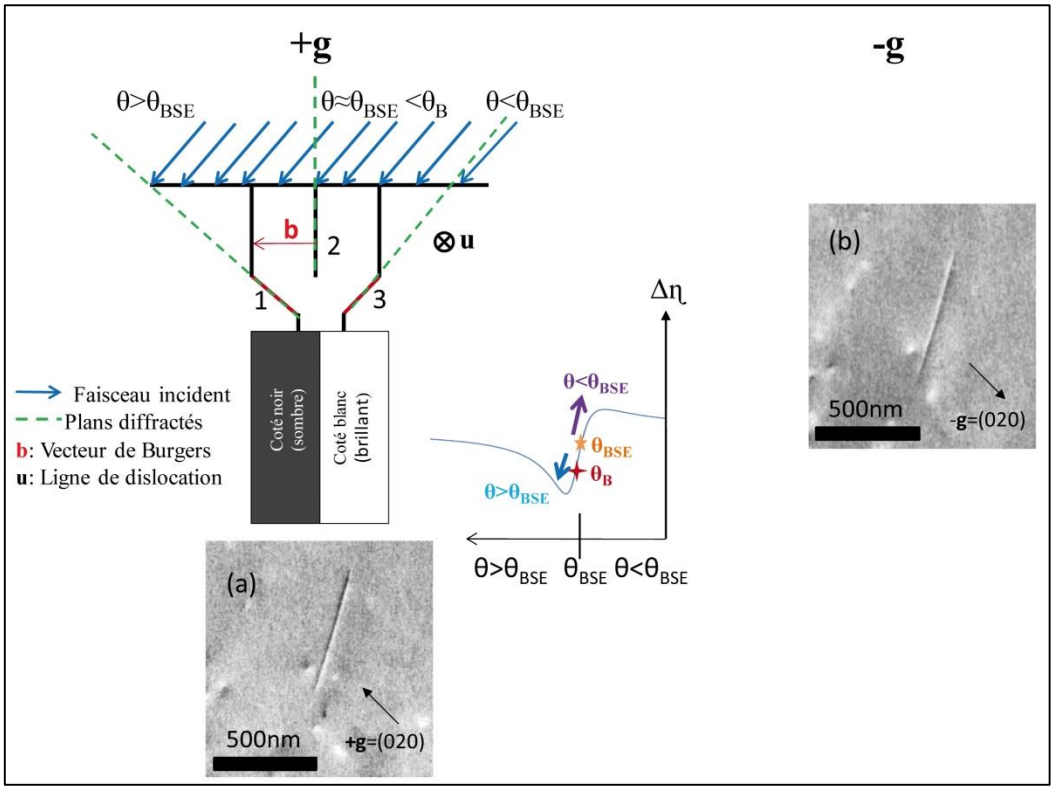


Figure.III.21. Schéma d'interprétation du contraste d'une dislocation observée avec s<0 pour la diffraction (a) +**g** et (b) –**g**.

De la même façon que pour les autres conditions de diffraction (s=0, ±**g** et s>0, ±**g**), notre modèle théorique décrit le contraste (noir/blanc sur un fond clair) des dislocations observées expérimentalement avec s<0. Ces profils d'intensité modélisés sont présentés par les figures.III.22.a et b (cf. chapitre II).

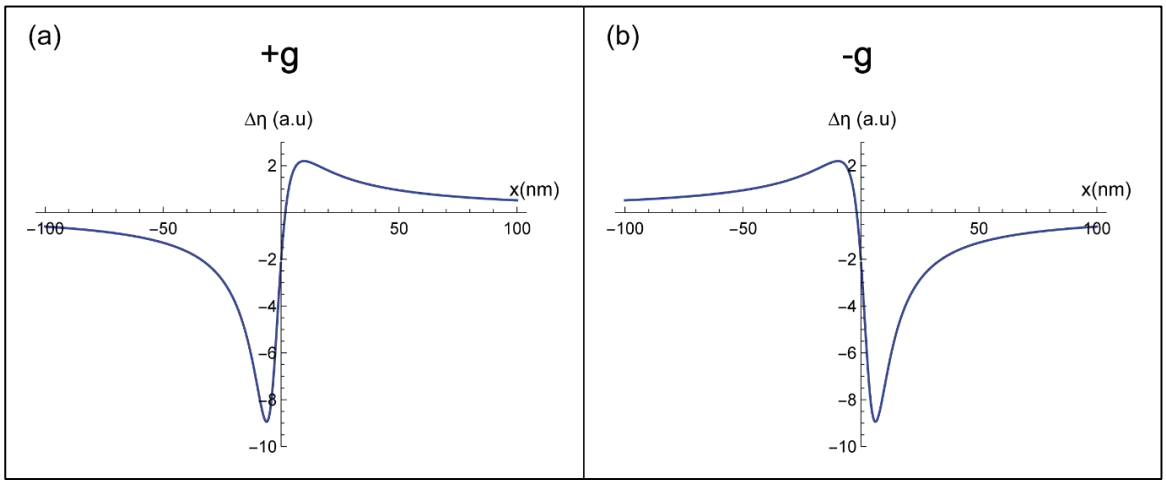


Figure.III.22. Profils d'intensité BSE modélisées au voisinage de la dislocation vis avec s<0 pour la diffraction (a) +**g** et (b) –**g**.

En conclusion, pour les différentes conditions de diffraction, mentionnées dans cette partie, nous constatons que notre modèle théorique est tout à fait en accord avec les résultats expérimentaux (micrographies ECC et profils expérimentaux). Dans le cas d'un paramètre de déviation s=0, les profils théoriques d'intensité BSE reproduisent le contraste noir/blanc obtenu sur l'image de la dislocation et ils mettent en évidence son inversion (blanc/noir) avec l'inversion de signe de **g**. Lorsque s>0, le seul pic des profils modélisés décrit l'image brillante obtenue de la dislocation. Finalement, pour s<0, les dislocations sont contrastées (noir/blanc) sur un fond clair. Ce contraste aussi bien que son inversion avec l'inversion de signe de **g** ont été révélés théoriquement.

III.7. Ajustement des résultats

Dans cette partie nous avons ajusté par la méthode des moindres carrés les profils théoriques, données par l'équation 12 du chapitre II, avec ceux établis par l'expérience. Ces derniers sont obtenus en moyennant 50 profils d'intensité pris perpendiculairement à la ligne de la dislocation. L'ajustement nous a permis d'estimer les ordres de grandeur des paramètres physiques ξ_g, $\xi_0^{'}$ et $\xi_g^{'}$ pour différentes conditions de diffractions, s>0, s=0 et s<0, et pour différents matériaux : acier IF et TiAl (utilisé dans le dernier chapitre). Il convient de rappeler qu'aucune estimation expérimentale de ces paramètres n'a, pour ce moment, été rapportée par la littérature.

Dans ce qui suit, pour les différents paramètres de déviation, le même code couleurs est utilisé afin de présenter les profils expérimentaux (en carrés noirs : I_{exp}) et ajustés (trait bleu : I_{cal}).

III.7.1. Paramètre de déviation s>0 : cas de l'acier

Pour un paramètre de déviation s>0, les profils expérimental et ajusté sont présentés par la figure.III.23.a. Sur cette dernière, un seul pic d'intensité est visible. Le contraste de la dislocation sera donc brillant comme observé dans la figure.III.23.b.

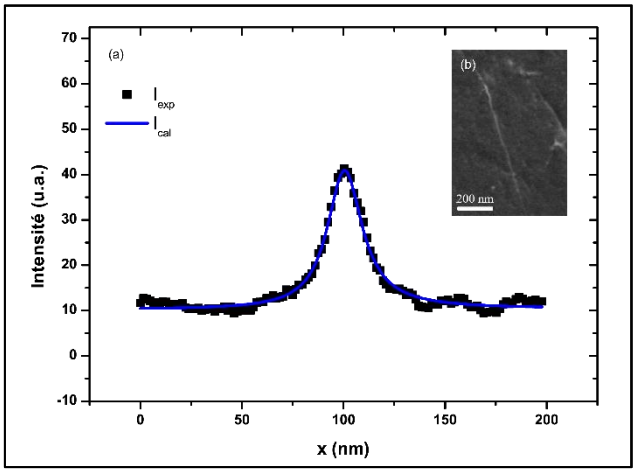


Figure.III.23. (a) Profils d'intensité BSE ajusté (trait bleu) et expérimental (carrés noirs) pour s>0 et (b) leur micrographie ECC correspondante.

La figure.III.23.a montre que le meilleur ajustement du profil d'intensité BSE, dans le cas de l'acier, est obtenu avec un coefficient de corrélation $\chi^2 \approx 2{,}046$ pour des valeurs des paramètres ξ_g, $\xi_0^{'}$, $\xi_g^{'}$ et s donnés ci-dessous :

$\xi_g = 9{,}4 \pm 1{,}3$ nm ; $\xi_0^{'} = 170{,}4 \pm 36{,}7$ nm ; $\xi_g^{'} = 177{,}7 \pm 38{,}3$ nm pour $s = 0{,}004 \pm 5{,}6 \times 10^{-4}$ nm^{-1}.

Dans le cas du fer pur, $\xi_g = 14{,}2$nm [Mansour, 2016].

III.7.2. Paramètre de déviation s<0 : cas de TiAl

Les profils expérimental et ajusté de la figure.III.24.a présentent un pic et un creux d'intensité BSE. Ce contraste est en accord avec le contraste d'une dislocation observé pour s<0 (micrographie ECC de la figure.III.24.b).

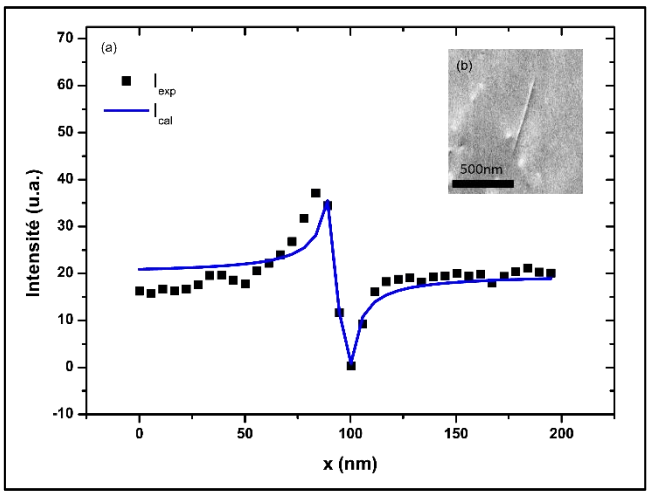


Figure.III.24. (a) Profils d'intensité BSE ajusté (trait bleu) et expérimental (carrés noirs) pour s<0 et (b) micrographie ECC correspondante.

À partir de cet ajustement, les ordres de grandeurs des paramètres ξ_g, $\xi_0^{'}$ et $\xi_g^{'}$ pour TiAl sont données avec un coefficient de corrélation $\chi^2 \approx 8,7$:

ξ_g=80,1±39,4 nm ; $\xi_0^{'}$=297±115,9 nm ; $\xi_g^{'}$=915,6±244,4 nm pour s=-0,09±2×10^{-2} nm^{-1}

Dans le cas d'Al, ξ_g=50nm; $\xi_0^{'}$=140 nm ; $\xi_g^{'}$=600 nm,

III.7.3. Paramètre de déviation s=0 : cas de l'acier

En condition de Bragg, le profil expérimental comportent un creux et un pic d'intensité traduisant le contraste noir/blanc de l'image de la dislocation (figure.III.25.b).

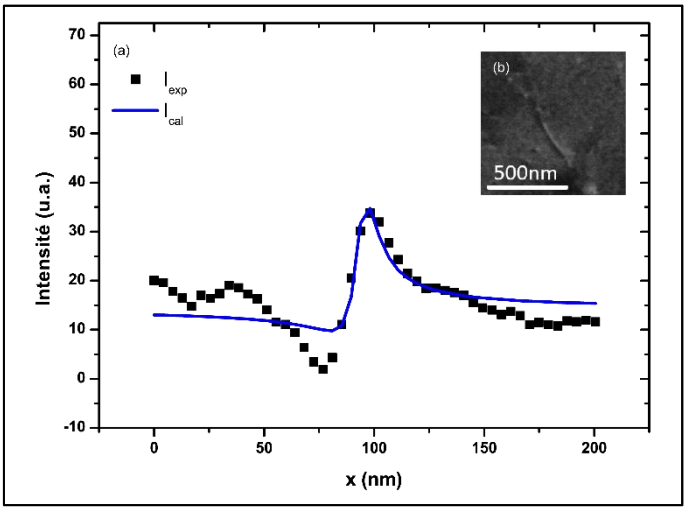


Figure.III.25. (a) Profils d'intensité BSE ajusté (bleu) et expérimental (noirs) pour s=0 et (b) leur micrographie ECC correspondante.

À partir de la figure.III.25.a, nous remarquons que la courbe ajustée ne décrit pas complètement la courbe obtenue expérimentalement ($\chi^2 \approx 16,4$). Néanmoins le meilleur ajustement est obtenu pour les paramètres suivants :

ξ_g=7,1±7,9 nm ; $\xi_0^{'}$=193,2±28,8 nm ; $\xi_g^{'}$=293±44,6 nm pour s=0±2,4×10^{-3} nm^{-1}.

Pour conclure, les ajustements réalisés dans cette partie ont permis d'établir des ordres de grandeur, des paramètres ξ_g, $\xi_0^{'}$, $\xi_g^{'}$ et s, cohérents avec la littérature. De plus il semblerait que les meilleurs ajustements sont obtenus pour les paramètres de déviation s>0 et s<0, ce

qui n'est pas le cas pour un s=0. Afin d'interpréter ce dernier désaccord, nous proposons une explication qui s'appuie sur l'analogie MET-MEB.

En condition de Bragg

Une famille de plans atomiques {hkl} orientée en condition de Bragg par rapport au faisceau incident génère un faisceau diffracté. Ce dernier peut être de nouveau diffracté par une autre famille de plans et ainsi de suite. Il s'agit de la diffraction dynamique généralement rencontrée en MET [Williams, 1996]. La raison physique de ces diffractions successives est la forte interaction sous l'effet des forces de Coulomb entre le faisceau d'électrons et les atomes du cristal. Les faisceaux ainsi produits successivement et de façon cohérente vont interférer entre eux. Ce point a été négligé dans le modèle de Reimer et le nôtre où les diffusions multiples sont traitées de façon incohérente.

Pour un paramètre de déviation s≠0

Loin des conditions de Bragg, le couplage entre le faisceau incident et le faisceau diffracté est plus faible que dans le cas précédent. Les diffusions multiples successives peuvent être considérées comme incohérentes (diffraction cinématique pour un échantillon mince, en MET) [Williams, 1996].

III.8. Application : dipôle de dislocations

III.8.1. Caractérisation d'un dipôle de dislocation

Dans cette partie, l'ECCI est appliquée afin de caractériser une configuration particulière de dislocations dans l'acier IF en se basant sur les critères d'invisibilité $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$ et $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\times\mathbf{u}=0$ (cf. chapitre I). Rappelons que **g** est le vecteur de diffraction, **b** est le vecteur de Burgers et **u** est la direction de la ligne de la dislocation. Pour ce faire, la procédure, décrite dans le paragraphe III.4, est suivie afin de placer le cristal en situation de canalisation pour les conditions de diffraction suivantes : $\mathbf{g}_1$=(01-1), $\mathbf{g}_2$=(11-2), $\mathbf{g}_3$=(1-10), $\mathbf{g}_4$=(2-1-1) et $\mathbf{g}_5$=(2-11) (tableau.III.1). Sachant qu'à chaque condition, les images ECCI sont acquises avec un paramètre de déviation s>0 pour obtenir un contraste brillant des dislocations sur un fond sombre (cf. partie précédente).

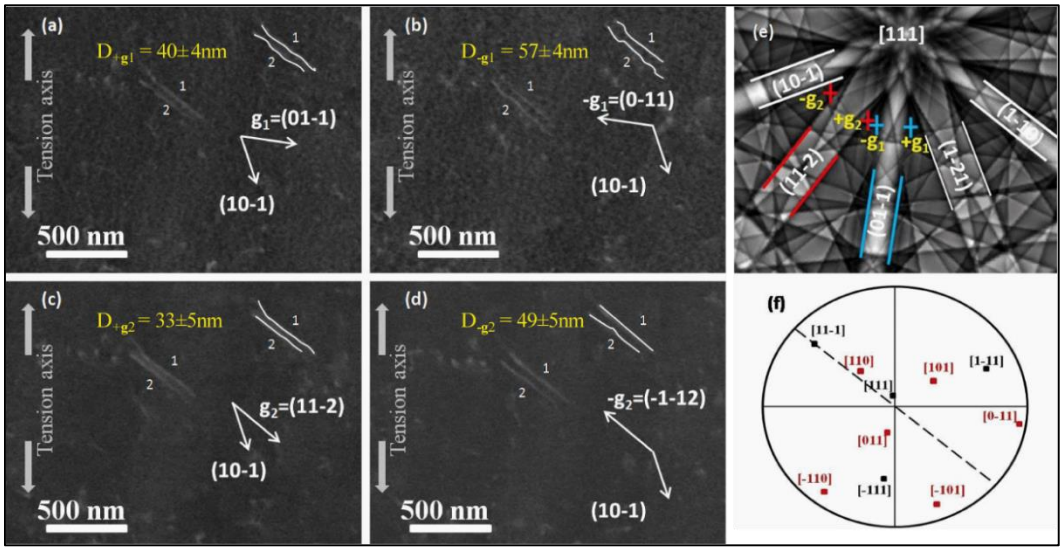


Figure.III.26. Micrographies ECC des dislocations 1 et 2, séparées d'une distance d, observées avec la diffraction (a) $+\mathbf{g}_1$=(01-1), (b) $-\mathbf{g}_1$=(0-11), (c) $+\mathbf{g}_2$=(11-2) et (d) $-\mathbf{g}_2$=(-1-12). (e) Pseudo-diagramme de Kikuchi simulé à 0° sur lequel les différentes orientations du faisceau incident sont repérées par les croix (bleues pour la diffraction $\pm\mathbf{g}_1$ et rouges pour $\pm\mathbf{g}_2$). (f) Projection stéréographique des pôles {111} et {110} où le trait en pointillés correspond à la direction de la projection des lignes des dislocations.

Sur les micrographies ECC de la figure.III.26 deux segments de dislocations, nommés 1 et 2 et séparés d'une distance d, sont clairement identifiés. Ils sont invisibles pour les mêmes conditions de diffraction $\mathbf{g}_3$=(1-10) et $\mathbf{g}_5$=(2-11) indiquant que leurs vecteurs de Burgers ont la même direction, soit $\mathbf{b}=\pm\frac{1}{2}$[11-1].

Table.III.1. Tableau des conditions de visibilité des deux dislocations pour les différentes **g**

	$\mathbf{g}_1$=(01-1)	$\mathbf{g}_2$=(11-2)	$\mathbf{g}_3$=(1-10)	$\mathbf{g}_4$=(2-1-1)	$\mathbf{g}_5$=(2-11)	**b**	**u**	α (°)
Dislocation 1	✓	✓	✗	✓	✗	$\pm\frac{1}{2}$[11-1]	**[11-1]**	0
Dislocation 2	✓	✓	✗	✓	✗	$\pm\frac{1}{2}$[11-1]	**[11-1]**	0

Note : ✓ ; visibilité, ✗ : invisibilité ; **b** : le vecteur de Burgers ; **u** : direction de la ligne de la dislocation ; α : angle entre **b** et **u**.

Remarque : les micrographies ECC des figures.III.26.a et b sont acquises pour $|\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}|$ =2. Sur ces images, aucune oscillation d'intensité n'est visible, malgré une résolution latérale de quelques nanomètres, contrairement à ce qui a été rapporté dans la littérature (modèles de Spencer et Wilkinson [Spencer, 1972] [Wilkinson, 1993]).

En pratique, deux segments de dislocations parallèles et de même direction de **b** peuvent former soit un dipôle de dislocations soit une paire de dislocations. Ces deux configurations ne sont discernées qu'à partir de leur comportement vis-à-vis de l'inversion du signe de **g** : changement de la distance de séparation (dipôle) ou pas (paire de dislocations) [Edington, 1976]. À partir de notre modèle théorique, ce comportement est interprété dans le cas d'un écart s>0 (en cohérence avec les observations expérimentales). Il faut rappeler qu'avec s>0, le profil d'intensité BSE au voisinage de la dislocation comporte un seul pic et que ce dernier ne coïncide pas avec la position réelle de la dislocation (x=0 nm).

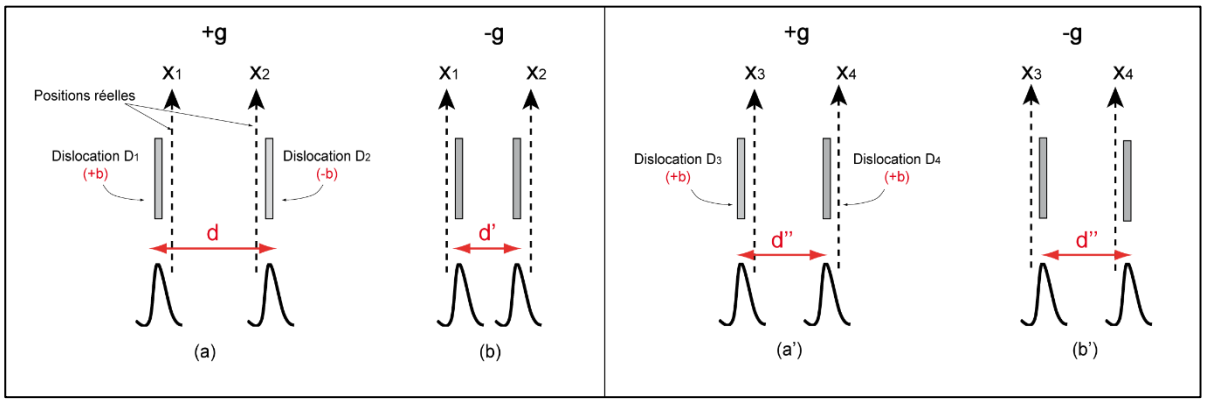


Figure.III.27. Interprétation schématique pour la diffraction ±**g** (a-b) d'un dipôle de dislocations et (a'-b') d'une paire de dislocations.

Les schémas de la figure.III.27 présentent des dislocations formant un dipôle (D_1 et D_2) et une paire de dislocation (D_3 et D_4) accompagnés de leurs profils d'intensités BSE modélisés pour les diffractions ±**g**. Dans le cas d'un dipôle en diffraction +**g** (figure.III.27.a), les maxima des courbes théoriques sont séparés par une distance d et ils sont situés, respectivement, à gauche et à droite des positions réelles des défauts $x_1$et x_2 (car D_1 et D_2 ont des vecteurs de Burgers de signes opposés). Ces pics passent au côté opposé suite à l'inversion de signe de **g** comme l'explique la figure.III.27.b. Par conséquent, la distance de séparation change (d >d').

En revanche, dans le cas d'une paire de dislocations (figures.III.27.a'), la distance de séparation d'' reste la même pour les diffractions ±**g** : l'inversion de signe de **g**, entraine le déplacement des maxima dans le même sens (car les vecteurs de Burgers de D_3 et D_4 sont de même signe) comme le montre la figure.III.27.b'.

En outre, les micrographies ECC (figure.III.26.a-d) acquises avec les conditions de diffraction ±$\mathbf{g}_1$et ±$\mathbf{g}_2$ montrent que l'inversion du signe de **g** conduit à un changement de

la distance entre les deux segments de dislocations. Pour déterminer cette distance de séparation, des profils d'intensité ont été tracés perpendiculairement en plusieurs positions le long des deux lignes des dislocations. La moyenne de ces profils est ajustée, par la suite, en courbe Gaussienne et la distance entre les deux maxima a été considérée comme la distance de séparation des dislocations. Par exemple pour la diffraction $+\mathbf{g}_1$, la distance est $d_{+\mathbf{g}_1}$=40±4 nm, elle devient $d_{-\mathbf{g}_1}$=57±4 nm en $-\mathbf{g}_1$. De même pour la diffraction $\pm\mathbf{g}_2$: $d_{+\mathbf{g}_2}$=33±5 nm elle devient $d_{-\mathbf{g}_2}$=49±5 nm.

La direction cristallographique des deux segments parallèles est estimée à partir du trait en pointillés sur la projection stéréographique des pôles {111} et {110} (figure.III.26.e) : elle correspond à la direction [11-1].

Pour cette configuration observée nous avons, alors :

(1) Deux segments de dislocations différents et parallèles qui sont clairement distincts l'un de l'autre. Ils sont séparés par une distance d.

(2) Les deux segments de dislocations sont invisibles pour la même condition de diffraction : même direction de **b**.

(3) Les micrographies acquises avec +**g** et son opposé, –**g**, montrent que la distance d change.

La combinaison de ces critères aboutit à conclure que la configuration observée est conforme à un dipôle de dislocations [Edington, 1976] [Guitton, 2012]. Il est constitué par deux dislocations vis contenues dans le plan (-110) ; de vecteurs de Burgers $\mathbf{b}=\pm\frac{1}{2}$[11-1] et –**b** respectivement pour chacune et de direction [11-1].

III.8.2. Influence de l'orientation du faisceau incident sur l'invisibilité du dipôle de dislocations

Dans la partie III.5, nous avons mis en évidence l'effet de l'angle d'incidence, entre le faisceau primaire et les plans (hkl), sur le contraste des images des dislocations en ECCI. Cet angle peut être repéré précisément par la position du centre d'un HR-SACP. Ce dernier peut se positionner dans une zone sombre ou claire, à l'intersection des bords de bandes ou il peut être en coïncidence avec le bord d'une bande (hkl). L'effet de cette incidence est aussi étudié dans le cas du dipôle.

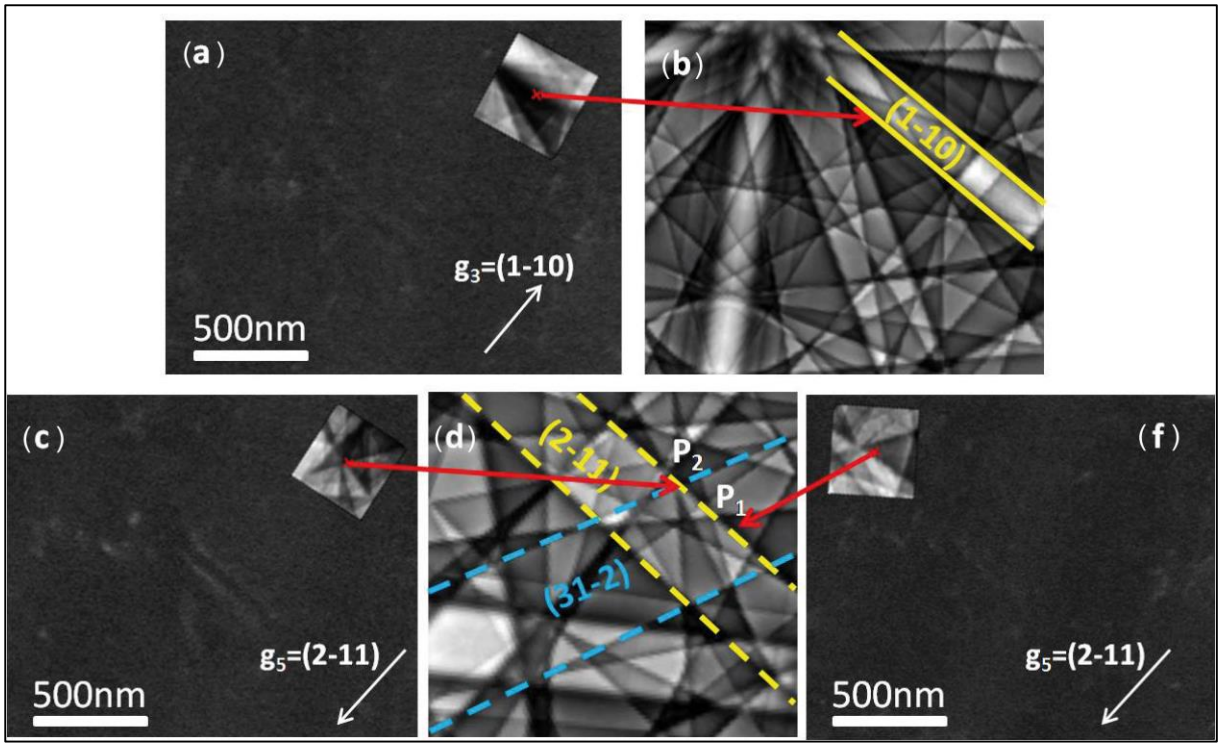


Figure.III.28. (a), (c) et (f) Micrographies ECC du dipôle de dislocations en conditions d'extinctions. (b) (d) pseudo-digramme de Kikuchi simulé à 0° présentant les positions correspondantes du faisceau incident.

Rappelons que ce dipôle est invisible pour les conditions de diffraction $\mathbf{g}_3$=(1-10) et $\mathbf{g}_5$=(2-11). Pour l'extinction en $\mathbf{g}_3$, les figures.III.28.a et b montrent que le faisceau incident est orienté sur une zone sombre au bord de la pseudo-bande de Kikuchi (1-10). Dans le cas de la diffraction en $\mathbf{g}_5$, les micrographies ECC sont acquises pour deux positions différentes du faisceau incident en P_1 et P_2 (figure.III.28.d). À la position P_1, le faisceau est orienté près d'une zone sombre au bord de la bande (2-11) : le dipôle est invisible. Cependant, à la position P_2, le faisceau est orienté exactement à l'intersection des bords des bandes (2-11) et (31-2) : le dipôle est visible. D'ailleurs, à cette position, deux conditions de diffraction sont satisfaites : la première est la $\mathbf{g}_5\cdot\mathbf{b}$=0 qui devrait mener à l'invisibilité totale du dipôle. La deuxième est ($\mathbf{g}$ =(31-2))$\cdot\mathbf{b}\neq$0 où la bande (31-2) a contribué au signal BSE total et a engendré la visibilité du dipôle (contraste résiduel).

À partir de ces constats, nous pouvons confirmer que la position d'incidence du faisceau sur le diagramme a une influence sur le contraste du défaut cristallin observé. Il est donc important de connaitre précisément l'orientation du cristal par rapport au faisceau incident afin d'obtenir les vraies extinctions.

Une analogie peut être établie entre les observations des défauts cristallins par MET et par ECCI. Afin de contraster les dislocations, en MET, l'échantillon est orienté au voisinage

d'une condition de Bragg. Cette condition est dite condition deux ondes où en plus du faisceau transmis et un seul faisceau diffracté est excité. Une telle orientation est obtenue à l'aide d'un cliché de points (cliché de diffraction) [Reimer, 2008]. En ECCI, un pseudo-diagramme de Kikuchi est utilisé pour orienter le cristal en condition deux ondes : loin des intersections des bords des autres pseudo-bandes. Dans ce cas et au voisinage de la condition de Bragg, deux champs d'ondes sont prépondérants où l'un l'emporte sur l'autre selon la valeur de s. Pour s>0, la canalisation domine et pour s=0, le signal BSE l'emporte. De plus, les critères d'invisibilité en MET, $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$ et $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\times\mathbf{u}=0$, sont également valables pour la caractérisation des dislocations par ECCI.

III.9. Conclusion

Dans ce chapitre, l'acier IF est utilisé comme matériau modèle afin d'interpréter les contrastes des dislocations observées, pour différentes conditions de diffraction, par la technique d'imagerie par contraste de canalisation des électrons ECCI. Or pour cette technique, l'orientation du faisceau incident par rapport au plans cristallins (hkl) est importante pour contraster ces défauts. C'est la raison pour laquelle, nous avons présenté, dans un premier temps, les techniques mises en œuvre dans un MEB pour la détermination de l'orientation cristallographique.

Dans second temps, nous avons étudié le contraste de dislocation pour différentes positions du faisceau incident sur une même pseudo-bande de Kikuchi (hkl) :

1) Position à travers la pseudo-bande

Nous avons montré que le paramètre de déviation s influe sur le contraste des dislocations :

- Pour s>0, le faisceau est orienté près du bord de la pseudo-bande de Kikuchi (condition de canalisation) : la dislocation apparait brillante et fine sur un fond sombre.
- Pour s=0 (condition de Bragg) : la dislocation a un contraste noir/blanc sur un fond sombre. Le même contraste est obtenu mais sur un fond clair quand le faisceau incident est orienté au voisinage du bord intérieur de la bande (s<0).
- Pour une orientation du faisceau incident au milieu de la bande : la dislocation génère un contraste fin noir sur un fond clair.

2) Le long de la pseudo-bande

Nous avons montré que le meilleur contraste de dislocations et la bonne qualité de micrographie sont obtenus quand le faisceau incident est orienté loin de l'intersection des autres bords de bandes.

3) De part et d'autre d'une pseudo-bande

Dans cette partie afin d'étudier l'effet de la position de part et d'autre de la bande sur le contraste des dislocations, les observations ont été effectuées avec s=0. Rappelons qu'à une telle condition de diffraction, la dislocation a un contraste noir/blanc. Nous avons constaté, ainsi, que l'inversion de signe de **g** entraine l'inversion de ce contraste (contraste noir/blanc en +**g** devient blanc/noir en –**g**). De plus, le meilleur contraste est obtenu quand le faisceau incident est orienté sur une zone sombre du diagramme simulé.

Ensuite pour vérifier notre modèle théorique développé dans le chapitre II, nous avons confronté nos résultats expérimentaux aux profils théoriques obtenus pour différentes conditions de diffraction : s=0, s>0 et s<0. Pour chaque s nous avons présenté les cas de diffraction en ±**g**. Pour chaque condition, nous avons constaté que notre modèle théorique est tout à fait en accord avec les résultats expérimentaux :

- Dans le cas des paramètre de déviation $s=s_B=0$, les profils théoriques d'intensité BSE comportent un creux et un pic correspondant, respectivement, au contraste noir/blanc de la dislocation. Les mêmes profils sont obtenus pour s<0. En outre, ces courbes reproduisent l'inversion du contraste avec l'inversion de signe de **g** (le pic devient creux et vice versa).
- Lorsque s>0, le contraste brillant de la dislocation est présenté par le seul pic du profil modélisé.

L'accord entre les résultats théoriques et expérimentaux a été ensuite confirmé par ajustement des profils d'intensité BSE. Ce qui nous a permis de déduire le paramètres physiques, ξ_g, $\xi_0^{'}$, $\xi_g^{'}$ et s, dont les ordres de grandeur sont cohérents avec la littérature. Les meilleurs ajustements sont obtenus pour les paramètres de déviation s>0 et s<0, ce qui n'est pas le cas pour s=0.

Les différents contrastes obtenus (brillant, noir/blanc …), en différentes conditions de diffraction (s>0, s=0, ±**g**), ainsi que leurs profils théoriques correspondants sont les mêmes pour les différents types de dislocations : vis et coin.

Finalement, l'ECCI nous a permis de caractériser (vecteur de Burgers, direction de la ligne…) un dipôle de dislocations sur un échantillon massif d'acier IF. Pour cette configuration observée, nous avons discuté l'influence de l'orientation du faisceau incident sur les critères d'invisibilité. Pour une même condition d'extinction, deux micrographies ECC du dipôle ont été acquises pour deux différentes positions :

- Faisceau positionné sur un zone sombre au bord de la bande : dipôle invisible.
- Faisceau positionné à l'intersection de deux bords de bandes : dipôle visible (contraste résiduel).

En effet, à l'intersection de deux bandes, deux conditions de diffraction y existent à la fois $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$ et $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\neq 0$ où la dernière entraine la génération d'un contraste de la dislocation.
Il est donc indispensable de positionner, avec précision, le faisceau incident loin des intersections des bords de bandes, soit en condition deux ondes. Ceci permet d'obtenir le contraste nécessaire pour analyser les images de dislocations. Une telle précision est réalisée, dans notre étude, grâce à la technique a-ECCI.

III.10. Références

[Adam, 2009] A. J. Schwartz, M. Kumar, B. L. Adams, D. P. Field. Electron backscatter diffraction in materials science, 2nd Edition, Springer (2009).

[Caillard, 2013] D. A. Caillard. TEM in situ study of alloying effects in iron. I-Solid solution softening caused by low concentrations of Ni, Si and Cr. Acta Materialia, 61, 2793-2807 (2013).

[Coates, 1967] D.G. Coates. Kikuchi-like reflection patterns obtained with the scanning electron microscope. Philosphical Magazine, 16, 1179-1184 (1967).

[Dluhos, 2012] J. Dluhos, L. Sedlacek, J. Man. Application of electron channeling contrast imaging in study of polycrystalline materials and visualization of crystal lattice defects. Proceeding of the 21st International Conference on Metallurgy and Materials, Brno, Czech Republic, EU (2012).

[Edington, 1976] J. W. Edington. Interpretation of Transmission Electron Micrographs. London (1976).

[Guitton, 2012] A. Guitton, A. Joulain, L. Thilly, Tromas. Dislocation analysis of Ti_2AlN deformed at room temperature under confining pressure. Philosphical Magazine, 92, 4536-4546 (2012).

[Guyon, 2015] J. Guyon, H. Mansour, N. Gey, M.A. Crimp, S. Chalal, N. Maloufi. Sub-micron resolution selected area electron channeling patterns. Ultramicroscopy, 149, 34-44 (2015).

[Gutierrez-Urrutia, 2009] I. Gutierrez-Urrutia, S. Zaefferer, 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).

[Gutierrez-Urrutia, 2013] I. Gutierrez-Urrutia, S. Zaefferer, 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).

[Haghighat, 2015] S. M. H. Haghighat, R. Schaublin. Obstacle strength of binary junction due to dislocation dipole formation: An in-situ transmission electron microscopy study. Journal of Nuclear Matter, 465, 648–652 (2015).

[Kamaladasa, 2011] R. J. Kamaladasa, W. Jiang and Y. N. Picard. Imaging Dislocations in Single-Crystal SrTiO3 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).

[Madeleine, 2012] D.C. Madeleine. Microstructure des aciers et des fontes - Genèse et interprétation. EDP sciences, France (2012).

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

[Maloufi, 2018] N. Maloufi, H. Mansour. Microscopie électronique à balayage et microanalyses : L'imagerie par contraste de canalisation des électrons. GN-MÉBA, France (2018).

[Mansour, 2014] H. Mansour, J. Guyon, M. A. Crimp, N. Gey, B. Beausir, N. Maloufi. Accurate electron channeling contrast analysis of dislocations in fine grained bulk materials. Scripta Materialia, 84-85, 11-14 (2014).

[Mansour, 2016] H. Mansour. Caractérisation des défauts cristallins au MEB par Canalisation d'Électrons assistée par diagrammes pseudo-Kikuchi haute résolution : Application à l'acier IF, UO2 et TiAl. Thèse, université de Lorraine (2016).

[Meisnar, 2015] M. Meisnar, A. Vilalta-Clementea, A. Gholinia, M. Moodya, A. J. Wilkinson, N. Huinc, S. Lozano-Perez. Using transmission Kikuchi diffraction to study intergranular stress corossion cracking in type 316 stainless steels. Micron, 10, 1-10 (2015).

[Morin, 1979] P. Morin, M. Pitaval, D. Besnard, G. Fontaine. Electron–channelling imaging in scanning electron. Philosophical Magazine A, 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).

[Reimer, 2008] L. Reimer and H. Kohl. Transmission Electron Microscopy. Fifth edition, Springer, New York (2008).

[Reimer, 1998] L. Reimer. Scanning Electron Microscopy, Physics of image formation and microanalysis. Second edition, Springer, New York (1998).

[Schneider, 2012] C. A. Schneider, W. S. Rasband, K. W. Eliceiri. NIH Image to ImageJ: 25 years of image analysis. Nature methods, 9 (7), 671-675 (2012).

[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, 2nd Edition (2008).

[Simkin, 1999] B.A. Simkin and M.A. Crimp. An experimentally convenient configuration for electron channeling contrast imaging. Ultramicroscopy, 77, 65-75 (1999).

[Tekin, 1989] A. Tekin and J. W. Martin. High-resolution measurement of crack-tip plastic zone sizes by selected area channelling patterns. Metallography, 22, 1-14 (1989).

[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, 336–339 (1969).

[Van Essen, 1970] C.G. Van Essen, E.M. Schulson, R.H. Donaghay. Electron channelling patterns from small (10μm) selected areas in the scanning electron microscope. Nature, 225, 847-848 (1970).

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

[Williams, 1996] D.B. Williams and C. Carter. Transmission Electron Microscopy. Springer, New York (1996).

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

[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).

Chapitre IV

L'ECCI : une nouvelle voie pour comprendre l'évolution des mécanismes de déformation. Application à un alliage TiAl

Ce chapitre a fait l'objet de la publication : A. Guitton, H. Kriaa, E. Bouzy, J. Guyon, N. Maloufi. « A dislocation-scale characterization of the evolution of deformation microstructures around nanoindentation imprints in a TiAl alloy ». Materials, 11, 305 (2018).

IV.1. Introduction

Ce chapitre présentera une étude à température ambiante des mécanismes de déformation plastique au niveau des interfaces (joint de grains, joint de macle…) dans un alliage à base de TiAl. Notre choix sera porté sur un alliage TiAl massif biphasé (la phase γ-TiAl et la phase α_2-Ti_3Al) car il possède une microstructure riche en interfaces : joints de grains, joints de macles, parois d'interphases et parois de domaines d'ordre. En particulier, nous nous sommes intéressés ici, à l'étude de la plasticité au niveau d'un joint de macle.

Pour cela, nous utiliserons une méthodologie originale qui consiste à caractériser l'évolution des microstructures de la zone d'intérêt par ECCI avant et après avoir introduit localement une déformation plastique par nanoindentation.

La 1ère partie de ce chapitre sera dédiée à la présentation du matériau et à un résumé de ses mécanismes de déformation à température ambiante.

Dans une deuxième partie, nous dériverons la procédure expérimentale suivie pour déformer (nanoindentation) et caractériser (EBSD et ECCI) la zone d'étude.

Finalement, la troisième partie tire avantage de ces caractérisations, afin de proposer un scénario de mécanisme de déformation pouvant contribuer à expliquer la faible ductilité de ces alliages à température ambiante.

IV.2. Alliages à base TiAl

IV.2.1. Présentation générale

Les intermétalliques à base de titane et d'aluminium (TiAl) ont été découverts au début des années 1950 et ont été largement utilisés dans les industries aérospatiale, énergétique et militaire. Ils possèdent, en effet, des propriétés physiques particulièrement intéressantes à haute température :

- une grande résistance à l'oxydation et à la corrosion,

- une grande rigidité spécifique (module d'élasticité/ masse volumique),
- une haute température de fusion,
- une bonne tenue au fluage…

Les alliages TiAl sont principalement constitués par deux phases : la phase γ-TiAl et la phase α_2-Ti_3Al. Plus spécifiquement, les alliages basés sur la phase γ sont connus pour leur : grande rigidité (module d'Young de 175 GPa) [Kim, 1989], grande résistance à l'oxydation jusqu'à 1038°C [Kim, 1994], haute température de fusion d'environ 1700 K et faible masse volumique (entre 3,7 et 4,7 g/cm^3) [Kim, 1989] [Kim, 1994]…
Ces intermétalliques présentent une transition fragile-ductile qui se situe entre 800 et 1000°C [Lipsitt, 1975]. Ainsi, en dessous de cette température, ils sont fragiles, par conséquent aux basses températures leur champ d'applications est limité [Zambaldi, 2010].

IV.2.2. La phase γ

Au premier abord, la phase γ possède une structure cubique à faces centrées de type $L1_0$ comme le montre la figure.IV.1. Elle se forme, généralement, durant le refroidissement de la phase hexagonale α (désordonnée) ou de la phase α_2-Ti_3Al (ordonnée) [Denquin, 1996].

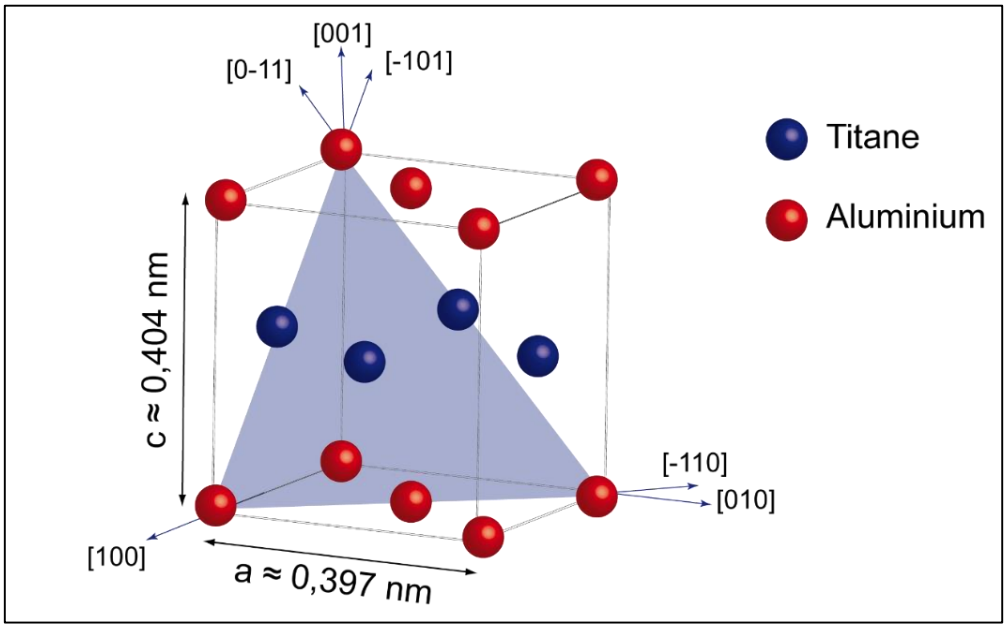


Figure.IV.1. Schéma de la maille cristalline de la phase γ. Le plan (111) est présenté par le triangle bleu.

La structure cristalline de la phase γ présente une légère distorsion quadratique : le rapport de ses paramètres de maille vaut $\frac{c}{a}\approx 1{,}02$. Selon la direction [001] (suivant l'axe c), cette structure peut être décrite comme un empilement de plans contenant soit uniquement des atomes de Ti soit uniquement des atomes d'Al. En revanche, suivant les directions [100] et [010] (axes a et b), les plans sont mixtes Ti-Al.

IV.2.3. La phase α_2

La phase α_2-Ti_3Al s'ordonne selon la structure DO_{19} de symétrie hexagonale. Elle est issue du refroidissement de la phase α hexagonale désordonnée, formée à haute température. La figure.IV.2 présente la structure cristalline de cette phase. Les plans denses de α_2 sont les plans (0001).

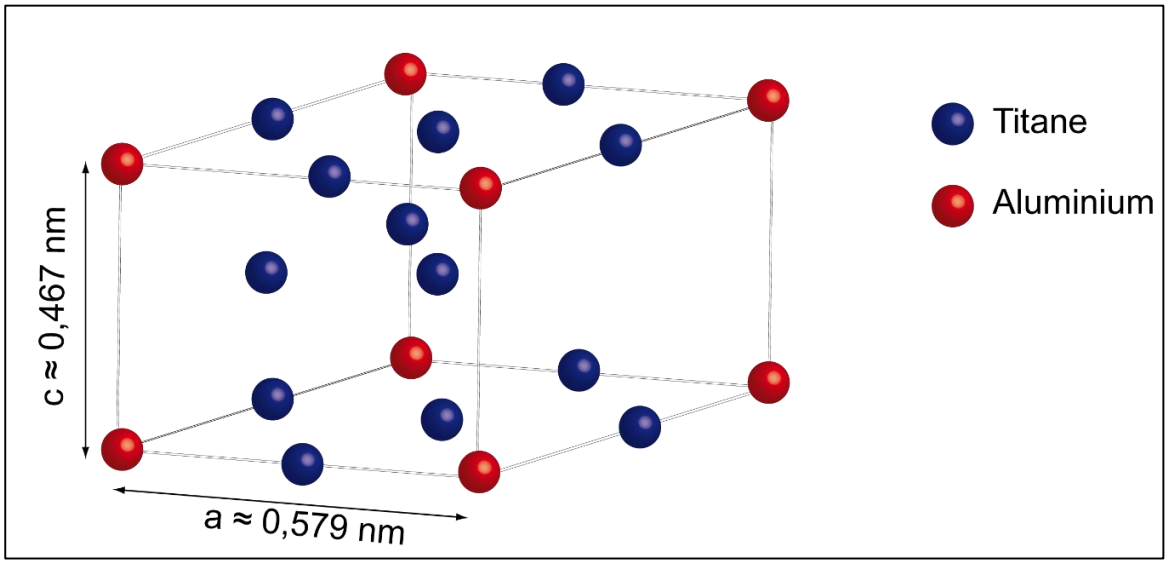


Figure.IV.2. Structure cristalline de la phase α_2.

Dans quelques alliages TiAl biphasés, il peut exister une troisième phase dite la phase β de structure cristalline cubique centrée comme l'indique la figure.IV.3 [Kainuma, 2000]. Cette phase se présente sous forme des petits précipités sur les joints de grains dans les alliages contenant de faibles quantités d'éléments bétagènes tels que le chrome, le molybdène, le niobium et le vanadium [Appel, 2011].

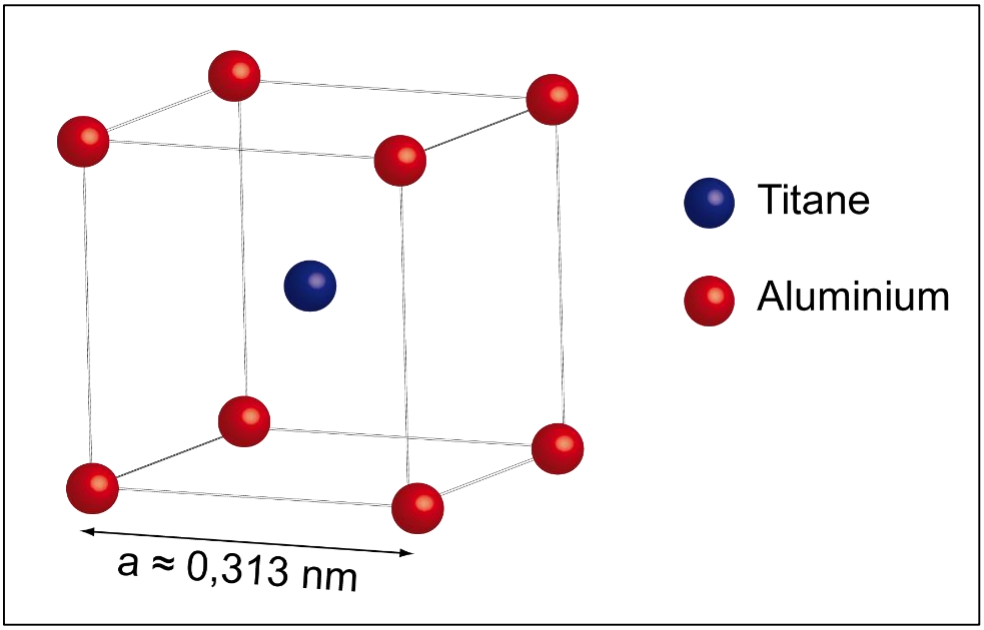


Figure.II.3. Schématisation de la maille élémentaire de la phase β.

Généralement, pour les alliages TiAl, il existe 4 types de microstructures :

- Presque gamma (*Near gamma*) : constituée essentiellement par des grains γ équiaxes (figure.IV.4.a).
- Bimodale (*Duplex*) : c'est un mélange des grains γ et des colonies lamellaires ($\gamma+\alpha_2$) (figure.IV.4.b).
- Presque lamellaire (*Near lamellar*) : contient majoritairement des colonies lamellaires et des petits grains γ (Fig.IV.4.c).
- Totalement lamellaire (*Fully lamellar*) : ne comporte que des îlots lamellaires ($\gamma+\alpha_2$).

Les différents types de microstructures, montrent que les TiAl sont riches en interfaces telles que :

- Joint de grains : interface qui sépare deux cristaux d'orientations différentes.
- Joint de macles : un joint de grain particulier qui sépare symétriquement (plan miroir) deux parties du cristal.
- Paroi de phases : paroi qui sépare deux phases différentes (γ/α_2).
- Paroi de domaines d'ordre : paroi qui sépare deux zones de la phase γ dont les axes c sont perpendiculaires entre eux (partie.IV.4).

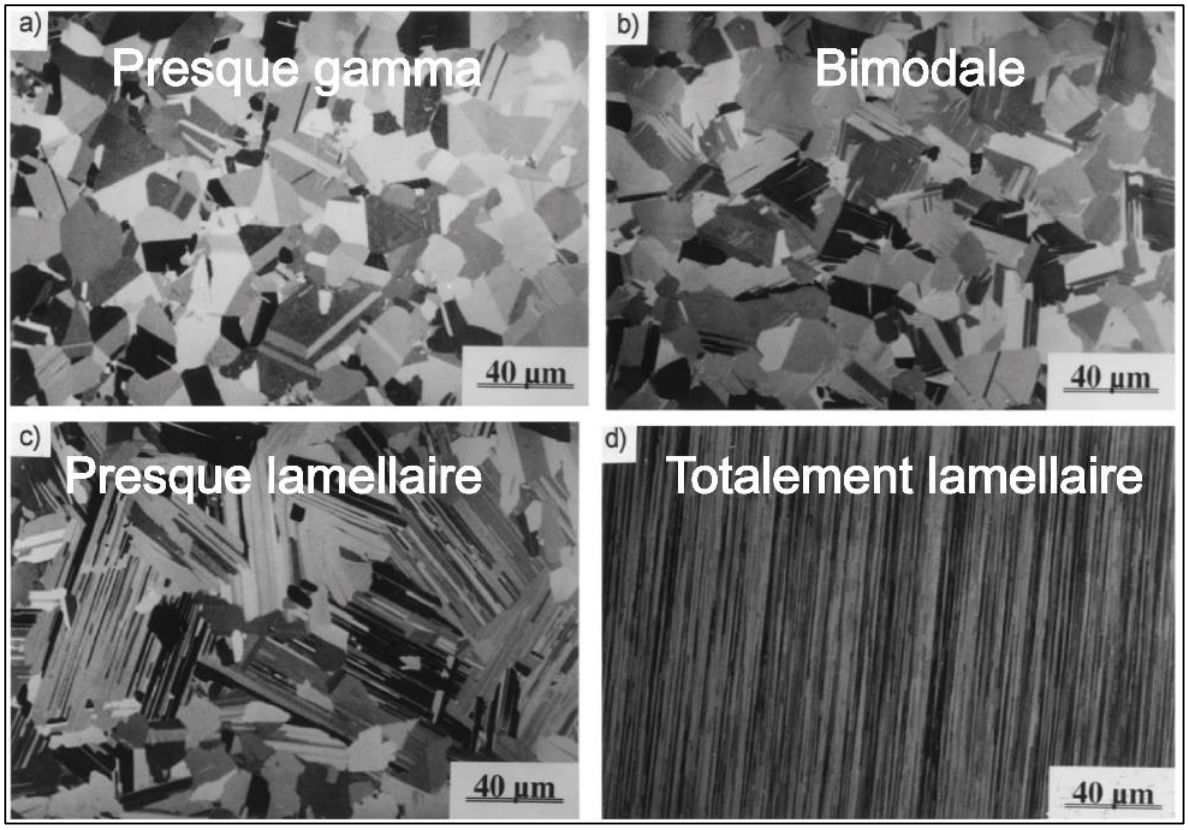


Figure.IV.4. Quatre types de microstructures de l'alliage à base de TiAl : (a) presque gamma, (b) bimodale, (c) presque lamellaire et (d) totalement lamellaire [Stroosnijder, 1997].

IV.3. Orientation cristallographique et relations d'interface

Comme indiqué plus haut, la phase γ est formée, généralement, durant le refroidissement de la phase hexagonale α (désordonnée) ou de la phase α_2-Ti_3Al (ordonnée). La transformation de cette phase se produit en respectant la relation d'orientation de Blackburn :

$(0001)_\alpha \parallel (111)_\gamma$ et $\langle 11\text{-}20\rangle_\alpha \parallel \langle 1\text{-}10\rangle_\gamma$.

Il en résulte six orientations cristallographiques entre α_2 et γ, appelées variantes d'orientation. Elles se décomposent en deux groupes de lamelles γ : OR1, OR2 et OR3 appartiennent au groupe γ_I, les autres OR4, OR5 et OR6 appartiennent au groupe γ_{II}.

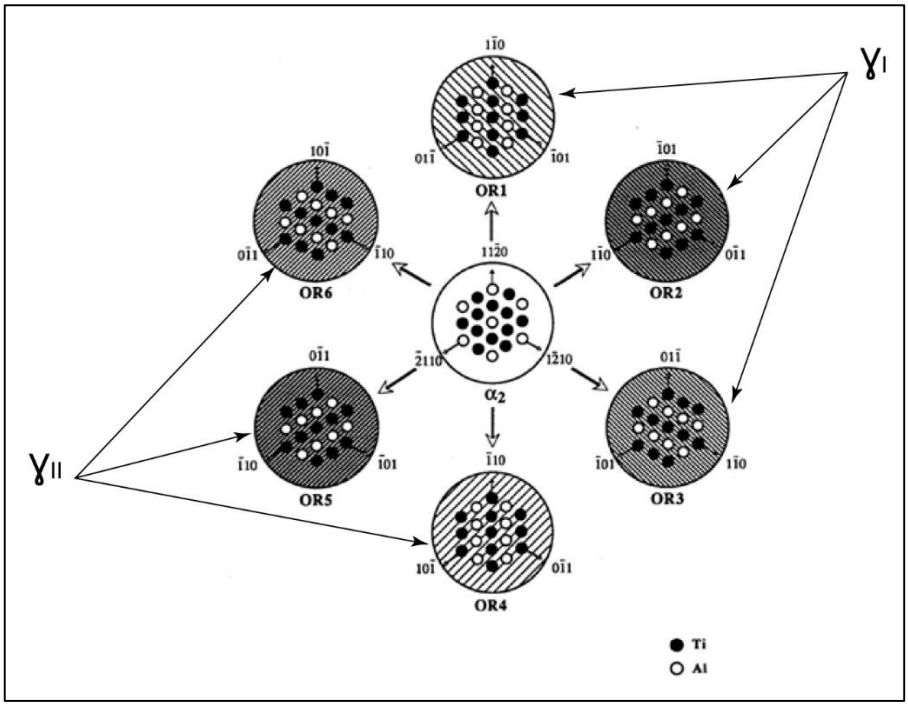


Figure.IV.5. Représentation schématique des six variantes d'orientations (OR1-6) entre la phase α_2 (cercle blanc au milieu) et la phase γ (les cercles hachurés) [Zghal, 1996].

Les deux familles de lamelles, γ_I et γ_{II}, contiennent chacune 1 à 3 domaines d'ordre. De plus, entre elles il existe, généralement, des relations de macle (vraie macle et/ou pseudo-macle). Ces relations d'orientation (figure.IV.5) sont les suivantes :

- Relations de domaine d'ordre : OR1/OR2, OR1/OR3, OR2/OR3, OR4/OR5, OR4/OR6 et OR5/OR6.
- Relations de vraie macle : OR1/OR4, OR2/OR5 et OR3/OR6.
- Relations de pseudo-macle : OR1/OR5, OR1/OR6, OR2/OR4, OR2/OR6, OR3/OR4 et OR3/OR5.

IV.4. Mécanismes de déformation dans la phase γ-TiAl à température ambiante

Dans les alliages à base de TiAl, à température ambiante, la déformation plastique se fait principalement dans les plans compacts {111} de la phase γ par glissement des dislocations et/ou par maclage mécanique [Yamaguchi, 1990] [Inui, 1992] [Appel, 1998].

IV.4.1. Glissement des dislocations

Concernant les dislocations, les études théoriques [Greenberg, 1970] [Greenberg, 1973] et les observations expérimentales, réalisées en MET, [Shechtman, 1974] [Hug, 1988] ont montré qu'il existe deux types de dislocations. Les directions de leurs vecteurs de Burgers sont représentées dans la figure.IV.6.

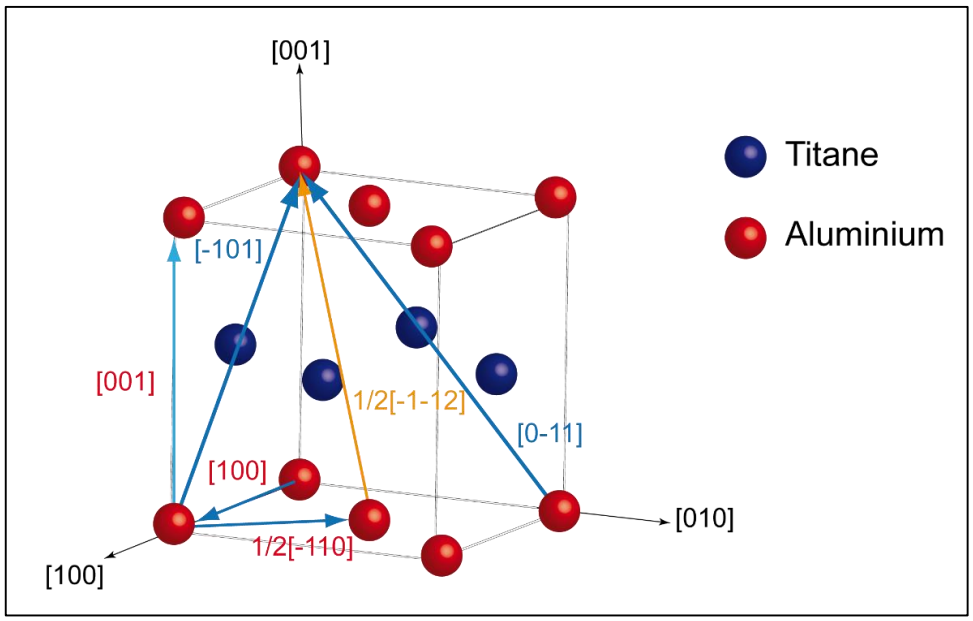


Figure.IV.6. Schéma des vecteurs de Burgers des dislocations ordinaires (flèches bleues) et des superdislocations (flèche orange) de la phase γ-TiAl.

Il est à noter que dans ce qui suit, la notation conventionnelle "⟨]" proposée par Hug *et al.* [Hug, 1988] est utilisée pour présenter les directions équivalentes. Le crochet "⟨" signifie que les deux premiers indices peuvent être permutés. Le crochet "]" indique que le troisième indice est fixe.

Suivant les directions ⟨-110], il n'existe qu'un seul type d'atomes (soit Ti soit Al). Dans ce cas, les dislocations sont nommées dislocations ordinaires, ou dislocations simples, avec un vecteur de Burgers $\mathbf{b}=\frac{1}{2}\langle 110]$ ou $\mathbf{b}=\langle 100\rangle$. Pour les directions ⟨011], elles sont composées d'une alternance d'atomes de Ti et d'Al. Les dislocations sont ainsi nommées superdislocations et leur vecteur de Burgers est $\mathbf{b}=\frac{1}{2}\langle 112]$ ou $\mathbf{b}=\langle 011]$ [Appel, 1998].

Les superdislocations, mentionnées ci-dessus, sont susceptibles d'adopter d'autres configurations afin de réduire leur énergie. Par exemple, elles peuvent se décomposer en dislocations dites superpartielles dont le vecteur de Burgers est plus petit ([01-1] →

$\frac{1}{2}$ [112]+ $\frac{1}{2}$ [-110]) [Greenberg, 1970]. Les superpartielles ainsi formées bordent une paroi d'antiphase [Marketz, 2003]. Cette dernière correspond à un défaut plan qui modifie l'environnement chimique sans perturbation de la structure [Appel, 1998]. D'autre part, la loi de Frank a prédit que les dislocations ordinaires et les superpartielles se dissocient davantage en dislocations de Shockley séparant des défauts d'empilement (défaut d'empilement intrinsèque, extrinsèque ou complexe) [Frank, 1949] [Appel, 1998].

IV.4.2. Maclage de déformation

Le maclage est un autre mode de déformation à température ambiante dans la phase γ. Il correspond à un basculement d'une partie du cristal, sous l'action d'une contrainte de cisaillement, dans une position symétrique sans changement de la structure du réseau. Ce basculement entraine, ainsi, la formation d'une interface (ou joint de macle) entre la partie déformée (maclée) et la partie non déformée.

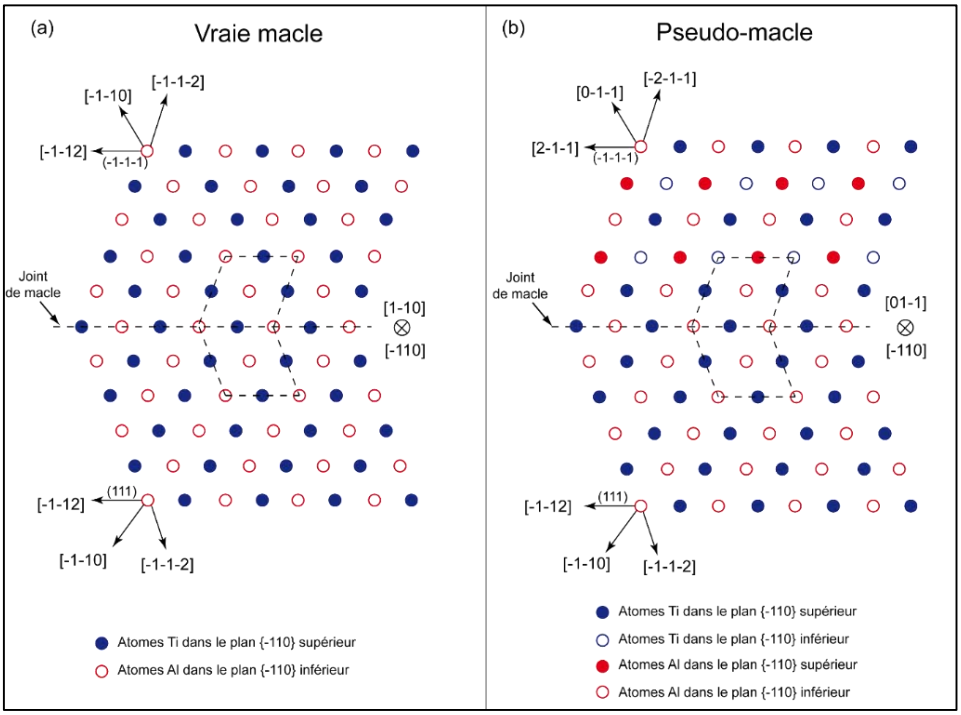


Figure.IV.7. Représentations schématiques de l'arrangement atomique dans TiAl dans le cas (a) d'une vraie macle et (b) d'une pseudo-macle. Les cercles représentent, selon le code de couleur indiqué, la projection des atomes (Ti et Al) sur deux plans successifs de la famille {-110} : les cercles pleins et vides appartiennent, respectivement, aux plans {-110} supérieur et inférieur [Figure d'après Jin, 1998].

Dans la figure.IV.7.a, les atomes sont symétriques (rotation de 60° autour du joint) de part et d'autre de l'interface : il s'agit d'une symétrie dans la position atomique et dans la nature chimique. Ceci est conforme avec la définition de la vraie macle (maclage vrai). En revanche, dans la figure.IV.7.b, la symétrie n'existe que pour les positions atomiques : il s'agit d'une pseudo-macle (pseudo-maclage).

Dans la phase γ, le maclage se produit suite au glissement des dislocations partielles, issues de la dissociation des dislocations ordinaires ou des superdislocations, dans leur plan de glissement {111} [Shechtman, 1974] [Christian, 1988] [Yoo, 1989].
La figure.IV.8 schématise un empilement des trois plans successifs (111). Les cercles blancs représentent les atomes de Ti et les cercles noirs pleins, les atomes d'Al. Il est à noter, aussi, que les cercles de petite, moyenne et grande taille correspondent, respectivement, aux atomes contenus dans le plan inférieur, du milieu et supérieur de l'empilement.

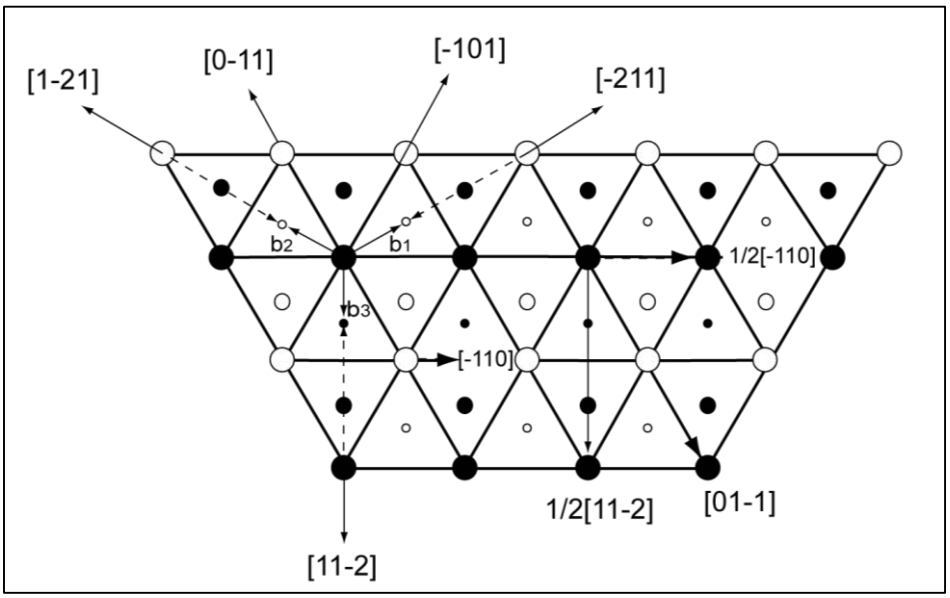


Figure.IV.8. Systèmes de glissement et de maclage dans la structure $L1_0$. Schématisation d'un empilement de 3 plans de type (111). Les petits, moyens et grands cercles représentent les atomes : les cercles blancs correspondent aux atomes de Ti et les noirs pleins correspondent aux atomes d'Al [Figure d'après Appel, 1998].

Sur cette figure.IV.8, les vecteurs de Burgers des dislocations partielles sont placés : $\mathbf{b_1}=\frac{1}{6}[-211]$, $\mathbf{b_2}=\frac{1}{6}[1-21]$ et $\mathbf{b_3}=\frac{1}{6}[11-2]$. La dislocation de vecteur de Burgers $\mathbf{b_3}$, n'altère pas la structure $L1_0$ (même type d'atome), et conduit donc à un mode de maclage

vrai conforme au système $\frac{1}{6}\langle 11\text{-}2]\{111\}$ [Farenc, 1993] [Appel, 1998]. En revanche, les autres dislocations partielles, possédant les vecteurs de Burgers $\mathbf{b_1}$ et $\mathbf{b_2}$, changent la structure et conduisent au pseudo-maclage [Appel, 1998].

La plupart des connaissances détaillées des différents mécanismes de déformation dans l'alliage TiAl ont été déduites des analyses réalisées par MET donc sur des lames minces [Shechtman, 1974] [Zghal, 2001] [Beran, 2016]. Les principaux systèmes de glissement correspondants sont ainsi résumés dans le tableau.IV.1 :

Tableau.IV.1 : Systèmes de glissement des dislocations ordinaires et du maclage vrai dans la phase γ à température ambiante [d'après Marketz, 2003]

Plans de glissement	Direction de glissement : dislocations ordinaires	La direction de maclage vrai
(111)	[-110]	[11-2]
(-111)	[110]	[-11-2]
(1-11)	[110]	[1-1-2]
(11-1)	[-110]	[112]

Certaines études MET ont montré qu'à température ambiante, la déformation plastique se produit principalement dans la phase γ par glissement des dislocations ordinaires de vecteur de Burgers $\frac{1}{2}$ <110> et par maclage vrai $\frac{1}{6}$<11-2>{111} [Zambaldi, 2010].

En revanche, d'autres études ont prouvé que le maclage est le mode de déformation principalement activé, il est suivi par le glissement des dislocations ordinaires puis par le glissement des superdislocations [Inui, 1992] [Mahapatra, 1995] [Yao, 1995] [Appel, 1998] [Kauffmann, 2000].

Afin d'alimenter la discussion, nous avons jugé pertinent de nous intéresser à l'étude de ces mécanismes de déformation sur un alliage TiAl massif. Pour ce faire, nous avons utilisé une procédure expérimentale originale, présentée ultérieurement, basée sur des caractérisations par MEB.

En ce qui concerne la phase α_2, Umakoshi *et al.* [Umakoshi, 1993] ont montré que la déformation plastique peut se produire selon trois modes de glissement des dislocations, à

savoir le glissement prismatique ⟨1-210⟩ {10-10}, le glissement basal ⟨1-210⟩(0001) ou le glissement pyramidal ⟨11-2-6⟩{1-211}. En outre, les mécanismes de déformation dans cette phase ne sont, généralement, activés qu'à des températures élevées : une densité beaucoup plus élevée et une distribution plus homogène des dislocations [Wiezorek, 1997]. Néanmoins, pour Appel *et al.* [Appel, 1998] [Appel, 2011] la phase α_2 ne participe pas à la déformation plastique des alliages TiAl.

IV.4.3. Mécanisme de déformation plastique au niveau des interfaces

L'alliage TiAl possède une microstructure riche et complexe. Les études antérieures de ses mécanismes de déformation à température ambiante se sont essentiellement basées sur des observations MET comme le présentent les exemples ci-dessous.

La figure.IV.9 présente des micrographies MET obtenues sur la même lame mince de TiAl lors d'un essai de déformation *in-situ* à température ambiante [Zghal, 1999]. Elle illustre un mécanisme de déformation, dans la phase γ, au niveau de deux différents types d'interfaces : une paroi de domaine d'ordre et un joint de macle notés, respectivement, OD et T dans les figures.IV.9.a et b. La première micrographie montre que la zone d'orientation OR3 (figure.IV.9.a) s'est déformée par glissement des dislocations ordinaires (flèches bleues) à travers une paroi de domaine d'ordre. Sur la figure.IV.9.b, une autre zone qui a la même orientation (OR3) s'est déformée par maclage : un transfert d'une macle de déformation à travers un joint de macle, existant déjà dans l'éprouvette.

À partir de ces observations, Zghal *et al*. [Zghal, 1997] ont conclu que :

- L'activation d'un système de glissement dans une zone d'orientation donnée dépend des modes de déformation actifs dans la zone voisine et de la nature des interfaces qui la bordent.
- La transmission de la déformation plastique se fait principalement : dans le plan en continuité du plan incident (plan de glissement des dislocations incidentes) pour les interfaces en domaine d'ordre et dans le plan miroir du plan incident pour les interfaces en relation de macle.

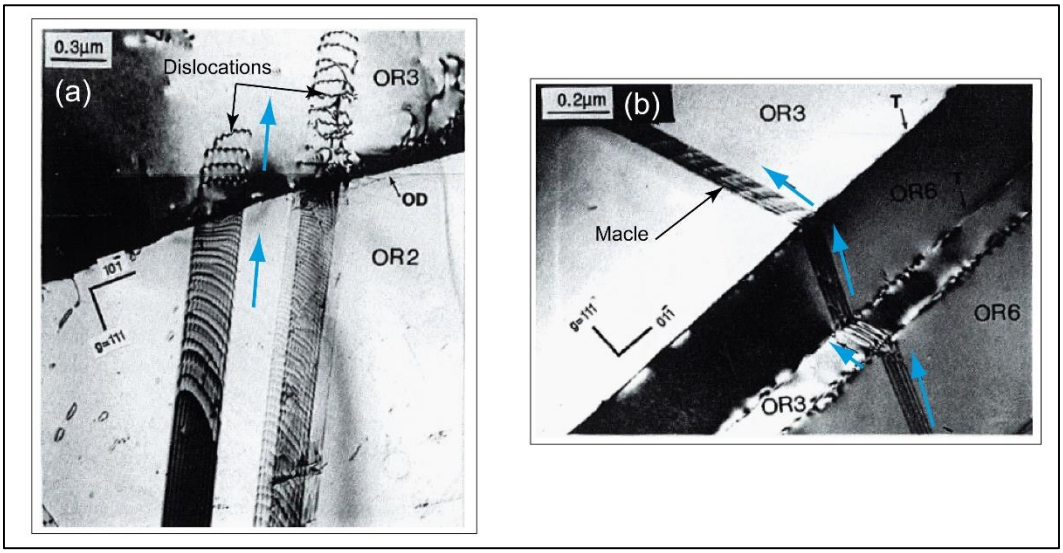


Figure.IV.9. Micrographies MET obtenues sur une même lame mince de TiAl lors d'une déformation *in situ*. Transfert de la déformation à travers (a) une paroi de domaine d'ordre et (b) un joint de macle. Les flèches bleues pointent vers la direction du transfert de la déformation [Zghal, 1999].

Dans certains cas, les interfaces jouent le rôle d'un obstacle pour la transmission de la déformation plastique comme l'indique la figure.IV.10 : un joint de macle a empêché la propagation de la déformation. Par conséquent une source de dislocations, dite source polaire (nommée S dans la figure) a été activée. Elle a généré un empilement de dislocations au voisinage de l'interface [Zghal, 1999].

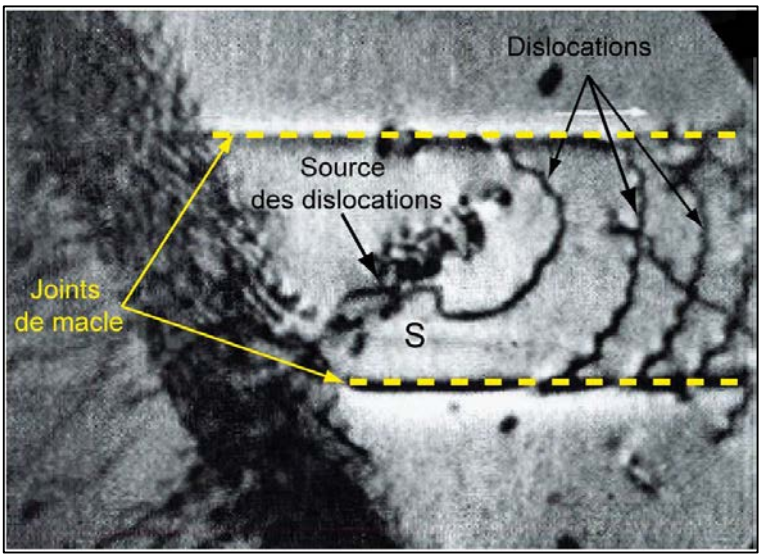


Figure.IV.10. Micrographie MET d'un empilement de dislocations au voisinage d'un joint de macle dans la phase γ. S indique la source des dislocations [Zghal, 1999].

Notons que quelques rares études, basées sur des observations MEB, ont été réalisées sur des échantillons TiAl massifs. Ainsi, à partir des images BSE, Simkin *et al.* [Simkin, 2003] et Bieler *et al.* [Bieler, 2005] ont mis en évidence la création de microfissures au niveau d'une interface entre deux grains γ. Ces microfissures sont indiquées par les flèches jaunes sur la figure.IV.11. Les auteurs ont conclu qu'un tel phénomène est observé suite à une concentration des contraintes au niveau de l'interface.

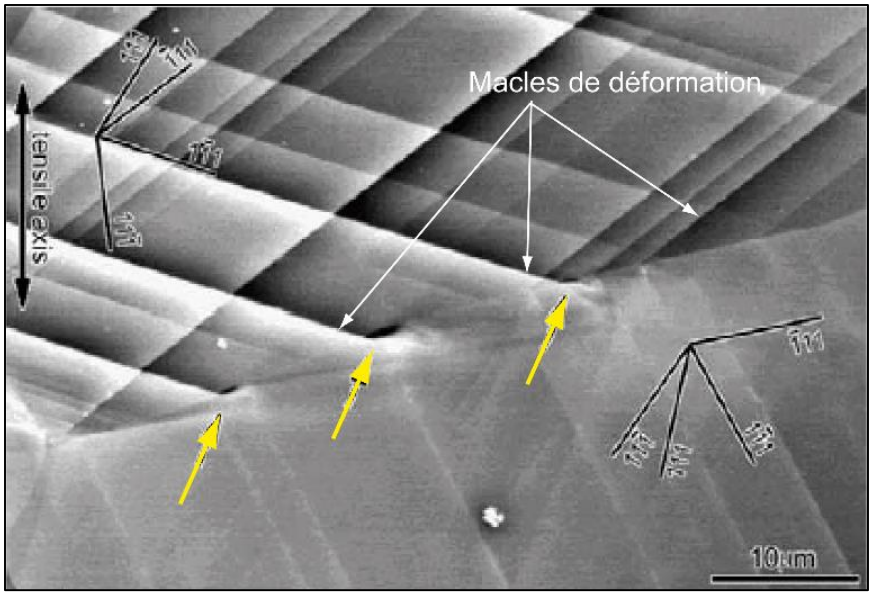


Figure.IV.11. Micrographie BSE d'un joint entre deux grains γ. Les flèches jaunes pointent vers les microfissures [Simkin, 2003].

Sans que ces exemples soient exhaustifs, ils illustrent tout de même la nécessité de réaliser des études plus poussées des mécanismes de déformation à température ambiante à différentes échelles dans TiAl. Comme cela a déjà été évoqué, TiAl présente une microstructure complexe avec différents types d'interfaces, chacune pouvant jouer un rôle spécifique dans la déformation. Pour comprendre et expliquer certaines propriétés mécaniques de TiAl, il est par conséquent indispensable de pouvoir solliciter le matériau très localement pour révéler le rôle de chaque interface. Ces derniers peuvent, en effet, faciliter ou empêcher la propagation de la déformation plastique. L'essai de nanoindentation semble être adapté à une telle étude car il permet d'une part de sélectionner la zone sollicitée et d'autre part, de maintenir l'intégrité de l'échantillon.

IV.5. La nanoindentation

L'essai de la nanoindentation consiste à appliquer progressivement une faible charge, variant de ~0,1 à 100 mN, sur la surface d'un matériau par l'intermédiaire d'un poinçon rigide (de type Vickers, Berkovich, sphérique…). Cette technique permet de suivre, continuellement, au cours d'un cycle charge-décharge, l'évolution de la profondeur de pénétration du poinçon dans le matériau en fonction de la force appliquée. À partir de l'analyse de la courbe (charge-décharge), des propriétés mécaniques locales sont déduites, telles que la dureté, le module d'Young, la limite d'élasticité, etc…

Cette technique a été utilisée, par exemple, par Gebhard *et al.* [Gebhard, 2009] afin de mesurer la dureté locale et d'identifier les phases dans un alliage TiAl biphasé (α_2 et γ). Pour ce faire, des indentations de même charge (1500 µN) ont été réalisées sur chacune des phases comme le montre la figure.IV.12. Il en a résulté des empreintes de petite taille sur la phase α_2 et de grande taille sur la phase γ. Étant donné que plus la taille de l'empreinte est petite, plus la dureté est élevée, les auteurs ont conclu que la α_2 est plus dure que la γ.

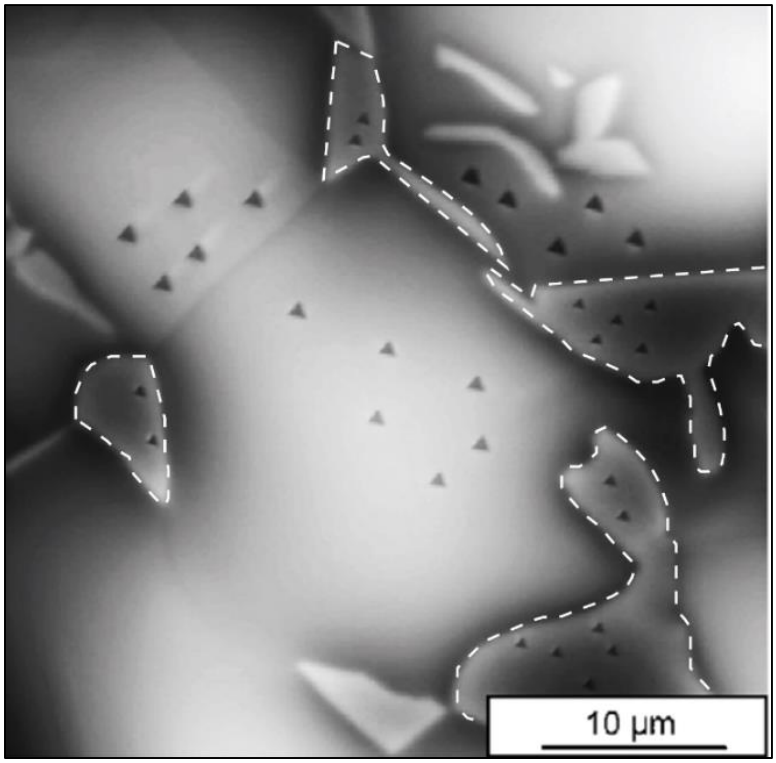


Figure.IV.12. Micrographie AFM (Microscope à Force Atomique) montrant les empreintes de nanoindentations dans les différentes phases dans TiAl. Les zones indentées de la phase α_2 sont entourées par des tirets blancs [Gebhard, 2009].

En outre, les observations microscopiques de ces empreintes de nanoindentation ont montré que sur les côtés de ces dernières, des zones plus claires apparaissent. Ces zones gardent la même forme au sein du même grain (figure.IV.13.a), ce qui n'est pas le cas d'un grain à un autre. Elles ont, en effet, une forme allongée et une forme plus localisée, respectivement dans le grain 1 et le grain 2 comme le montrent les figures.IV.13.a et b. Ces zones sont, ainsi, nommées *pile-ups* (bourrelets) [Gebhard, 2009] [Zambaldi, 2010].

À partir de ces observations, Gebhard *et al.* [Gebhard, 2009] ont conclu que la forme de ces bourrelets dépend de l'orientation cristallographique du grain. Cette conclusion a été confirmée, une année plus tard, par Zambaldi *et.al*. [Zambaldi, 2010] en combinant des essais de nanoindentation couplés avec des analyses EBSD et des simulations par la méthode des éléments finis.

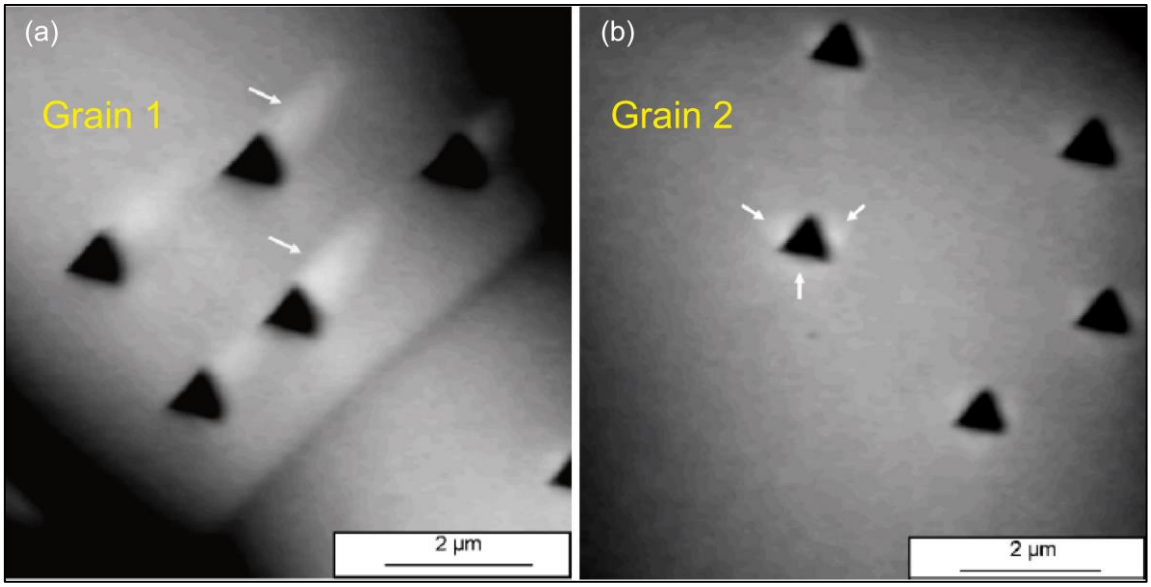


Figure.IV.13. Observations microscopiques des empreintes de nanoindentation (de charge 1500 µN) dans deux grains de différentes orientations. Les flèches blanches pointent sur les bourrelets [Gebhard, 2009].

Dans ce chapitre, afin d'étudier de façon plus précise les mécanismes de déformation à température ambiante au niveau des interfaces dans un alliage TiAl massif, nous avons caractérisé, par ECCI, avant et après sollicitation des zones particulières de l'échantillon. La déformation plastique a été introduite sur ces zones par nanoindentation pour les différentes raisons rappelées ci-dessous :

- Les charges appliquées sont faibles de façon à ce que seuls les premiers mécanismes de déformation soient activés.

- La profondeur de pénétration du poinçon est d'environ 100 nm : l'ordre de grandeur de la profondeur d'atténuation de l'ECCI (cf. chapitre I).
- La nanoindentation est une technique de déformation locale, elle permet de réaliser l'empreinte exactement sur la zone d'intérêt (proche d'une interface dans notre cas).
- En nanoindentation, le confinement solide autour de l'empreinte maintient l'intégrité de l'échantillon lors de l'application de la charge favorisant, ainsi, la déformation plastique dans les matériaux fragiles.

Pour ce faire, nous avons utilisé un appareil de type *Ultra Nano-Hardness Tester (UNHT)* d'Anton Paar (Buchs, Suisse), équipé d'une pointe de type Berkovich (géométrie pyramidale à base triangulaire). La figure.IV.14 schématise ce dispositif expérimental de nanoindentation. L'UNHT est composé de deux axes verticaux indépendants : un axe dédié à l'indentation et un axe utilisé comme référence. La distance latérale indenteur-pointe référence est d'environ 2,5 mm. Les deux axes sont contrôlés, indépendamment, par les actionneurs piézoélectriques. Ces derniers permettent, par l'intermédiaire de ressorts de raideur K_1 et K_2, l'application des forces sur la surface de l'échantillon placé horizontalement sur une table motorisée. La force de pénétration est obtenue à partir du déplacement des ressorts et elle est mesurée avec les capteurs capacitifs (C_1, C_2 et C_3).

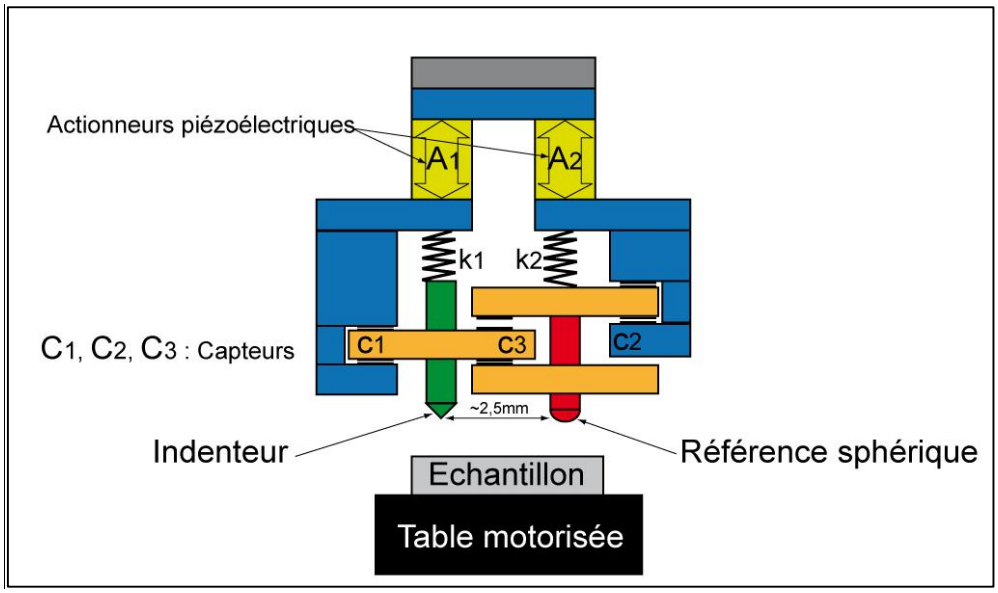


Figure.IV.14. Présentation schématique du dispositif expérimental de nanoindentation (UNHT).

IV.6. Matériau d'étude : préparation et observation microscopique

Le matériau utilisé dans cette étude est un alliage de composition chimique Ti-46,8 Al-1,7 Cr-2Nb (at.%), obtenu sous forme de lingots (de diamètre 15 mm et de hauteur 230 mm) fourni par Howmet. Ces lingots ont été pressés isostatiquement à chaud sous une charge de 125 MPa et à température de 1250°C pendant 4h. Ensuite, ils ont été soumis à un traitement d'homogénéisation dans un four sous vide à 1270°C pendant 24h [Dey, 2005].

L'échantillon étudié a été poli mécaniquement avec des papiers abrasifs, de granulométries décroissantes, lubrifiés à l'eau, suivi d'un polissage avec des solutions diamantées (9 µm, 3 µm et 1 µm). Finalement, afin de produire une surface plane (poli miroir), un polissage mécano-chimique a été effectué avec un mélange de silice colloïdale (75% d'O.P.U) et d'eau oxygénée (25% de H_2O_2).

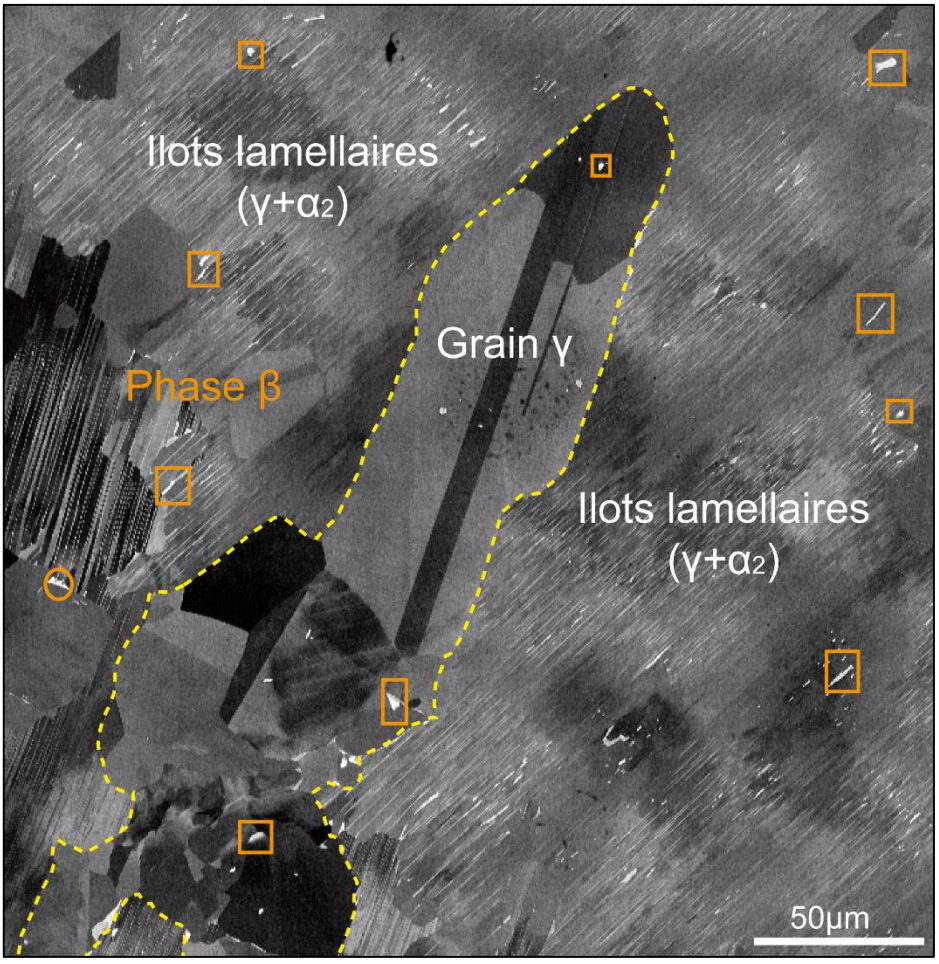


Figure.IV.15. Micrographie BSE de la microstructure de TiAl étudié : un ilot des grains γ (encadré en trait jaune en pointillés), des ilots lamellaires (γ + α_2) et des traces de la phase β (encadrées en orange).

La microstructure de l'échantillon d'étude est présentée par la micrographie BSE de la figure.IV.15. Cette microstructure est typique d'une microstructure bimodale constituée d'un îlot de grains γ monolithiques (comme celui entouré par le trait jaune en pointillés) et des îlots lamellaires biphasés (γ + α_2). Dans la zone lamellaire, la phase α_2 apparait très claire sur l'image BSE car elle possède un numéro atomique moyen Z plus élevé que celui de γ. La présence de Cr et de Nb dans la composition chimique a engendré la formation des îlots de phase β (certaines sont encadrées en orange).

IV.7. Caractérisation microstructurale de la zone sélectionnée

IV.7.1. Caractérisation par EBSD

Pour notre étude nous avons choisi une zone proche d'une interface de deux grains γ. Notre choix s'est particulièrement porté sur cette zone car il a été montré que les interfaces jouent un rôle important dans les propriétés mécaniques des alliages à base de TiAl [Zghal, 1999] [Simkin, 2003].

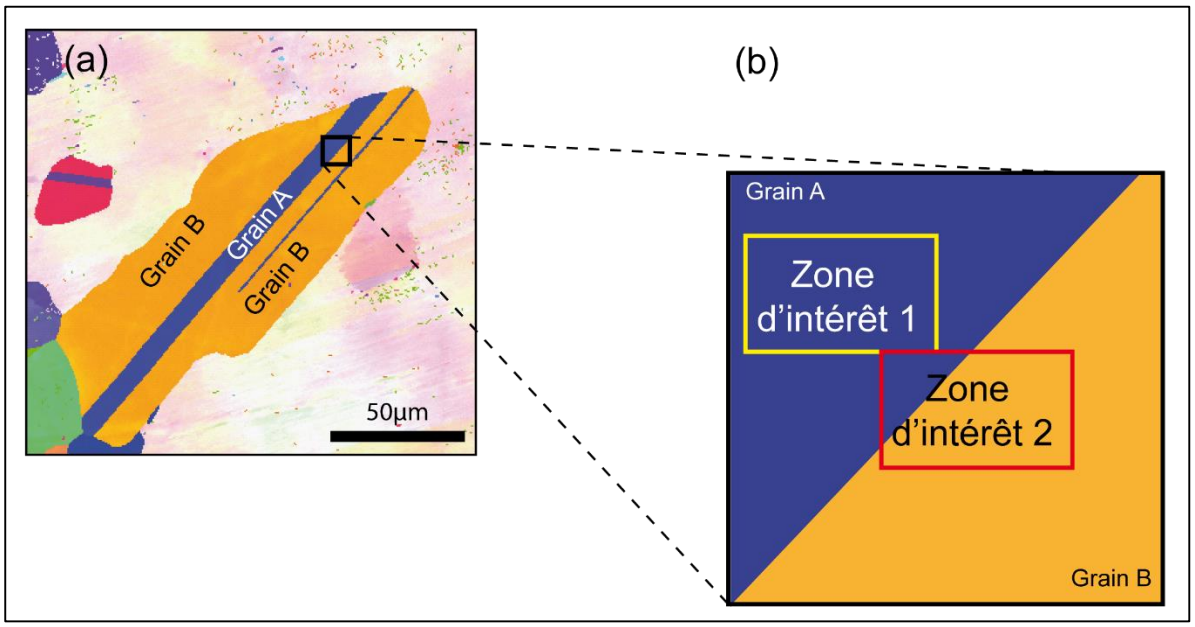


Figure.IV.16. (a) Cartographie d'orientation acquise autour de la zone d'étude. (b) Un zoom sur la zone choisie : zone d'intérêt ZI1 (encadrée en jaune) et ZI2 (encadrée en rouge).

La figure.IV.16.a présente une cartographie d'orientation de la zone d'intérêt composée par deux grains : grain A et grain B. La carte EBSD est acquise dans un MEB Zeiss SUPRA

40 avec une tension d'accélération de 15 kV et un diaphragme de diamètre 120 µm. Rappelons que les mesures EBSD sont réalisées avec un échantillon incliné de 70° par rapport à l'horizontale et distant de 15 mm de la pièce polaire. La figure.IV.16.b est un zoom sur la zone choisie, elle montre deux Zones d'Intérêt (ZI) :

- ZI1 : située dans le grain A et loin de l'interface grain A/grain B.
- ZI2 : appartient aux deux grains A et B (sur l'interface grain A/grain B).

Afin de déterminer la nature de l'interface grain A/grain B, nous avons utilisé l'EBSD en mode *spot* (pointé EBSD). Ce mode, permet de collecter manuellement des pseudo-diagrammes de Kikuchi en pointant le faisceau incident des électrons sur la zone souhaitée. Dans un premier temps, pour contraster les deux grains d'étude A et B comme l'illustre la figure.IV.17.a, nous n'avons pas utilisé le détecteur BSE car celui-ci ne peut pas être inséré sous la pièce polaire lorsque l'échantillon est fortement incliné (70° d'inclinaison). De ce fait, le détecteur FSD (*ForScattered electron Detector*), constitué de diodes situées en bas de l'écran de la camera EBSD, a été utilisé.

Ensuite, nous avons collecté le pseudo-diagramme de Kikuchi correspondant au grain A. Il est présenté sur la figure.II.17.b. Nous avons procédé de la même façon pour le diagramme de Kikuchi relatif au grain B (figure.IV.17.c). À partir de ces deux clichés de diffraction, acquis de part et d'autre de l'interface nous constatons que lors du passage du grain A au grain B :

- le triangle rouge, présenté sur la figure.IV.17.b, est en position de symétrie par rapport à la bande (111) fixe
- la bande de sur-structure (011), indiquée en lignes jaunes, est aussi en position de symétrie.

Ceci nous permet de conclure que les grains A et B sont en relation de macle. En particulier, l'interface d'étude est une interface de vraie macle.

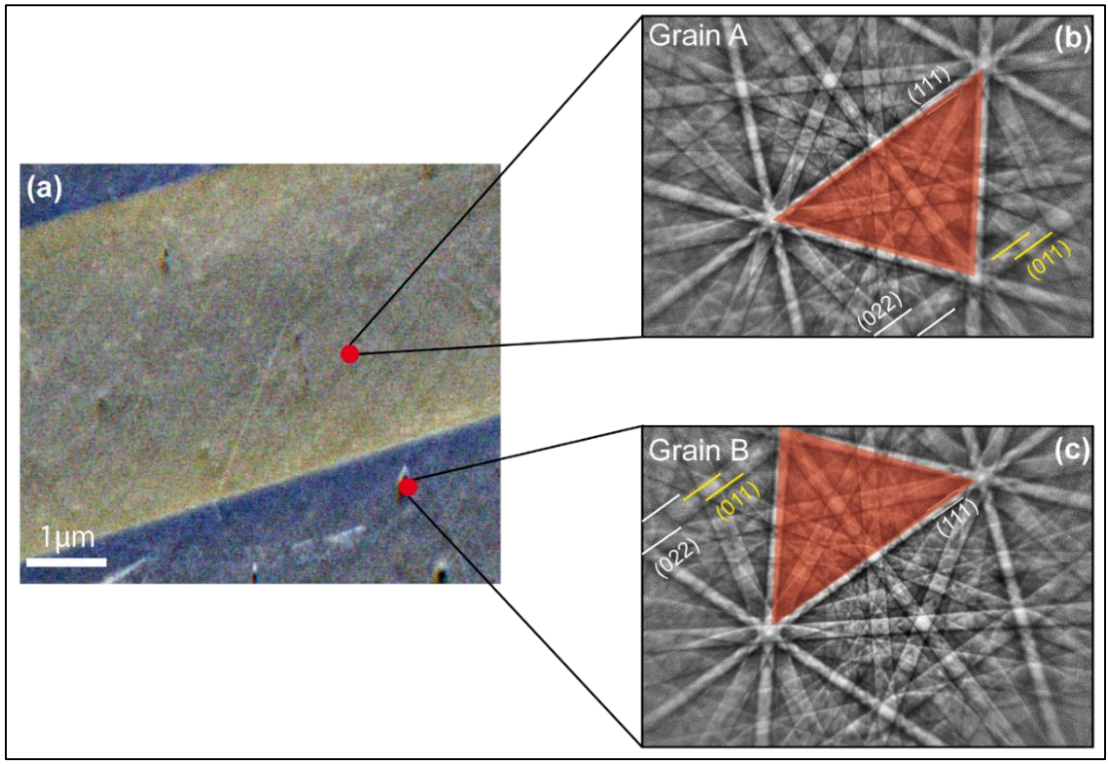


Figure.IV.17. (a) Micrographie FSD des ZI. (b) et (c) Pseudo-diagrammes de Kikuchi collectés par EBSD en mode *spot* de part et d'autre de l'interface grain A/grain B.

IV.7.2. Déformation plastique par nanoindentation

Sur la zone d'étude, entourée par le carré noir sur la figure.IV.16.a, nous avons effectué un réseau régulier de 40 empreintes d'indentation de charge 500 µN. Ce réseau a été réalisé avec une vitesse de charge et de décharge de 1 mN/min. Le temps de pause est de 5 secondes. Pour faciliter le repérage de la zone d'intérêt, cette dernière a été entourée par des empreintes de forte charge (20 mN) à une distance de quelques centaines de µm (vitesse 40 mN/min et temps de pause 5 s).

IV.7.3. Caractérisation avant et après déformation

IV.7.3.1. Première zone d'intérêt (ZI1) : loin de toute interface

L'évolution de la microstructure de la ZI1 avant et après déformation est présentée, respectivement, par la figure.IV.18.a (micrographie ECC) et la figure.IV.18.b (micrographie BSE).

En raison d'une contamination rapide de la surface de l'échantillon sous le faisceau d'électrons, il n'était pas possible d'accéder à de bonnes conditions de canalisation après

déformation. Néanmoins, des images BSE ont pu être acquises. Elles fournissent les informations nécessaires pour comprendre l'évolution de la microstructure déjà entièrement caractérisée avant déformation par ECCI.

Dans la zone ZI1, afin de contraster les défauts cristallins, sept conditions de canalisation (c'est-à-dire 7 vecteurs de diffraction **g** différents) sont accessibles et ont ainsi pu être atteintes par inclinaison et/ou rotation de l'échantillon : $\mathbf{g}_1$=(1-10), $\mathbf{g}_2$=(11-1), $\mathbf{g}_3$=(3-1-1), $\mathbf{g}_4$=(3-31), $\mathbf{g}_5$=(13-3), $\mathbf{g}_6$=(1-31) et $\mathbf{g}_7$=(40-2). Il est à noter que la micrographie ECC de la figure.IV.18.a est acquise sous la condition de diffraction $\mathbf{g}_1$ (les micrographies ECC obtenues pour les autres conditions de diffraction, de $\mathbf{g}_2$ jusqu'à $\mathbf{g}_7$, ne sont pas présentées dans la figure vue qu'elles sont similaires à celle obtenue avec $\mathbf{g}_1$).

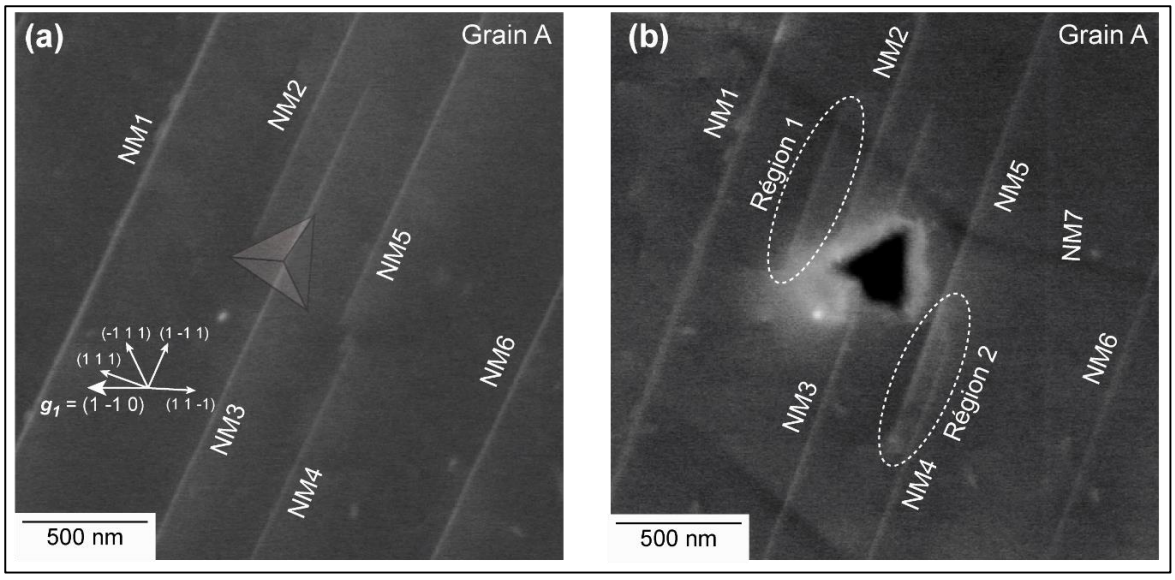


Figure.IV.18. Première zone d'intérêt (ZI1) dont la normale à la surface est proche de [457]. (a) Micrographie ECC acquise, avant déformation, pour la diffraction $\mathbf{g}_1$=(1-10) montrant 6 nano-macles (NM) [11-2] (111) et la position de l'empreinte (une empreinte Berkovich transparente). Les flèches blanches situent les normales des plans {111}. (b) Micrographie BSE montrant l'indentation de charge 500 µN et les deux régions nommées région 1 et région 2.

Avant déformation, nous avons observé, sur la ZI1, des contrastes d'intensité linéaires et parallèles, nommés Nano Macle (NM) dans la figure.IV.18.a. Ils sont alignés le long de la direction ~ [2-31]. Ce contraste d'intensité, observé en BSE, est généralement attribué au nano-macles dont le système de vraie maclage est conforme avec [11-2] (111) [Ng, 2004] [Simkin, 2007]. Sur cette zone, aucune dislocation ni superdislocation n'est visible.

La figure.IV.18.b présente la microstructure de la ZI1 après déformation. Aucune dislocation n'est visible, mais des changements clairement identifiables sont localisés à proximité de l'empreinte. Elles sont nommées région 1 et région 2. Dans la région 1, une NM de déformation [11-2] (111) a été créée. De l'autre côté de l'empreinte (région 2), la NM5 s'étend le long de la direction ~ [2-31]. Il convient de noter, aussi, que la NM7, visible dans la figure.IV.18.b, provient d'une empreinte voisine (autre empreinte du réseau).

A partir de ces observations de l'évolution des microstructures de ZI1, deux constats peuvent être faits :

- La déformation est localisée près de l'indentation.
- À température ambiante le maclage semble être le mécanisme principal de déformation, ce qui est en accord avec la littérature [Mahapatra, 1995] [Appel, 1998] [Kauffmann, 2000] [Beran, 2016]. Cependant, à partir d'observations par microscopie à force atomique autour d'empreintes à forte charge (3000 μN), Zambaldi *et al.* [Zambaldi, 2010] ont rapporté que le glissement de dislocations ordinaires est le mécanisme principal de déformation à température ambiante. Néanmoins, ils n'ont pas exclu totalement le maclage. Leurs essais ont été réalisés avec une forte charge, nettement supérieure à notre charge (500 μN). Il est donc difficile d'observer les premiers mécanismes de déformation avec une charge aussi élevée.

IV.7.3.2. Deuxième zone d'intérêt (ZI2) : proche d'une interface grain γ/ γ

La figure.IV.19.a présente la ZI2 composée par deux grains : A (à gauche) et B (à droite) de plan de surface, respectif, (42 54 73) ~ (457) et (16 325 946) ~ (013). La direction commune entre ces deux grains est la direction [2-31]. Le plan de la famille {111}, qui intercepte à la fois le plan (457) et le plan (013) le long de la direction [2-31], est le plan (111). Sur cette zone nous avons observé, également, une NM, nommée NM8 (figure.IV.19.a). La NM8 est alignée suivant la direction ~ [2-31], son système de macle est conforme avec [11-2] (111). De plus, des dislocations verticales (c'est-à-dire presque perpendiculaires à la surface de l'échantillon) ont été observées dans le grain A : elles sont soit isolées soit empilées dans un mur de dislocations. Ces défauts linéaires ont été caractérisées par ECCI afin de déterminer leurs vecteurs de Burgers. Pour ce faire, les sept

conditions de diffractions (de $\mathbf{g}_1$ à $\mathbf{g}_7$), précédemment mentionnées, en plus des critères d'invisibilité ont été utilisées : le vecteur de Burgers est, alors, $\mathbf{b}=\pm\frac{1}{2}[110]$.

La caractérisation des dislocations dans le grain A, a entrainé la contamination par le faisceau d'électrons d'une partie du grain B (zone présentée par la figure.IV.19.a) au voisinage du joint de macle (JM) : c'est pour cela que les dislocations, quasi-verticales à la surface, du grain B n'ont pas été analysées par ECCI.

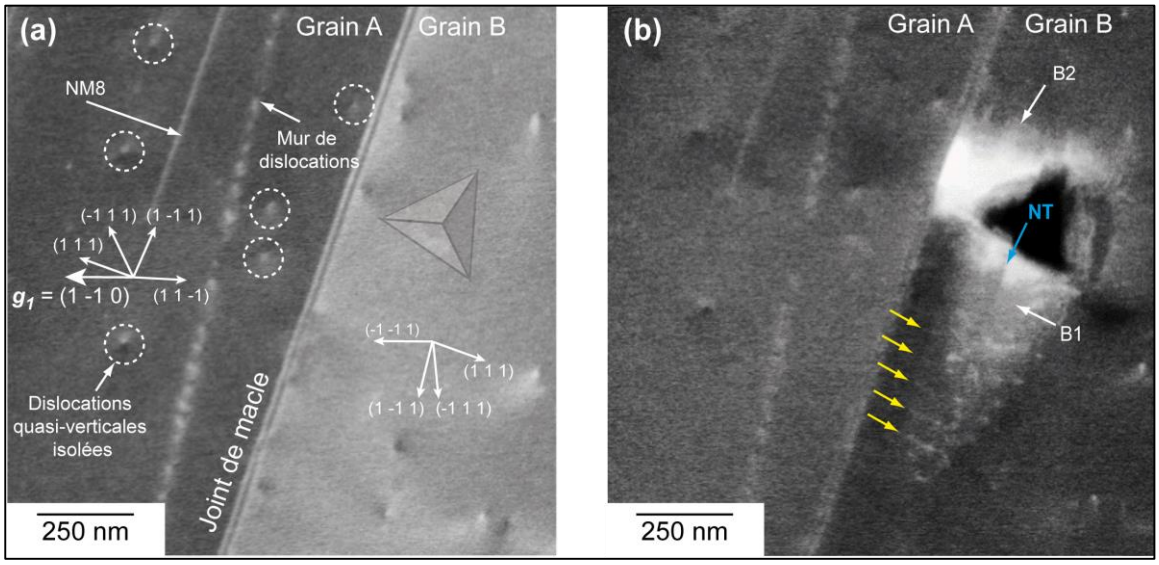


Figure.IV.19. Deuxième zone d'intérêt (ZI2) formée par le grain A et le grain B dont les normales à la surface, respectives, sont [457] et [013]. (a) Micrographie ECC acquise pour la diffraction $\mathbf{g}_1$=(1-10) comportant la position de l'empreinte Berkovich. Les flèches blanches situent les normales des plans {111}. (b) Micrographie BSE montrant les deux bourrelets autour de l'empreinte. La flèche bleue pointe vers une NM et les jaunes vers les dislocations.

La figure.IV.19.b montre la ZI2 après déformation plastique. L'indentation, de charge 500 µN, a été introduite dans le grain B proche du JM. Autour de cette empreinte, deux zones elliptiques ont été observées, elles forment des bourrelets nommés B1 et B2 dans la figure.IV.19.b. B1, s'étend loin de l'empreinte parallèle à la direction [2-31]. Il est clairement constitué par un ensemble de traces de dislocations parallèles (flèches jaunes dans la figure.IV.19.b). Un contraste de NM a également été observé à l'intérieur de B1 (flèche bleue dans la figure.IV.19.b). Cette NM, parallèle à la direction [2-31], est conforme au système de vraie macle : [11-2] (111). Le deuxième bourrelet B2 est suivant la direction [-5-31], il ne peut pas s'étendre car il est bloqué par le JM. Aucun changement n'est observé

dans le grain voisin (457) même si ce JM est localement déformé (à l'endroit de rencontre JM/B2). En dehors de ces bourrelets, aucun autre défaut n'est observé.
L'apparition de ces bourrelets suite à une déformation plastique a été déjà signalée dans la littérature mais sans aucune explication des mécanismes de déformation résultant pour les alliages de TiAl [Zambaldi, 2010] [Gehard, 2009].

La déformation plastique dans la ZI2 est, alors, caractérisée par l'apparition des zones elliptiques nommées bourrelets. Ces derniers sont associés à une canalisation de la déformation. Ils prennent généralement leur origine dans l'accommodation des contraintes en tête de macle [Hirth, 1982]. Bien que l'accommodation de macle $\frac{1}{6}$<11-2]{111} par les dislocations ordinaires $\frac{1}{2}$<110]{111} a déjà été confirmée par les expériences MET dans les alliages TiAl [Gibson, 2002] [Bieler, 2005], aucun mécanisme n'a été proposé. Donc, à partir de ces connaissances et tenant compte de nos résultats, nous proposons le scénario de déformation illustré par le schéma 3D de la figure.IV.20.

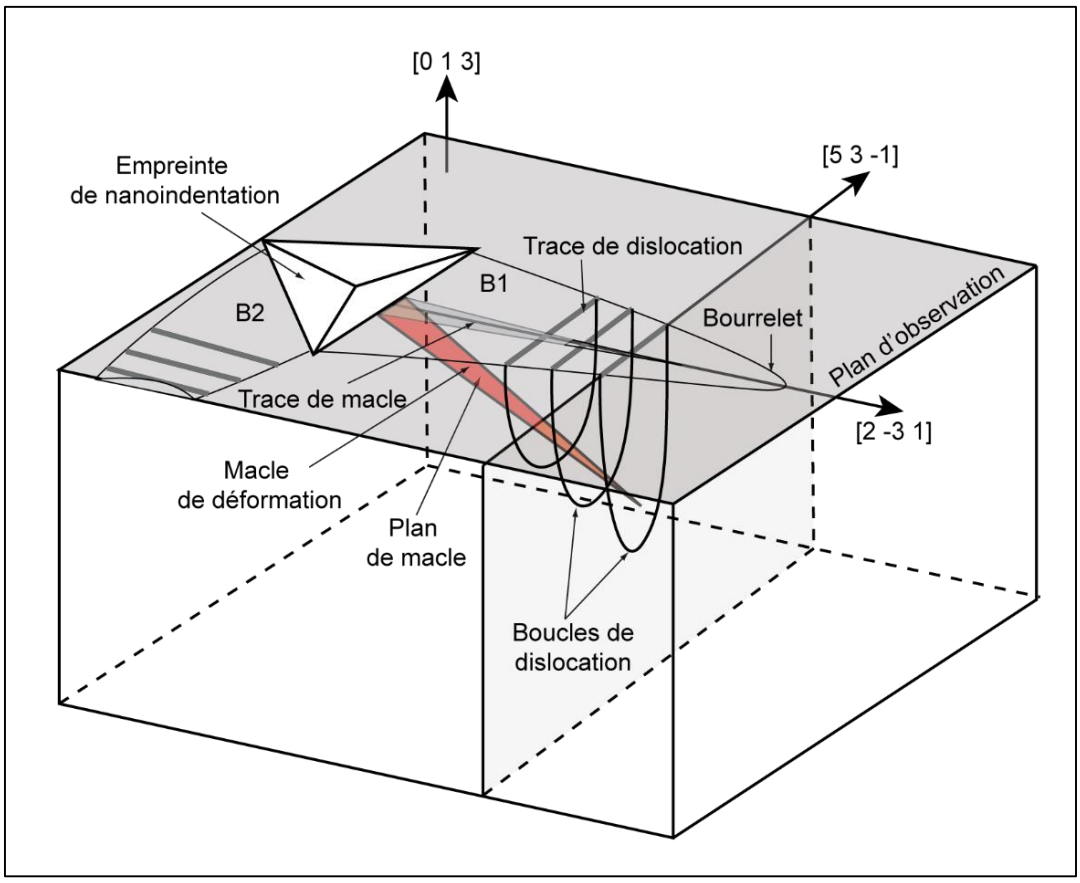


Figure.IV.20. Schéma 3D du scénario de la déformation montrant B1 et B2.

- ✓ Sous l'empreinte, la NM [11-2] (111) a été formée.
- ✓ La concentration des contraintes à l'extrémité de la NM [11-2] (111) a nucléé des boucles de dislocation ordinaires $\pm\frac{1}{2}[110]$ glissant dans les plans (1-11). Ces boucles ont formé un ellipsoïde entourant la NM. La projection des boucles de dislocation sur le plan d'observation produit des lignes parallèles.
- ✓ La zone elliptique B1 s'est développée en nucléant, successivement, des boucles de dislocation à son extrémité.
- ✓ B1 s'étend jusqu'à ce qu'il rencontre un obstacle comme le JM par exemple (c'est le cas de B2).
- ✓ A l'endroit où B2 intercepte le JM, une concentration des contraintes est apparue. Il en résulte une distorsion locale de l'interface. Par conséquent, le JM peut être considéré comme un obstacle à la propagation de la déformation : ceci peut expliquer la faible ductilité du γ-TiAl à température ambiante. Nous suggérons, alors, que pour une charge plus élevée, cette déformation peut causer des microfissures à sa proximité comme le montre les références [Simkin, 2003], [Bieler, 2005] et [Zambaldi, 2010].

La faible charge appliquée (500 μN) a été juste suffisante pour activer le mécanisme principal de déformation (le maclage) suivi par la formation du bourrelet.

IV.8. Conclusion

Dans ce chapitre nous nous sommes penchés sur les mécanismes de déformation plastique au niveau d'une interface à température ambiante. Notre choix du matériau s'est porté sur un alliage TiAl massif biphasé (la phase γ-TiAl et la phase α_2-Ti_3Al) possédant une microstructure riche en interfaces. En particulier nous nous sommes intéressés aux mécanismes au niveau d'un joint de macle. Ce qui peut être un point de départ pour comprendre le comportement mécanique du matériau dans son ensemble.

À cet égard, nous avons présenté une nouvelle procédure expérimentale. L'originalité de cette procédure réside dans la combinaison des différentes techniques de caractérisation à savoir : la nanoindentation, l'EBSD et l'ECCI (caractérisation microstructurale).

La méthodologie adoptée est la suivante :

- Caractérisation de la nature de l'interface par l'intermédiaire de l'EBSD en mode *spot* : l'interface de notre étude est une interface de vraie macle.
- Caractérisation microstructurale de la zone d'étude avant déformation par ECCI : vecteur de Burgers, direction de ligne de dislocation et système de macle.
- Nanoindentation : introduction de la déformation plastique au voisinage de l'interface.
- Caractérisation microstructurale de la zone d'étude après déformation en se basant sur des micrographies BSE.

Cette procédure expérimentale, nous a permis de conclure que loin de l'interface :

- Le maclage est le mécanisme de déformation qui s'active principalement.
- La déformation est localisée au voisinage de l'empreinte.

Au voisinage de l'interface, deux zones elliptiques (bourrelets) ont été créées :

- Le premier bourrelet s'étend parallèlement à l'interface. À l'intérieur de cette zone elliptique une nano-macle a été formée où la concentration des contraintes à son extrémité a entrainé la nucléation des boucles de dislocation.
- Le deuxième bourrelet a été bloqué par le joint de macle (déformation locale du joint du macle) : la concentration des contraintes peut être à l'origine de la faible ductilité de TiAl à température ambiante.

IV.9. Références

[Appel, 1998] F. Appel, R. Wagner. Microstructure and deformation of two-phase y-titanium Aluminides. Materials Science and Engineering, 22, 187-268 (1998).

[Appel, 2011] F. Appel, J. D. H. Paul, M. Oehring. Gamma titanium aluminide alloys. Weinheim, Wiley-VCH (2011).

[Beran, 2016] P. Beran, M. Heczko, T. Kruml, T. Panzner, S. Van Petegem. Complex investigation of deformation twinning in γ-TiAl by TEM and neutron diffraction. Journal of the Mechanics and Physics of Solids. 95, 647-662 (2016).

[Bieler, 2005] T. Bieler, A. Fallahi, B. C. Ng, D. Kumar, M. Crimp, B. A. Simkin, A. Zamiri, F. Pourboghrat, D. Mason. Fracture initiation/propagation parameters for duplex TiAl grain boundaries based on twinning, slip, crystal orientation and boundary misorientation. Intermetallics, 13, 979-984 (2005).

[Christian, 1988] J. W. Christian, D. E. Laughlin. The deformation twinning of superlattice structures derived from disordered b.c.c. or f.c.c. solid solutions. Acta Metallurgica. 37, 1617 (1988).

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

[Dey, 2005] S. Dey, A. Hazotte, E. Bouzy, S. Naka.Development of Widmanstätten laths in a near-gamma TiAl alloy. Acta Materialia. 53, 3783-3794 (2005).

[Farenc, 1993] S. Farenc, A. Coujou, A. Couret. An in situ study of twin propagation in TiAl. Philosophical Magazine A, 67, 127-142 (1993).

[Frank, 1949] F. C. Frank. On the equations of motion of crystal dislocations. Proceedings of the Physical Society. Section A, 62 (2), 131 (1949).

[Gebhard, 2009] S. Gehard, F. Pyczak, M. Göken. Microstructural and micromechanical characterisation of TiAl alloys using atomic force microscopy and nanoindentation. Materials Science and Engineering, A, 523, 235-241 (2009).

[Gibson, 2002] M. Gibson, C. Forwood. Slip transfer of deformation twins in duplex γ-based Ti-Al alloys: Part III. Transfer across general large-angle γ-γ grain boundaries. Philosophical Magazine A, 82, 1381-1404 (2002).

[Greenberg, 1970] B. A. Greenberg. Splitting of Superdislocations in Ordered CuAu-Type Structure. Physical Status Solidi, 42, 459 (1970).

[Greenberg, 1973] B. A. Greenberg. New Types of Superdislocations in Ordered L10 Structure. Physical Status Solidi, B 55, 59 (1973).

[Hirth, 1982] J. P. Hirth, J. Lothe. Theory of Dislocations, 2nd édition, Krieger Publishing Company: Malabar, FL, USA (1982).

[Hug, 1988] G. Hug, A. Loiseau, P. Veyssière. Weak-beam observation of a dissociation transition in TiAl. Philosophical Magazine, A 57, 499 (1988).

[Inui, 1992] H. Inui, A. Nakamura, M. H. Oh, M. Yamaguchi. Deformation structures in Ti-rich TiAl polysynthetically twinned crystals. Philosophical Magazine, A 66, 557 (1992).

[Jin, 1998] Z. Jin, G. T. Gray III. On deformation twins and twin-related lamellae in TiAl. Jornal of Materials Science, 33, 77-83 (1998).

[Kainuma, 2000] R. Kainuma, I. Ohnuma, K. Ishida, K. Ishikawa. Stability of B2 ordered phase in the Ti-rich portion of Ti-Al-Cr and Ti-Al-Fe ternary systems. Intermetallics, 8, 869 (2000).

[Kauffmann, 2000] F. Kauffmann, T. Bidlingmaier, G. Dehm, A. Wanner, H. Clemens. On the origin of acoustic emission during room temperature compressive deformation of a gamma-TiAl based alloy. Intermetallics, 8, 823-830 (2000).

[Kim, 1989] Y. W. Kim. Intermetallic alloys based on gamma Titanium Aluminide. JOM, 41, 24-30 (1989).

[Kim, 1994] Y. W. Kim. Ordered intermetallic alloys, part III: gamma Titanium Aluminide. JOM, 46, 30-39 (1994).

[Lipsitt, 1975] H. A. Lipsitt, D. Shechtman, R. E. Schafrik. The deformation and fracture of TiAl at elevated temperatures. Metallurgical Transactions A, **6A**, 1991 (1975).

[Mahapatra, 1995] R. Mahapatra, A. Girshick, D. P. Pope, V. Vitek. Deformation mechanisms of near-stoichiometric single-phase TiAl single-crystals a combined experimental and atomistic modeling study. Scripta Metall Mater,33(12), 1921-7 (1995).

[Marketz, 2003] W. T. Marketz, F. D. Fischer, H. Clemens. Deformation mechanisms in TiAl intermetallics-experiments and modeling. International Journal of Plasticity, 19, 281-321 (2003).

[Ng, 2004] B. C. Ng, B. A. Simki, M. Crimp, T. Bieler. The role of mechanical twinning on microcrack nucleation and crack propagation in a near-γ TiAl alloy. Intermetallics, 12, 1317-1323 (2004).

[Shechtman, 1974] D. Shechtman, M. J. Blackburn, H. A. Lipsitt. The plastic deformation of TiAl. Metallurgical Transactions, 5, 1373 (1974).

[Simkin, 2003] B. A. Simkin, M. Crimp, T. Bieler. A factor to predict microcrack nucleation at gamma-gamma grain boundary in TiAl. Scripta Materialia. 49, 149-154 (2003).

[Simkin, 2007] B. A. Simki, B. C. Ng, M. Crimp, T. Bieler. Crack opening due to deformation twin shear at grain boundaries in near-γ TiAl. Intermetallics, 15, 55-60 (2007).

[Stroosnijder, 1997] M. F. Stroosnijder, V. A. C. Haanappel, H. Clemens, Oxidation behaviour of TiAl based intermetallics – influence of heat treatment, Materials Science and Engineering, A 842, 239-240 (1997).

[Umakoshi, 1993] Y. Umakoshi, T. Nakano, K. Sumimoto, Y. Maeda. Plastic anisotropy of Ti3Al single crystals. Proceeding of Materials Research Society, 288, 441-446 (1993b).

[Wiezorek, 1997] J. M. K. Wiezorek, P. M. Deluca, M. J. Mills, H. L. Fraser. Deformation mechanisms in a binary Ti-48 at.%Al alloy with lamellar microstructure. Philosophical Magazine, 75 (5), 271-280 (1997).

[Yamaguchi, 1990] M. Yamaguchi, Y. Umakoshi. The deformation behaviour of intermetallic supperlattice compounds. Progress in Materials Science, 34,1 (1990).

[Yao, 1995] K. F. Yao, H. Inui, K. Kishida, M. Yamaguchi. Plastic deformation of V- and Zr alloyed PST TiAl in tension and compression at room temperature. Acta Metallurgica et Materialia, 43, 1075 (1995).

[Yoo, 1989] M. H. Yoo, C. L. Fu, J. K. Lee. Deformation Twinning in Ordered Intermetallic Compound, High-Temperature Ordered Intermetallic Alloys III. Proceeding of Materials Research Society, 133, 189-196 (1989).

[Zambaldi, 2010] C. Zambaldi, D. Raabe. Plastic anisotropy of c-TiAl revealed by axisymmetric indentation. Acta Materialia, 58, 3516-3530 (2010).

[Zghal, 1996] S. Zghal, S. Naka, A. Couret. A quantitative tem analysis of the lamellar microstructure in tial based alloys. Acta Materialia, 45 (7), 3005-3015 (1996).

[Zghal, 1997] S. Zghal. Contribution à l'étude de la microstructure et de la deformation plastique des alliages TiAl lamellaires. Thèse, université Paul Sabatier de Toulouse (1997).

[Zghal, 1999] S. Zghal, H. Inui, M. Yamaguchi, A. Couret. Role of the interfaces on the activation of slip systems in the PST TiAl alloy. Materials Research Society, 552, 331-336 (1999).

[Zghal, 2001] S. Zghal, A. Coujou, A. Couret. Transmission of the deformation through γ-γ interfaces in a polysynthetically twinned TiAl alloy. Philosophical Magazine, 81, 345-382 (2001).

Conclusion générale et perspectives

L'influence importante des défauts et plus particulièrement des dislocations sur les propriétés des solides cristallins a amené au développement de méthodes pour les observer et les caractériser. Dans un MEB, c'est la technique d'imagerie par contraste de canalisation des électrons (ECCI) qui est utilisée. L'ECCI tire avantage de la forte dépendance de l'intensité des électrons rétrodiffusés à l'orientation du faisceau incident par rapport aux plans cristallins. Selon cette orientation, différents contrastes des dislocations, peuvent être générés.

À notre connaissance aucune expression analytique explicite de la variation de l'intensité BSE en fonction des différents paramètres physiques gouvernant une expérience ECCI n'a été proposée par la littérature. D'autre part, les contrastes ECC expérimentaux de dislocations ne sont jamais analysés finement et confrontés aux profils théoriques.

Dans ce contexte, la première partie de la thèse a été consacrée à l'interprétation théorique des contrastes d'intensité BSE produits par un cristal parfait et imparfait. Nous avons ainsi développé un modèle original et simple basé sur l'approche des ondes de Bloch de la théorie dynamique de la diffraction. Ce modèle ainsi que nos interprétations des images de défauts nous ont permis d'apporter une réponse aux questions posées au début de ce manuscrit (chapitre I).

Quel est l'effet de l'épaisseur de l'échantillon sur la formation d'un profil d'intensité BSE pour un cristal parfait ?

À partir de notre modèle, nous avons montré que la formation d'une pseudo-bande de Kikuchi, donc du profil d'intensité BSE avec les caractéristiques observées expérimentalement, est influencée par l'épaisseur de l'échantillon. Ainsi différents régimes ont été définis :

- Aucun contraste de bande n'a été observé en dessous d'une épaisseur $t=0,2\xi_g$. Dans ce cas, l'échantillon est suffisamment mince pour faciliter la transmission des électrons par différents processus (canalisation, diffraction de Bragg, diffusions inélastiques…) : une rétrodiffusion réduite pour former le profil d'intensité de la pseudo-bande de Kikuchi.

- Un régime transitoire dans lequel des oscillations sont apparues sur les flancs du profil de la pseudo-bande de Kikuchi. Au cours de ce régime, l'intensité BSE a augmenté au fur et à mesure de l'augmentation de l'épaisseur.
- Un régime stable est obtenu à partir d'une épaisseur d'environ 80 nm. Dans ce cas, l'épaisseur de la matière est suffisante pour générer un signal appréciable des BSE dont l'intensité sera gouvernée par le phénomène de canalisation. Il en résulte une modulation d'intensité BSE permettant la formation d'un profil de pseudo-bande de Kikuchi avec les principales caractéristiques observées expérimentalement : bords sombres, milieu brillant.

Comment varie analytiquement l'intensité BSE au voisinage d'une dislocation parallèle à la surface pour différentes conditions de diffraction ?

À partir de notre modèle nous avons obtenu une expression analytique de l'intensité BSE en fonction des différents paramètres physiques gouvernant une expérience ECCI. De ce fait, nous avons envisagé des modélisations du contraste d'intensité BSE produit par des dislocations, vis et coin, parallèles à la surface. Différentes conditions expérimentales de diffraction sont ainsi présentées : s=0, ±**g**, s>0, ±**g** et s=0, ±**g** où s représente la déviation du faisceau incident par rapport à la condition de Bragg et **g** est le vecteur de diffraction. Des conclusions analogues ont été tirées pour les deux types de dislocations (vis et coin) :

- En condition de Bragg, s=0, le profil d'intensité obtenu est antisymétrique de part et d'autre du cœur de la dislocation située en x=0 nm. Il comporte un creux et un pic d'intensité BSE. L'inversion de signe de **g** a entrainé l'inversion du contraste (le creux devient pic et vice versa). Ceci a été aussi prédit par la littérature (mais non démontré jusqu'à ce jour).
- Pour s>0, les courbes théoriques ne présentent qu'un seul pic d'intensité qui ne coïncide pas avec la position exacte de la dislocation (x=0 nm). Ce maximum d'intensité se situe, respectivement, d'un côté ou de l'autre de l'axe des ordonnées (ou position réelle de la dislocation) selon la condition de diffraction +**g** ou –**g**.
- Lorsque s<0, les profils modélisés comportent un creux et un léger pic. Ce contraste s'inverse avec l'inversion de signe de **g**.
- Pour les différents s la largeur de l'image de la dislocation augmente avec l'augmentation de **|g·b|**.

En ce qui concerne les conditions d'extinction des dislocations ou les critères d'invisibilité appliqués en MET, elles ont été mises en évidence par notre approche théorique :

- La dislocation vis est hors contraste pour $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$: le profil d'intensité BSE calculé montre une ligne parallèle à l'axe des abscisses, avec un $\Delta\eta=0$ (a.u).
- La dislocation coin est totalement invisible pour $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$ et $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\wedge\mathbf{u}=0$. En revanche, pour les conditions de diffraction $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$ et $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\wedge\mathbf{u}\neq0$, un profil correspondant au contraste résiduel, observé en MET, est obtenu : un pic de faible intensité entouré par deux creux.

Certains résultats de ce chapitre II sont en accord avec la littérature, d'autres sont inédits. Tous seront confrontés aux résultats expérimentaux et exploités afin de comprendre les mécanismes de formation des images ECC des dislocations observées pour différentes conditions de diffraction.

Comment influent les conditions de diffraction sur le contraste expérimental produit par des dislocations observées par ECCI ?

Pour contraster les défauts cristallins par ECCI, il est nécessaire de connaitre avec précision l'orientation du faisceau incident par rapport au plans cristallins (hkl). C'est la raison pour laquelle nous avons adopté la procédure expérimentale de l'a-ECCI où l'orientation absolue du cristal est obtenue, par la technique de précession du faisceau, avec une précision meilleure que 0,1°.

Cette précision du contrôle des conditions ECCI nous a permis d'étudier le contraste de dislocation dans un acier IF (matériau modèle) pour différentes positions du faisceau incident sur une même pseudo-bande de Kikuchi (hkl), donc pour différents paramètres de déviation s :

Au travers la pseudo-bande

- Pour s>0, le faisceau est orienté près du bord de la pseudo-bande de Kikuchi (condition de canalisation) : la dislocation apparait brillante et fine sur un fond sombre.

- En condition de Bragg, s=0, la dislocation a un contraste noir/blanc sur un fond sombre. Le même contraste est obtenu mais sur un fond clair quand le faisceau incident est orienté au voisinage du bord intérieur de la bande (s<0).
- Pour une orientation du faisceau incident au milieu de la bande : la dislocation génère un contraste fin noir sur un fond clair.

Le long de la pseudo-bande

Le meilleur contraste de dislocations et la bonne qualité de micrographie sont obtenus quand le faisceau incident est orienté loin de l'intersection des autres bords de bandes.

De part et d'autre d'une pseudo-bande

Le contraste noir/blanc d'une dislocation imagée en condition de Bragg s'inverse avec l'inversion de signe de **g** : contraste noir/blanc en +**g** devient blanc/noir en –**g**. En outre, le meilleur contraste est obtenu quand le faisceau incident est orienté sur une zone sombre du diagramme simulé.

Ensuite, afin de vérifier notre modèle théorique développé dans le chapitre II, nous avons confronté nos résultats expérimentaux aux profils théoriques obtenus pour les différentes conditions de diffraction. Nous avons constaté que la théorie décrit bien l'image ECC de la dislocation :

- Pour s=0, les profils théoriques d'intensité BSE comportent un creux et un pic correspondant, respectivement, au contraste noir/blanc de la dislocation. Même résultat pour s<0.
- Lorsque s>0, le seul pic du profil modélisé met en évidence le contraste brillant de la dislocation.

Un accord entre les résultats théoriques et expérimentaux a été ensuite confirmé par ajustement des profils d'intensité BSE. Ce qui nous a permis de déduire les paramètres physiques ξ_g (distance d'extinction), $\xi_0^{'}$ (longueur caractéristique d'absorption moyenne), $\xi_g^{'}$ (longueur caractéristique d'absorption pour un **g** donné) et s (paramètre de déviation du faisceau incident par rapport à la condition de Bragg), dont les ordres de grandeur sont cohérents avec la littérature.

En se basant sur les différentes constatations fondamentales établies dans les parties précédentes, nous avons pu discuter l'influence de l'orientation du faisceau incident sur les critères d'invisibilité d'un dipôle de dislocations dans l'acier IF. Pour ce faire, à une même condition d'extinction nous avons acquis deux micrographies ECC pour deux différentes positions :

- Faisceau positionné sur un zone sombre au bord de la bande : dipôle hors contraste ou invisible.
- Faisceau positionné à l'intersection de deux bords de bandes : dipôle visible (contraste résiduel).

À l'intersection de deux bandes, deux conditions de diffractions existent à la fois $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}=0$ et $\mathbf{g}\cdot\mathbf{b}\neq 0$ où la dernière entraine la génération d'un contraste de la dislocation.

Il est donc indispensable de positionner, avec précision, le faisceau incident loin des intersections des bords de bandes, soit en condition deux ondes. Ceci permet d'obtenir le contraste nécessaire pour analyser les images de dislocations.

ECCI : nouvelle voie pour la caractérisation des microstructures de déformation avant et après sollicitation

Dans le chapitre IV, nous avons exploité la technique ECCI dans des conditions optimales pour amorcer une étude des mécanismes de déformation plastique, à température ambiante, au niveau d'une interface dans un alliage TiAl. L'ECCI a été ainsi combinée avec la nanoindentation et l'EBSD élaborant une méthodologie originale qui consiste à :

- Caractériser la nature de l'interface par l'intermédiaire de l'EBSD en mode *spot* : l'interface de notre étude est une interface de vraie macle.
- Caractériser les défauts de la zone d'étude avant déformation par ECCI : vecteur de Burgers, direction de ligne de dislocation et système de macle.
- Introduire localement la déformation plastique au voisinage de l'interface par nanoindentation.
- Caractériser la microstructure de la zone d'étude après déformation en se basant sur des micrographies BSE.

Les analyses approfondies des résultats expérimentaux, obtenus sur le TiAl, ont permis de conclure que :

Loin de l'interface

- Le maclage est le mécanisme de déformation qui s'active principalement.
- La déformation est localisée au voisinage de l'empreinte.

Au voisinage de l'interface

- Deux zones elliptiques (bourrelets) ont été créées.
- Le premier bourrelet s'étend parallèlement à l'interface. À l'intérieur de cette zone elliptique une nano-macle a été formée où la concentration des contraintes à son extrémité a entrainé la nucléation de boucles de dislocation.
- Le deuxième bourrelet a été bloqué par le joint de macle (déformation locale du joint de macle) : la concentration des contraintes conséquente peut être à l'origine de la faible ductilité de TiAl à température ambiante.

Perspectives

Pour finir, notre étude offre de nouvelles perspectives de recherche :

- ✓ Modélisation du contraste d'intensité BSE pour des dislocations inclinées par rapport à la surface et pour d'autre types de défauts cristallins comme les défauts d'empilement.
- ✓ Modélisation du contraste d'intensité BSE, produit par des dislocations, en fonction de la profondeur dans l'échantillon.
- ✓ Application de la méthodologie, présentée dans le chapitre IV pour compléter les études sur TiAl en explorant d'autres interfaces et étudier les mécanismes de déformation dans d'autres matériaux.

Annexe

Distance d'extinction et longueurs d'absorption

Table : Distance d'extinction ξ_g et longueurs d'absorptions ξ_g', ξ_0' en nanomètres calculées pour une tension d'accélération E=20 kV [Reimer, 1998]

			g=(111)	**g**=(220)	**g**=(311)
Al	ξ_0'=140 (nm)	ξ_g (nm)	25	50	95
		ξ_g' (nm)	420	600	650
Si	ξ_0'=124 (nm)	ξ_g (nm)	26	33	60
		ξ_g' (nm)	760	1050	1050
Cu	ξ_0'=57 (nm)	ξ_g (nm)	13	14	25
		ξ_g' (nm)	100	106	140
Ge	ξ_0'=64 (nm)	ξ_g (nm)	19	20	33
		ξ_g' (nm)	160	260	-
Au	ξ_0'=32 (nm)	ξ_g (nm)	8	12	15
		ξ_g' (nm)	42	52	56

Résume

La technique Imagerie par Contraste de Canalisation d'Électrons (ECCI) est utilisée dans le Microscope Électronique à Balayage (MEB) pour contraster et caractériser les défauts cristallins, tels que les dislocations. Ces dernières génèrent, en effet, différents contrastes selon l'orientation du faisceau incident par rapport aux plans cristallins {hkl} : dislocation brillante ou noir/ blanc sur un fonde sombre, dislocation noir sur un fond clair…Des modèles théoriques, basés sur la théorie dynamique de la diffraction, ont d'abord été, développés afin de décrire les contrastes produit d'un cristal parfait. Ensuite, ils ont été étendus au cas d'un cristal imparfait. Néanmoins, ces modèles théoriques ne proposent aucun calcul détaillé et aucune expression analytique.
Dans cette thèse, nous développons une approche théorique originale pour modéliser les profils d'intensité BSE dans un cristal contenant des dislocations parallèles à la surface. Dans ce sens, nous proposons une modélisation pour différentes conditions de diffraction. Dans un deuxième temps, pour comprendre les mécanismes de formation des images ECC des dislocations, nous confrontons nos résultats expérimentaux aux profils théoriques obtenus. Finalement, nous présentons une nouvelle approche afin de comprendre les mécanismes de déformation des matériaux au voisinage des interfaces. Cette méthodologie consiste à caractériser les zones d'intérêts par ECCI avant et après avoir introduit localement une déformation plastique par nanoindentation. Ici, nous nous concentrons sur le cas d'un alliage à base de TiAl.

Mots clés : ECCI, MEB, dislocations, modélisation du contraste d'intensité BSE, TiAl, déformation plastique.

Abstract

The Electron Channeling Contrast Imaging (ECCI) is a Scanning Electron Microscope (SEM) technique used to contrast and characterize crystalline defects, such as dislocations. These latter generate, in fact, different contrasts according to the orientation of the incident beam with respect to the crystalline planes {hkl}: bright or black/white on a dark background, black on bright background…Theoretical models, based on dynamical diffraction theory, were first developed to describe the contrasts produced by a perfect crystal. Then, they were extended to the case of an imperfect crystal. Nevertheless, such theoretical models do not propose any detailed calculation and any analytical expression.
In this thesis, we develop an original theoretical approach for modelling BSE intensity profiles in a crystal containing dislocations parallel to the surface. In this sense, we propose modelling for different diffraction conditions. Secondly, in order to understand the mechanisms of the formation of dislocation ECC images, we confront our experimental results with the obtained theoretical profiles. Finally, we propose a new approach for understanding the deformation mechanisms of materials near interfaces. This methodology consists in characterizing the areas of interest by ECCI before and after introducing, locally, the plastic deformation by nanoindentation. Here, we focus on the case of a TiAl bases alloy.

Keywords: ECCI, SEM, dislocations, modelling of BSE intensity contrast, TiAl, plastic deformation.