



HAL
open science

Initiation à la microscopie électronique par transmission : minéralogie, sciences des matériaux

Christian Willaime

► **To cite this version:**

Christian Willaime. Initiation à la microscopie électronique par transmission : minéralogie, sciences des matériaux. Société française de Minéralogie et de Cristallographie, 437 p., 1987. insu-00849927

HAL Id: insu-00849927

<https://insu.hal.science/insu-00849927>

Submitted on 1 Aug 2013

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

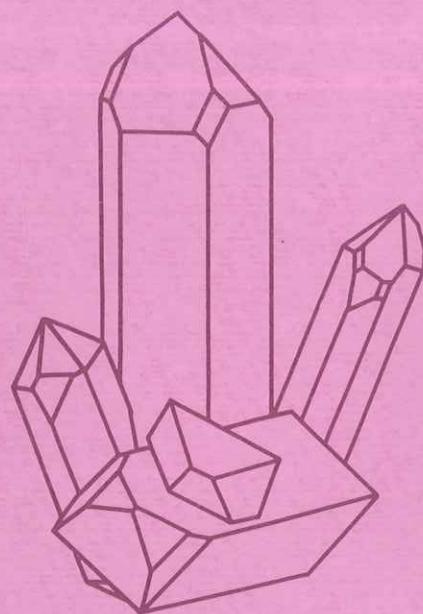
L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**Initiation à la
microscopie
électronique
par transmission**

**minéralogie
sciences des matériaux**

Ouvrage collectif
sous la direction de

C. Willaime



**Société Française de Minéralogie
et de Cristallographie**

INITIATION A LA
MICROSCOPIE ELECTRONIQUE
PAR TRANSMISSION

Minéralogie
Sciences des matériaux

Ouvrage collectif sous la direction de

C. WILLAIME

SOCIETE FRANCAISE DE MINERALOGIE ET CRISTALLOGRAPHIE



Ouvrages publiés par

LA SOCIÉTÉ FRANÇAISE DE MINÉRALOGIE ET DE CRISTALLOGRAPHIE

Les transformations de phase dans les solides minéraux.
2 Volumes, (1981), éd. V. Gabis et M. Lagache.
Epuisés.

Les surfaces des solides minéraux.
2 Volumes, (1982), éd. V. Gabis et M. Lagache.

Thermométrie et barométrie géologiques.
2 Volumes, (1984), éd. M. Lagache.

Méthodes spectroscopiques appliquées aux minéraux.
2 Volumes, (1986), éd. G. Calas.

Initiation à la microscopie électronique par transmission.
Minéralogie, Sciences des matériaux.
1 Volume, (1987), éd. C. Willaime.

C - Société Française de Minéralogie et de Cristallographie
Paris, 1987
I.S.B.N. - 2 - 903589 - 05 - 4

Société Française de Minéralogie et de Cristallographie
Tour 16, 4 Place Jussieu, 75252 PARIS CEDEX 05

AVANT - PROPOS

Afin de comprendre les conditions de formation ou de transformation des minéraux, et de connaître les conditions de contrainte et de température qu'ils ont subies au cours de leur histoire, les minéralogistes font de plus en plus appel à la microscopie électronique par transmission. En effet, cette méthode d'approche permet de décrypter les signes qui, à l'échelle de la maille cristalline, sont révélateurs de l'histoire du minéral.

C'est pourquoi, pour sa cinquième "Ecole d'été", la Société Française de Minéralogie et de Cristallographie a organisé, en collaboration avec la Société Française de Microscopie Electronique une "Ecole d'été de microscopie électronique par transmission, appliquée à l'étude des minéraux et matériaux minéraux" dont l'objectif était de donner une formation théorique et pratique élémentaire à des chercheurs débutant en microscopie électronique, qu'ils appartiennent au monde des sciences de la terre ou à celui des sciences des matériaux. Une quarantaine de stagiaires a pu ainsi bénéficier d'introductions théoriques simples sous forme de cours, de travaux dirigés d'application et de manipulations sur microscopes.

Cet aspect pratique de l'enseignement justifiait le déroulement de l'école sur un campus universitaire: celui du complexe scientifique de Beaulieu à Rennes. Cette manifestation a été réalisée avec la collaboration des laboratoires de l'université de Rennes concernés par la microscopie électronique, et grâce à la participation très active des équipes des Sociétés JEOL et PHILIPS.

L'ensemble des cours présentés lors de cette école d'été, ainsi que le texte des travaux dirigés et les corrigés correspondants font l'objet du présent volume.

Ce livre est donc destiné au microscopiste débutant. Tous les aspects théoriques, sur l'appareillage lui-même, sur la diffraction des électrons par un objet cristallin et sur le contraste des images, sont abordés de manière à permettre à l'utilisateur du microscope de comprendre exactement ce qu'il fait et ce qu'il voit, mais la présentation théorique en a été simplifiée pour le rendre accessible au plus grand nombre. Les travaux dirigés présentent les

problèmes que l'utilisateur devra savoir résoudre lors d'une étude: orientation de l'échantillon dans le porte-objet, indexation des clichés de diffraction, caractérisation des défauts du cristal. Enfin trois chapitres sont consacrés à des exemples d'utilisation de la microscopie électronique dans le domaine de la minéralogie.

Au cours de l'école, les enseignants ont été fortement sollicités: pour présenter leurs cours théoriques et leurs travaux dirigés, mais aussi pour encadrer les séances de manipulations sur microscope, et ceci jusqu'à des heures tardives de la soirée. Ils ont accepté de rédiger leurs cours et de les illustrer pour permettre l'édition de ce volume.

Tous les problèmes d'intendance pendant le déroulement de l'école ont été magistralement réglés par Marie-Anne Ollivier secondée par les étudiants et chercheurs du laboratoire de Minéralogie Physique de Rennes.

La mise au point matérielle de l'édition de ce volume doit beaucoup à Françoise Auffray.

Différents organismes ou firmes ont apporté une contribution matérielle, financière ou humaine à la réalisation de l'école d'été.

C'est donc cette vaste collaboration qui a permis le succès de cette école et la publication de ce volume. Que chacun en soit remercié.

Pour le comité d'organisation

C. Willaime

LISTE DES AUTEURS ET ENSEIGNANTS

- HELENE BIZOUARD, TRACOR France, 25 Rue du Ventoux,
Z.I. Petite Montagne Nord CE 14-47, 91020 EVRY CEDEX.
- MICHELINE BOUDEULLE, Université Claude Bernard Lyon I,
Laboratoire de Minéralogie Cristallographie, 43 Bd du
11 novembre 1918, 69622 VILLEURBANNE CEDEX.
- WILLIAM L. BROWN, Université de Nancy, C.R.P.G., 15 Rue
Notre Dame des Pauvres B.P.20, 54501 VANDOEUVRE-LES-
NANCY CEDEX.
- JEAN-JACQUES COUDERC, Université Paul Sabatier,
Laboratoire Physique des Solides, INSA, Avenue de
Rangueil, 31077 TOULOUSE CEDEX.
- NICOLE ET JEAN-CLAUDE DOUKHAN, Université Lille I,
Laboratoire de Structure et Propriétés de l'Etat Solide,
59655 Villeneuve d'Ascq.
- MONIQUE FAGOT, Université Paul Sabatier, Laboratoire de
Physique des Solides, INSA, Avenue de Rangueil,
31077 TOULOUSE CEDEX.
- MADELEINE GANDAIS, Université Pierre et Marie Curie
Paris VI, Laboratoire de Minéralogie Cristallographie,
4 Place Jussieu (Tour 16), 75252 PARIS CEDEX 05.
- ANNICK GERVAIS, Université Pierre et Marie Curie Paris VI
Laboratoire de Minéralogie Cristallographie, 4 Place
Jussieu (Tour 16), 75252 PARIS CEDEX 05.
- ANNE-MARIE MARIE, Université de Nantes, Laboratoire de
Chimie des Solides, 2 Rue de la Houssinière,
44072 NANTES CEDEX.
- COLETTE LEVADE, Université Paul Sabatier, Laboratoire de
Physique des Solides, INSA, Avenue de Rangueil,
31077 TOULOUSE CEDEX.
- MICHEL RAUTUREAU, Université d'Orléans, Laboratoire de
Cristallographie, Rue de Chartres B.P.6759,
45067 ORLEANS CEDEX 02.
- PIERRE ROLLAND, E.G.G. Instruments, 2 Place de la Vanoise,
Z.I. Pte Montagne Nord C.E. 14-39, 91020 EVRY CEDEX.
- JANY THIBAUT-DESSEAUX, Centre d'Etudes Nucléaires de
Grenoble, 85X, 38041 GRENOBLE CEDEX.
- JEAN-CLAUDE VAN DUYSSEN, E.D.F., Département des Matériaux,
Centre des Renardières, 77250 MORET SUR LOING.
- CHRISTIAN WILLAIME, Université de Rennes I, Laboratoire de
Minéralogie Physique, C.A.E.S.S, 35042 RENNES CEDEX.

ORGANISMES ET SOCIETES AYANT APORTE
UNE CONTRIBUTION A L'ORGANISATION DE L'ECOLE

Société Française de Minéralogie et de Cristallographie

Société Française de Microscopie Electronique

Université de Rennes :
Laboratoire de Minéralogie Physique
Laboratoire de Biologie Cellulaire
Laboratoire de Chimie Minérale

CARL-ZEISS

EG et G Instruments

JEOL

KODAK-Pathé

LKB Instruments

PHILIPS

SCOP-Olympus

TRACOR France

SOMMAIRE

	page
CHAPITRE I - INTERACTIONS ELECTRONS-MATIERE	
par C. WILLAIME.....	1 à 16
I - Aspect corpusculaire. Aspect ondulatoire.....	3
II - Interactions élastiques.....	5
III - Interactions inélastiques.....	7
IV - Dégats d'irradiation.....	13
Références bibliographiques.....	16
CHAPITRE II - DIFFRACTION ELECTRONIQUE	
par M. BOUDEULLE.....	17 à 46
- Introduction.....	19
- Réseau direct.....	20
- Conditions de Laue.....	24
- Loi de Bragg.....	26
- Réseau réciproque.....	29
- Construction d'Ewald.....	31
- Facteur de structure.....	33
- Facteur de forme.....	34
- Lignes de Kikuchi.....	39
- Applications.....	41
Références bibliographiques.....	45
CHAPITRE III - PRESENTATION DU MICROSCOPE ELECTRONIQUE	
par M. GANDAIS.....	47 à 82
Introduction.....	49.
I - Action d'un champ magnétique sur un électron	
en mouvement.....	55
II - Lentille idéale - Optique géométrique.....	58
III - Lentille réelle - Limite de résolution.....	60
- effet de diffraction.....	63
- aberrations géométriques.....	63
- limite de résolution de l'objectif.....	67
- diaphragme d'ouverture.....	67
IV - Profondeur de champ et latitude de mise au point	69
V - Formation et contraste d'image en microscopie	
électronique	71
- diagramme de diffraction.....	71
- diagramme en aire sélectionnée.....	73
- formation d'image.....	75
Références bibliographiques.....	78
CHAPITRE IV - DEFAUTS CRISTALLINS par C. WILLAIME...83 à 98	
Introduction.....	85
I - Défauts de dimension 0 ou défauts ponctuels....	85
II - Défauts de dimension 1 - Dislocations.....	86

	- Mouvement des dislocations - Déformation plastique.....	89
	- Déplacement des noeuds du réseau du à la présence d'une dislocation.....	89
	- Dislocations partielles.....	90
	- Boucles de dislocation.....	91
III	- Défauts de dimension 2 - Défauts plans.....	91
	- Défauts d'empilement.....	92
	- Paroi d'antiphase.....	93
	- Macle par pseudo-symétrie.....	93
	- Macle par mériédrie - Macle par mériédrie réticulaire.....	94
	- Moiré.....	97
	- Sous-joint.....	97
IV	- Défauts de dimension 3.....	97
	Références bibliographiques.....	98

CHAPITRE V - THEORIE CINEMATIQUE - CONTRASTE DES
DEFAUTS par A. GERVAIS.....99 à 124

I	- Introduction.....	101
II	- Hypothèses de la théorie cinématique.....	101
III	- Diffraction des électrons.....	102
IV	- Diffraction par une lame cristalline parfaite	105
V	- Diffraction par une lame cristalline imparfaite	109
VI	- Théorie cinématique du contraste d'une image.	111
VII	- Contraste des défauts.....	112
	- Critère d'extinction - Direction de \vec{R}	113
	- Rotation locale du réseau - Sens de \vec{R}	115
	- Module de \vec{R}	117
VIII	- Validité de la théorie cinématique.....	117
	Appendices.....	118

CHAPITRE VI - THEORIE DYNAMIQUE - CONTRASTE DES
DEFAUTS par A. GERVAIS.....125 à 154

I	- Introduction.....	127
II	- Equations de la théorie dynamique.....	127
III	- Le cristal parfait . Surface de dispersion. Intensités transmises et diffractées. Absorption, traitement phénoménologique.....	129
IV	- Le cristal imparfait.....	133
	- Explication qualitative de l'origine du contraste des défauts en présence d'absorption	
	- Dislocations	138
	- Défauts plans.....	139
V	- Illustrations.....	139
	- Dislocations.....	139
	- Défauts plans.....	146
VI	- Conclusion aux deux chapitres de théorie cinématique et dynamique.....	148
	Appendices.....	150
	Références bibliographiques.....	153

XI

CHAPITRE VII - METHODE DES FAISCEAUX FAIBLES par M. GANDAIS.....155 à 170

Introduction.....	157
I - Contraste des dislocations - Approche qualitative.....	160
II - Contraste des dislocations - Approche quantitative.....	164
III - Procédure expérimentale.....	167
IV - Applications.....	168
Références bibliographiques.....	169

CHAPITRE VIII - APPLICATION DE LA MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A LA DEFORMATION DES MINERAUX par N. et J.C. DOUKHAN...171 à 176

Introduction.....	173
A - Rappels de métallurgie physique.....	173
- Défauts ponctuels.....	173
- Mouvement des dislocations.....	175
Mécanisme de glissement.....	176
Mécanisme de montée.....	178
B - Etudes de cas.....	179
- Systèmes de glissement dans les silicates.....	179
L'olivine.....	179
Le disthène et les polymorphes d' Al_2SiO_5	180
Le quartz.....	183
- Influence de la structure de coeur.....	184
Les oxydes mixtes $A^{2+}B_2^{3+}O_4$ de structure spinelle.....	184
Le spodumène $LiAlSi_2O_6$ monoclinique.....	188
- Divers.....	192
Conclusion.....	194
Références bibliographiques.....	195

CHAPITRE IX - INTERPRETATION DES MICROSTRUCTURES D'EXSOLUTION DES FELDSPATHS TERNAIRES. UTILISATION DE LA MICROSCOPIE ELECTRONIQUE PAR TRANSMISSION COMBINEE AVEC DES DONNEES DE TERRAIN par W. BROWN.....197 à 212

I - Introduction.....	199
II - Rappels sur les feldspaths.....	199
III - Rappels des propriétés générales des exsolutions.....	202
IV - Description et interprétation des microstructures.....	205
- Effet de la vitesse de refroidissement.....	205
- Effet de la composition.....	207
V - Conclusion.....	208
Références bibliographiques.....	210

XII

CHAPITRE X - MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A HAUTE RESOLUTION par J. THIBAUT-DESSEAUX..... 213 à 250

I - Formation de l'image en MEHR.....	215
- Interaction électrons-matière.....	215
- Formation de l'image.....	217
Microscope parfait.....	217
Fonction de transfert du microscope réel..	217
- Objet de phase faible.....	221
- Résolution du microscope.....	223
II - Résolution d'une structure simple Si [011].....	225
III - Résolution de structure - Cas de Mg ₂ Si ₂ O ₆	227
IV - Caractérisation des défauts à l'échelle atomique.....	235
- Défauts linéaires.....	235
- Défauts plans.....	235
- Exemple d'étude de mécanismes de déformation.....	237
Conclusion.....	238
Rappels.....	249
Références bibliographiques.....	250

CHAPITRE XI - EXEMPLES D'APPLICATIONS DE LA MICROSCOPIE ELECTRONIQUE EN HAUTE RESOLUTION par M. RAUTUREAU..... 251 à 272

- Introduction.....	253
- Haute résolution ou recherche d'une bonne résolution.....	253
- Le microscope.....	255
- Illustration de la formation de l'image dans plusieurs directions.....	256
- Influence des dimensions de l'objet.....	257
- Influence d'une modulation de la structure.....	261
- Etude de minéraux à structure tubulaire ou sphérique.....	262
- Irrégularité de structure par substitutions d'ions.....	262
- Evolution structurale.....	263
- Exploitation des clichés de haute résolution....	268
Références bibliographiques.....	270

CHAPITRE XII - LE MICROSCOPE ELECTRONIQUE A BALAYAGE EN TRANSMISSION - PRINCIPE ET APPLICATIONS par J.C.VAN DUYSSEN.....273 à 296

I - Introduction.....	275
II - Principe du STEM : Formation d'une image à partir d'électrons transmis ou diffractés....	276
- La source électronique.....	277
- Système d'éclairage.....	277
- Trajet des électrons dans la colonne d'un STEM.....	278
- Paramètres expérimentaux.....	280

XIII

III - Comparaison entre les images obtenues en mode TEM et STEM	
- Contraste des défauts cristallins.....	281
- Principaux avantages du STEM.....	285
- Principal inconvénient du STEM.....	285
IV - STEM: Instrument d'analyse.....	288
- La microanalyse X.....	288
- Le contraste de numéro atomique.....	293
- La microdiffraction.....	295
V - Conclusion.....	296
Références bibliographiques.....	296

CHAPITRE XIII - ANALYSE X PAR SPECTROMETRIE EN DISPERSION D'ENERGIE par P. ROLLAND et C. WILLAIME 297 à 312

I - Emission de rayons X.....	299
II - Détection des rayons X par diode Si(Li).....	300
- Le détecteur diode Si(Li).....	301
- Artéfacts liés au système de détection.....	303
III - Analyse de l'échantillon.....	305
- Résolution spatiale.....	305
- Analyse qualitative.....	306
- Analyse quantitative.....	307
IV - Artéfacts.....	310
Conclusion.....	310
Références bibliographiques.....	311

CHAPITRE XIV - PREPARATION DES ECHANTILLONS MINERALOGIQUES par M. RAUTUREAU, M. FAGOT et C. WILLAIME.....313 à 334

Introduction.....	315
I - Fabrication de la membrane support.....	316
- Support de formvar et de collodion.....	316
- Confection de la membrane (formvar et collodion).....	317
- Confection de la membrane de carbone.....	318
- Confection de grilles à trous.....	319
II - Fabrication d'un disque.....	320
III - Broyage.....	322
IV - Clivage.....	323
V - Bombardement ionique.....	323
VI - Polissage chimique.....	325
VII - Amincissement électrolytique.....	325
VIII - Ultramicrotomie.....	326
- Minéral indépendant de toute autre matière.....	326
- Objet microdivisé associé à un matériau de remplissage de la porosité.....	328
IX - Carbonation des échantillons non conducteurs.....	330
X - Fabrication des objets-tests.....	330
- Test de résolution - échantillon de graphite.....	330
- Test de résolution - couche d'or.....	331
- Test de rotation de l'image - échantillon	

XIV

de MoO ₃	332
- Test de longueur de caméra (ou de la constante de diffraction)- échantillon d'or ou d'aluminium.....	332
Références bibliographiques.....	333

TRAVAUX DIRIGES

CHAPITRE XV - LA PROJECTION STEREOGRAPHIQUE

par *N. DOUKHAN*..... 335 à 343

- 1 - Méthode de projection
- 2 - Réseau de Wulf
- 3 - Exercices
- 4 - Projection de références
Annexes

CHAPITRE XVI - UTILISATION DE LA PLATINE GONIOMETRIQUE

par *N. DOUKHAN*..... 345 à 352

- 1 - Porte-objet "tilt-rotation"
- 2 - Porte-objet "double tilt"

CHAPITRE XVII - INDEXATION DE DIAGRAMME DE DIFFRACTION

par *M. GANDAIS*..... 353 à 360

- 1 - Principe
- 2 - Méthode
- 3 - Application à la sanidine

CHAPITRE XVIII - DETERMINATION DE L'ORIENTATION D'UNE

DIRECTION par *A. GERVAIS*..... 361 à 372

- 1 - Principe de la détermination
- 2 - Exercices:
 - Echantillon cubique (Silicium)
 - Olivine

CHAPITRE XIX - MACLE DANS LA BLENDE ZnS (MACLE PAR

MÉRIEDRIE RETICULAIRE) par *J.J. COUDERC*,
M. FAGOT et *C. LEVADE*..... 373 à 386

- 1 - Rappels
 - Éléments de maclage dans la blende
 - Réseau réciproque de l'ensemble matrice-macle
- 2 - Énoncé de l'exercice
- 3 - Corrigé

CHAPITRE XX - MACLES DANS LE MICROCLINE par
C. WILLAIME..... 387 à 396

- 1 - Exercices
- 2 - Corrigé

CHAPITRE XXI - CARACTERISATION DES VECTEURS DE BURGERS DE
DISLOCATIONS DANS UN MATERIAU DE STRUCTURE
SPINELLE par N. DOUKHAN 397 à 408

- Exemple 1 : Jonction de dislocations
- Exemple 2 : Analyse d'un sous-joint

CHAPITRE XXII - DEFAUTS D'EMPILEMENT par M. FAGOT,
C. LEVADE et J.J. COUDERC..... 409 à 426

- 1 - Rappels
 - Généralités
 - Défauts d'empilement dans la structure CFC
- 2 - Exercices : caractérisation de vecteurs déplacement
R de défauts d'empilement
 - dans une structure CFC : Fe₃Ga
 - dans la pyrite
- 3 - Corrigés

CHAPITRE XXIII - HAUTE RESOLUTION. MESURE DE LA
FOCALISATION D'UNE IMAGE par J. THIBAUT-
DESSEAUX et M. RAUTUREAU..... 427 à 438

- Rappels
 - 1- Objet de phase faible
 - 2- Influence du microscope : fonction de transfert
 - 3- Diffractogramme optique
- Exercices
 - 4- Fonction de transfert
 - 5- Mesure de la focalisation
 - Etalonnage des diffractogrammes
 - Détermination de la focalisation
- Corrigé

CHAPITRE I

INTERACTION ELECTRONS MATIERE

par Christian WILLAIME

INTERACTIONS ELECTRONS MATIERE

par C. Willaime

Aspect corpusculaire. Aspect ondulatoire.

Dans le canon du microscope, les électrons sont accélérés par l'application d'une tension E (100 à 200 kV pour les microscopes les plus courants) qui leur procure une vitesse v .

L'énergie d'un électron au repos est $\mathcal{E}_0 = m_0 c^2$ (1)

(m_0 = masse de l'électron au repos, et c = vitesse de la lumière); l'énergie d'un électron en mouvement est :

$$\mathcal{E} = \mathcal{E}_0 + \mathcal{E}_c \quad (2)$$

où \mathcal{E}_c est l'énergie cinétique de l'électron due à la tension d'accélération E .

$$\mathcal{E}_c = e E \quad (3)$$

La masse de l'électron en mouvement est :

$$m = m_0 / \sqrt{1 - v^2/c^2} \quad (4)$$

On peut déduire des relations (1) à (4) la vitesse de l'électron en fonction de la tension d'accélération :

$$v = c \sqrt{2 e E m_0 c^2 + e^2 E^2} / (m_0 c^2 + e E) \quad (5)$$

Selon la théorie de De Broglie, à une particule en mouvement est associée une onde de longueur d'onde

$$\lambda = h / m v \quad (\text{où } h \text{ est la constante de Planck})$$

En utilisant les relations (4) et (5), on tire :

$$\lambda = h / \sqrt{2m_0 e E (1 + e E / 2m_0 c^2)} \quad (6)$$

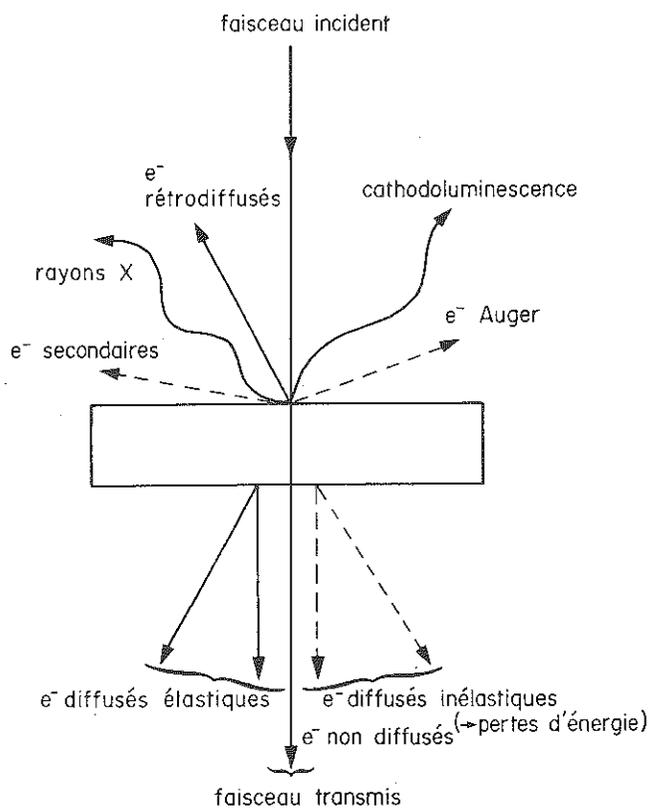


Fig.1 Représentation schématique des interactions des électrons avec l'échantillon.

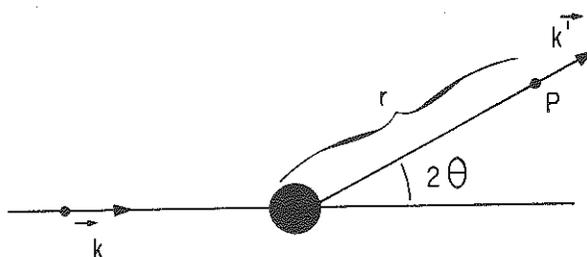


Fig.2 Diffusion d'une onde électronique par un atome.
 \vec{k} : vecteur d'onde incident
 \vec{k}' : vecteur d'onde diffusé dans la direction 2θ

Voici quelques valeurs de la vitesse des électrons par rapport à celle de la lumière, et de leur longueur d'onde associée, pour quelques tensions d'accélération usuelles:

E (kV)	v / c	λ (Å)	λ (nm)
100	0,548	0,037	0,0037
120	0,587	0,0335	0,00335
200	0,695	0,0251	0,00251
400	0,828	0,0164	0,00164

Les énergies des électrons ainsi accélérés (de l'ordre de 100 keV) laissent prévoir des interactions avec les couches électroniques et les noyaux de la matière irradiée (aspect corpusculaire). Les longueurs d'onde (d'une fraction d'angström) permettent des phénomènes d'interférence liés à la périodicité du réseau cristallin (aspect ondulatoire). Les nombreuses interactions possibles entre les électrons et la matière sont schématisées sur la figure 1.

Il est commode de classer ces interactions en interactions élastiques, si l'électron a la même énergie avant et après l'interaction, c'est à dire la même vitesse et donc la même longueur d'onde, et en interactions inélastiques, si l'électron perd une partie de son énergie cinétique au cours de l'interaction.

Interactions élastiques.

Diffusion par un atome

Une onde électronique plane peut être définie par son vecteur d'onde \vec{k} , perpendiculaire au plan d'onde ($|k| = 1/\lambda$). L'onde électronique incidente est affectée par le potentiel de la matière traversée, c'est à dire par sa densité de charges (noyaux et électrons); il y a diffusion de l'onde incidente.

L'onde diffusée par un atome est une onde sphérique dont l'amplitude peut se mettre sous la forme:

$$f(\theta) \exp(2\pi i k \cdot r) / r$$

où r est la distance à l'atome diffusant et 2θ l'angle entre la direction de l'onde incidente et celle de l'onde diffusée (Figure 2). $f(\theta)$ est le facteur de diffusion atomique et mesure l'amplitude de la diffusion par un atome.

$$f(\theta) = (m_0 e^2 / 2h^2) (\lambda / \sin \theta)^2 (Z - f_x)$$

Le terme Z (numéro atomique) correspond à la diffusion par le noyau alors que le terme f_x exprime la diffusion par le nuage électronique de l'atome. Ce facteur de diffusion a les dimensions d'une longueur. Il est à noter que le facteur de diffusion diminue rapidement quand l'angle θ augmente.

L'efficacité avec laquelle un atome diffuse une onde électronique peut également s'exprimer par une "section efficace" $\sigma(\theta)$ qui est le rapport entre le nombre d'électrons traversant par seconde un angle solide unité dans une direction 2θ par rapport à la direction incidente, et le flux d'électrons incidents. On a la relation:

$$f(\theta)^2 = \sigma(\theta)$$

Le facteur de diffusion atomique (ou la section efficace) pour les électrons est très supérieur au facteur de diffusion atomique pour les rayons X (~ 4 ordres de grandeur). Cette valeur importante du facteur de diffusion atomique pour les électrons a deux conséquences: (1)-la proportion d'électrons traversant l'échantillon sans interaction est faible; (2)-l'intensité diffusée importante permet d'obtenir des clichés avec des temps de pose relativement courts.

Electrons transmis et électrons diffractés

Dans un cristal (objet périodique), les ondes électroniques diffusées élastiquement interfèrent et produisent des intensités importantes dans des directions déterminées (diffraction de Bragg). Parmi les électrons élastiques ayant traversé l'échantillon, on distingue un faisceau d'électrons transmis, parallèle au faisceau

incident, et des faisceaux d'électrons diffractés formant un angle $2\theta_B$ avec le faisceau incident (θ_B = angle de Bragg).

Les informations contenues dans ces faisceaux transmis et diffractés justifient le développement de la microscopie électronique par transmission et des théories qui lui sont associées. La mise en évidence simultanée de tous les faisceaux (diagramme de diffraction) donne des informations sur la périodicité du cristal. La formation d'une image avec plusieurs faisceaux donne des informations sur la structure du cristal. La formation d'une image avec le faisceau transmis ou avec un faisceau diffracté permet de caractériser les défauts du cristal.

Electrons rétrodiffusés

On appelle "rétrodiffusés" les électrons élastiques qui ressortent par la face d'entrée du cristal. Dans le microscope électronique, un détecteur permet de mesurer l'intensité du faisceau d'électrons rétrodiffusés dans un angle solide limité. Cette intensité dépend donc de l'orientation du cristal (diffraction de Bragg), mais aussi de la nature des atomes constituant le cristal (valeur du facteur de diffusion atomique). Un système de balayage adapté sur le microscope permet d'effectuer des images avec les électrons rétrodiffusés.

Interactions inélastiques

Les électrons peuvent interagir en cédant une partie de leur énergie, soit avec le noyau des atomes constituant la matière, soit avec les couches électroniques internes ayant des niveaux d'énergie discrets, soit avec les électrons externes couvrant de larges bandes d'énergie. (Figure 3). Ces interactions donnent lieu à des émissions d'électrons ou de rayonnement électromagnétique.

Electrons secondaires

Ce sont des électrons excités au-dessus du niveau de Fermi. Leur énergie est comprise entre 0 et 50 eV. A cause

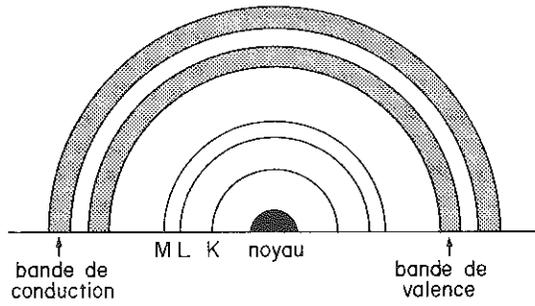


Fig.3 Représentation schématique des couches électroniques entourant le noyau d'un atome.

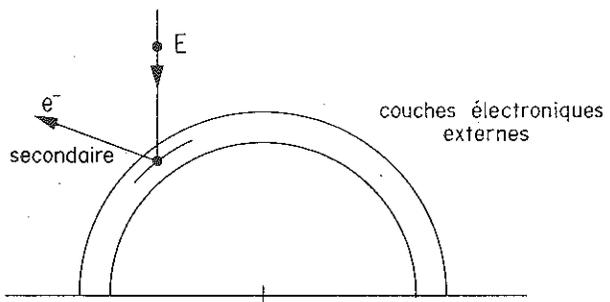


Fig.4 Emission d'électrons secondaires.

de leur faible énergie, leur libre parcours est de quelques nm : les informations qu'ils transmettent correspondent à une zone superficielle de quelques couches atomiques. Ils peuvent être produits, soit par des électrons incidents, soit par des électrons rétrodiffusés par une zone interne du cristal: ils sont donc émis par une zone superficielle du cristal d'une largeur plus grande que celle du faisceau incident (Figure 4).

Le nombre d'électrons secondaires produits dépend de l'angle du faisceau incident avec la surface de l'échantillon. Les détecteurs d'électrons secondaires captant les électrons sortant dans un angle très limité, permettent de fournir une image de la topographie du cristal.

Rayonnement X

Les électrons incidents peuvent interagir avec le noyau atomique : l'attraction du noyau entraîne une décélération de l'électron, et donc une perte d'énergie variant de zéro à l'énergie cinétique initiale de l'électron incident. Cette énergie perdue est réémise sous la forme d'un rayonnement X continu (ou rayonnement blanc) dont la longueur d'onde minimale λ_{\min} (ou l'énergie maximale $h\nu_{\max}$) correspond à l'énergie cinétique de l'électron incident:

$$h\nu_{\max} = hc / \lambda_{\min} = \mathcal{E}_c$$

Les électrons peuvent également interagir avec les électrons des couches internes en éjectant un électron d'une telle couche. La lacune ainsi formée est immédiatement remplie par un électron d'une couche supérieure. La différence d'énergie de l'électron changeant ainsi de couche est transformée en un photon X d'énergie (et donc de longueur d'onde) caractéristique de l'atome excité. (Figure 5).

La caractérisation du rayonnement X émis, en énergie (ou en longueur d'onde) et en intensité, permet donc une analyse qualitative et quantitative du matériau irradié.

Electrons Auger

Lorsqu'un atome a été ionisé par éjection d'un électron d'une couche interne, l'énergie libérée par un électron d'une couche supérieure qui vient combler la lacune peut être transmise à un électron d'une couche superficielle et lui permettre de s'échapper. Cet électron, ou électron Auger a une énergie faible, et ne peut être détecté que s'il provient d'une profondeur inférieure à quelques dixièmes de nm (une couche atomique). (Figure 6).

La spectrométrie Auger nécessite des surfaces très propres et un vide extrêmement poussé; elle n'est pas réalisée sur les microscopes à transmission.

Cathodoluminescence

Les électrons incidents peuvent interagir avec les électrons des couches externes en éjectant ceux-ci. La lacune électronique d'un atome ainsi excité est comblée par un électron de la bande de conduction. La perte d'énergie ainsi subie par l'électron peut être transformée en radiation lumineuse: il y a cathodoluminescence. (Figure 7). La longueur d'onde émise par cathodoluminescence correspond à la différence d'énergie entre couches externes de l'atome, donc est très dépendante de l'interaction de cet atome avec ses voisins .

Pertes d'énergie des électrons

Le déplacement de leur couche électronique d'électrons externes (cathodoluminescence), ou d'électrons profonds (production de rayons X), résulte de l'impact d'électrons incidents, qui, au cours de cette interaction perdent une partie de leur énergie. Dans ce dernier cas, l'énergie perdue par les électrons est caractéristique de l'élément atomique qui a été ionisé. La spectrométrie de pertes d'énergie des électrons est donc un moyen analytique. (Figure 8).

La mesure des pertes d'énergie peut être réalisée sur un microscope électronique par l'intermédiaire d'un

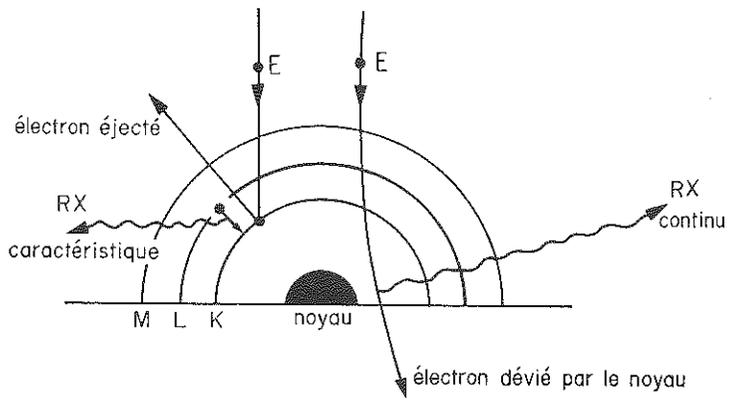


Fig.5 Emission de rayons X.

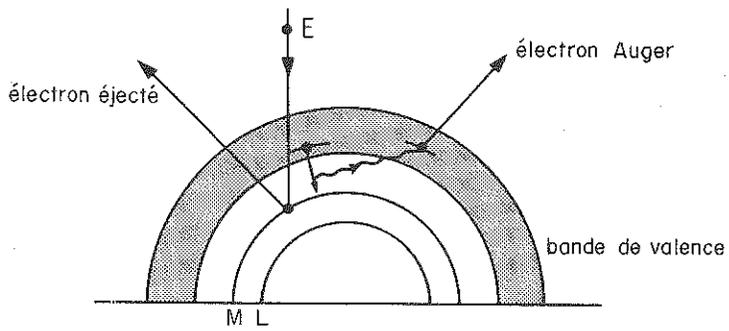


Fig.6 Emission d'électrons Auger.

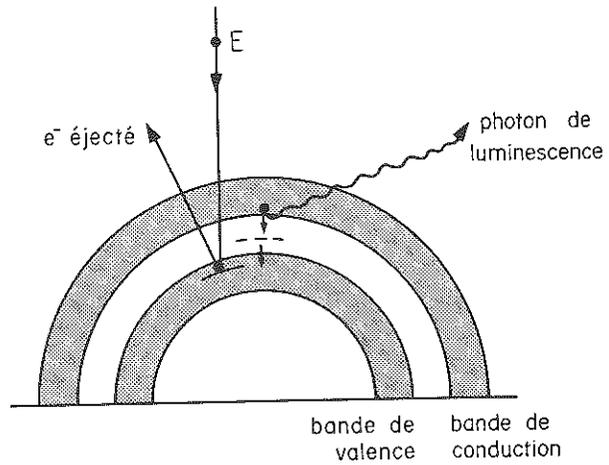


Fig.7 Cathodoluminescence.

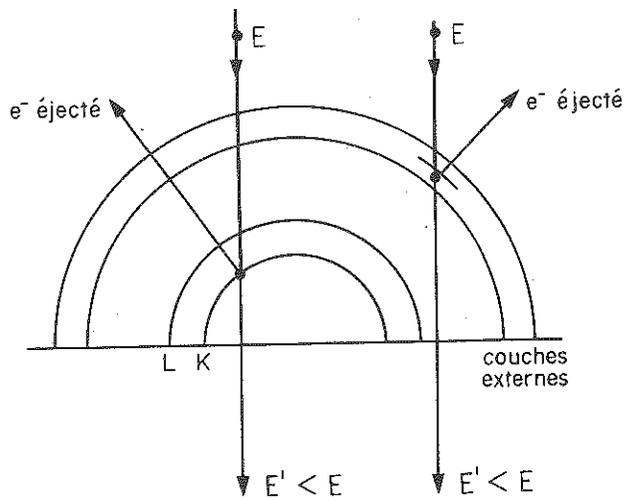


Fig.8 Pertes d'énergie: les électrons ayant eu une interaction inélastique avec l'atome ont perdu une partie de leur énergie initiale.

spectromètre qui dévie les électrons transmis d'un angle différent selon leur vitesse.

La probabilité pour qu'un électron incident ait une interaction inélastique avec l'échantillon dépend de son énergie initiale, des éléments atomiques constituant l'échantillon, et de l'épaisseur de celui-ci. Un même électron peut subir plusieurs interactions inélastiques au cours de son passage à travers la matière.

Dégats d'irradiation

Dans la revue des interactions des électrons avec la matière ont été décrits les rayonnements électroniques ou électromagnétiques produits par l'échantillon sous l'impact du faisceau électronique incident. Celui-ci peut également modifier l'échantillon qu'il irradie. Deux effets principaux sont produits: le déplacement d'atomes constituant la structure, et l'échauffement de l'échantillon.

Le déplacement des atomes peut être le résultat, soit d'une action directe des électrons incidents sur le noyau (choc de deux particules), soit d'une interaction des électrons incidents avec les électrons entourant le noyau.

La possibilité pour un atome d'être déplacé dépend de la nature de ses liaisons, et de sa coordinence. Lors du choc d'un électron contre un atome, celui-ci ne peut être déplacé que si l'énergie cinétique qui lui est ainsi transférée est nettement supérieure à son énergie de liaison. Avec des électrons accélérés par des tensions de 100 à 200 kV, seuls les atomes plus légers que Al peuvent ainsi être déplacés.

L'interaction entre électrons incidents et électrons de l'atome peut produire un déplacement atomique (appelé alors phénomène de radiolyse), selon la nature des liaisons de la structure. Parmi les minéraux, la radiolyse affecte les halogénures, les hydroxydes, les sulfures, les silicates. La présence d'eau dans la structure accentue le phénomène.

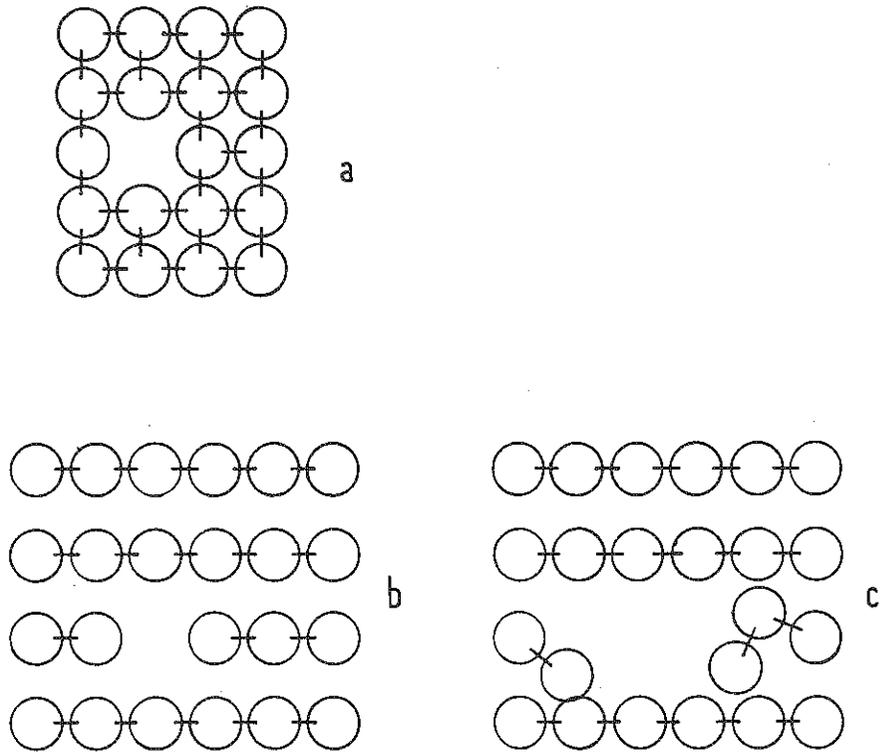


Fig.9 Dégats d'irradiation: l'irradiation peut provoquer la formation de lacune. Si la coordinence des atomes est élevée, la structure conserve sa rigidité (a). Si la coordinence est faible, la structure peut être désorganisée (b-c).

Quel que soit le mécanisme mis en jeu, un atome déplacé se replace dans la structure, plus ou moins facilement selon la compacité de celle-ci, dans une position interstitielle, laissant une lacune dans son site initial. L'ensemble interstitiel / lacune constitue une paire de Frenkel. Si l'irradiation est intense, la densité de paires produites devient importante. Il peut alors y avoir, soit une restauration de la structure initiale (les atomes déplacés viennent occuper les lacunes précédemment produites), soit ségrégation des lacunes ou des interstitiels. Il y a ainsi production de boucles de lacunes (ou d'interstitiels), ou formation de bulles gazeuses (par exemple des bulles de chlore dans un chlorure alcalin).

Dans les structures très compactes (coordination des atomes élevée), les atomes voisins d'une lacune restent dans leur position initiale, car ils y sont maintenus par leurs autres très nombreux voisins. Dans les structures moins compactes, la formation d'une lacune procure aux atomes voisins un certain degré de liberté. Il peut alors se produire un réarrangement des atomes entraînant des transformations de phase. Ces réarrangements atomiques peuvent provoquer la vitrification de l'échantillon (Fig. 9).

Une irradiation importante de l'échantillon (forte intensité du faisceau, ou longue durée d'irradiation) conduit donc, en particulier pour les échantillons minéraux, d'une part à la formation d'amas de défauts qui ponctuent l'image observée, et d'autre part à une diminution du contraste de l'image, provoquée par la vitrification progressive de l'échantillon irradié.

L'énergie nécessaire au déplacement des atomes est supérieure à l'excès d'énergie emmagasiné par un atome déplacé. La différence entre ces deux valeurs d'énergie est transmise à l'échantillon sous forme de chaleur. La température de l'échantillon augmente donc sous l'impact du faisceau, et ceci d'autant plus que le matériau est moins conducteur, et que le contact thermique est moins efficace entre l'échantillon et la masse du porte-objet.

Références bibliographiques

Chandler, J.A.-(1980)- Methods of analysis in the electron microscope. Proceedings Royal Microsc. Soc. 15, 117-122.

Hirsch, P.B., Howie, A., Nicholson, R.B., Pashley, D.W., Whelan, M.J.-(1965)- Electron microscopy of thin crystals. London Butterworths.

Hobbs, L. W.-(1984)- Radiation effects in analysis by TEM. in Quantitative electron microscopy. Nato ASI. Ed. Chapman, J.N. et Craven, A.J. SUSSP Publications. Dept. of physics. Univ. of Edinburgh.

CHAPITRE II

DIFFRACTION ELECTRONIQUE

par Micheline BOUDEULLE

DIFFRACTION ÉLECTRONIQUE

Micheline BOUDEULLE

INTRODUCTION.

Le but de ce chapitre est de donner des bases suffisantes pour la compréhension de la formation des diagrammes de diffraction et leur interprétation dans le cadre de l'approximation cinématique. Le lecteur, pour une présentation plus complète des théories correspondantes, est invité à se référer aux ouvrages cités.

Un diagramme de diffraction se forme dans le plan focal image de l'objectif du microscope, en même temps que l'image associée apparaît sur l'écran (Fig. 1). Il est possible par un réglage approprié des lentilles suivant l'objectif de visualiser également ce diagramme : les relations entre la structure et la morphologie de l'objet étudié sont ainsi mises en évidence.

Si le matériau ne possède pas de structure atomique périodique (amorphe), l'information brute obtenue est pauvre. Ce n'est heureusement pas le cas des minéraux : ils sont en général cristallisés.

L'analyse du ou des diagrammes de diffraction permet d'abord d'identifier, à partir des fichiers existants, le minéral. Dans le cas, rare, où il est encore inconnu, il est possible de déterminer le système cristallin et les paramètres du réseau. Des données chimiques, si le microscope est équipé d'un détecteur RX, complètent l'information.

Pour un composé connu, le diagramme est employé à la détermination de :

- . l'orientation du cristal, ou des cristaux et de leurs interrelations,
- . l'orientation des précipités, inclusions, macles dans la matrice,

et, à l'étude cristallographique des défauts de réseau, linéaires, plans, de volume... dont l'image est sans cesse corrélée au diagramme.

La réalisation et l'interprétation des diagrammes de diffraction sont donc une part essentielle du travail du microscopiste !

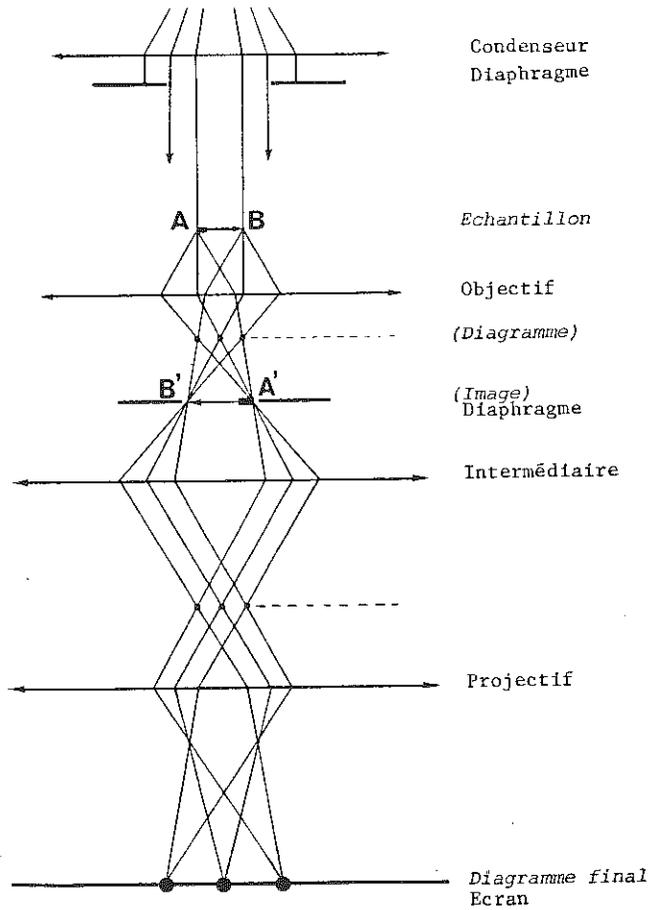


Fig. 1. Microscope électronique :
Formation du diagramme de diffraction.

RÉSEAU DIRECT.

Le phénomène de diffraction est lié à la nature réticulaire des cristaux.

Quelle que soit sa morphologie, un cristal à l'échelle atomique est homogène et périodique : il est formé par la juxtaposition de petits parallélépipèdes identiques, appelés maille unitaire, caractéristiques de l'espèce (ou du polymorphe) (Fig. 2).

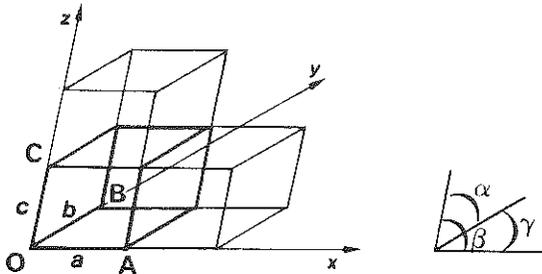


Fig. 2. Réseau périodique.

La maille élémentaire est bâtie sur 3 vecteurs unitaires :

$$\vec{a} \quad \vec{b} \quad \vec{c}$$

(faisant entre eux les angles α , β , γ), parallèlement auxquels elle se répète par translation pour former le réseau direct.

Tout atome du cristal peut être pris comme origine du réseau : cependant, afin de mettre en évidence les relations de symétrie au sein du cristal, une origine est donnée pour chaque structure, à partir de laquelle sont calculées les coordonnées des atomes dans la maille, qui est ainsi parfaitement définie.

Chacun des sommets de maille (A, B, C) est un noeud du réseau ; une droite passant par 2 noeuds, une rangée, est décrite par le vecteur \vec{n} , tel que :

$$\vec{n} = u\vec{a} + v\vec{b} + w\vec{c} \quad u, v, w \text{ sont entiers, } > 0 \text{ ou } < 0$$

Elle est notée $\langle uvw \rangle$ ou $[uvw]$.

Un plan réticulaire passe par au moins trois noeuds non alignés du réseau. Dans une maille donnée (Fig. 3), un plan réticulaire coupe chacun des trois axes \vec{a} , \vec{b} , \vec{c} à une distance de l'origine égale à respectivement a/h , b/k , c/l où h , k , l entiers (> 0 ou < 0) sont dits indices de MILLER et caractéristiques du plan, noté de ce fait (hkl) .

Il existe, dans le réseau, une infinité de plans, qui peuvent être groupés en famille de plans parallèles et équidistants (Fig. 3).

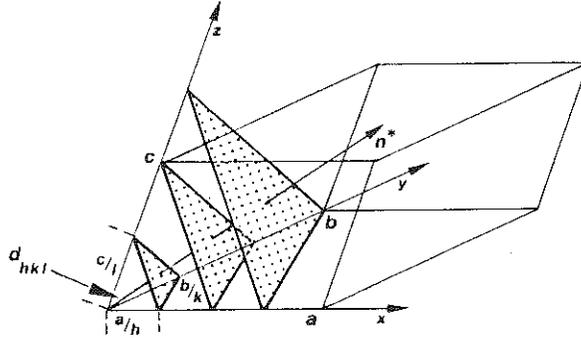


Fig. 3. Famille de plans réticulaires (hkl) et équidistance d_{hkl} .

La distance entre le plan envisagé et celui qui passe par l'origine de la maille, mesurée sur la normale \vec{n}^* aux plans est fonction

- . des paramètres $a, b, c, \alpha, \beta, \gamma$ de la maille
- . des indices (hkl).

Cette caractéristique de la famille (hkl), appelée équidistance, est notée d_{hkl} . La liste des équidistances, qui peut être déduite des diagrammes de diffraction, permet de caractériser une espèce.

Lorsque le faisceau d'électrons traverse la préparation, une partie des électrons est déviée (ou "diffractée") du faisceau principal dans des directions et sous des angles variés.

Si le specimen est polycristallin, des anneaux lumineux concentriques au faisceau direct transmis sont observés (Fig. 4). Un échantillon monocristallin, par contre, est représenté par un arrangement régulier de spots (Fig. 5) qui suggère immédiatement une relation logique entre cette géométrie et la symétrie du cristal.

Ces maxima de diffraction discrets indiquent que seules quelques familles de plans, sous la bonne orientation, donnent des faisceaux diffractés d'intensité observable.

Cette géométrie peut être appréhendée à travers les conditions de LAUE et la loi de BRAGG.

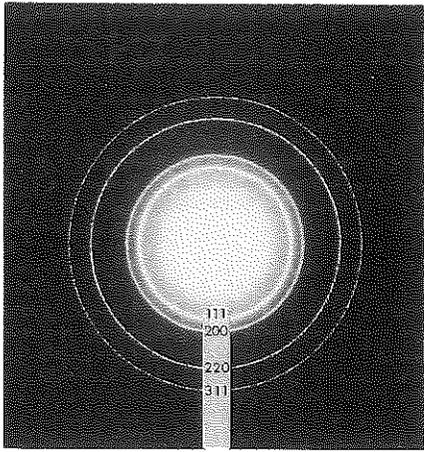


Fig. 4. Matériau polycristallin :
couche évaporée d'or.

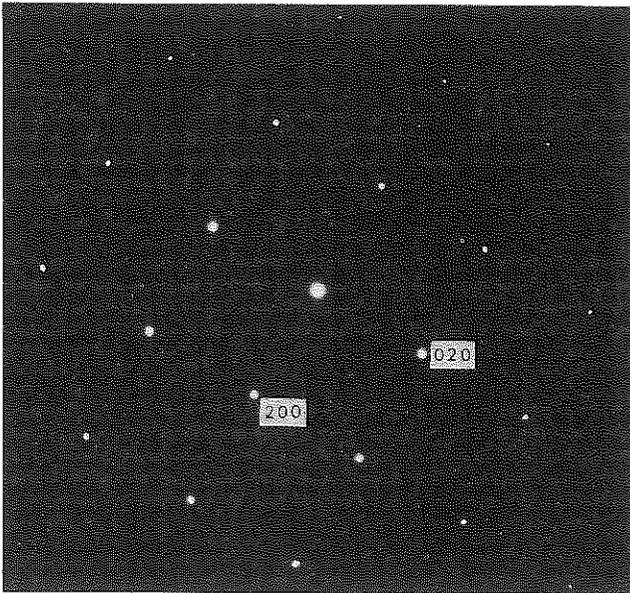


Fig. 5. Matériau monocristallin : cristal
d'or (plan (001)).

CONDITIONS DE LAUE.

Considérons la diffraction des électrons par un réseau cristallin : les noeuds du réseau sont des centres diffusants.

Un faisceau d'électrons parallèle, monocinétique (longueur d'onde λ) tombe sur une rangée de périodicité a (Fig. 6). L'interaction est élastique.

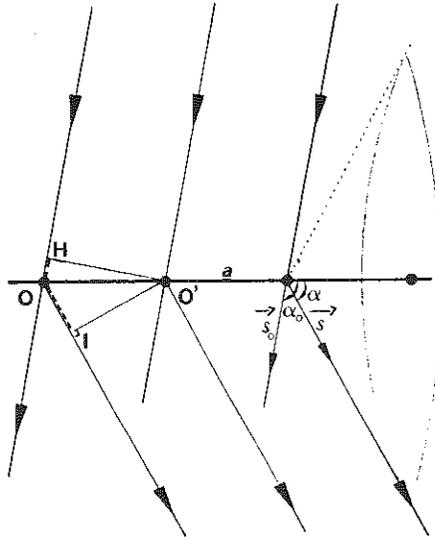


Fig. 6. Conditions de Laue : Réseau à une dimension.

L'intensité diffractée est calculée à une distance suffisamment grande de la rangée pour que les rayons issus de chaque centre diffractant soient considérés comme parallèles : l'intensité diffractée ne sera notable que dans le cas où les ondes diffusées par chaque noeud seront en phase. C'est-à-dire que les différences de marche δ des différents rayons seront des multiples entiers de la longueur d'onde.

La direction de l'onde incidente est donnée par le vecteur \vec{s}_0 et celle de l'onde diffractée par \vec{s} :

$$\begin{aligned} \delta &= HO + OI \\ \delta &= a \cos \alpha - a \cos \alpha_0 = h\lambda \\ \text{ou} \quad \delta &= \vec{a} \cdot \vec{s} - \vec{a} \cdot \vec{s}_0 && h \text{ entier} \\ \vec{a}(\vec{s} - \vec{s}_0) &= h\lambda \end{aligned}$$

Pour une direction \vec{s}_0 et une valeur de h données, α est connu : les rayons diffractés sont les génératrices d'un cône, dont l'axe est la rangée (Fig. 6).

Soit maintenant un réseau bidimensionnel, tel que la distance entre 2 noeuds, \vec{r} , soit :

$$\vec{r} = u_1 \vec{a} + v_1 \vec{b}$$

La différence de marche est :

$$\vec{r} \cdot (\vec{s} - \vec{s}_0)$$

c'est à dire :

$$(u_1 \vec{a} + v_1 \vec{b}) \cdot (\vec{s} - \vec{s}_0)$$

ou

$$u_1 \vec{a} \cdot (\vec{s} - \vec{s}_0) + v_1 \vec{b} \cdot (\vec{s} - \vec{s}_0)$$

Il vient ainsi par analogie avec le cas précédent deux conditions de diffraction à satisfaire simultanément :

$$\begin{aligned} \vec{a} \cdot (\vec{s} - \vec{s}_0) &= h\lambda & k \text{ entier} \\ \vec{b} \cdot (\vec{s} - \vec{s}_0) &= k\lambda \end{aligned}$$

Et dans le cas d'un réseau tridimensionnel, avec $\vec{r} = u_1 \vec{a} + v_1 \vec{b} + w_1 \vec{c}$:

$$\begin{aligned} \vec{a} \cdot (\vec{s} - \vec{s}_0) &= h\lambda \\ \vec{b} \cdot (\vec{s} - \vec{s}_0) &= k\lambda \\ \vec{c} \cdot (\vec{s} - \vec{s}_0) &= l\lambda \end{aligned}$$

où :

$$\frac{\vec{r} \cdot (\vec{s} - \vec{s}_0)}{\lambda} = u_1 h + v_1 k + w_1 l$$

Ces trois "conditions de LAUE" n'ont dans le cas général pas de solution : le cristal doit avoir une position spéciale par rapport au faisceau incident pour émettre des rayons diffractés.

Pour des valeurs données de h , k , l , il est possible de trouver u_1 , v_1 , w_1 tels que :

$$u_1 h + v_1 k + w_1 l = 0$$

Les noeuds du réseau envisagés se trouvent alors dans un plan, avec lequel le faisceau incident et le faisceau diffracté font des angles égaux, suivant le schéma de la réflexion optique.

Cette description correspond à la loi de BRAGG.

LOI DE BRAGG.

Un faisceau d'électrons parallèle, monocinétique, fait avec une famille de plan (hkl), d'équidistance d_{hkl} , un angle d'incidence θ (Fig. 7).

Le faisceau diffracté est dévié d'un angle 2θ .

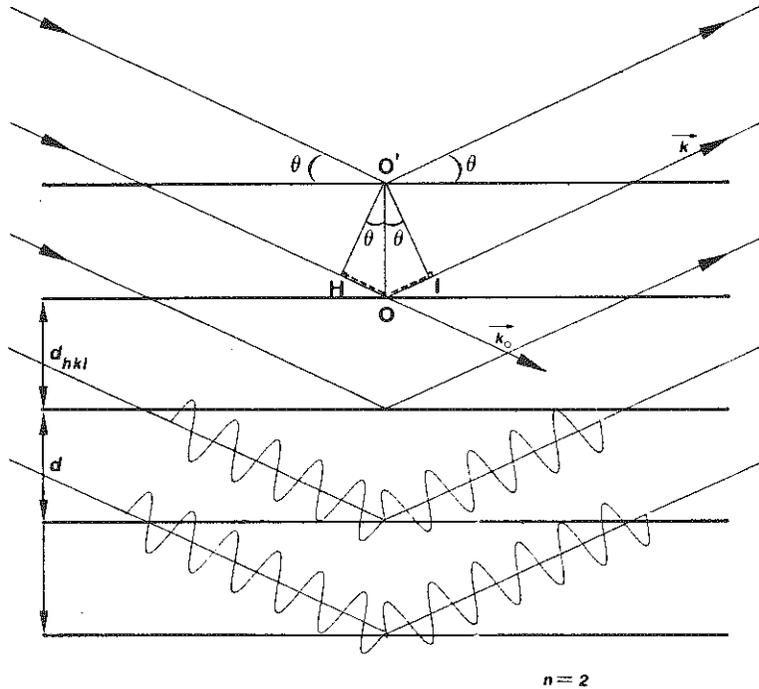


Fig. 7. Loi de BRAGG.

Pour qu'un phénomène de diffraction soit observé, il est nécessaire que les faisceaux réfléchis par les plans successifs soient en phase.

Il apparaît géométriquement que cela est réalisé si :

$$HO + OI = n\lambda$$

$$\text{soit} \quad 2d_{hkl} \cdot \sin\theta = n\lambda$$

n , entier, est l'ordre de la réflexion.

Une interférence constructive se produit alors, donnant sous cet angle, une in-

tensité diffractée maximale.

Cette description n'est valable que lorsque le nombre de plans réflecteurs est élevé ("infini").

Envisageons dans le microscope un échantillon monocristallin, tel qu'une famille de plans (hkl) se trouve en incidence de Bragg. La figure 8 montre que les rayons qui sont diffusés par le même point de la préparation (A ou B) focalisent au même point dans le plan image de l'objectif, alors que les rayons, diffractés sous le même angle, focalisent au même point dans le plan focal image : la famille de plans représentée donne un spot de diffraction unique.

Considérons maintenant le microscope électronique comme une simple caméra de diffraction : un faisceau d'électrons incident irradie le spécimen; il est partiellement diffracté sous l'angle 2θ par des plans (hkl) pour former un spot à la distance R du centre du diagramme (le point d'impact du faisceau transmis) (Fig. 9).

La distance entre le spécimen et le plan film, appelé "longueur de caméra" est notée L. (C'est un "chemin optique", puisque les lentilles interviennent en fait).

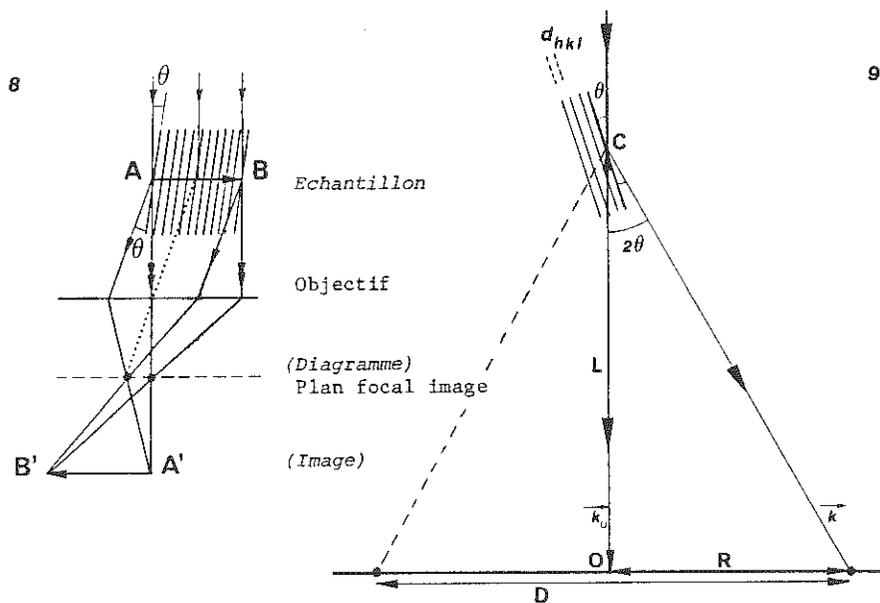


Fig. 8 et 9. Formation d'un faisceau diffracté.

Schéma simplifié (longueur de caméra).

D'après la loi de Bragg :

$$2d_{hkl} \sin\theta = n\lambda$$

Géométriquement :

$$\operatorname{tg} 2\theta = \frac{R}{L}$$

La longueur d'onde λ est faible ($\sim 0,037 \text{ \AA}$ à 100 kV), l'angle θ est de l'ordre de $1,2^\circ$.

L'approximation

$$\operatorname{tg} 2\theta \sim 2\sin\theta$$

n'introduit que peu d'erreur.

Il vient :

$$R/L \sim \lambda/d$$

$$d = \frac{\lambda L}{R} \quad \text{Ø}$$

Il est plus facile de mesurer la distance entre deux spots symétriques, ou le diamètre d'un anneau. La relation ci-dessus est donc souvent exprimée sous la forme :

$$d_{hkl} = \frac{2L\lambda}{D}$$

Si L et λ d'une part, D d'autre part, peuvent être mesurés, la valeur correspondante de d_{hkl} peut être déterminée. Pour un composé connu, le plan réflecteur est identifié.

$$D (R) \rightarrow d_{hkl} \rightarrow hkl$$

La procédure est répétée pour chaque spot ou chaque anneau.

Une interprétation plus complète des diagrammes réalisés sur des monocristaux, des fibres, des textures..., implique de faire appel à deux concepts nouveaux. Même s'ils apparaissent surprenants au premier abord, une fois maîtrisés, ils se révèlent source de compréhension et de simplification.

Ø Le produit $L\lambda$, ou constante de caméra, est déterminé expérimentalement à partir d'une préparation polycristalline donnant un diagramme d'anneaux fins.

RÉSEAU RÉCIPROQUE.

La figure 8 montre que le phénomène de diffraction associé à chaque famille de plans (hkl) d'un cristal un spot de diffraction, c'est-à-dire un point. La projection stéréographique aussi. Le concept du réseau réciproque permet la même association :

Construisons l'ensemble des normales aux plans réticulaires : chaque normale est un vecteur \vec{n}_{hkl}^* , de module égal à $1/d_{hkl}$. Le point à l'extrémité du vecteur est un "noeud" du réseau dit réciproque : il est indexé hkl comme le plan du réseau direct. L'origine du réseau est donc notée (000). (Fig. 10).

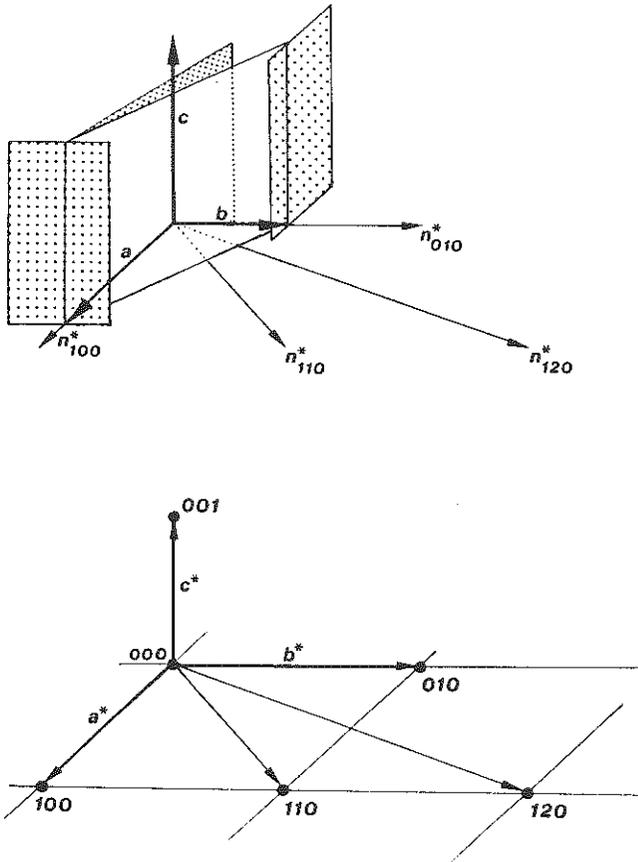


Fig. 10. Réseau direct. Réseau réciproque.

De par la définition des plans réticulaires

. les normales aux plans (hkl) , $(2h \ 2k \ 2l)$, $(3h \ 3k \ 3l)$,... ont même direction (vecteurs colinéaires).

. $d_{hkl} = 2d_{2h \ 2k \ 2l} = 3d_{3h \ 3k \ 3l} \dots$

$$|\vec{n}_{hkl}^*| = 1/2 |\vec{n}_{2h \ 2k \ 2l}^*| = 1/3 |\vec{n}_{3h \ 3k \ 3l}^*| \dots$$

Le réseau réciproque, qui est l'espace des normales \vec{n}_{hkl}^* apparaît ainsi comme un réseau discret de points (les "noeuds"), triplement périodique comme le réseau direct du cristal. (Fig. 10 et 13).

Il est défini par des vecteurs de base :

$$\vec{a}^*, \vec{b}^*, \vec{c}^*$$

tels que

$$\vec{a} \cdot \vec{a}^* = 1 ; \vec{b} \cdot \vec{b}^* = 1 ; \vec{c} \cdot \vec{c}^* = 1$$

$$\vec{a}^* \cdot \vec{b} = 0 ; \vec{b}^* \cdot \vec{c} = 0 ; \vec{c}^* \cdot \vec{a} = 0 \dots$$

Tous les termes croisés sont nuls. Cela signifie que

$$\vec{a}^* \text{ est normal au plan } (\vec{b}, \vec{c})$$

$$\vec{b}^* \text{ est normal au plan } (\vec{c}, \vec{a}) \dots$$

Les normales \vec{n}^* aux plans (hkl) s'écrivent alors :

$$\vec{n}_{hkl}^* = h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^* \quad (|\vec{n}_{hkl}^*| = 1/d_{hkl})$$

Ainsi :

$$\vec{n}_{100}^* = \vec{a}^* \quad d_{100} = 1/a^*$$

$$\vec{n}_{010}^* = \vec{b}^* \quad d_{010} = 1/b^*$$

$$\vec{n}_{001}^* = \vec{c}^* \quad d_{001} = 1/c^*$$

L'introduction du réseau réciproque simplifie considérablement de nombreux calculs, tel celui de l'angle de 2 plans réticulaires $(h_1 \ k_1 \ l_1)$ et $(h_2 \ k_2 \ l_2)$.

$$\cos \phi = \frac{\vec{n}_{h_1 \ k_1 \ l_1}^* \cdot \vec{n}_{h_2 \ k_2 \ l_2}^*}{|\vec{n}_{h_1 \ k_1 \ l_1}^*| |\vec{n}_{h_2 \ k_2 \ l_2}^*|}$$

Il est facile de représenter (avec un microordinateur) des sections de réseau réciproque.

De plus, les deux réseaux sont "réciproques" l'un de l'autre :

- la normale à un plan (hkl) du réseau direct est un vecteur du réciproque
- la normale à un plan du réciproque est un vecteur du réseau direct \vec{n}_{uvw} .

La relation :

$$\vec{n}_{h_1 k_1 l_1}^* \wedge \vec{n}_{h_2 k_2 l_2}^* \equiv \vec{n}_{uvw}$$

permet par exemple de déterminer l'axe de zone de 2 plans, ou la rangée normale au plan d'un diagramme.....

Les propriétés des deux réseaux conduisent à une autre description géométrique de la diffraction, due à EWALD.

CONSTRUCTION D'EWALD,

Considérons une sphère de rayon $1/\lambda$, et supposons que le cristal diffractant est placé en son centre : le centre de la sphère est l'origine du réseau direct du cristal (Fig. 11). Une famille de plan (hkl) se trouve en incidence de Bragg.

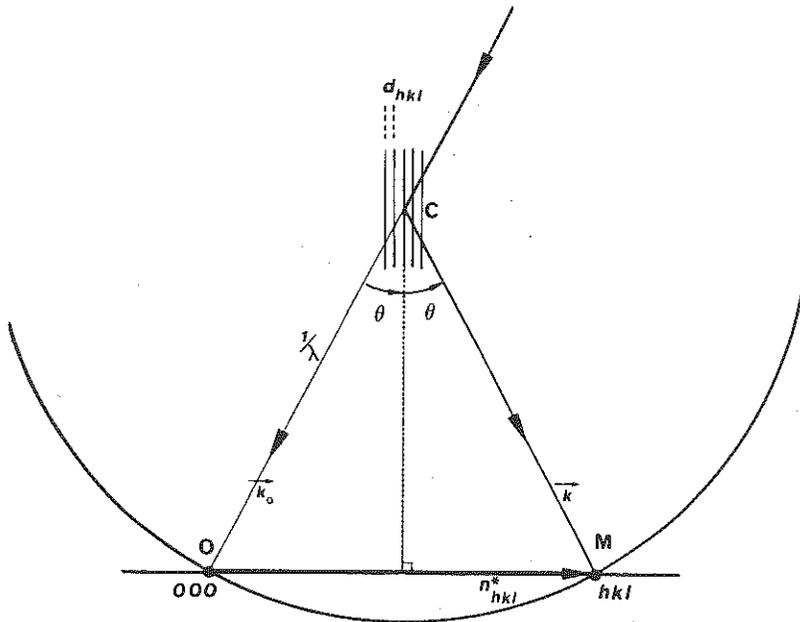


Fig. 11. Construction d'Ewald.

Soit CO la direction du faisceau incident, CM celle du faisceau diffracté.

Le vecteur $\vec{OM} (\vec{k} - \vec{k}_0)$ est normal aux plans (hkl) et a pour module :

$$|\vec{OM}| = \frac{2s \sin \theta}{\lambda}$$

soit $1/d$ (Loi de Bragg).

or $|\vec{n}_{hkl}^*| = 1/d$

$$\vec{OM} \equiv \vec{n}_{hkl}^*$$

\vec{OM} est un vecteur du réseau réciproque, dont l'origine est en O. L'extrémité M du vecteur, qui se trouve sur la sphère, est le "noeud" du réseau représentant le plan (hkl), tel qu'il a été défini ci-dessus

$$\vec{k} - \vec{k}_0 = \vec{n}_{hkl}^*$$

Ainsi, chaque fois qu'un point de la sphère coïncide avec un noeud du réseau réciproque, la famille de plans correspondante se trouve en incidence de Bragg : la diffraction se produit.

Le rayon de la sphère est très grand par rapport aux dimensions du réseau réciproque (et l'angle de Bragg 2θ , est faible), de telle sorte qu'elle peut être assimilée à son plan tangent autour de l'origine du réseau réciproque.

En conséquence, si un plan du réseau réciproque est tangent à la sphère, à l'origine, le diagramme de points observés est sa représentation directe (Fig. 12).

Pratiquement, le rayon de la sphère est la distance L introduite ci-dessus. Le diagramme est homothétique du plan du réseau réciproque, avec des vecteurs

$$\vec{g}_{hkl}^* = L\lambda \vec{n}_{hkl}^*$$

Le réseau réciproque étant triplement périodique, une infinité de plans peuvent être enregistrés : l'indexation des spots et par suite du plan réciproque correspondant permettent la détermination de l'orientation du cristal par rapport au faisceau incident.

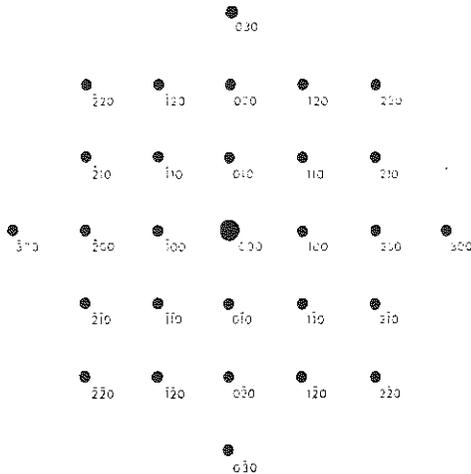


Fig. 12. Plan (001)* d'un réseau réciproque cubique simple.

FACTEUR DE STRUCTURE.

La présentation réalisée est purement géométrique : elle permet de prévoir les orientations (angles de Bragg) sous lesquelles le phénomène de diffraction peut être observé.

En fait, il apparaît que tous les noeuds du réseau réciproque ne sont pas associés à des réflexions de Bragg : ainsi pour un cristal cubique à faces centrées, les réflexions observées correspondent exclusivement à des plans d'indices hkl tous pairs ou impairs. (Fig. 13).

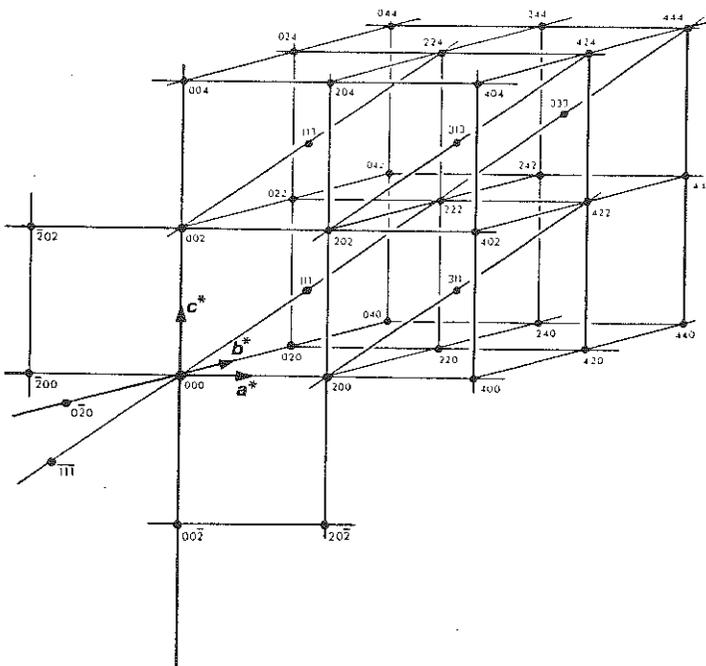


Fig. 13. Réseau réciproque cubique à faces centrées.

Par contre, pour un cristal cubique centré, seuls les plans dont la somme des indices est paire donnent un signal.

Il est donc nécessaire de faire intervenir également la structure du cristal.

Un cristal est un assemblage d'atomes ou d'ions, de numéros atomiques variés, arrangés de manière symétrique au sein de chaque maille.

Chaque atome diffuse individuellement le rayonnement incident : les électrons sont sensibles au potentiel de l'atome, créé par son noyau et ses électrons (les RX ne "voient" que les électrons).

Il est associé à chaque atome un facteur de diffusion atomique ou ionique caractéristique.

L'amplitude diffusée par la maille unitaire dans une direction donnée est la résultante des contributions atomiques élémentaires (interférences constructives ou destructives) : elle dépend du nombre d'atomes qu'elle contient, de leur nature et de leur position.

Le facteur de structure de la maille s'écrit :

$$F_{hkl} = \sum_{j=1}^n f_j \exp 2\pi i (hx_j + ky_j + lz_j) \quad (\text{O})$$

où f_j est le facteur de diffusion atomique du j ième atome de coordonnées fractionnaires x_j y_j z_j .

En terme de diffraction, un noeud de l'espace réciproque n'existe que si le facteur de structure associé n'est pas nul : l'intensité diffractée est proportionnelle au carré du module du facteur de structure (entre autres termes).

$$F_{hkl} = A + iB \quad (\text{cf Tables internationales})$$

$$|F| = \sqrt{A^2 + B^2}$$

$$I_{hkl} = K |F_{hkl}|^2$$

L'expression (O) permet de comprendre facilement que le mode d'arrangement des atomes dans la maille entraîne l'annulation du facteur de structure pour certains plans. Les modes de réseau et éléments de symétrie avec glissement (axes et miroirs) induisent des extinctions systématiques qui sont répertoriées dans le volume I des Tables internationales pour la Cristallographie des RX. La connaissance du groupe d'espace pour une structure donnée permet de les prévoir sans ambiguïté (et réciproquement).

FACTEUR DE FORME.

Lorsque le plan est exactement en incidence de Bragg, c'est-à-dire quand le noeud associé du réseau réciproque est sur la sphère d'Ewald, l'intensité dif-

fractée observée est maximale. Cela ne signifie pas qu'elle soit nulle hors de cette position : il apparaît en effet une distribution d'intensité dans un volume angulaire autour de la position idéale.

Rappelons qu'il est habituel, en diffraction des RX de parler de l'élargissement des pics de diffraction associé à la petite taille des domaines cristallins cohérents dans la direction correspondante : une application géologique intéressante de cette propriété est l'étude de la cristallinité des phyllosilicates.

Il s'agit du même phénomène : l'interférence constructive entre les ondes diffractées par chaque plan, strictement limitée à l'angle de Bragg, n'est possible que lorsque le nombre de plans réflecteurs est très grand : ce n'est pas le cas en microscopie électronique, au moins dans la direction parallèle au faisceau (100 - 2000 Å).

La forme du cristal intervient donc, en terme de dimensions relatives dans l'espace direct, à laquelle est associée une distribution d'intensité dans l'espace réciproque, identique autour de chaque noeud (elle ne dépend pas de hkl) :

Envisageons la construction d'Ewald, en considérant que le noeud du réseau réciproque ne se trouve pas exactement sur la sphère (Fig. 14). On introduit le vecteur \vec{s} (défaut d'excitation, écart à la diffraction) qui s'écrit :

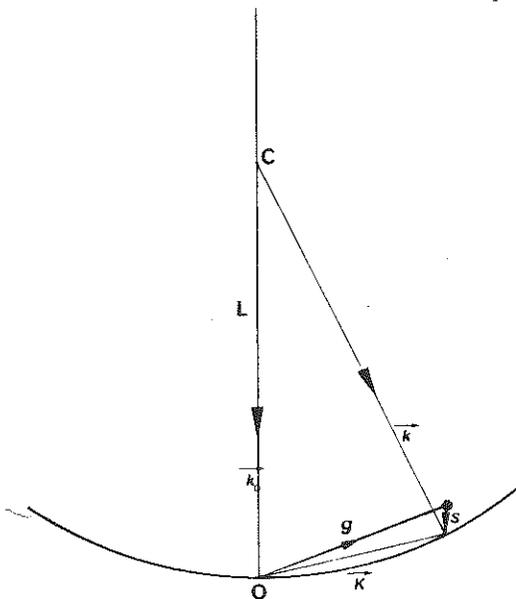


Fig. 14. "Ecart à la diffraction". Défaut d'excitation.

$$\vec{s} = s_x \vec{a}^* + s_y \vec{b}^* + s_z \vec{c}^* \quad (\text{Q})$$

On peut montrer que la "fonction d'interférence" est représentée par :

$$\frac{F_{hkl}}{V} \cdot \frac{\sin(\pi s_x N_a a)}{\pi s_x} \cdot \frac{\sin(\pi s_y N_b b)}{\pi s_y} \cdot \frac{\sin(\pi s_z N_c c)}{\pi s_z}$$

où F_{hkl} est le facteur de structure de la maille de volume V .

N_a, N_b, N_c sont les nombres de maille dans les directions $\vec{a}, \vec{b}, \vec{c}$.

Pour un cristal mince, tel que $N_c \ll N_a$ et N_b et $s_x = s_y = 0$ (s_z // faisceau incident), cette expression devient :

$$\frac{F_{hkl}}{V} \cdot \frac{\sin(\pi s_z N_c c)}{\pi s_z}$$

En posant : $N_c c = e$, épaisseur du cristal (//z), l'intensité diffractée par les plans (hkl), associée au noeud \vec{g} , s'écrit :

$$I_{hkl} \sim \frac{|F_{hkl}|^2}{V^2} \cdot \frac{\sin^2(\pi s_z e)}{(\pi s_z)^2}$$

La représentation de cette distribution, le long d'une direction réciproque s_z comprend (Fig. 15) :

- . un fort maximum central, centré sur la position du noeud ($s_z = 0$), dont la longueur à mi-hauteur est l'inverse de la dimension du cristal dans cette direction ($1/e$).
- . des minima secondaires de faible intensité. (Cette figure est identique à la figure de diffraction à l'infini donnée par une fente).

Les formes des distributions associées aux morphologies cristallines simples sont résumées par la figure 16 : la distribution est toujours étendue le long de la direction parallèle à la plus faible dimension du cristal.

Ainsi, en diffraction électronique, les noeuds de l'espace réciproque présentent la forme de batonnets, donc l'extension est perpendiculaire à la lame cristalline.

(Q) \vec{s} n'a aucune relation avec le vecteur du même nom, utilisé dans le traitement de Laue.

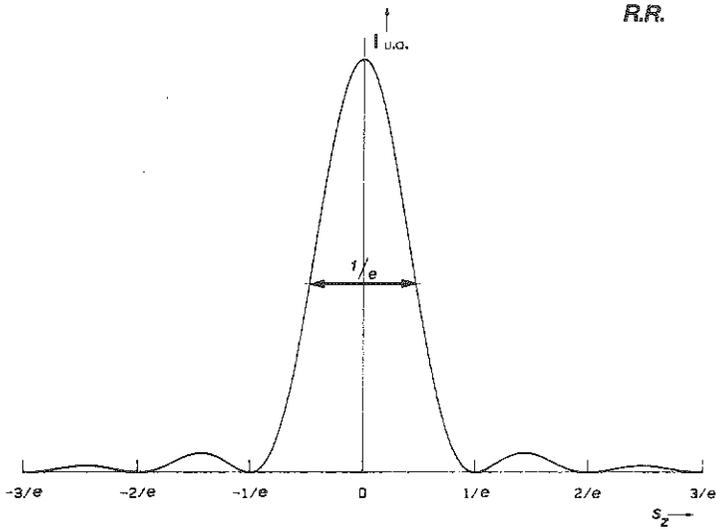


Fig. 15. Distribution d'intensité suivant une direction réciproque.

R.D.



R.R.

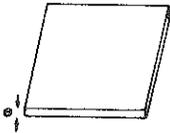
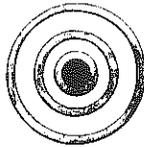


Fig. 16. Distribution d'intensité tridimensionnelle (Facteur de forme).

(on parle de "relachement" de la condition de Laue dans cette direction).

Le schéma de la construction d'Ewald doit être complété en conséquence (Fig. 17).

- . le nombre des noeuds intervenant dans le plan réciproque tangent à la sphère est considérablement augmenté.
- . des noeuds des plans supérieurs du réseau réciproque peuvent apparaître, quand la périodicité réciproque parallèlement au faisceau est faible (d_{hkl} grand : $\gg 10 \text{ \AA}$).

Il apparaît ainsi les "zones de Laue" (Fig. 17).

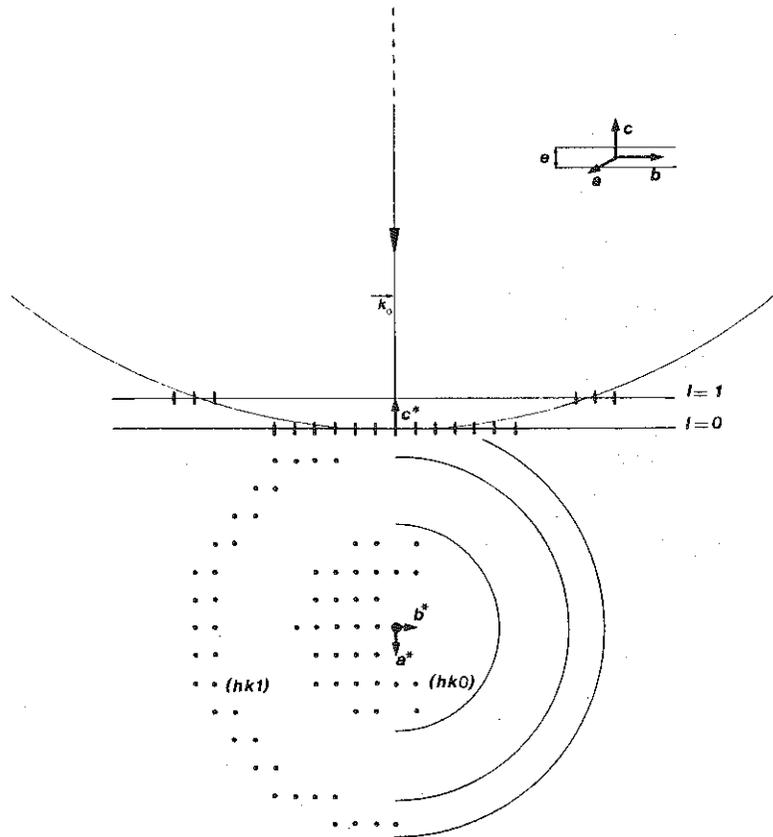


Fig. 17. Zones de Laue symétriques.

Lorsque le faisceau direct n'est pas normal à un plan réciproque, la sphère d'Ewald n'intersecte plus les batonnets symétriquement par rapport au centre : le diagramme de diffraction est constitué d'un arrangement dissymétrique de spots (Fig. 18).

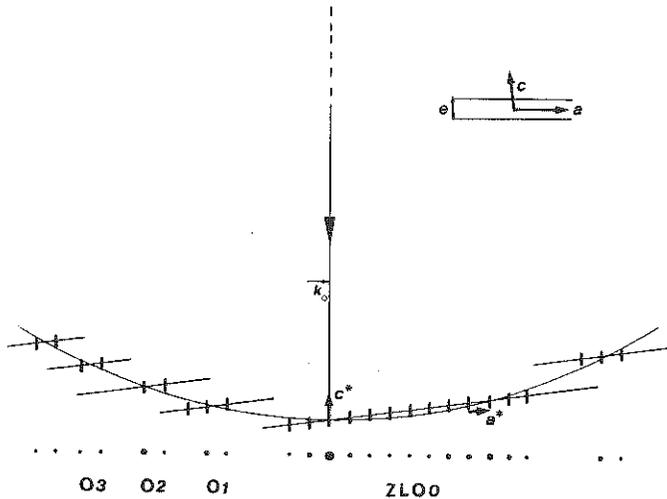


Fig. 18. Zones de Laue dissymétriques.

LIGNES DE KIKUCHI.

Les diagrammes de KIKUCHI sont produits par les cristaux parfaits assez épais : alors que l'intensité des spots (et du faisceau transmis) diminue notablement, un diagramme constitué de paires de lignes parallèles, blanches et noires, apparaît.

Il résulte de la diffraction cohérente d'électrons ayant subi une perte d'énergie limitée, par interactions inélastiques dans la partie supérieure du cristal (Fig. 19).

Les électrons diffusés inélastiques constituent l'essentiel du "fond continu" des diagrammes de diffraction. Son intensité est maximale dans la direction du faisceau direct et décroît régulièrement à mesure que l'angle (θ) augmente.

Des variations locales d'intensité du fond continu se produisent, quand des rayons émis (en P) faiblement écartés par rapport au faisceau direct sont en incidence

de Bragg pour une famille de plans (hkl) :

le rayon PH donne naissance au rayon diffracté HJ (\vec{k}_2) et PI à IJ (\vec{k}_1).

PH est moins écarté que PI du faisceau direct : l'intensité du faisceau d'électrons inélastiques associé, I_1 , est donc supérieure à I_2 (rayon PI).

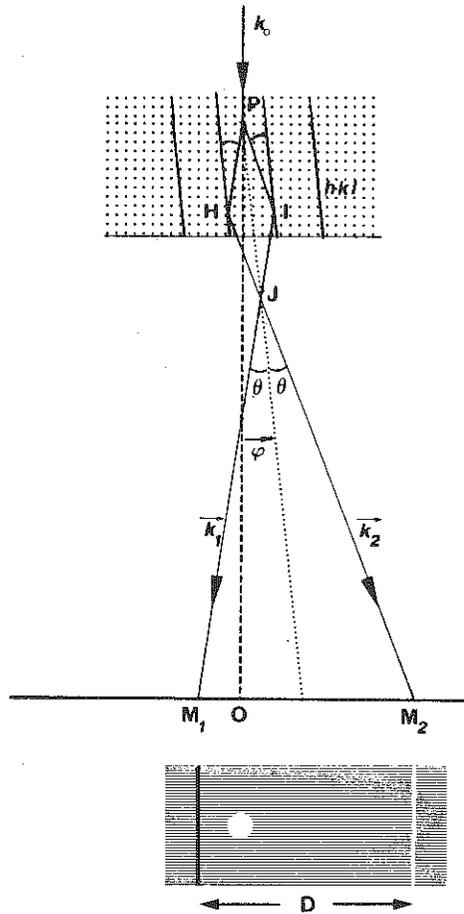


Fig. 19. Formation des lignes de Kikuchi.

La réflexion de Bragg entraîne un transfert d'électrons, dont l'importance dépend du coefficient réflecteur c des plans (hkl) (rapport de l'intensité diffractée à l'intensité incidente).

Dans la direction \vec{k}_1 , l'intensité diffusée $I(k_1)$ s'écrit :

$$I(k_1) = (1 - c) I_1 + c I_2$$

de même :

$$I(k_2) = (1 - c) I_2 + c I_1$$

En l'absence de diffraction, l'intensité du fond continu en M_1 et M_2 aurait été respectivement I_1 et I_2 .

$$\begin{aligned} I(k_1) - I_1 &= c (I_2 - I_1) < 0 & I(k_1) < I_1 \\ I(k_2) - I_2 &= c (I_1 - I_2) > 0 & I(k_2) > I_2 \end{aligned}$$

Les directions des faisceaux diffractés pour une famille de plans sont les génératrices de 2 cônes de demi-angle ($90^\circ - \theta$). Ces cônes intersectent l'écran suivant 2 hyperboles, qui sont approximées à des droites (faible valeur de θ).

Il apparaît, passant par M_1 une ligne moins intense que le fond continu (ligne noire) et en M_2 une ligne plus intense (ligne blanche). (La ligne sombre est toujours la plus proche du faisceau direct).

Ces diagrammes sont employés essentiellement pour déterminer l'orientation du cristal, sa symétrie. Les paramètres du réseau peuvent s'en déduire également :

$$d_{hkl} = \frac{L\lambda}{D \cos^2 \phi}$$

$L\lambda$, constante de caméra, D , distance entre les lignes de la paire, ϕ , angle des plans (hkl) avec le faisceau incident (Fig. 19).

APPLICATIONS.

• Détermination de la "constante" $L\lambda$.

Un diagramme de poudre, réalisé sur un matériau stable telle une couche métallique évaporée (Au), dont les équidistances sont connues, sert à étalonner le microscope (Pour des tensions d'accélération et des longueurs de caméra variables). Des mesures de paramètres précises exigent un étalonnage simultané, dans les mêmes conditions de réglage du microscope.

• Diagrammes de matériaux polycristallins.

Ils permettent l'identification d'un composé et le calcul précis de sa maille cristalline.

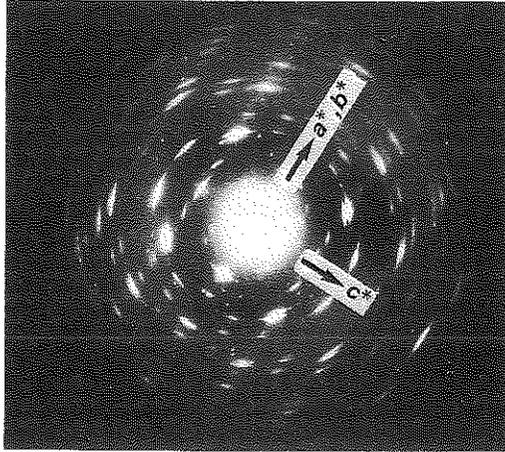


Fig. 20. Diagramme de fibre :
goethite, α - $(\text{Fe}(\text{OOH}))$.

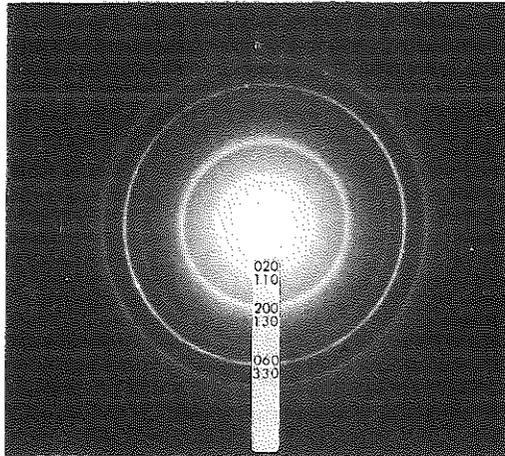


Fig. 21. Diagramme de texture
turbostratique : smectite.

La liste des équidistances est déduite de la mesure des diamètres des anneaux : une intensité relative est attribuée (visuellement en général !) à chaque réflexion.

Cette liste est comparée, soit à celle attendue d'un produit connu, soit aux valeurs fournies par le fichier ASTM-JCPDS. Les composés répertoriés sont classés sur la base des d_{hkl} des 3 premières réflexions les plus intenses, classés par ordre d'intensité décroissante. Ces intensités, obtenues en diffraction des RX, diffèrent de celles de la diffraction électronique, ce qui entraîne des problèmes.

Un calcul de maille à l'aide de la formule appropriée implique une indexation préalable des réflexions (fiche ASTM ou usage d'abaque ou logiciel d'ordinateur...).

• Diagrammes de texture.

Intermédiaires entre les diagrammes de polycristaux et de monocristaux, ils représentent dans certains cas (fibres) une source très complète d'information (identification de la phase, détermination de la maille, relations morphologie-structure).

Fibres. Une direction cristallographique est commune à toutes les cristallites, parallèle à leur allongement. L'orientation est statistique dans les 2 autres directions (Fig. 20). Le diagramme observé dépend de l'orientation de l'axe commun par rapport au faisceau (voir EBERHART et VAINSHEIN).

Texture turbostratique. Fréquente pour les smectites, elle correspond à la superposition de feuillets parallèles, ayant leur axe \vec{c}^* , normal au feuillet, commun (Fig. 21). Il en résulte une périodicité unidirectionnelle. Lorsque le faisceau est parallèle à cet axe, un pseudo-diagramme de poudre est observé. Il ne montre que des réflexions (hk0) : les paramètres a et b de la maille s'en déduisent, significatifs (smectite di- et tri-octaédrique !)

• Diagrammes de monocristaux.

L'étude des monocristaux doit se faire avec un porte-échantillon orientable : il est nécessaire d'enregistrer plusieurs diagrammes du même cristal pour réaliser son identification et sa caractérisation structurale.

L'identification de la phase se fait à partir des d_{hkl} déduits des distances en-

tre spots symétriques par rapport au centre.

L'orientation du cristal implique l'indexation des spots. Celle-ci se fait en deux étapes :

- hypothèse d'indexation à partir des d_{hkl} .
- confirmation, après calcul des angles interplanaires de quelques rangées principales, ou comparaison avec une projection stéréographique déjà établie préalablement.

Cette projection permet ensuite de caractériser le plan parallèle au diagramme, l'orientation dans ce plan des repères morphologiques, etc...

L'axe de zone des plans réflecteurs, c'est-à-dire la rangée normale au plan du diagramme est obtenue par un calcul vectoriel simple :

$$(h_1 \ k_1 \ l_1) \wedge (h_2 \ k_2 \ l_2) = [uvw]$$

La détermination de la symétrie vraie du cristal (recherche des extinctions systématiques) exige des précautions par suite des "effets dynamiques". En effet, les électrons diffractés par une famille de plans peuvent jouer le rôle de faisceau primaire pour une autre famille, et diffracter à nouveau. Dans le cas d'un échantillon monocristallin homogène, deux effets sont observés :

- une altération de l'intensité des spots, qui ont tendance à s'égaliser.
- l'apparition de réflexions théoriquement interdites par la symétrie (éléments de symétrie avec glissement). Par suite du "changement d'origine" qui en quelque sorte se produit, une réflexion d'indices

$$h_1 - h_2, \ k_1 - k_2, \ l_1 - l_2 \text{ ou } h_1 + h_2, \ k_1 + k_2, \ l_1 + l_2$$

peut apparaître si les spots $h_1 \ k_1 \ l_1$ et $h_2 \ k_2 \ l_2$ existent. Une faible rotation de l'échantillon la fait disparaître.

L'analyse des diagrammes complexes (surstructure, macles, polytypisme...) est présentée en détail dans les ouvrages de EBERHART et HIRSCH et al.

BIBLIOGRAPHIE

- ANDREWS, K.W., DYSON, D.J., KEON, S.R. (1971) - *Interpretation of Electron diffraction patterns* (Hilger, London).
- BEESTON, B.E.P., HORNE, R.W., MARKHAM, R. (1972) - *Electron diffraction and optical diffraction techniques*, in *Practical methods in Electron Microscopy* (North-Holland Publ. Comp., Amsterdam).
- COHEN, J.B. (1966) - *Diffraction methods in Materials Science* (MacMillan Comp. New York).
- CULLITY, B.D. (1962) - *Elements of X-ray diffraction* (Addison-Wesley Publ. Comp. Inc., Reading, Mass.).
- EBERHART, J.P. (1976) - *Méthodes physiques d'étude des minéraux et des matériaux solides* (Doin, PARIS).
- HIRSCH, P.B., HOWIE, A., NICHOLSON, R.B., PASHLEY, D.W., WHELAN, M.J. (1965) *Electron Microscopy of thin crystals* (Butterworths, London).
- International Tables for X-Ray Crystallography (1952). International Union of Crystallography (Kynoch, Birmingham).
- PINSKER, Z.G. (1953) - *Electron diffraction* (Butterworths, London).
- RYMER, T.B. (1970) - *Electron diffraction* (Methuen and Co, Ltd, London).
- VAINSHTEIN, B.K. (1964) - *Structure Analysis by Electron Diffraction* (Pergamon Press, Oxford).
- WENK, H.R. (1976) - *Electron Microscopy in Mineralogy* (Springer-Verlag, Berlin).
- ZWYAGIN, B.B. (1967) - *Electron diffraction of Clay Mineral Structures* (Plenum Press, New York).

CHAPITRE III

PRESENTATION DU MICROSCOPE

par Madeleine GANDAIS

PRESENTATION DU MICROSCOPE ELECTRONIQUE

Madeleine GANDAIS

INTRODUCTION.

Un microscope électronique en transmission comprend un canon à électrons et un ensemble de lentilles dont les fonctions sont analogues à celles d'un microscope optique (figure 1). Il y a un système d'illumination composé en général de deux condenseurs, un objectif qui forme une première image de l'objet, appelée image intermédiaire, et un système d'agrandissement d'image composé de plusieurs lentilles, appelées lentilles de projection. Des diaphragmes limitent le faisceau d'électrons au niveau du système d'illumination (diaphragme de condenseur), au niveau de l'objectif (diaphragme d'ouverture ou de contraste), et au niveau de l'image intermédiaire (diaphragme de champ ou de sélection). Tous les éléments du microscope admettent un axe de révolution et les axes de chaque élément sont alignés pour former l'axe optique du microscope. L'objet est placé près de la face d'entrée de l'objectif. L'image finale est recueillie sur un convertisseur d'image: écran fluorescent, film photographique ou caméra couplée à un amplificateur de brillance. L'ensemble est placé sous vide pour éviter la diffusion des électrons par les atomes de gaz ambiant.

Le canon (figure 2) comprend une source d'électrons qui est généralement une cathode chaude. Elle est constituée par la pointe d'un filament chauffé par courant électrique. Les électrons extraits de la pointe sont accélérés par le potentiel de l'anode, positif par rapport à celui du filament. Autour de la pointe se trouve un cylindre de Wehnelt porté à un potentiel légèrement négatif (quelques dizaines de volts). Le Wehnelt sert à repousser les électrons émis hors de l'axe et à les concentrer en un faisceau de petite section. La zone de plus faible section du faisceau électronique est généralement appelée "cross-over". On considèrera qu'elle représente la source d'électrons. Les tensions d'accélération usuelles se situent entre 100 et 1.000kV, ce qui donne des longueurs d'onde électronique comprises entre 4 et 1.10^{-3} nm respectivement.

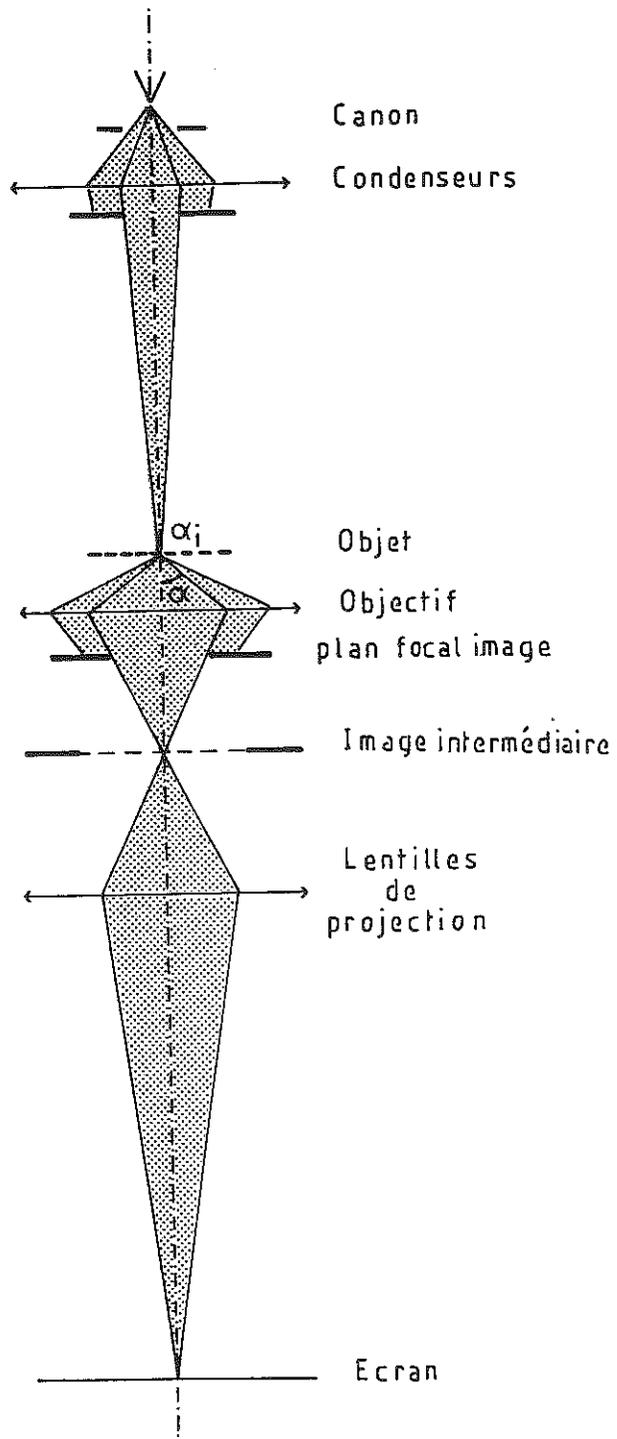


Figure 1 : Schéma d'un microscope électronique.

Figure 2 : Canon à électrons.
 F : Filament; W : Wehnelt;
 A : Anode; C.O. (S) : Cross-Over (Source).

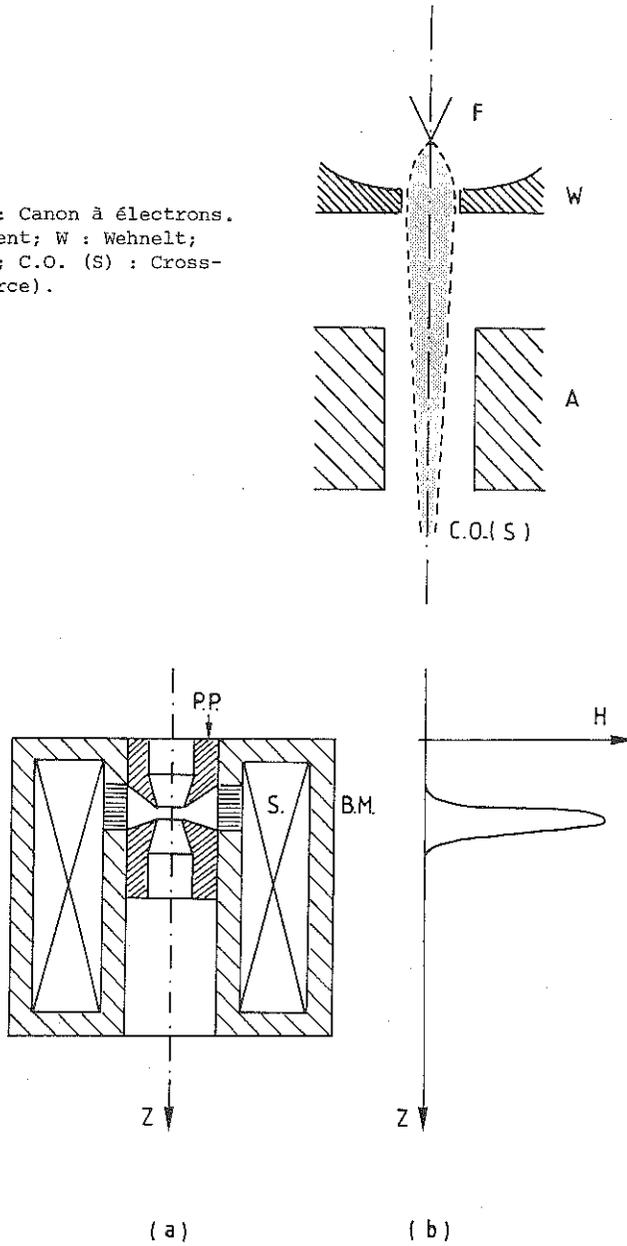


FIGURE 3: Lentille électromagnétique. a) Coupe suivant l'axe Oz.
 S: solénoïde; B.M. : blindage magnétique; P.P. : pièces polaires
 b) Champ H_z .

Les lentilles sont électromagnétiques. Elles sont constituées d'une bobine de solénoïde parcourue par un courant électrique pour produire le champ magnétique qui dévie et focalise les électrons (figure 3). Le solénoïde est recouvert d'un blindage magnétique afin de localiser le champ magnétique dans une partie réduite de l'espace. Dans le cylindre de blindage interne, une gorge occupée par un anneau de matériau non magnétique laisse passer les lignes de champ. Des pièces polaires, disposées de part et d'autre de la gorge, concentrent le champ magnétique et l'amplifient. Leur profil, soigneusement étudié, conditionne la répartition du champ dans le cylindre. Un tel assemblage se comporte comme une lentille mince. Les lentilles magnétiques ont une puissance de focalisation qui dépend du courant d'excitation, ce qui leur donne une grande souplesse d'emploi. En particulier, les lentilles de projection peuvent viser soit le plan de l'image intermédiaire, soit le plan focal image de l'objectif qui, on le verra, joue un rôle très important.

Le faisceau d'électrons émergent du système de condensateurs et incident sur l'objet est quasi parallèle (figure 4). On utilise généralement un angle d'ouverture α_1 compris entre 10^{-4} et 10^{-5} rd. L'angle α_1 dépend d'une part du diamètre du diaphragme de condenseur, d'autre part de l'excitation du deuxième condenseur C2. La taille des images de source S' et S" dépend de l'excitation du premier condenseur C1. L'image S" est l'aire minimale d'illumination sur l'objet. Dans les applications analytiques le faisceau incident est appelé "sonde".

L'objet est une lame mince. L'épaisseur maximale transmissible est d'environ $0,5\mu\text{m}$ pour des électrons de 100keV , et $5\mu\text{m}$ pour des électrons de 1MeV . Lorsque les électrons traversent l'objet, ils sont diffusés dans toutes les directions de l'espace par les atomes rencontrés. A la sortie de l'objet, le faisceau d'électrons est largement divergent. Pour des raisons qui seront données dans les paragraphes suivants, on réduit l'ouverture du faisceau diffusé à la sortie de l'objet à une valeur α comprise entre 10^{-2} et 10^{-3} rd.

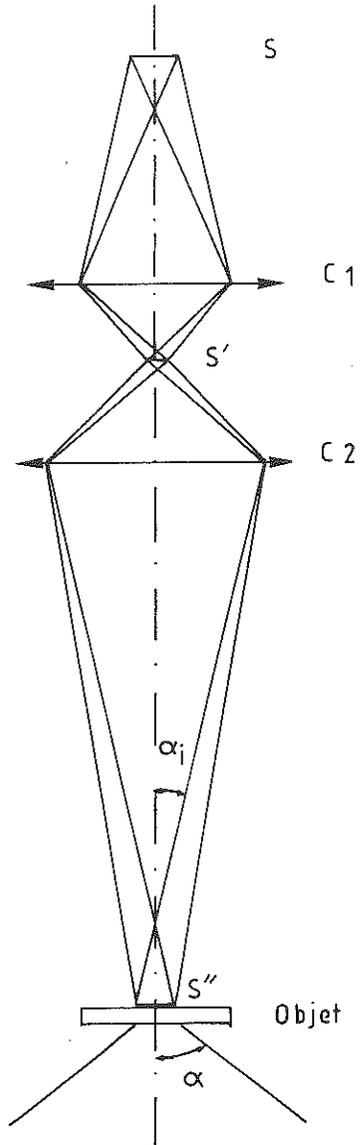


Figure 4 : Système d'illumination. C_1 et C_2 : Condenseurs; S : Source; S' et S'' : Images de la source.

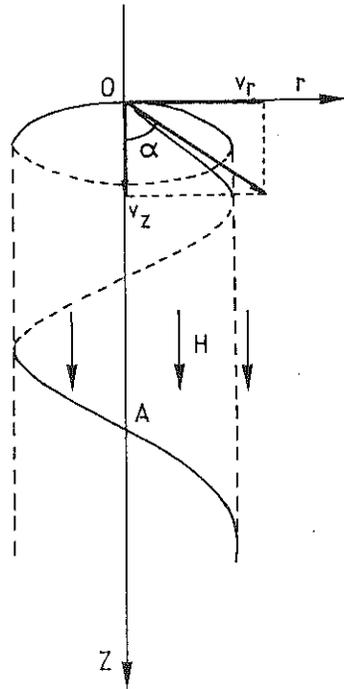


Figure 5 : Trajectoire électronique dans un champ magnétique uniforme H.

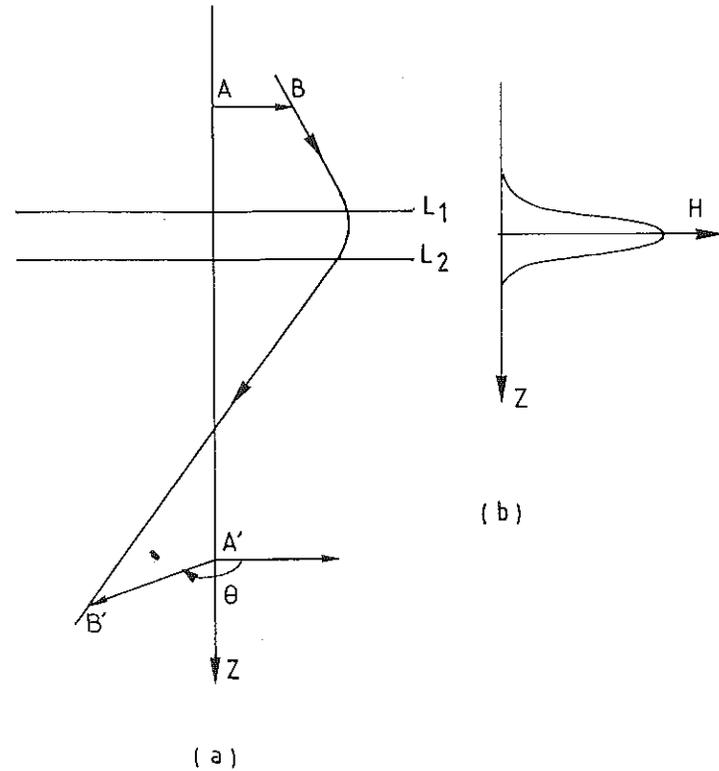


Figure 6 : Trajectoire électronique dans un champ magnétique de révolution entre L_1 et L_2 . a) Schéma de la trajectoire. b) Champ H_z .

1- ACTION D'UN CHAMP MAGNETIQUE SUR UN ELECTRON EN MOUVEMENT.

Dans un champ magnétique \vec{H} un électron de charge $-e$ et de vitesse \vec{v} est soumis à une force électromagnétique \vec{F} donnée par l'expression:

$$(1.1) \quad \vec{F} = -e \vec{v} \wedge \vec{H}$$

Dans le cas d'un champ magnétique uniforme (figure 5), si l'électron a une vitesse initiale perpendiculaire au champ, il décrit sous l'effet du champ une trajectoire circulaire de rayon:

$$(1.2) \quad \rho = mv / eH$$

m étant la masse de l'électron. Si la vitesse fait un angle α avec le champ, on a dans le plan Ox, Oz : $v_x = v \sin \alpha$ et $v_z = v \cos \alpha$. La composante v_z est parallèle au champ et ne subit pas de force. Seul subsiste l'effet sur la composante v_x normale au champ. La projection de la trajectoire sur un plan perpendiculaire au champ est une circonférence de rayon ρ . Le temps mis par la projection de l'électron pour parcourir la circonférence est

$$(1.3) \quad t = 2\pi\rho / v_x = 2\pi m / eH$$

Le temps t est indépendant de v et de α . La trajectoire de l'électron est donc une hélice de rayon ρ et de pas:

$$(1.4) \quad q = v_z t = v \cos \alpha \cdot 2\pi m / eH$$

Si α est petit, on a pour q la valeur constante:

$$(1.5) \quad q = v \cdot 2\pi m / eH$$

Ainsi les électrons monocinétiques partant d'un point A de l'axe zz' avec des vitesses initiales très peu inclinées sur la direction du champ convergent tous aux points successifs $A', A'', \text{etc.}$ de cet axe, dont les abscisses sont des multiples de q . On peut considérer que A' est l'image de A, mais le grandissement du système est égal à 1.

Dans le cas d'un système magnétique de révolution d'axe Oz (figure 3), le champ s'exprime au moyen de deux composantes. En utilisant des coordonnées semi-polaires r , θ , et z , ces composantes sont H_r et H_z , la composante H_θ étant nulle. Entre les deux composantes, il existe une relation:

$$(1.7) \quad H_r = - \frac{r}{2} \frac{dH_z}{dz}$$

Les équations du mouvement sont un peu plus compliquées que dans le cas précédent (Dupouy, 1952). Retenons simplement que le mouvement de l'électron se décompose en deux parties très distinctes (figure.6). D'une part, le méridien origine (plan contenant l'axe Oz et la vitesse initiale \vec{v}) tourne autour de l'axe Oz d'un angle θ . Ceci est l'effet de la composante H_z . Avec des angles α petits, l'angle θ est le même pour tous les électrons de même vitesse:

$$(1.8) \quad \theta = \frac{e}{2mv} \int_{L1}^{L2} H_z dz$$

D'autre part, l'électron possède un mouvement propre dans le plan méridien tournant, effet de la composante H_r et par conséquent dépendant de dH_z/dz . L'analyse du mouvement dans le plan méridien montre que tout champ magnétique continu, invariable dans le temps, ayant la symétrie de révolution par rapport à un axe, exerce sur des faisceaux électroniques paraxiaux une action focalisatrice et joue le rôle d'une lentille électronique capable de donner des images. La distance focale f' ou la puissance $1/f'$, est donnée par la formule:

$$(1.9) \quad 1/f' = \frac{e^2}{4mv^2} \int_{L1}^{L2} H_z^2 dz$$

L'équation (1.9) montre que les lentilles magnétiques minces sont toujours convergentes. Elles donnent d'un objet une image agrandie et tournée d'un angle θ par rapport à l'objet. Dans la pratique il faut tenir compte de l'angle θ que l'on peut mesurer expérimentalement. Mais pour comprendre la formation d'image, on peut en faire abstraction. C'est ce que nous ferons dans ce qui suit.

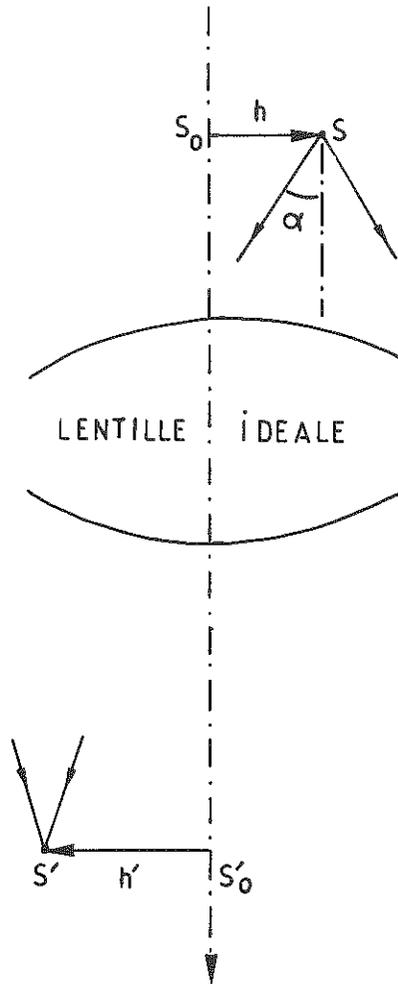


Figure 7 : Lentille idéale.

2- LENTILLE IDEALE - OPTIQUE GEOMETRIQUE.

Une lentille idéale est un système qui donne d'une source ponctuelle S une image ponctuelle S' , et d'un objet S_0S perpendiculaire à l'axe optique, une image S'_0S' perpendiculaire à l'axe optique, avec un grandissement $\gamma = S'_0S'/S_0S$ indépendant de la distance $S_0S = h$ (figure 7). On s'approche des conditions idéales en utilisant des lentilles minces avec un rayonnement monochromatique, en conditions de Gauss. Les conditions de Gauss signifient qu'on utilise des trajectoires s'écartant peu de l'axe optique (α petit) et des sources lumineuses proches de l'axe optique (h petit). L'optique qui en découle s'intitule optique géométrique ou encore paraxiale. Une lentille mince est définie par son centre optique O et des foyers principaux F et F' respectivement objet et image, situés sur l'axe optique (figure 8). La distance $OF' = -OF = f$ est la distance focale et les plans ϕ et ϕ' perpendiculaires à l'axe optique en F et F' sont les plans focaux, respectivement objet et image. Les lentilles minces ont de nombreuses propriétés intéressantes. Nous nous bornerons à rappeler celles qui nous seront utiles (figure 8.a):

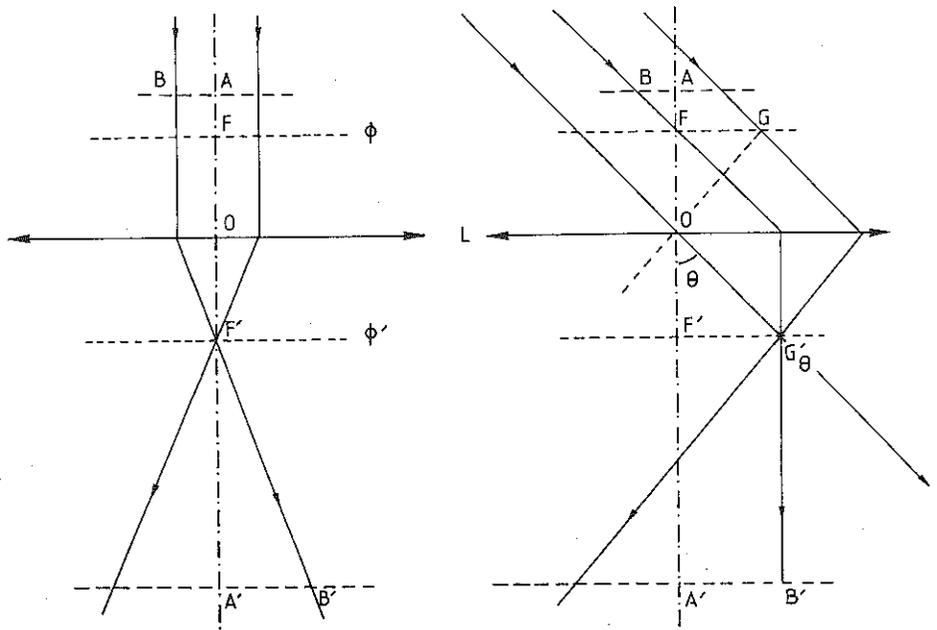


Figure 8 : Lentille mince. a) Définitions.

a) Tout rayon passant par le centre optique ne subit pas de déviation.

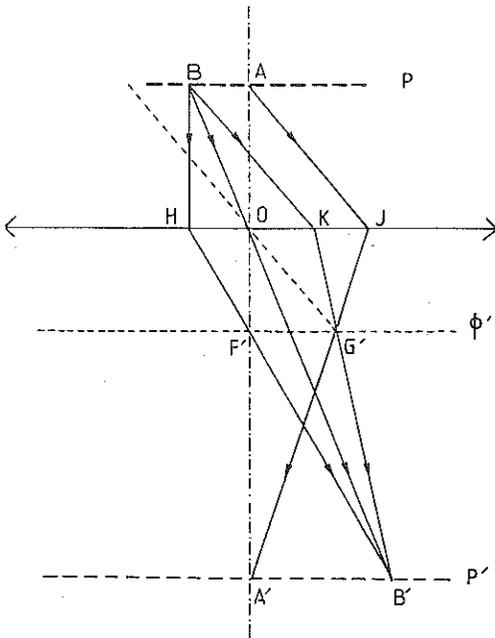
b) Les rayons incidents parallèles à l'axe optique convergent au point focal image F' , image d'une source à l'infini dans la direction de l'axe optique.

c) Tous les rayons inclinés d'un angle θ par rapport à l'axe optique convergent au point G'_θ du plan focal image. Le point G'_θ est défini par le rayon non dévié passant par O (figure 8.a). G'_θ est l'image d'une source à l'infini dans la direction θ .

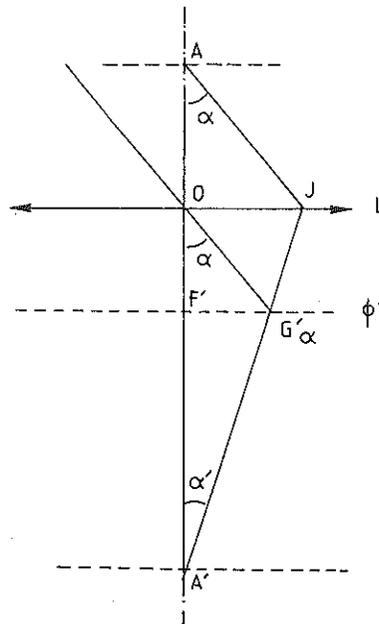
d) Tout rayon incident passant par F émerge parallèlement à l'axe optique.

e) Tout rayon incident passant par un point G du plan focal objet émerge parallèlement à la direction GO .

Etant donné un plan P perpendiculaire à l'axe optique et un objet AB dans ce plan (A sur l'axe optique et B en dehors de l'axe), on peut construire l'image $A'B'$ d'un objet AB de plusieurs façons (figure 8.b). Le rayon AJ faisant un angle θ avec l'axe émerge en passant par le point G' dans ϕ' et converge en A' sur l'axe. Le plan



b) Construction d'image.



c) Ouverture des faisceaux.

P' passant par A' et perpendiculaire à l'axe est l'image du plan objet P. Le rayon BH parallèle à l'axe émerge suivant HF'. Le rayon BO n'est pas dévié. Tous deux convergent en B' dans P'. Les relations d'homotétie visibles dans la figure 8.b permettent de tirer différentes expressions pour le grandissement γ :

$$(2.1) \quad \gamma = \frac{|A'B'|}{|AB|} = \frac{|OA'|}{|OA|} \quad (\text{triangles } OA'B' \text{ et } OAB)$$

$$(2.2) \quad \gamma = \frac{|A'B'|}{|AB|} = \frac{|F'A'|}{|F'O|} \quad (\text{triangles } OHF' \text{ et } F'A'B')$$

f) Le rapport α'/α de l'ouverture α' du faisceau émergent de la lentille à l'ouverture α du faisceau incident sur la lentille est inversement proportionnel au grandissement (figure 8.b):

$$(2.3) \quad \alpha'/\alpha = \frac{|JO|}{|OA'|} \times \frac{|OA|}{|JO|} = 1/\gamma \quad (\text{d'après 2.1})$$

g) Un système de n lentilles de grandissement $\gamma_1, \gamma_2, \dots, \gamma_n$ est équivalent à une lentille unique de grandissement $\Gamma = \gamma_1 \times \gamma_2 \times \dots \times \gamma_n$.

3- LENTILLE REELLE. LIMITE DE RESOLUTION.

Dans la pratique, il n'y a pas de lentille idéale et l'image d'un point est une petite tache, soit un disque de rayon ϱ' . Il y a plusieurs causes d'élargissement de l'image que l'on appelle aberrations. Quelle que soit la cause, elle a pour effet de limiter la résolution de la lentille. En effet, considérons deux points objets et leur image (figure 9). Si les objets sont assez éloignés l'un de l'autre (cas de A et B), les disques images sont séparés et on reconnaît qu'ils correspondent à deux objets séparés. Si les objets sont trop proches (cas de A et C), les disques images se recouvrent et à la limite, se confondent. Dans ce cas on ne peut pas distinguer les deux objets. On estime que les disques images sont confondus lorsque la distance entre les centres A'C' est inférieure au rayon ϱ' . Il en résulte dans l'espace objet un disque dit de confusion, de rayon $\varrho = \varrho'/\gamma$, γ étant le grandissement de la lentille. Tous les points à l'intérieur d'un cercle de confusion donnent des images confondues. La lentille ne permet pas de les distinguer. La valeur ϱ constitue la limite de résolution de la lentille. Comme en microscopie optique ce sont les aberrations de l'objectif qui limitent la résolution du système. Nous considérerons

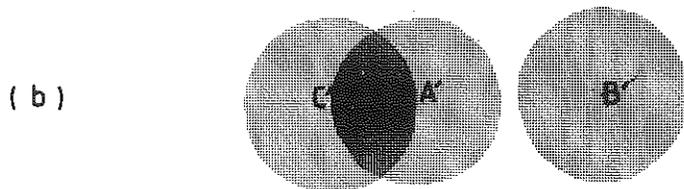
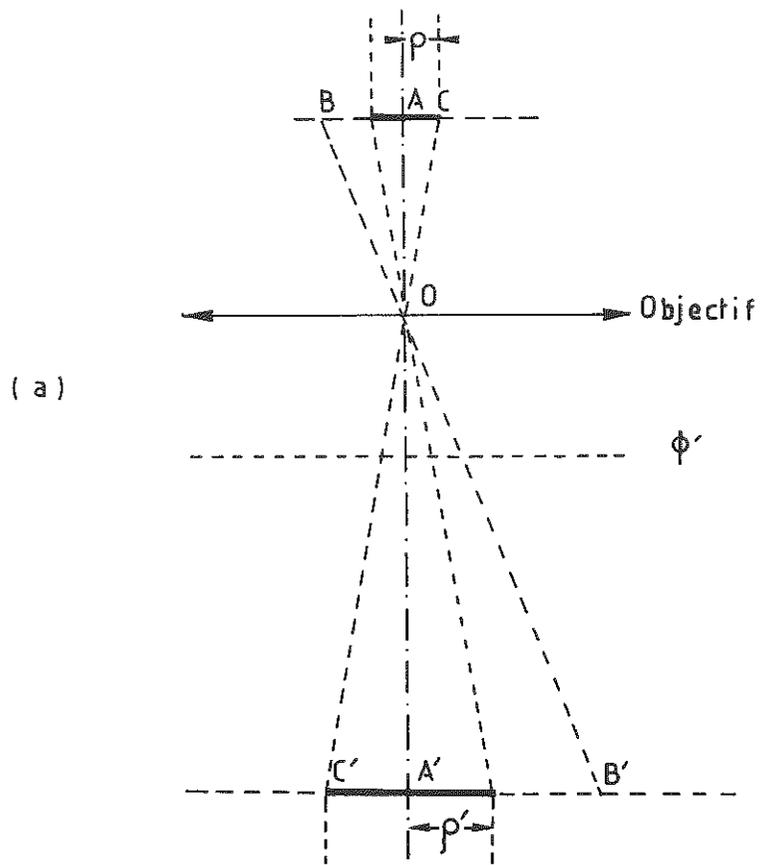


Figure 9 : Tache d'aberration, tache de confusion.

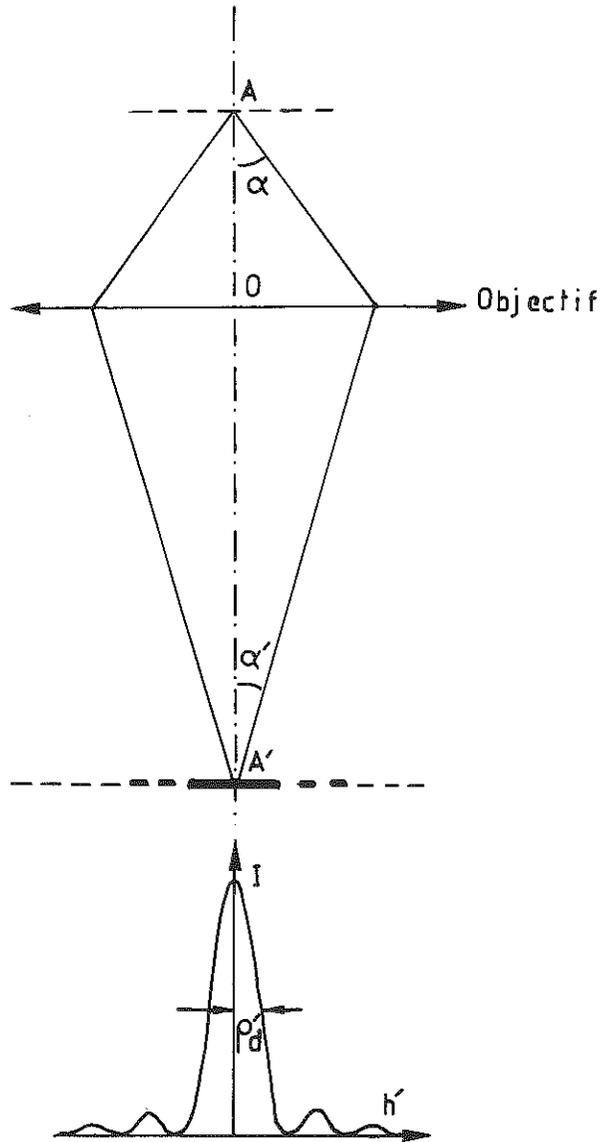


Figure 10 : Effet de diffraction. a) Schéma optique. b) Coupe d'un disque de diffraction : intensité en fonction de la distance au centre.

donc exclusivement les propriétés de l'objectif dans ce paragraphe.

3.1 Effet de diffraction.

Il existe tout d'abord une cause physique d'élargissement de l'image d'un point, c'est la diffraction du rayonnement par l'objectif dont les dimensions sont nécessairement limitées. Par cet effet l'image d'un point est un système d'anneaux appelé disque d'Airy ou d'Abbe (figure 10). Le rayon du premier anneau où se trouve concentrée la majeure partie de l'onde émergente a pour expression: $\varrho_d' = 0,61\lambda/\sin\alpha'$. Dans l'espace objet, le disque de confusion a pour rayon:

$$(3.1) \quad \varrho_d = 0,61\lambda/\sin\alpha$$

La résolution ϱ_d décroît lorsque α croît et atteint une valeur limite ϱ_{dm} égale à $0,61\lambda$ lorsque $\alpha = \pi/2$. La valeur limite ϱ_{dm} ne dépend pas de la qualité des lentilles mais seulement de la longueur d'onde du rayonnement utilisé. Théoriquement donc, on attend un gain en résolution de 10^5 avec l'optique électronique ($\lambda = 4$ à 1.10^{-3} nm) par rapport à l'optique photonique ($\lambda = 0,5-0,2\mu\text{m}$).

3.2 Aberrations géométriques.

Les lentilles électroniques, comme les lentilles de verre de l'optique photonique, ont par ailleurs des défauts de construction, appelés aberrations géométriques, qui ont pour effet d'élargir l'image d'une source ponctuelle. En rayonnement monochromatique, les rayons des disques d'aberrations géométriques sont des fonctions du troisième ordre de α , angle d'ouverture du faisceau et de h , distance de la source à l'axe optique. Pour les lentilles électromagnétiques on dénombre huit types d'aberrations. En microscopie électronique seule l'aberration sphérique qui ne disparaît pas sur l'axe ($h=0$) a de l'importance. De plus, il existe des défauts de symétrie des pièces polaires (astigmatisme) que l'on sait corriger en ajoutant des stigmatiseurs. Enfin il y a l'aberration chromatique c'est-à-dire le défaut de convergence des lentilles en rayonnement polychromatique, celui-ci étant dû au ralentissement des électrons dans l'objet ou à l'instabilité de la haute tension.

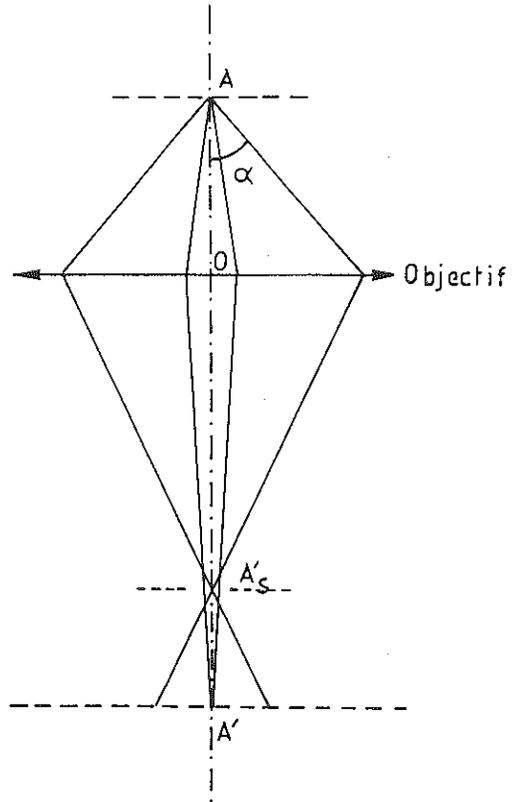


Figure 11 : Aberration sphérique.

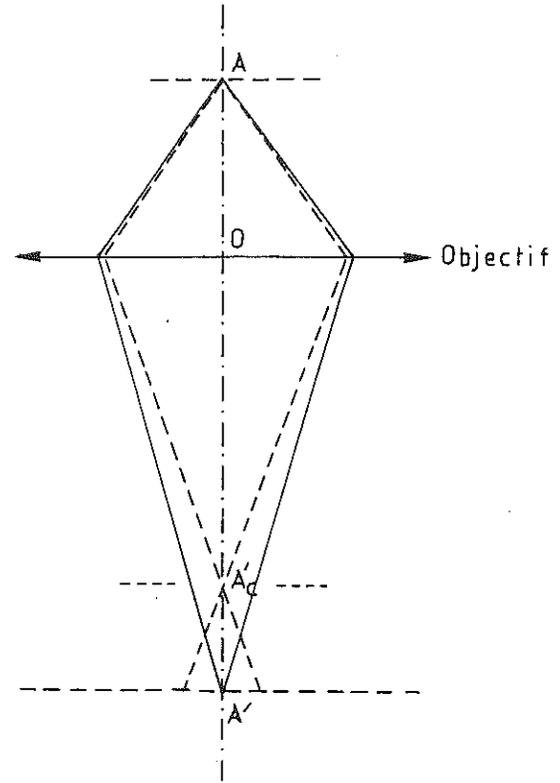


Figure 12 : Aberration chromatique.

L'aberration sphérique est le principal défaut de l'objectif (figure 11). Les électrons suivant une trajectoire proche de l'axe convergent en A', image paraxiale de A, et ceux dont la trajectoire fait un angle α avec l'axe convergent au point A'_s à une distance $A'_s A' = C_s \alpha^2 = \gamma C_s \alpha^2$. C_s est la constante d'aberration sphérique et γ le grandissement de l'objectif. Le disque de plus faible section du faisceau émergent se trouve entre A'_s et A'. On le considère comme l'image de A. Il a pour rayon $\rho'_s = (1/4)C_s \alpha^3$. Dans l'espace objet le disque de confusion a pour rayon:

$$(3.2) \quad \rho_s = (1/4)C_s \alpha^3$$

L'aberration chromatique est due à ce que, dans un faisceau polychromatique, les électrons les plus lents sont les plus déviés et convergent en un point A'_c plus proche de l'objectif (figure 12). Comme dans le cas précédent il en résulte un disque d'aberration dans le plan image, et dans le plan objet, un disque de confusion dont le rayon est donné par la formule:

$$(3.2) \quad \rho_c = C_c \alpha \Delta E / E$$

C_c étant la constante d'aberration chromatique et ΔE la dispersion d'énergie.

En microscopie optique, les objectifs sont composés d'empilements de verres de différents indices, avec des surfaces et des interfaces compliquées. Des combinaisons de ces différents paramètres permettent d'obtenir des objectifs utilisables à pleine ouverture, $\alpha = \pi/2$, et d'atteindre la limite de résolution théorique de 0,2 μm . Pour la microscopie électronique, les efforts se portent sur la topographie du champ entre les pièces polaires de l'objectif. Malgré les progrès technologiques, les objectifs électromagnétiques restent imparfaitement corrigés. Pour réduire le disque de confusion on est amené à réduire l'ouverture α des faisceaux électroniques.

Actuellement les objectifs magnétiques les mieux corrigés ont une constante d'aberration sphérique $C_s \sim 1\text{mm}$. Dans ce cas le disque de confusion a un rayon ρ_s égal à 1nm avec une ouverture α de l'ordre de $1,6 \cdot 10^{-2}$ rd. L'ouverture des faisceaux utilisés en microscopie électronique justifie l'approximation des petits angles:

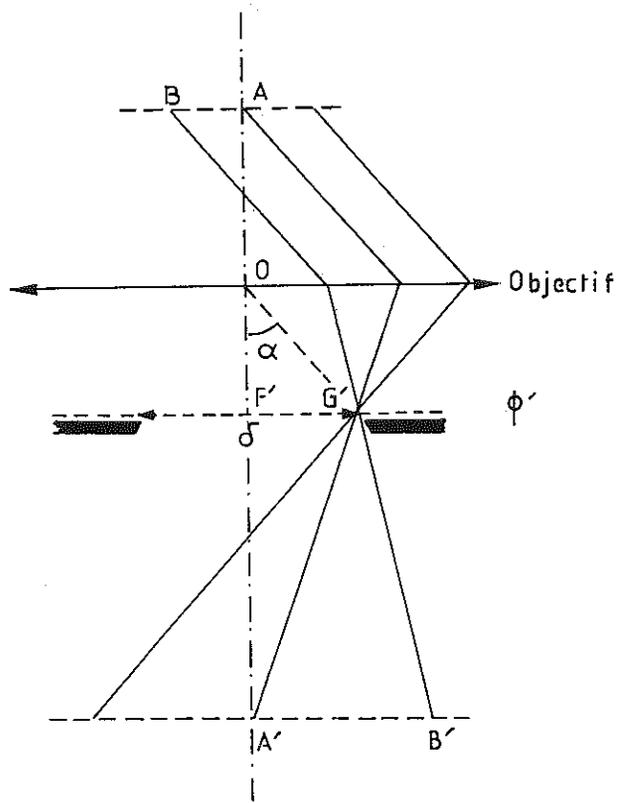


Figure 13 : Diaphragme d'ouverture.

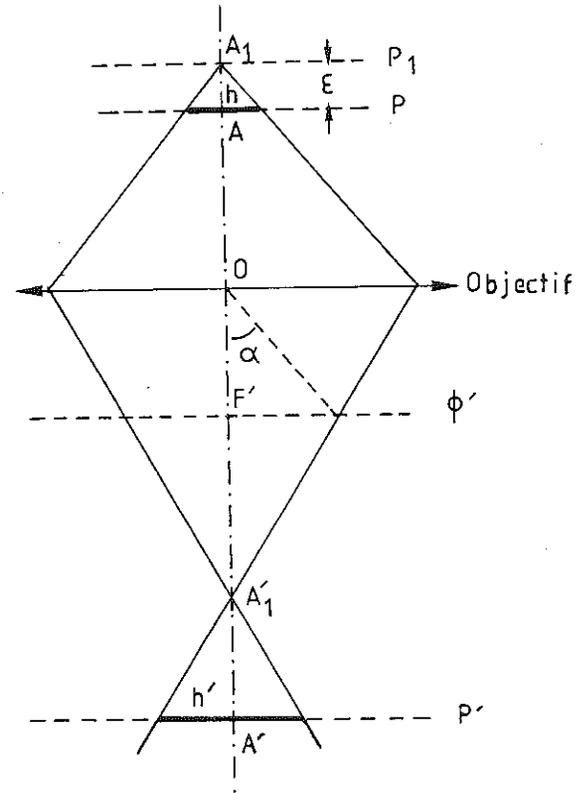


Figure 14 : Profondeur de champ.

$$\alpha \approx \sin \alpha \approx \operatorname{tg} \alpha.$$

3.3 Limite de résolution de l'objectif.

L'effet des aberrations géométriques et celui de la diffraction varient en sens inverse lorsque l'ouverture de l'objectif varie. C'est pourquoi il faut adopter un compromis. Pour une ouverture α donnée, le disque de confusion résultant de causes indépendantes a pour expression:

$$(3.4) \quad \rho = \sqrt{(\rho_d^2 + \rho_s^2 + \rho_c^2)}$$

La limite de résolution ρ_m se calcule en minimisant la fonction $\rho(\alpha)$. On peut généralement négliger le terme d'aberration chromatique. Dans ce cas ρ est minimum pour une valeur α_m telle que

$$(3.5) \quad \alpha_m^4 = 1,4 \lambda / C_s$$

Avec $C_s = 1\text{mm}$ et $\lambda = 4 \cdot 10^{-3}\text{nm}$ on a $\alpha_m = 0,86 \cdot 10^{-2}\text{rd}$, d'où:

$$\rho_s = 0,16\text{nm}$$

$$\rho_d = 0,28\text{nm}$$

$$\rho_m = 0,32\text{nm}$$

Ainsi, à cause de l'aberration sphérique, le gain en résolution des lentilles électromagnétiques par rapport aux lentilles optiques est de l'ordre de 10^3 au lieu de 10^5 .

3.4 Diaphragme d'ouverture.

L'ouverture α de l'objectif est matérialisée par un diaphragme placé dans le plan focal image ϕ' de l'objectif (figure 13). Soit δ le diamètre du diaphragme et f' la distance focale de l'objectif. Les rayons issus de l'objet dans un cône de demi-angle $\alpha = \delta/2f'$ convergent au plan focal image en des points situés à l'intérieur du diaphragme et poursuivent leur trajet pour former l'image. Les rayons dirigés à l'extérieur de ce cône sont arrêtés par le diaphragme et ne participent plus à la formation de l'image.

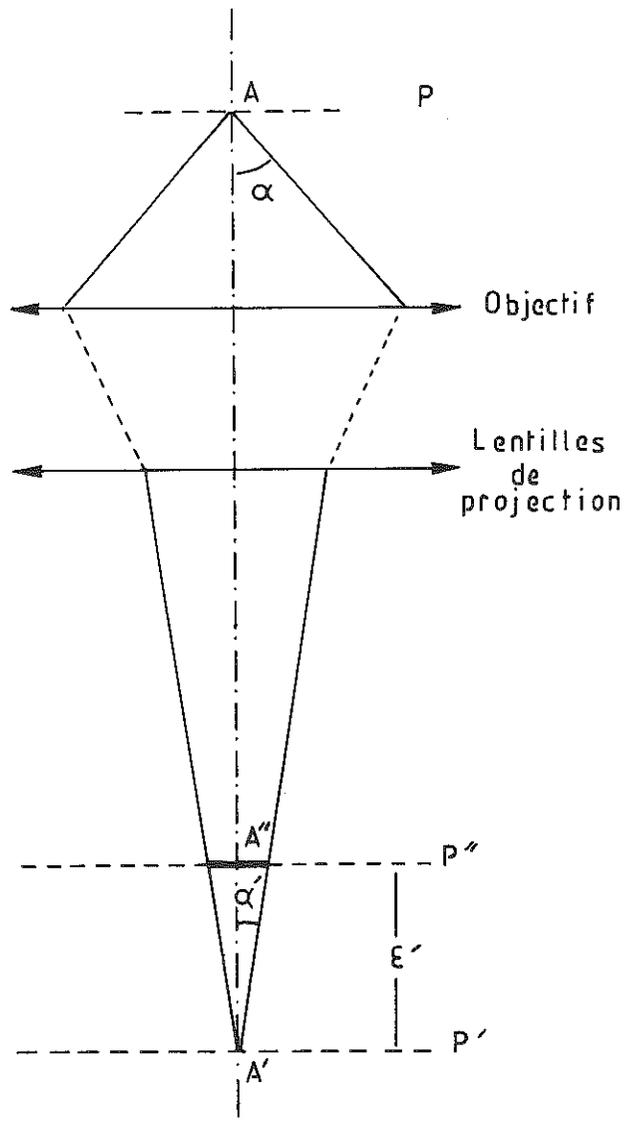


Figure 15 : Latitudo de mise au point (profondeur de foyer).

4.- PROFONDEUR DE CHAMP ET LATITUDE DE MISE AU POINT.

Du fait que l'image est entachée d'aberration, on peut déplacer l'objet d'une certaine quantité ϵ le long de l'axe optique, en gardant la même netteté dans le plan fixe où l'on recueille l'image. On appelle ϵ la profondeur de champ. Soient en effet un objectif utilisé avec une ouverture α , un point objet A dans le plan P et son image A' dans le plan P' (figure 14). Si on déplace A en A₁, le faisceau incident coupe P suivant un disque de rayon $h = AA_1 \alpha$ et le faisceau émergent coupe P' suivant un disque de rayon $h' = \gamma h$. Si h est inférieur au rayon ρ de la tache de confusion, h' est inférieur à ρ' et le disque de rayon h' constitue une image de A₁ qui n'est pas plus floue que celle de A. La profondeur de champ ϵ est la distance pour laquelle $h = \rho$ c'est à dire:

$$(4.1) \quad \epsilon = \rho / \alpha.$$

Avec un objectif d'aberration sphérique $C_s = 1\text{mm}$, si on utilise une ouverture $\alpha = 1,6 \cdot 10^{-2} \text{rd}$ la résolution ρ est égale à 1nm et la profondeur de champ $\epsilon = 63\text{nm}$. Si l'on veut la résolution $\rho_m = 0,32\text{nm}$ on travaille avec l'ouverture $\alpha_m = 0,86 \cdot 10^{-2} \text{rd}$, et ϵ se réduit à 37nm . La profondeur de champ est relativement grande en comparaison du champ observé ce qui permet d'incliner l'objet par rapport à l'axe optique en gardant la netteté dans tout le champ. Par exemple, avec $\epsilon = 66\text{nm}$ on peut incliner l'objet d'environ 10° et garder une résolution de 1nm dans un champ d'environ $2\mu\text{m}$ de rayon. La grande profondeur de champ permet d'effectuer des vues stéréoscopiques des objets en vue d'études tridimensionnelles. Par ailleurs, elle est pleinement utilisée dans toutes les applications cristallographiques qui nécessitent l'examen de l'objet suivant différents angles.

Pour la même raison que précédemment on peut déplacer le plan image d'une quantité ϵ' le long de l'axe optique, l'objet étant fixe, sans perdre en netteté. On appelle ϵ' latitude de mise au point ou profondeur de foyer. Ce qui nous intéresse ici, c'est la latitude de mise au point au niveau de l'image finale après traversée des lentilles de projection. La figure 15 montre que si l'on déplace le plan image de P' en P'', le faisceau émergent coupe P'' suivant un cercle de rayon $k' = A'A''\alpha' = A'A''\alpha/\Gamma$, Γ étant le grandissement total du système. La latitude de mise au point ϵ' est

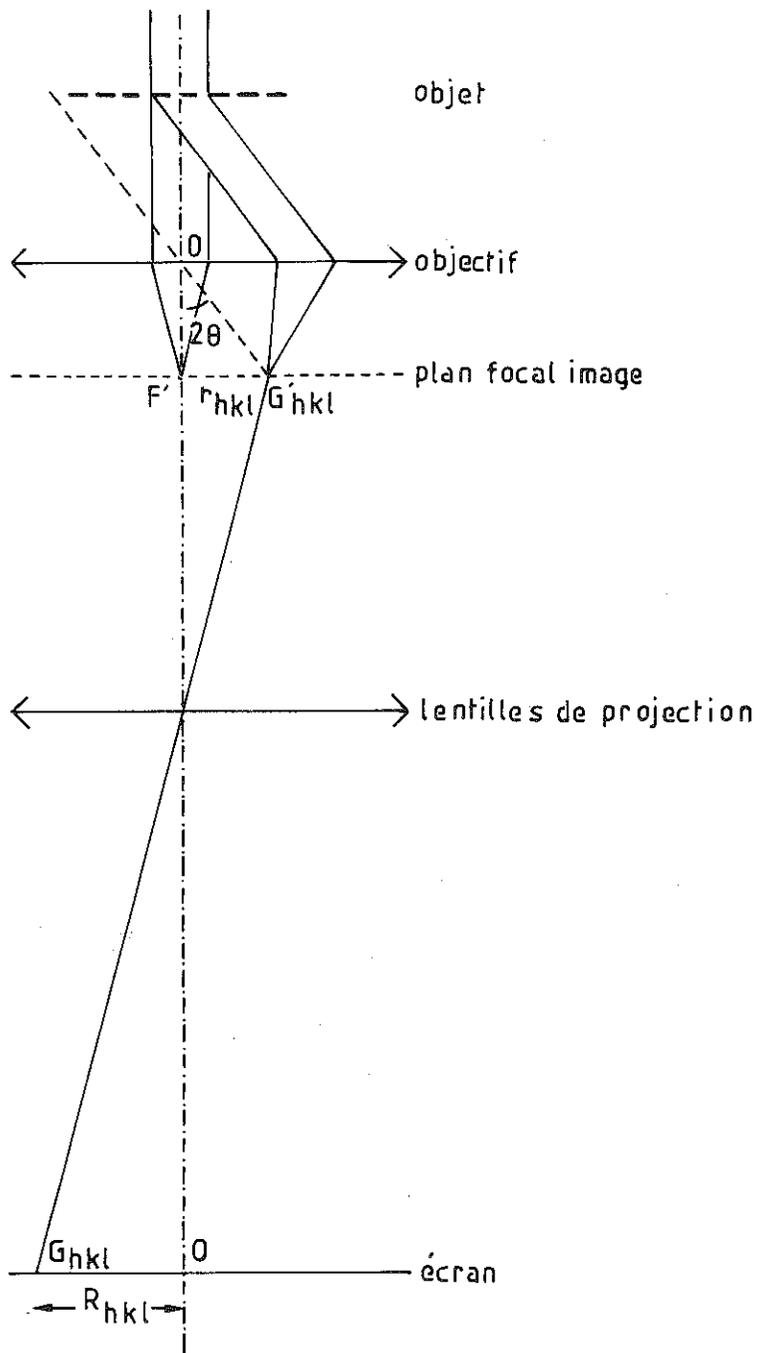


Figure 16 : Formation du diagramme de diffraction.

la valeur $A'A''$ pour laquelle $k' = \rho'$ rayon de la tache de confusion dans l'espace image final, c'est-à-dire:

$$(4.2) \quad e' = r^2 \rho / \alpha$$

Pour une résolution $\rho = 1\text{nm}$ et une ouverture $\alpha = 1,5 \cdot 10^{-2}\text{rd}$, on a pour latitude de mise au point $e' = 6, 60$ et 600m respectivement avec des grossissements $r = 10^4, 3 \cdot 10^4$ et 10^5 . C'est pour cette raison que l'on peut mettre au point l'image sur un écran et l'enregistrer sur un film situé dans un autre plan.

5. FORMATION ET CONTRASTE D'IMAGE EN MICROSCOPIE ELECTRONIQUE

L'optique considérée jusqu'ici s'applique indifféremment à la la microscopie photonique ou électronique, aux ordres de grandeurs près (λ , α et donc ρ). Dans ce paragraphe nous allons considérer la formation du contraste d'image qui est un aspect plus spécifique de la microscopie électronique. Tout le processus de formation d'image se situe entre l'objet et l'image intermédiaire donnée par l'objectif. Nous nous centrerons donc sur cette partie du microscope.

5.1 Diagramme de diffraction (figure 16).

Le faisceau incident presque parallèle est diffusé par l'objet. Si l'objet est cristallin la diffusion élastique prend la forme d'un ou de plusieurs faisceaux diffractés qui s'écartent de l'axe optique de petits angles 2θ ($\sim 5 \cdot 10^{-3}$ à 10^{-2}rd). Chaque faisceau diffracté suivant l'angle $2\theta_{hkl}$ vient converger dans le plan focal image de l'objectif au point G'_{hkl} à une distance r_{hkl} du foyer F' . Avec l'approximation des petits angles:

$$(5.1) \quad r_{hkl} = 2\theta_{hkl} f' = f' \lambda / d_{hkl} = f' \lambda g_{hkl}$$

d_{hkl} étant la distance réticulaire des plans diffractant et $g_{hkl} = 1/d_{hkl}$, le module du vecteur réciproque correspondant. On recueille donc dans le plan focal image un diagramme de diffraction homothétique à une coupe du réseau réciproque. Au diagramme de diffraction se superpose un fond continu provenant de la diffusion

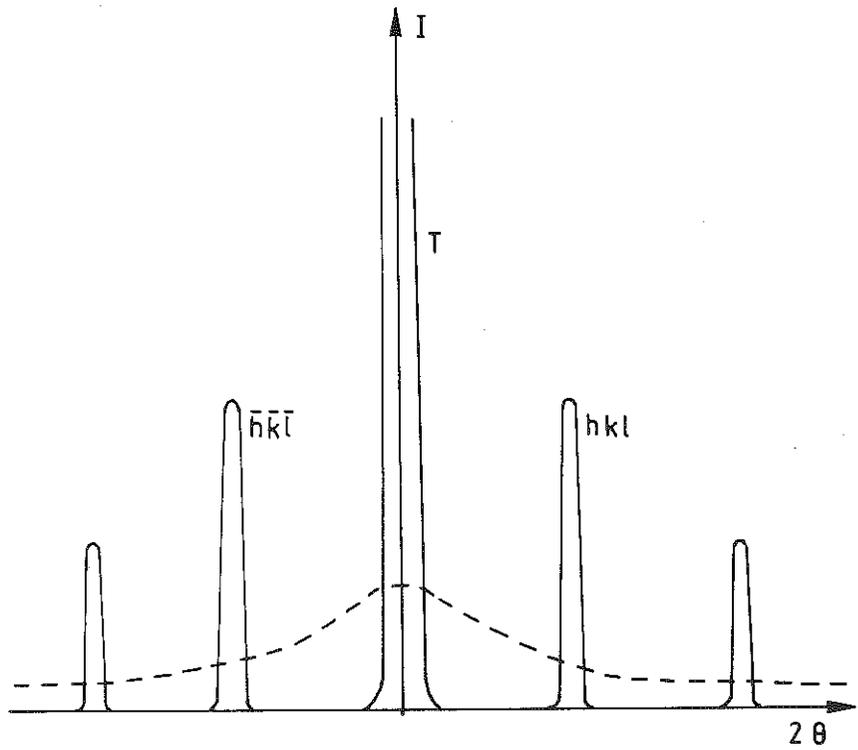


Figure 17 : Diagramme de diffraction : intensité en fonction de la distance au centre. Trait plein: pics de diffraction. Trait tireté: fond continu de diffusion inélastique.

inélastique dans toutes les directions de l'espace (figure 17). Lorsque le cristal est épais, les électrons diffusés inélastiquement peuvent subir une seconde diffusion élastique qui par diffraction donne un diagramme de lignes dites de Kikuchi. Ce diagramme permet de repérer avec une très grande précision l'orientation du cristal (Hirsch et al. 1965). Lorsque l'objet n'est pas cristallisé, on obtient dans le plan focal image ϕ' un diagramme diffus avec une distribution d'intensité en fonction de la distance au centre, $I(r)$, représentant l'intensité diffusée par l'objet en fonction de l'angle, $I(2\theta)$. La Planche 1 montre des exemples de diagrammes de diffraction.

En excitant les lentilles de projection convenablement on peut obtenir sur l'écran d'observation une image du diagramme de diffraction avec le centre du diagramme en O, image de F' et le spot de diffraction en G_{hkl} image de G'_{hkl} . La distance OG_{hkl} est donnée par la formule: $R_{hkl} = \gamma r_{hkl}$, γ étant le grandissement du système de projection en mode diffraction. En remplaçant r_{hkl} par les expressions (5.1), on a:

$$(5.2) \quad g_{hkl} = 1/d_{hkl} = \frac{R_{hkl}}{L\lambda}$$

On voit qu'on peut déterminer d_{hkl} ou g_{hkl} en mesurant R_{hkl} , connaissant $L\lambda$. La grandeur $L = \gamma f'$ est appelée longueur de caméra parce que $R_{hkl}/L = \lambda/d_{hkl} = 2\theta_{hkl}$. La longueur de caméra L et la constante $K = L\lambda$ dépendent des caractéristiques optiques des lentilles de projection en mode diffraction et de la longueur d'onde λ . Il est généralement nécessaire de la mesurer en utilisant un objet étalon dont on connaît les distances réticulaires.

5.2 Diffraction en aire sélectionnée.

Il existe deux façons de sélectionner une aire de diffraction sur l'objet. Dans les microscopes classiques, on place dans le plan de l'image intermédiaire un diaphragme de diamètre Δ' que l'on appelle diaphragme de champ ou de sélection (figure 18). Le cercle de diamètre Δ' est l'image du cercle de diamètre Δ dans l'objet. Les rayons transmis et diffusés par tout point intérieur au cercle de diamètre Δ traversent le diaphragme de sélection et viennent former le diagramme de diffraction final après passage dans les

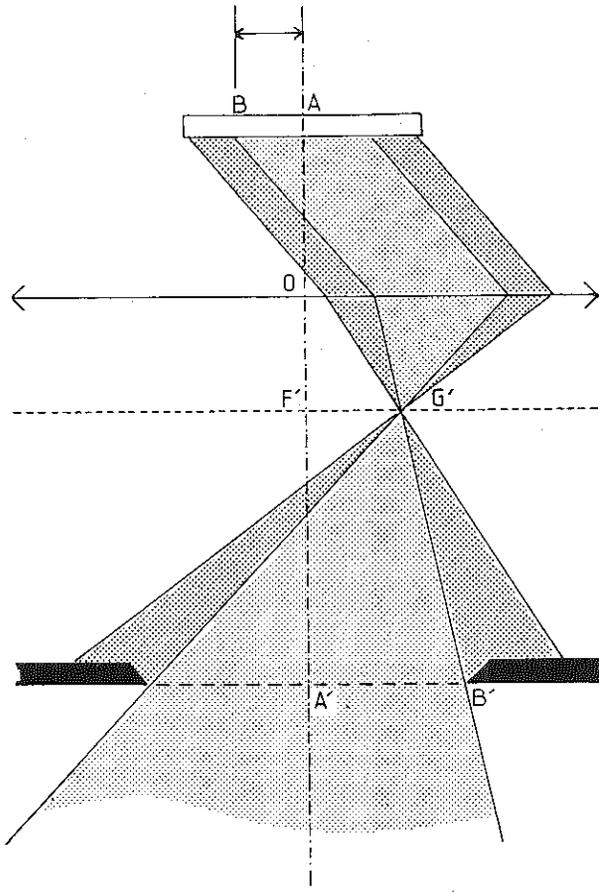


Figure 18 : Diaphragme de sélection.

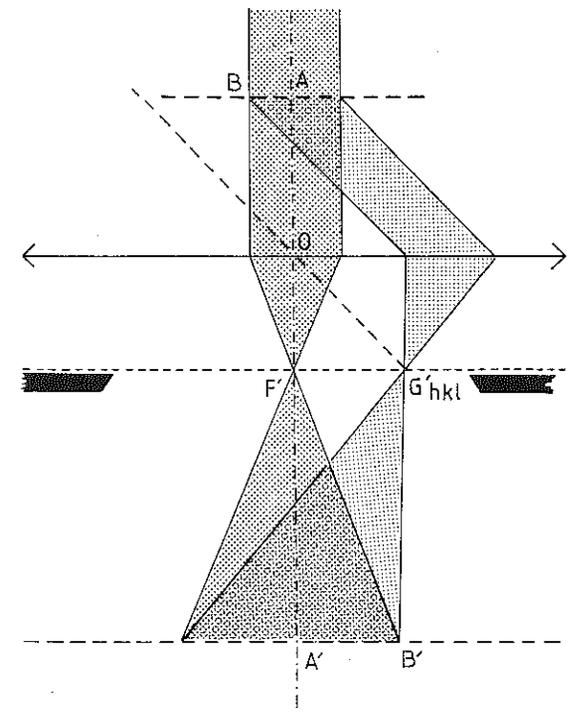


Figure 19 : Microscopie électronique à haute résolution.

lentilles de projection. Au contraire les rayons transmis et diffractés par tout point extérieur à ce cercle sont arrêtés et ne participent plus à la formation du diagramme de diffraction final. Ainsi on sélectionne une partie de l'objet pour former le diagramme de diffraction. Le diamètre minimal de l'objet sélectionné est de l'ordre de $1\mu\text{m}$, compte tenu de la taille minimale réalisable pour les diaphragmes ($10\text{-}20\mu\text{m}$) et du grandissement de l'objectif ($\times 10\text{-}20$).

Dans les microscopes munis de système de balayage, on peut réduire la section du faisceau incident sur l'objet jusqu'à une valeur d'environ 10nm . Dans ce cas on peut sélectionner directement sur l'objet un champ diffractant dont le diamètre est égal à la section du faisceau électronique.

5.3 Formation d'image.

Avec les objectifs très performants actuels ($C_s=1\text{-}5\text{mm}$), il y a deux modes d'observation distincts.

Mode de haute résolution (figure 19).

On travaille avec un faisceau d'ouverture égale ou un peu supérieure à α_m , l'ouverture correspondant à la limite de résolution du microscope. Si l'objet est un cristal, on admet dans l'objectif le faisceau transmis et un ou plusieurs faisceaux diffractés. L'image résulte alors d'interférences entre le faisceau transmis et le ou les faisceaux diffractés. Cette méthode permet de visualiser les plans cristallins, de déterminer la structure cristalline avec la résolution de l'objectif. Elle permet aussi d'étudier les défauts cristallins avec la même précision. Toutefois des conditions expérimentales très strictes s'imposent et limitent la généralité des études. (J. Thibault-Desseaux, ce volume). La planche 1 montre un exemple d'image en haute résolution.

Mode de moyenne résolution(figure 20).

On choisit un faisceau d'ouverture $\alpha < \alpha_m$, de l'ordre de 10^{-3}rd . On forme l'image soit avec le faisceau transmis (image en champ clair), soit avec un faisceau diffracté (image en champ sombre). Ce faisant on perd en résolution à cause des effets de diffraction de l'objectif ($e_d \sim 1\text{-}2\text{nm}$), mais on bénéficie de

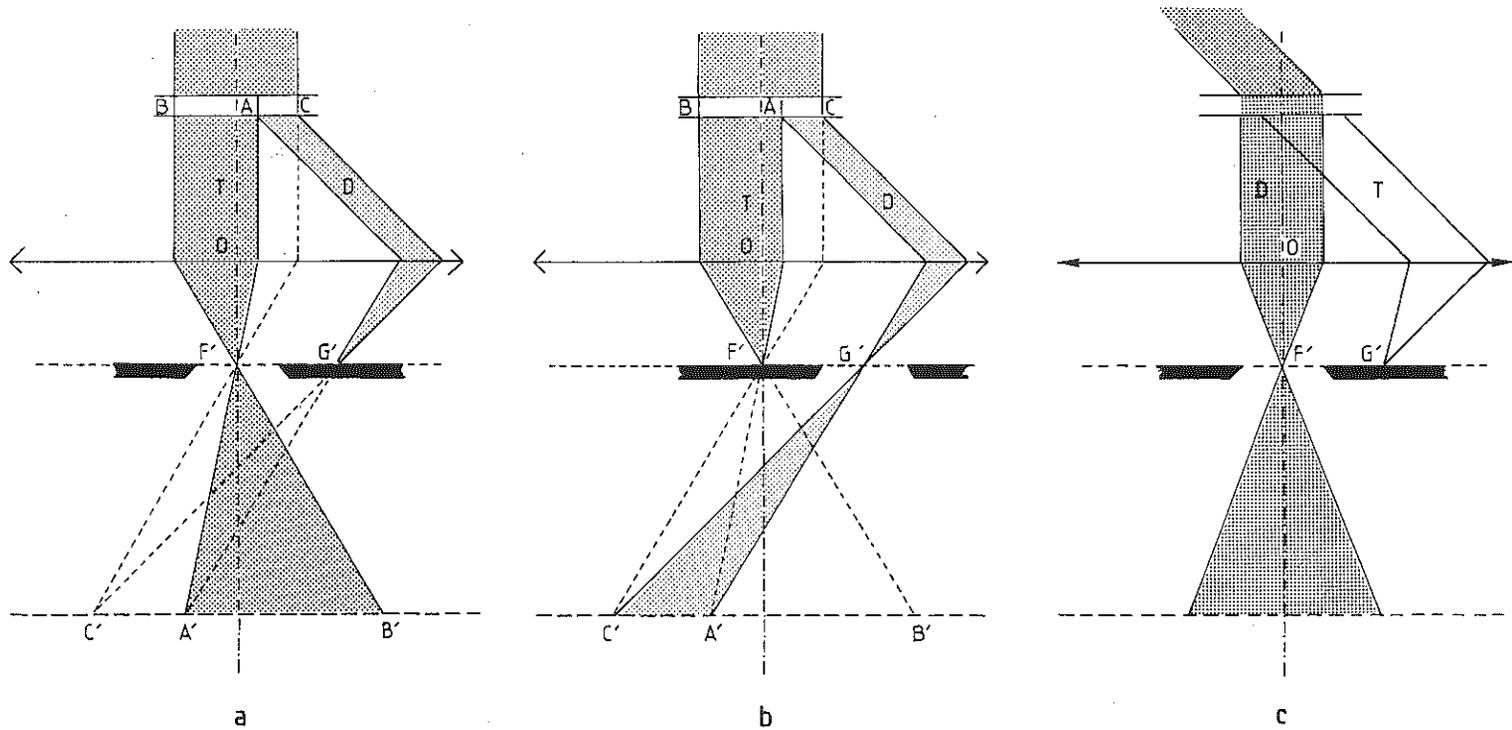


Figure 20 : Microscopie électronique à moyenne résolution.

- a) Image en champ clair : la zone AB diffracte peu et transmet bien les électrons, son image A'B' est claire; la zone AC diffracte bien et transmet peu d'électrons, son image est sombre.
- b) Image en champ sombre : seules les images des zones en position de Bragg pour la réflexion choisie sont éclairées.
- c) Image en champ sombre avec le faisceau incident incliné par rapport à l'axe optique et le faisceau diffracté suivant l'axe.

contrastes intéressants. L'intensité du faisceau transmis ou diffracté qui vient former l'image dépend en effet de différents facteurs: nature des atomes, épaisseur de cristal, orientation du cristal par rapport au faisceau incident. Le contraste de l'image est alors produit par la variation de l'un de ces paramètres dans les différentes parties de l'objet. Avec des objets minces, on admet que tous les électrons incidents se retrouvent soit dans le faisceau transmis soit dans les faisceaux diffractés (ou diffusés, s'il s'agit d'objets amorphes). On peut alors interpréter qualitativement les images. En champ clair (figure 20.a) les parties qui diffusent peu, donc qui transmettent bien les électrons, donnent une image claire. C'est le cas des trous dans les membranes support, des zones riches en éléments légers, des bords de cristaux, des zones cristallines loin de toute position de Bragg. En champ sombre au contraire (figure 20.b) les parties qui diffusent beaucoup, ou les parties de cristal en position de Bragg pour le faisceau diffracté sélectionné par le diaphragme d'ouverture donnent une image claire tandis que le reste de l'image est sombre. Il est commode de distinguer les cas extrêmes: le contraste de facteur de diffusion atomique est dû à des variations chimiques et peut se produire pour tout objet, y compris un amorphe; le contraste de diffraction propre aux cristaux est produit par toute variation des paramètres de diffraction. L'interprétation du contraste est développée par A.Gervais dans ce volume. Malgré une résolution moins poussée, ce mode reste très utilisé notamment pour l'analyse des défauts. La Planche 2 donne des exemples d'images d'objets amorphes et cristallins. -

Dans la pratique, la technique indiquée sur la figure 20.b pour former une image en champ sombre n'est pas recommandée. Cette technique consiste à déplacer le diaphragme d'ouverture dans le plan focal f' pour le centrer sur un faisceau diffracté. Dans ce cas, le faisceau diffracté traverse l'objectif en faisant un angle $2\theta_{hkl}$ avec l'axe optique, ce qui n'est pas idéal pour la formation d'image. Il est préférable de suivre la technique indiquée sur la figure 20.c. On incline le faisceau incident d'un angle 2θ ce qui amène le faisceau diffracté sur l'axe optique, en position optimale pour former l'image. Les microscopes possèdent tous des défectrices pour incliner le faisceau incident. Ils permettent aussi de passer du mode image au mode diffraction par simple commutation d'une des

lentilles de projection. Pour obtenir une image en champ sombre, on se place en mode diffraction et on règle les défectrices de façon à incliner le faisceau incident de l'angle $2\theta_{hkl}$ choisi et à amener le faisceau diffracté hkl suivant l'axe optique. Puis on centre le diaphragme d'objectif sur l'axe optique et on passe en mode image, soit en champ clair, en coupant l'excitation des défectrices, soit en champ sombre, en excitant les défectrices .

Quel que soit le mode d'observation, haute ou moyenne résolution, l'étude d'un cristal requiert l'exploitation conjuguée de l'image et de la diffraction. La planche 3 illustre quelques exemples de leur complémentarité.

Remerciements. Je remercie tous mes amis qui ont contribué à ce chapitre: A.Gervais, C. Guillemin, T.Moudda-Azzem, A. Ramos, J. Thibault-Desseaux, C.Willaime, Y. Zheng.

BIBLIOGRAPHIE

DE BROGLIE L., 1950, "Optique électronique et corpusculaire", Paris, Hermann.

DUPOUY G., 1952, "Eléments d'optique électronique", Collection Armand Collin.

HIRSCH P.B., HOWIE A., NICHOLSON R.B., PASHLEY D.W., WHELAN M.J., 1965, "Electron Microscopy of thin Crystals", London, Butterworths.

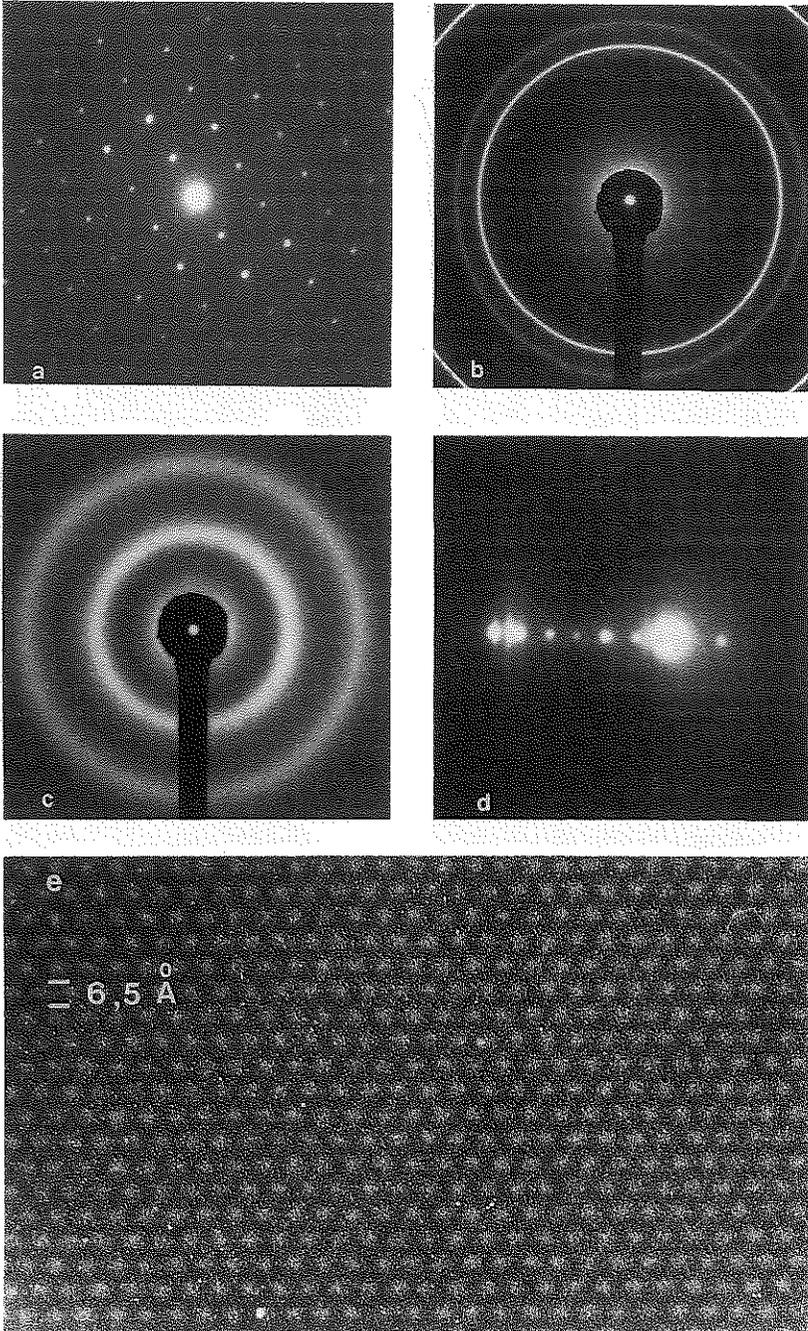


Planche 1. Diagrammes de diffraction. a) Monocrystal, faisceau d'électrons parallèle à un axe de zone $[u,v,w]$ b) Polycristal c) Amorphe : anneaux diffus créés par l'ordre à courte distance dans l'objet d) Lignes de Kikuchi, cristal en position de diffraction pour une famille de plans (h,k,l) e) Image en mode de haute résolution. Cristal de sanidine (feldspath alcalin).

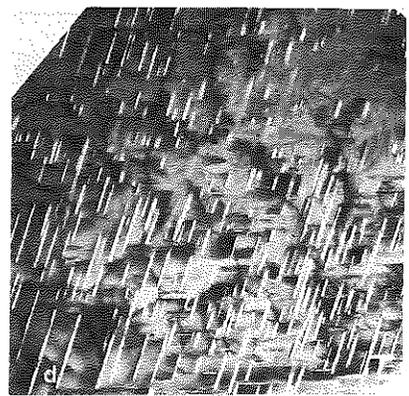
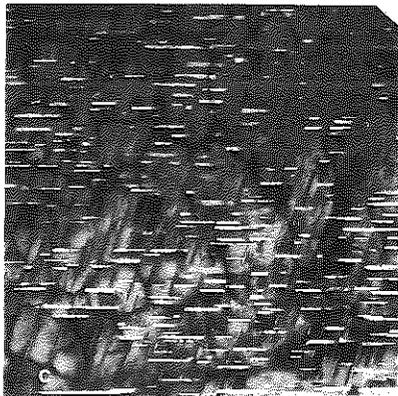
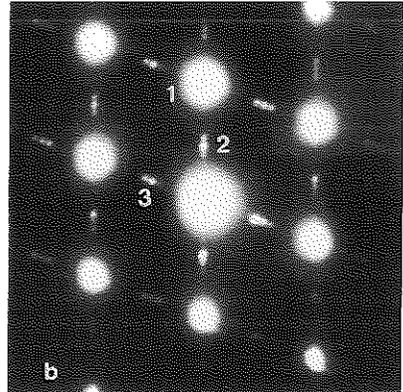
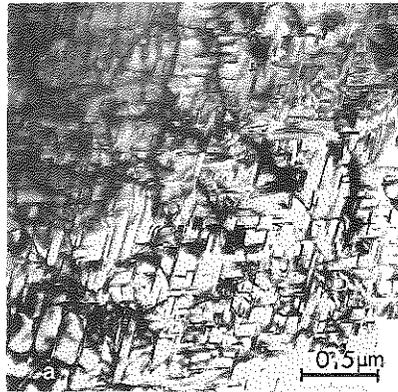
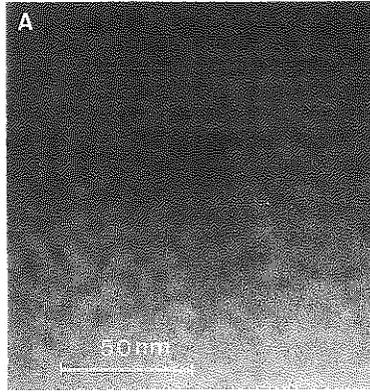


Planche 2. Images en mode de moyenne résolution. A) Verre de composition spodumène (champ clair) : fluctuations d'éclairement causées par des fluctuations de composition chimique de période $\lambda = 5-15$ nm. a-d) Précipités de carbure de silicium, SiC, dans une matrice de silicium. a) : image en champ clair. b) : diffraction: la matrice de silicium donne le réseau de taches de type 1, les précipités donnent les taches de types 2 et 3. c) : image en champ sombre avec les taches 2. d) : image en champ sombre avec les taches 3.

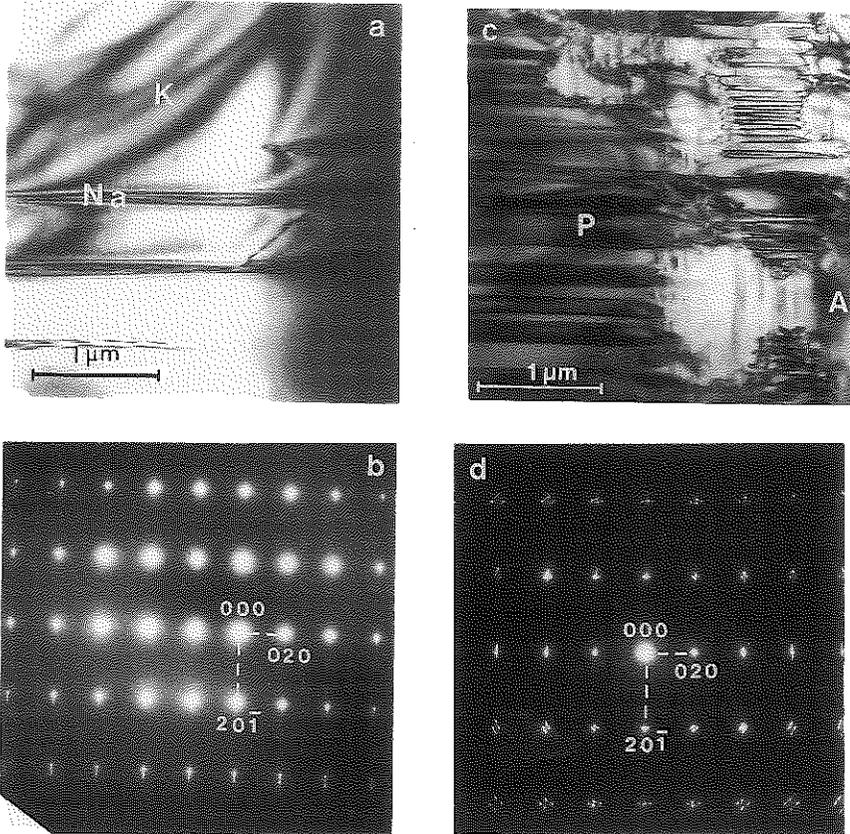


Planche 3. Feldspaths alcalins, $(K, Na) AlSi_3O_8$. a et b) : domaines sodiques dans une matrice potassique. a) : image en champ clair; b) : diffraction, axe de zone $[102]$. La différence de paramètres entre zones sodiques et potassiques cause un dédoublement des taches suivant la direction $[20\bar{1}]^*$. c et d) : microcline. c) : image en champ clair; A, macles d'albite; P, macles du péricline. d) : diffraction, axe de zone $[102]$. La différence d'orientation entre les domaines maclés cause un dédoublement des taches, suivant la direction $[20\bar{1}]^*$ pour les macles d'albite, et suivant la direction $[010]^*$ pour les macles du péricline.

CHAPITRE IV

DEFAUTS CRISTALLINS

par Christian WILLAIME



DEFAUTS CRISTALLINS

par C. Willaime

Un cristal est défini comme un empilement triplement périodique d'atomes. Aucun cristal ne respecte rigoureusement cette définition; les cristaux comportent en effet des défauts en quantité plus ou moins importante. La présence de ces défauts confère au cristal des propriétés particulières, ou est révélatrice d'événements subis antérieurement par le cristal. La mise en évidence et la caractérisation de ces défauts sont donc utiles pour déterminer les propriétés du cristal. Certains de ces défauts peuvent être étudiés par microscopie électronique; leurs caractéristiques géométriques et quelques indications sur les propriétés auxquelles ils sont associés font l'objet de ce chapitre.

On peut classer les défauts cristallins selon leur dimensionalité : défauts à zéro, une, deux ou trois dimensions.

Défauts de dimension 0, ou défauts ponctuels.

Il s'agit d'atomes manquants (ou lacunes), d'atomes supplémentaires (ou interstitiels), d'atomes ayant été remplacés par des éléments différents (ou défauts de substitution), ou de la combinaison de ces possibilités, avec conservation de la neutralité de charge. Ces défauts ponctuels ne distordent pas notablement les plans réticulaires, et ne peuvent donc pas être détectés par microscopie électronique. La concentration à l'équilibre thermodynamique des interstitiels et des lacunes, de même que leur vitesse de diffusion augmentent avec la température: les lacunes interviennent dans les processus de déformation à haute température.

Défauts de dimension 1. Dislocations.

Si on effectue dans un cristal une coupure limitée par une ligne, et que l'on fait glisser les deux lèvres de la coupure l'une par rapport à l'autre, on crée une dislocation. La limite de la coupure est la ligne de dislocation, le vecteur déplacement lors du glissement est le vecteur de Burgers \underline{b} de la dislocation (Figure 1). Le caractère d'une dislocation est défini selon l'angle entre son vecteur de Burgers \underline{b} , et un vecteur unitaire porté par la ligne de dislocation : \underline{u} . Si \underline{b} est perpendiculaire à \underline{u} , la dislocation est coin; si \underline{b} est parallèle à \underline{u} , la dislocation est vis; pour les cas intermédiaires, la dislocation est mixte. Une ligne de dislocation n'est pas nécessairement une droite: Le caractère de la dislocation peut donc varier d'un point à un autre; \underline{u} varie, mais \underline{b} reste constant pour une même dislocation. Pour une dislocation dite entière, Le vecteur de Burgers est une translation du réseau.

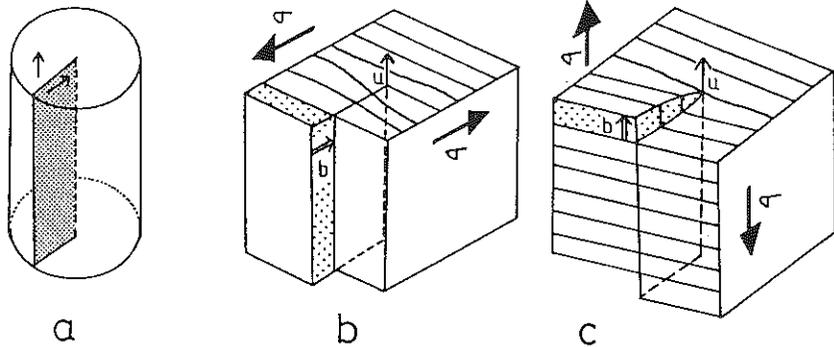


Fig.1 Dislocations.

- (a) Obtention d'une dislocation par coupure du cristal et glissement d'une lèvre de la coupure par rapport à l'autre.
- (b) Dislocation coin: \vec{b} , vecteur de Burgers perpendiculaire à \vec{u} (vecteur unitaire porté par la ligne de dislocation).
- (c) Dislocation vis: \vec{b} parallèle à \vec{u} .

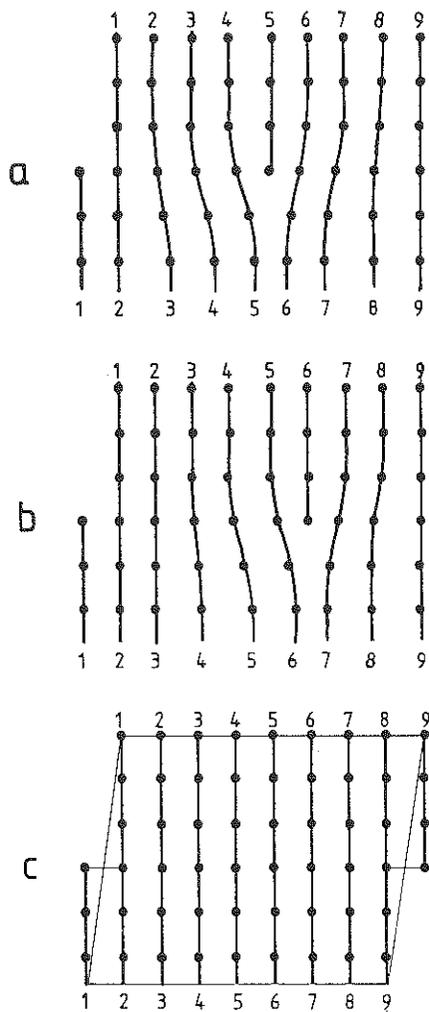


Fig.2 Mouvement d'une dislocation par glissement.

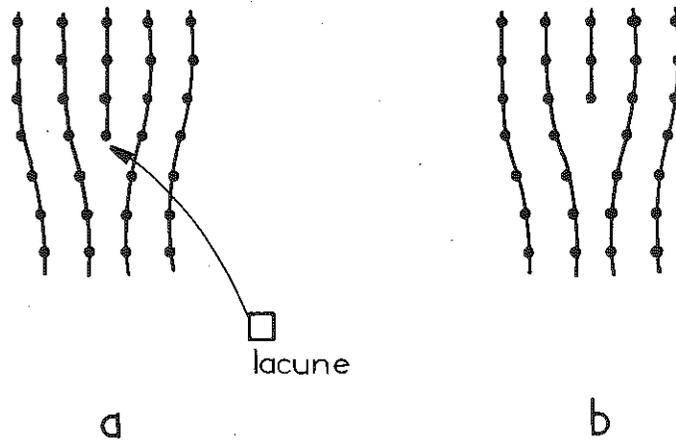


Fig.3 Mouvement d'une dislocation par montée.

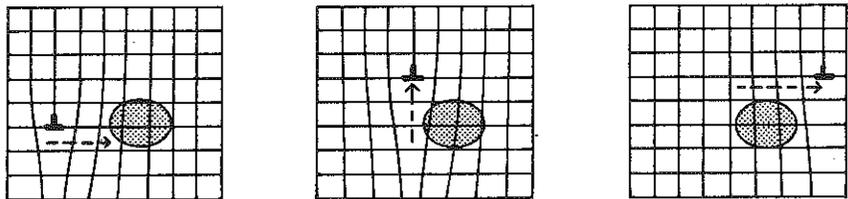


Fig.4 Mouvement d'une dislocation: combinaison du glissement et de la montée pour contourner un obstacle.

Mouvement des dislocations. Déformation plastique.

• Glissement (Figure 2)

Sous l'effet d'une contrainte de cisaillement parallèle au vecteur de Burgers, la ligne de dislocation tend à glisser (parallèlement à \underline{b} pour une coin; perpendiculairement à \underline{b} pour une vis). Ce déplacement nécessite seulement la coupure de liaisons interatomiques le long de la ligne, et leur rétablissement après décalage d'une période du réseau. Ceci peut donc se produire sous l'effet de contraintes relativement modérées. Le plan de glissement est défini par la ligne de dislocation et son vecteur de Burgers.

Quand une ligne a glissé à travers tout le cristal, une partie du cristal s'est déplacée de \underline{b} par rapport à l'autre. La répétition d'un tel processus avec plusieurs dislocations entraîne une déformation macroscopique du cristal, dite déformation plastique.

• Montée (Figure 3)

Le glissement des dislocations peut être empêché par des obstacles tels que des précipités ou d'autres dislocations. La déformation plastique du cristal est rendue plus difficile; il y a durcissement.

Si les lacunes sont nombreuses et diffusent facilement (haute température), les dislocations peuvent se déplacer hors de leur plan de glissement: il s'agit d'un mouvement de montée. La déformation plastique se produit alors par la combinaison du glissement et de la montée des dislocations. (Figure 4).

Déplacement des noeuds du réseau dû à la présence d'une dislocation.

La présence d'une dislocation dans un cristal entraîne une courbure de certains plans réticulaires (cf plans verticaux de la figure 2), qui correspond à une déformation élastique du réseau au voisinage de la dislocation.

Dans un milieu infini et élastiquement isotrope, le vecteur déplacement R pour tout point du réseau est

$$R = \frac{1}{2\pi} \left\{ b\theta + b_c \frac{\sin 2\theta}{4(1-\nu)} + b \lambda u \frac{\cos 2\theta}{4(1-\nu)} + b \lambda u \frac{1-2\nu}{2(1-\nu)} \ln \frac{r}{r_0} \right\}$$

(Head et al., 1973), où b est la composante coin du vecteur de Burgers, ν le coefficient de Poisson (qui caractérise les propriétés élastiques du matériau), et r et θ les coordonnées polaires dans le plan perpendiculaire à la dislocation.

A la déformation élastique du réseau autour de la dislocation est associée une énergie élastique proportionnelle à la longueur de la dislocation et au carré de son vecteur de Burgers. La minimisation de cette énergie explique donc que les vecteurs de Burgers sont en général les plus courtes translations du réseau, et que les dislocations ont tendance à être rectilignes.

Dislocations partielles.

Dans certaines structures cristallines, on peut observer des dislocations dont le vecteur de Burgers est plus petit qu'une translation du réseau: il s'agit de dislocations partielles (ou dislocations dissociées). La figure 5a montre une dislocation entière dans une structure comportant deux types de plans atomiques; la périodicité du réseau et la longueur du vecteur de Burgers correspondent à la distance entre deux plans équivalents: a . L'énergie élastique liée à cette dislocation est donc proportionnelle à a^2 .

Dans la figure 5b, la dislocation précédente a été dissociée en deux partielles de vecteurs de Burgers $a/2$. L'énergie élastique correspondante est proportionnelle à $2 \times (a/2)^2 = a^2/2$, qui est inférieure à celle de la dislocation entière. Cependant, entre les deux dislocations partielles, il existe une irrégularité du réseau, ou défaut d'empilement auquel correspond une énergie de surface proportionnelle à l'aire sur laquelle s'étend ce défaut.

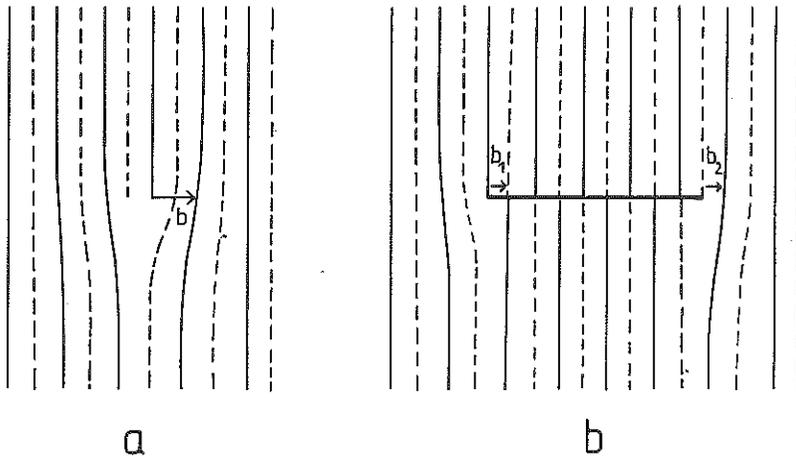


Fig.5 Dissociation d'une dislocation

(a) Dislocation entière de vecteur de Burgers \vec{b}

(b) Dislocation dissociée: $\vec{b}_1 + \vec{b}_2 = \vec{b}$

les deux dislocations partielles sont séparées par une faute d'empilement.

Boucles de dislocation.

Du fait de l'irrégularité du réseau au niveau d'une ligne de dislocation, celle-ci ne peut se terminer que sur la surface du cristal, ou contre d'autres défauts cristallins, ou encore se refermer sur elle-même. Dans ce dernier cas, on a une boucle de dislocation.

Boucle glissile: le vecteur de Burgers est situé dans le plan de la boucle. Sous l'action d'une contrainte de cisaillement parallèle au vecteur de Burgers, la boucle s'élargit ou se rétrécit.

Boucle prismatique : le vecteur de Burgers est perpendiculaire au plan de la boucle. Une telle boucle peut être considérée comme formée par une accumulation de lacunes (Figure 6a), ou d'interstitiels (Figure 6b).

Défauts de dimension 2. Défauts plans.

Un défaut de dimension 2 est une interface, plane ou non, entre deux parties d'un cristal déplacées l'une par

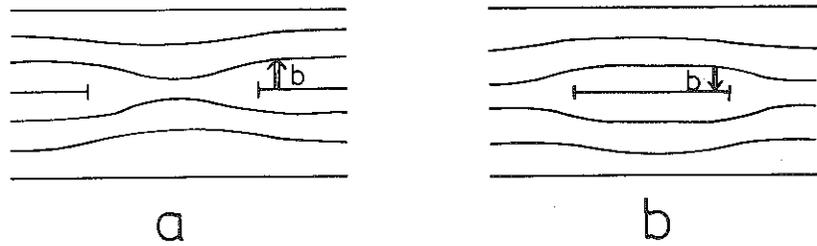


Fig.6 Boucles prismatiques. (a) Boucle de lacunes
(b) Boucle d'interstitiels

rapport à l'autre. Ce déplacement peut être caractérisé par une translation \vec{R} , qui n'est pas une translation du réseau, et par une rotation repérée par un vecteur Δg de l'espace réciproque. Plusieurs types de défauts cristallins peuvent être décrits selon les valeurs de ces deux paramètres.

Défaut d'empilement. (Figure 7).

$\Delta g = 0$, $R \neq 0$. (R peut être ou non parallèle à l'interface). Ce type de défaut apparaît en particulier après le glissement d'une dislocation partielle. L'interface correspondante est plane.

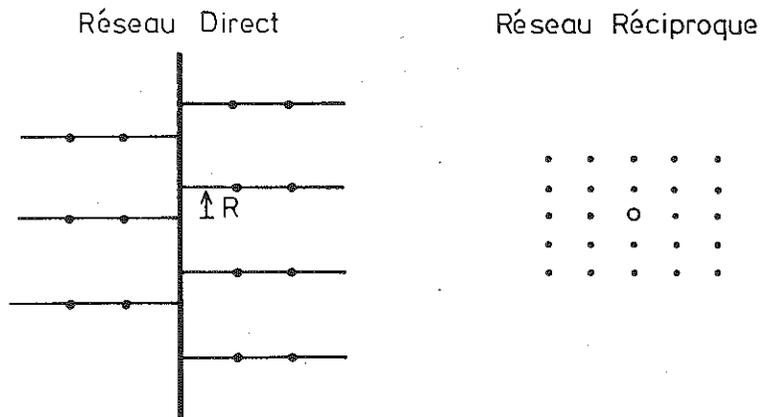


Fig.7 Défaut d'empilement. Le vecteur \vec{R} est le vecteur déplacement d'une partie du cristal par rapport à l'autre. Ce défaut n'introduit aucun effet dans l'espace réciproque.

Paroi d'antiphase. (Figure 8).

$\Delta g = 0, R \neq 0$. Lors du refroidissement d'une solution solide, une mise en ordre des atomes peut apparaître. Si le point origine de cet ordre est différent dans deux régions voisines du cristal, la limite entre ces régions est une paroi d'antiphase. La paroi est en général une surface quelconque.

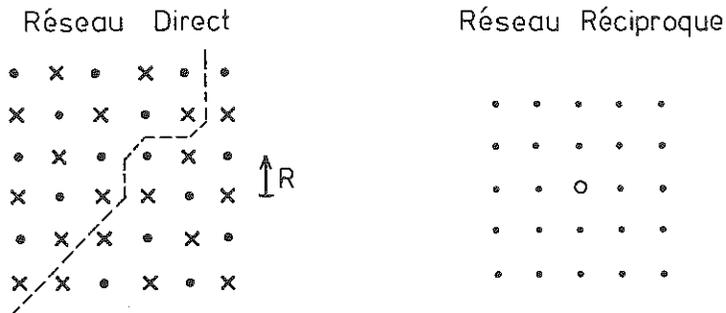


Fig.8 Paroi d'antiphase.

Macule par pseudo-symétrie. (Figure 9). $\Delta g \neq 0, R = 0$.

Une espèce cristalline est maclée lorsque sont accolés deux (ou plusieurs) cristaux d'orientations cristallographiques différentes, mais dont les réseaux forment entre eux des angles constants. Quand il y a macule, les deux individus possèdent, rigoureusement ou approximativement, un réseau commun.

Une macule par pseudo-symétrie peut apparaître lorsque le réseau du cristal possède presque un élément de symétrie. (Par exemple, un cristal orthorhombique dont le rapport a/b est voisin de 1, possède presque un axe quaternaire; il est pseudo-quadratique). Les deux individus de la macule se déduisent l'un de l'autre par l'opération de ce pseudo élément de symétrie. Le défaut à deux dimensions qui forme l'interface entre les deux individus est une paroi de macule.

De telles macles peuvent être produites lors de la croissance du cristal, au cours d'une transformation de phase, ou sous l'effet d'une contrainte mécanique.

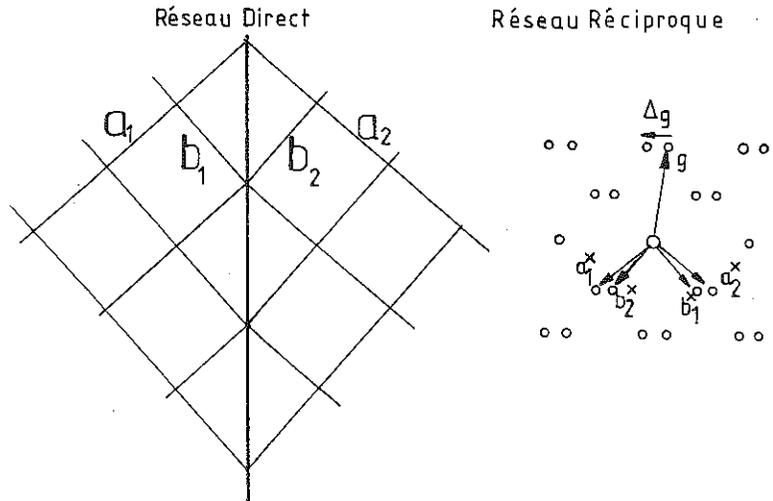


Fig.9 Macle par pseudo-symétrie. Une légère désorientation entre les deux individus, 1 et 2, entraîne un dédoublement des taches de diffraction dans l'espace réciproque.

Macle par mériédrie. (Figure 10). Macle par mériédrie réticulaire. (Figure 11).

Pour d'autres types de macle, les individus ont rigoureusement un réseau commun. Il s'agit de macle par mériédrie: le cristal est moins symétrique que son réseau, ou de macle par mériédrie réticulaire, lorsqu'il existe un réseau multiple du réseau du cristal (cristaux rhomboédriques et cubiques qui possèdent un réseau multiple hexagonal). Pour ces macles, $\Delta g = 0$ et $R = 0$; les facteurs de structure pour les réflexions simultanées dans les deux individus peuvent être différents, et, pour la macle par mériédrie réticulaire, certaines réflexions correspondent à un seul des deux individus.

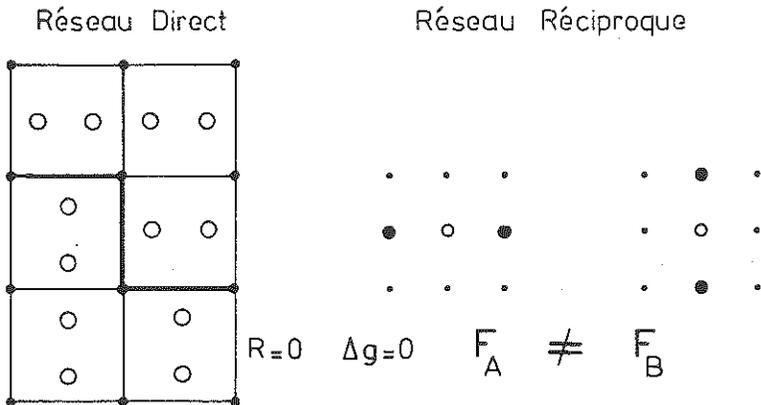


Fig.10 Macle par mériédrie. D'un individu à l'autre, la position dans l'espace réciproque des taches de diffraction reste inchangée; seule leur intensité relative peut varier.

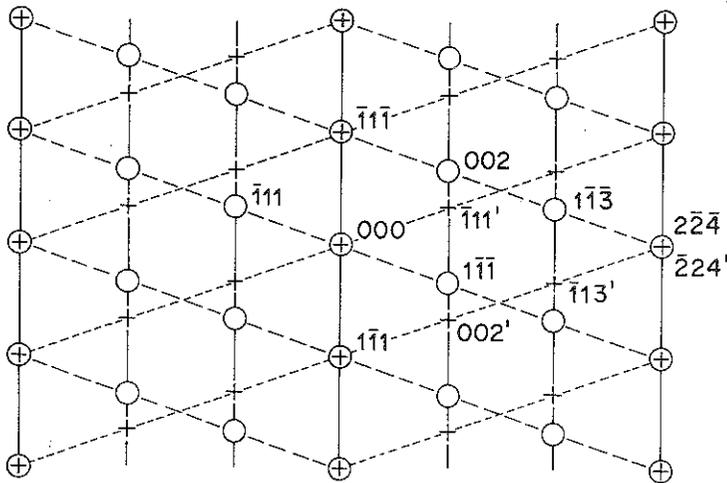


Fig.11 Macle par mériédrie réticulaire: exemple de plan du réseau réciproque. Les deux individus ont un réseau multiple commun. Dans l'espace réciproque certains noeuds sont communs aux deux individus.

Une macle est définie par la surface d'accolement des deux individus: la paroi de macle qui n'est pas toujours une surface plane, et par un ou des éléments de macle. Un élément de macle est une opération de symétrie qui permet de passer d'un individu de la macle à l'autre; les éléments de macle sont des éléments de symétrie, que possède le réseau commun aux deux individus, mais qui n'appartiennent pas au cristal.

Certaines macles sont formées par l'application d'une contrainte de cisaillement: ce sont des macles mécaniques. L'angle de cisaillement est constant pour une macle d'une espèce donnée. Au cours du cisaillement, une sphère définie dans le cristal se transforme en un ellipsoïde. Au cours de cette déformation, deux sections restent circulaires: K_1 et K_2 . (Figure 12). La direction de cisaillement est η_1 , parallèle à K_1 . On peut également obtenir géométriquement le même ellipsoïde à partir de la sphère par un cisaillement dans la direction η_2 contenue dans K_2 . La description d'une macle par les éléments K_1 , K_2 , η_1 et η_2 est classique, même lorsque la macle n'a pas été produite par cisaillement.

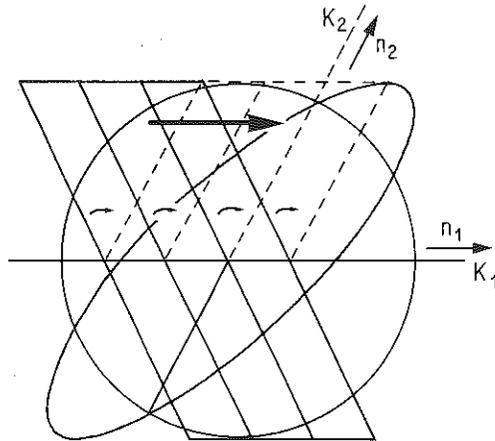


Fig.12 Création d'une macle par cisaillement le long de η_1 , parallèlement à K_1 . la section K_2 a une forme invariante dans le cisaillement.

Moiré.

Composante de Δg parallèle à l'interface. Cette situation se produit à l'interface de deux cristaux de mêmes paramètres légèrement désorientés ou de deux cristaux de même orientation et de paramètres légèrement différents.

Sous-joint.

La situation décrite pour le moiré peut entraîner de fortes interactions atomiques conduisant à la formation d'un réseau de dislocations. L'interface qui contient ce réseau de dislocations est un sous-joint.

Défauts de dimension 3.

Au sein de la matrice peuvent apparaître des inclusions (piégées au cours de la croissance du cristal), des lamelles d'exsolution ou des précipités (formés lors de variations des conditions thermodynamiques).

Suivant la taille du précipité et surtout suivant les différences de paramètres réticulaires de la matrice et du précipité, celui-ci peut être cohérent (les plans réticulaires se poursuivent à travers l'interface, avec seulement une légère déformation; figure 13a), semi-cohérent (le plan d'accolement précipité-matrice présente des dislocations d'interface; figure 13b), ou incohérent (il n'y a aucune continuité entre le réseau de la matrice et celui du précipité; figure 13c).

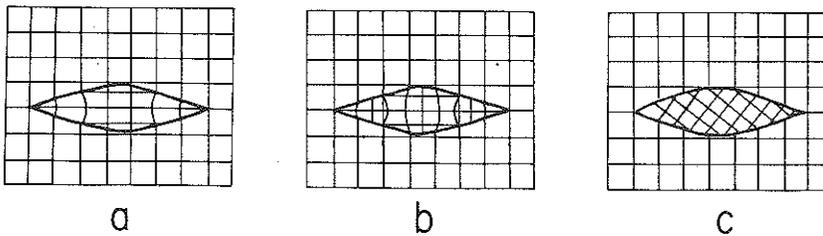


Fig.13 Précipité dans une matrice.

(a) cohérent, (b) semi-cohérent, (c) incohérent.

Références bibliographiques

Amelinckx, S. et Van Landuyt, J. (1978)- The study of planar interfaces by means of electron microscopy in "Diffraction and imaging techniques in material science". Amelinckx, S.; Gevers, R. et Van Landuyt, J. Ed., p107-149, North-Holland.

Head, A.K., Humble, P., Clarebrough, L.M., Morton, A.J., Forwood, C.T. (1973)- Computed electron micrographs and defect identification. Amsterdam, London: North-Holland, p31.

Hull, D. (1975)- Introduction to dislocations. Pergamon, p268 .

Weertman, J. et Weertman, J.R. (1970)- Théorie élémentaire des dislocations. Masson , p240.

CHAPITRE V

THEORIE CINEMATIQUE
CONTRASTE DES DEFAUTS

par Annick GERVAIS

THEORIE CINEMATIQUE
CONTRASTE DES DEFAUTS

Annick Gervais.

I. INTRODUCTION

Les premiers travaux dans le domaine de la microscopie électronique en transmission ont été réalisés à la fin des années cinquante au laboratoire du Cavendish de Cambridge par le groupe de P.Hirsch. En 1963 avait lieu la première école d'été de Microscopie Electronique organisée autour de deux thèmes: les bases de la diffraction électronique et la théorie du contraste des images de défauts plus particulièrement dans les échantillons métalliques(1)(2). A partir de cette époque les possibilités combinées de la diffraction et de la microscopie électroniques ont été étendues à une grande variété de problèmes et un large spectre de matériaux. La microscopie électronique a pris un essor considérable en minéralogie autour des années 1970 et les travaux sont aujourd'hui très abondants. Dans les deux chapitres relatifs à la théorie cinématique puis la théorie dynamique des défauts dans les cristaux nous insisterons sur les hypothèses liées aux deux approches et sur l'origine physique du contraste. Nous préciserons parallèlement à partir de certains exemples, les méthodes d'investigation expérimentales; en effet il est primordial de pouvoir prendre les images d'un défaut dans des conditions expérimentales qui permettent leur identification sans ambiguïté. Nous nous bornerons également à donner une interprétation qualitative des équations utilisées pour évaluer le contraste d'un défaut. Les calculs nécessitent généralement l'emploi d'un ordinateur et un certain nombre de programmes sont publiés dans quelques ouvrages cités en référence parmi les publications relatives aux principales écoles d'été (2 à 7) et des ouvrages généraux.(8 à 20).

II. HYPOTHESES DE LA THEORIE CINEMATIQUE

Dans ce chapitre nous montrons comment la théorie cinématique explique un très grand nombre d'observations relatives aux diagrammes de diffraction

et aux images de microscopie électronique, au moins qualitativement. Selon l'approche cinématique la description élémentaire de l'interaction des électrons avec un milieu périodique, requiert plusieurs hypothèses :

-1- dans un premier temps les phénomènes de diffusion inélastique sont négligés.

-2- ensuite, la diffusion élastique est traitée dans le cadre de l'approximation de Born, ce qui signifie que l'interaction du faisceau transmis et des faisceaux diffractés sera négligeable.

A partir de ces deux hypothèses la théorie cinématique va rendre compte qualitativement des phénomènes les plus importants dans les diagrammes de diffraction (paragraphe 3 à 5) et le contraste des images (paragraphe 6 et 7). Les notions élémentaires sur la description des champs d'ondes associés à la propagation des électrons dans un milieu cristallin ont été décrites dans le chapitre I de cet ouvrage. Les expressions de ces champs d'ondes déduites de l'approximation de Born sont rappelées dans l'appendice 1.

III. LA DIFFRACTION DES ELECTRONS. Expression générale de l'intensité diffractée dans le cadre de la théorie cinématique.

L'amplitude Ψ_s diffusée par un atome ou une maille élémentaire d'un cristal et mesurée au point d'observation P s'expriment par les relations suivantes: (appendice 1)

$$(1) \quad \Psi_s(\text{atome } i, P) \sim \psi_o f_i(\theta) \left(\frac{\exp(-2\pi i k_o r)}{r} \right)$$

$$\text{si } \|r\| \gg \|r_i\|$$

$$(2) \quad \Psi_s(\text{maille}, P) \sim \sum_j f_j(\theta) \exp(-2\pi i \Delta k \cdot \vec{r}_j)$$

$$\sim F(\theta)$$

où \vec{r}_j représente la position d'un atome vis à vis de l'origine de la maille considérée. Le dernier terme de l'équation (1) décrit l'atténuation de l'onde sphérique avec la distance r au point d'observation P. Nous ne tiendrons plus compte de ce facteur constant ($r = \|OP\| = \text{constante}$) dans la suite des calculs. L'expression de l'amplitude diffusée par un cristal s'obtient facilement par analogie avec les expressions (1) et (2) en

étendant cette fois la sommation sur toutes les mailles du cristal repérées par l'indice n :

$$(3) \quad \psi_S(\text{cristal}, P) \sim \sum_n F_n(\theta) \exp -2\pi i \Delta \vec{k} \cdot \vec{r}_n$$

Le vecteur \vec{r}_n est la distance d'une maille à l'origine du cristal. La géométrie attachée à la diffraction est décrite par la construction d'Ewald (Figure 1). On sait que l'amplitude diffusée est forte lorsque $\Delta \vec{k}$ est égal à un vecteur \vec{g} du réseau réciproque. Cependant, la diffusion a lieu dans un domaine angulaire différent de $2\theta_B$ (θ_B angle de Bragg). L'écart $\Delta\theta$ aux conditions de Bragg est défini par le vecteur \vec{s} :

$$(4) \quad \Delta \vec{k} = \vec{g} + \vec{s}$$

La relation (3) modifiée par la relation (4) entraîne (5):

$$(5) \quad \psi_S(\text{cristal}, P) \sim \sum_n F_n(\theta); \exp -2\pi i (\vec{g} + \vec{s}) \cdot \vec{r}_n$$

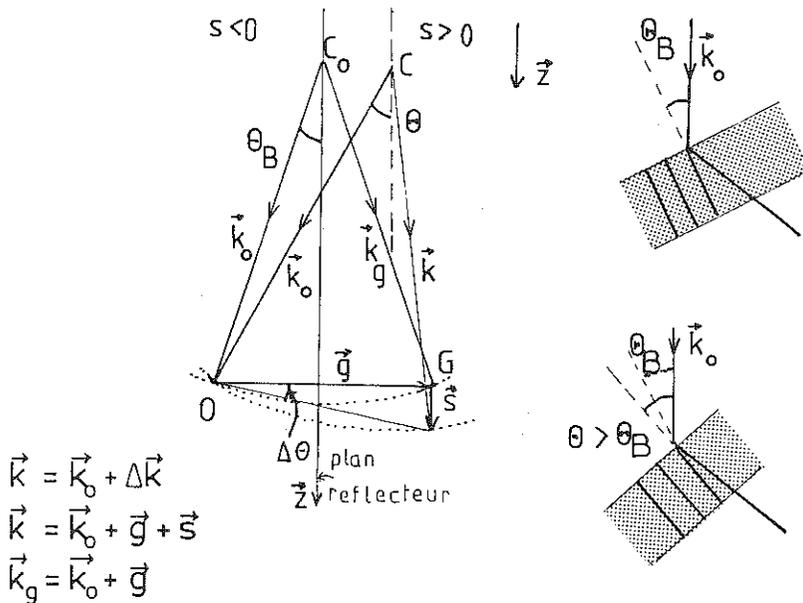


FIGURE 1.

Construction d'Ewald; définition du paramètre d'excitation s ; $s > 0$ lorsque l'angle d'incidence est plus grand que l'angle de Bragg.

Comme $s \ll g$ le facteur de structure $F_n(\theta)$ est peu différent de celui qui est associé à la condition de Bragg θ_B et noté F_g ; de plus le vecteur \vec{r}_n étant un vecteur du réseau direct le terme $\exp -2\pi i \vec{g} \cdot \vec{r}_n$ vaut 1. Finalement, l'expression obtenue prend la forme:

$$(6) \quad \psi_s(\text{cristal}, P) \sim \sum_n F_g \exp -2\pi i \vec{s} \cdot \vec{r}_n$$

Le terme de phase $2\pi i \vec{s} \cdot \vec{r}_n$ varie lentement d'une maille d'indice n à une autre(s petit). Cette remarque justifie le remplacement de la sommation discrète sur les mailles n par une intégration sur le volume du cristal:

$$(7) \quad \psi_s(\text{cristal}, P) \sim F_g \int \exp -2\pi i \vec{s} \cdot \vec{r}_n (d\tau/V_c)$$

$$\sim F_g S(g, s)$$

où V_c est le volume de la maille élémentaire. $S(g, s)$ est un facteur de forme du cristal parfait. L'expression générale de l'intensité diffractée donnée par la théorie cinématique est de la forme :

$$(8) \quad I_g(s) \text{ cinématique} = F_g^2 S^2(s, g)$$

Cette expression est à la base des analyses structurales quantitatives menées par diffraction des rayons X et des neutrons. On accède à la nature et à la position des atomes d'une maille en ajustant les F_g^2 théoriques et les valeurs expérimentales obtenues à partir des mesures de l'intensité intégrée $I_g(s)$ (intégration sur s). (21). Ces études de cristallographie conventionnelle sont délicates dans le cadre de la théorie cinématique appliquée aux électrons. La raison est liée à la très forte interaction entre électrons et matière qui peut être 100 à 1000 fois plus forte que pour les rayons X; le domaine de validité de la théorie cinématique que nous étudierons plus loin dans ce chapitre exclut la détermination quantitative de F_g^2 au moyen de la relation (8). D'une façon générale les théories de la diffraction des électrons se sont développées en parallèle avec la théorie du contraste des images de microscopie pour expliquer la morphologie et les défauts de matériaux réels plutôt que la structure des cristaux idéaux. A défaut de détermination quantitative, le modèle géométrique qui découle de l'expression (8) est essentiel pour l'interprétation des diagrammes de diffraction. Cet aspect va être développé dans les paragraphes suivants.

IV. DIFFRACTION PAR UNE LAME CRISTALLINE PARFAITE.

Dans le cadre de la diffusion élastique il a été montré au chapitre II que la géométrie attachée au problème de diffraction est très bien décrite par la construction d'Ewald. Les noeuds G du réseau réciproque sont associés à des facteurs de structure F_g non nuls; si le cristal parfait est infini il existe de taches de diffraction à l'intersection du réseau réciproque et de la sphère d'Ewald, l'intensité d'une tache s'exprimant par F_g^2 . Nous allons montrer sur un exemple que le terme $S^2(s, g)$ qui modifie l'expression du cristal parfait infini crée autour des noeuds du réseau réciproque un "volume" associé à une intensité diffractée non nulle. Pour simplifier prenons l'exemple d'un échantillon de dimension finie et de forme parallélépipédique et calculons l'amplitude diffractée à partir de l'équation (7). Soit:

$$(9) \quad \psi_s = \frac{F_g}{V_c} \int_{\text{volume}} \exp -2i\pi \vec{s} \cdot \vec{r} \, d\tau$$

où V_c est le volume de la maille élémentaire; Oxyz est un système d'axes parallèles aux côtés de grandeurs t_x, t_y, t_z .

$$(10) \quad \vec{s} \cdot \vec{r} = s_x x + s_y y + s_z z$$

L'amplitude diffusée se met simplement sous la forme suivante (11) avant intégration

$$(11) \quad \psi_s = (F_g/V_c) \int_0^{t_x} \int_0^{t_y} \int_0^{t_z} \exp -2i\pi (s_x x + s_y y + s_z z) dx dy dz$$

et après intégration (appendice 2) sur l'épaisseur du cristal:

$$(12) \quad \frac{F_g}{V_c} \frac{\sin \pi s_x t_x}{\pi s_x} \frac{\sin \pi s_y t_y}{\pi s_y} \frac{\sin \pi s_z t_z}{\pi s_z}$$

l'intensité maximum diffractée par une lame très mince est obtenue pour $t_z \ll t_x, t_y$ et $s_x = s_y = 0$

$$(13) \quad I_g = \left| \frac{F_g}{V_c} \right|^2 \left| \frac{\sin \pi s_z t_z}{\pi s_z} \right|^2$$

La fonction qui apparaît au second membre de l'expression précédente est représentée sur la Fig.2a. Chaque noeud du réseau réciproque est remplacé par un segment de droite parallèle à l'axe z , d'extension $1/t_z$ (Fig.2b); il y aura une tache de diffraction dans le diagramme de diffraction si la sphère intercepte ce segment, condition beaucoup moins restrictive que pour un cristal infini. D'une façon générale on prévoit les "volumes" qui remplacent les noeuds du réseau réciproque car ils ont des dimensions "inverses" de celles du cristal. La figure 3 présente quelques correspondances entre la morphologie d'un cristal et le "volume" diffractant associé dans l'espace réciproque. Outre l'élargissement du noeud de l'espace réciproque l'examen de la Fig.2b indique qu'il peut aussi y avoir des pics secondaires pour les valeurs entières du produit $s_z t_z$:

$$(14) \quad s_z t_z = n$$

Ces pics secondaires correspondent sur l'image aux contours d'épaisseur et d'extinction, qui seront décrits plus loin.

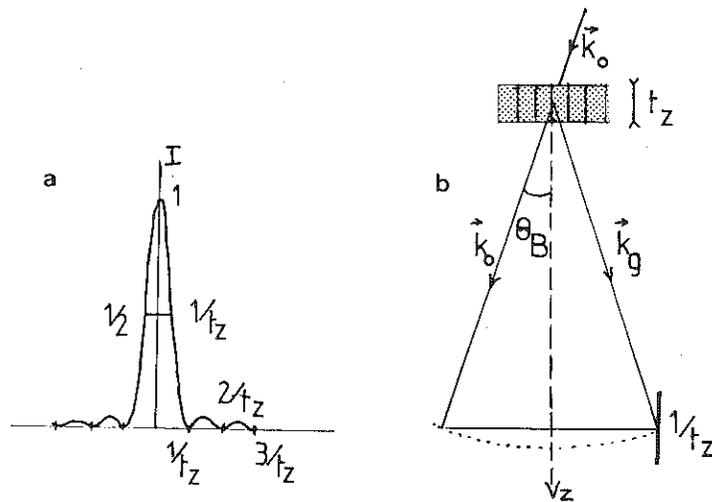


FIGURE 2.

Facteur de forme d'une lame d'épaisseur t_z dans la direction \vec{z} ; élongation des noeuds du réseau réciproque .

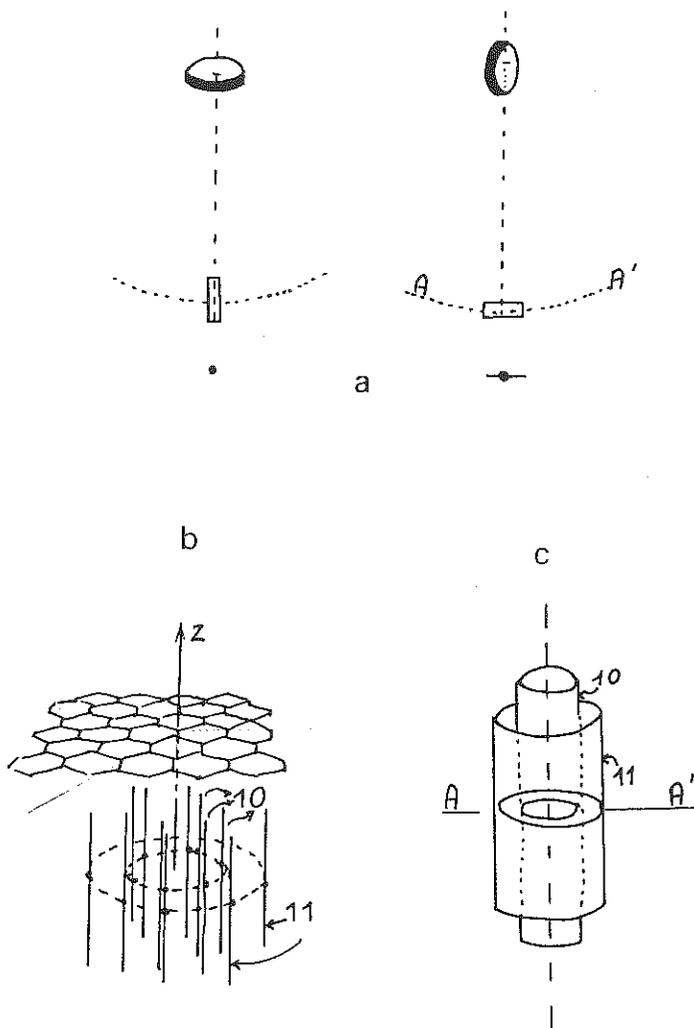


FIGURE 3.

-a- "Volumes" diffractant autour des noeuds du réseau réciproque associés à quelques cas classiques;

-b-réseau réciproque d'une couche aromatique isolée.

-c-cylindres réciproques d'un ensemble d'empilements parallèles à (xOy) mais désorientés entre eux par rotation autour de l'axe Oz .

interface : lame mono- parallèle au : cristalline faisceau d'e. : monophasé :	lame poly- cristalline monophasé (a)	lame multi- phases (b)
interface non : parallèle au : faisceau d'e. :	(c)	(d)

défauts : défauts isolés : ponctuels (d) :	défauts linéaires	défauts étendus
défauts : nombreux et : répartis au : hasard (e) :		
défauts : répartis : régulièrement: (f) :		

combinaisons : exemples:dislocations d'interfaces, de défauts : dislocations décorées, de nature : exsolutions dans les feldspaths différente :		

Tableau :schéma de classification des défauts donnant lieu à des diagrammes de diffraction caractéristiques repérés par les lettres(a) à (f).

V. DIFFRACTION PAR UNE LAME CRISTALLINE IMPARFAITE.

Dans le paragraphe précédent nous avons vu que la limitation du cristal se traduisait dans l'expression analytique de l'amplitude diffractée par l'introduction d'un facteur de forme $S(s,g)$ (relations (8) et (13)). Les défauts cristallins décrits au chapitre précédent, affectent eux aussi l'expression (6) en modifiant un ou plusieurs paramètres qui y figurent: n, g, s ou \vec{r}_n . Le tableau I présente un schéma de classification utile pour préciser quelques uns des effets des défauts sur le diagramme de diffraction:

A.# La présence de plusieurs diagrammes imbriqués révèle le passage d'une lame monocristalline et monophasé à des cas plus complexes (a) (b) auquel il faut adjoindre la possibilité de double diffraction (c) dès que l'image révèle la présence d'une interface inclinée vis-à-vis du faisceau d'électrons:

-a-en déplaçant le diaphragme de sélection d'aire on fait apparaître deux diagrammes d'orientation différentes.

-b-Les deux diagrammes sont associés à des réseaux réciproques différents

-c-Les diagrammes comportent :

-la superposition des taches liées aux cristallites adjacents;

-la double diffraction fait apparaître éventuellement des taches supplémentaires interdites.

B.# Les défauts agissent différemment sur les diagrammes en fonction de trois caractéristiques suivantes:

-1-ils sont isolés et peu nombreux;

-2-ils sont répartis au hasard et sont nombreux;

-3-ils sont nombreux et répartis périodiquement.

Dans le premier cas le diagramme:

(d) est insensible aux défauts qui seront éventuellement observés sur l'image; notons toutefois que la rotation locale du réseau autour d'une dislocation est mise évidence par le déplacement des lignes de Kikuchi d'un côté de la dislocation vis à vis de l'autre; dans le second cas

(e) l'effet des défauts peut être décelé sur le diagramme de diffraction (sans être nécessairement décelé sur l'image); nous citerons deux exemples:

*les défauts ponctuels peuvent engendrer une déformation élastique de telle sorte que les taches présentent une elongation de module $g\epsilon$ (cas isotrope).

*un arrangement de dislocations de même vecteur de Burgers \vec{b} produira une courbure de la lame $d\phi$ et une elongation supplémentaire $gd\phi$ des noeuds du réseau réciproque. (Fig.4).

(f) les défauts arrangés périodiquement sont fréquents en minéralogie; A partir d'un cristal parent on peut insérer périodiquement des interfaces plans (fautes planes, antiphases, parois de macles) ou réaliser une distorsion périodique de la structure de base ou de la composition chimique. Les effets de diffraction de ces structures modulées ont été étudiés par Amelinckx(22) et son groupe. Le modèle géométrique permet de prévoir que des défauts plans parallèles produiront des trainées diffuses dans une direction perpendiculaire au plan des défauts; ces trainées passent par les noeuds du réseau réciproque; un arrangement périodique Λ de ces plans se traduit par une modulation des trainées, de période $1/\Lambda$. Plus précisément si \vec{R} est le vecteur déplacement, les taches supplémentaires S du diagramme de diffraction sont reliées à la tache G de la structure parent par la relation (in(1)p389):

$$\vec{S} = \vec{g} + (1/\Lambda)(m - \vec{g} \cdot \vec{R})\vec{n}$$

où \vec{n} est le vecteur unitaire normal à l'interface, m un entier. Dans le cadre des travaux dirigés certains exemples de diagrammes de diffraction associés à des défauts seront traités; le cas des exsolutions permet de montrer la structure fine des noeuds qui résulte de la présence de macles multiples et de phases différentes.

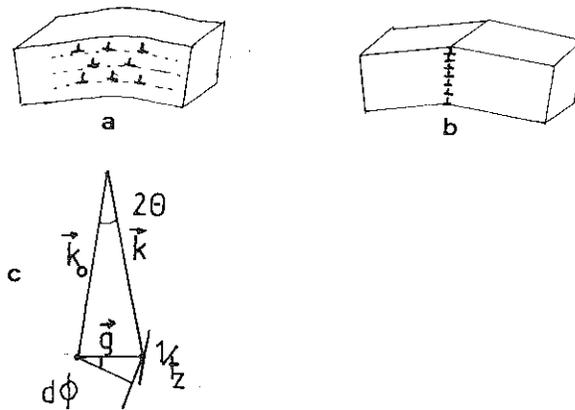


FIGURE 4.

- a) Configuration de dislocations réparties au hasard, courbure de la lame.
- b) Dislocations arrangées en sous-joint.
- c) Elongation supplémentaire des noeuds du réseau réciproque associé au cas a).

VI. THEORIE CINEMATIQUE DU CONTRASTE D'UNE IMAGE.

VI.1. Introduction

Pour calculer l'amplitude diffractée $\psi_g(\text{cristal}, P)$ dans un diagramme de diffraction le point d'observation P est à une distance r très grande de l'origine vis à vis des dimensions du cristal; au contraire lorsqu'on se propose d'évaluer l'intensité d'une image, le point P est situé à la face inférieure de la lame (ou face de sortie des électrons). Cette distribution de l'intensité est ensuite agrandie par les lentilles pour former l'image de microscopie électronique. En mode image la microscopie conventionnelle comporte trois configurations essentielles (cf chapitre II de ce livre):

Le fond clair: l'intensité de l'image est reliée au champ d'onde transmis $\psi_0(\text{cristal}, P)$.

Le fond sombre: l'intensité de l'image provient de l'amplitude $\psi_g(\text{cristal}, P)$. Lorsque le diagramme comporte deux taches seulement d'intensité notable, O et G , on dit que l'image associée est réalisée en condition à 2 champs d'ondes ψ_0 et ψ_g .

La troisième configuration consiste à inclure dans le diaphragme de contraste le faisceau transmis k_0 et un ou plusieurs faisceaux diffractés k_{ng} . Dans ce chapitre, nous nous intéresserons aux deux premières configurations; la troisième est traitée indépendamment dans le chapitre haute résolution.

VI.2. Intensité de l'image en fond noir.

Nous reprenons le raisonnement donné par Hirsh et al(23) pour évaluer l'onde diffractée ψ_g en un point P de la face de sortie de la lame. Selon

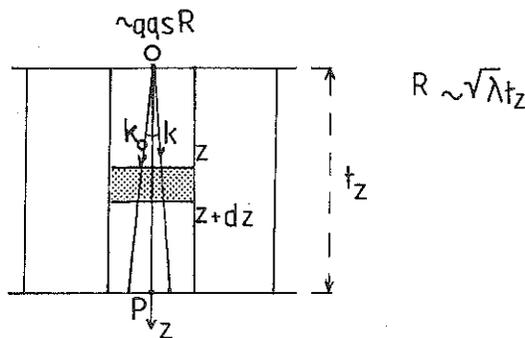


FIGURE 5.

Approximation de la colonne; R rayon d'une zone de Fresnel; les faisceaux \vec{k}_0 et \vec{k} sont contenus dans la colonne.

cette approche, la lame est décomposée en couches dz parallèles à la surface (Figure 5). Hirsch et al montrent que l'amplitude $d\psi_g$ résulte de la diffusion par les centres (atomes) contenus dans une étroite colonne entourant le faisceau diffracté \vec{k} et centrée sur le point P (appendice 3). Le cristal peut alors être considéré comme la juxtaposition de colonnes diffusant les électrons de façon indépendante; cette approximation de la colonne permet de calculer ainsi l'intensité d'une image colonne par colonne. Le pouvoir diffusant de la couche dz pour la réflexion g est donné par la relation suivante:

$$(15) \quad d\psi_g = (i\pi/\zeta_g) \exp(-2\pi i \Delta \vec{k} \cdot \vec{r}_n) dz$$

$$\text{avec } \Delta \vec{k} \cdot \vec{r}_n = (\vec{g} + \vec{s}) \cdot \vec{r}_n = \vec{s} \cdot \vec{r}_n = sz$$

où ζ_g a les dimensions d'une longueur et s'exprime en fonction du facteur de structure F_g , du volume de la maille élémentaire V_c et de la longueur d'onde λ :

$$(16) \quad \zeta_g = (\pi V_c \cos \theta_B) / \lambda F_g$$

La signification physique de ζ_g apparaîtra dans le traitement dynamique de l'intensité. L'amplitude totale diffractée, au point P, résulte de l'intégration de l'équation (15) sur l'épaisseur t_z du cristal:

$$(17) \quad \Psi_g = (i\pi/\zeta_g) \{(\sin \pi s t_z) / (\pi s)\} \exp(-i\pi s t_z)$$

Il apparaît sur l'image des franges appelées:

- franges d'égale épaisseur si t_z varie; exemple: une lame en forme de coin.
- ou franges d'égale inclinaison si s varie; exemple: une lame courbée.

VII. CONTRASTE DES DÉFAUTS.

Le contraste des défauts est dû aux modifications locales de l'intensité $I_g(P)$ calculée sur la face arrière de la lame. Les défauts perturbent la position des atomes, le champ de déplacement associé est introduit analytiquement en remplaçant un vecteur \vec{r}_n du réseau direct parfait par le vecteur \vec{r}'_n du cristal imparfait.

$$(19) \quad \vec{r}'_n = \vec{r}_n + \vec{R}$$

$$(21) \quad \psi_g = \frac{\pi}{z_g^0} \int^t \exp(-2i\vec{g} \cdot \vec{R}) \exp(-2i\vec{w} \cdot \vec{s} dz)$$

Le défaut est complètement caractérisé par la connaissance du vecteur déplacement \vec{R} en direction, sens et module; ceci est réalisé à partir de différentes micrographies. Le principe de la méthode expérimentale est illustrée à présent.

Critère d'extinction, direction de \vec{R} .

D'après (21) l'amplitude ψ_g du cristal imparfait est identique à celle du cristal parfait lorsque la relation (22) est satisfaite:

$$(22) \quad \vec{g} \cdot \vec{R} = \text{entier},$$

Le défaut ne donne lieu à aucun contraste et la relation (22) est appelée critère d'extinction; cette expression s'interprète aussi en remarquant que le faisceau d'électrons n'est pas sensible aux déplacements \vec{R} parallèles à la famille de plans réflecteurs \vec{g} . La règle d'extinction est très utile car elle permet dans des cas simples de trouver la direction du vecteur \vec{R} ; citons comme cas particulier la détermination:

- du vecteur de Burgers \vec{b} d'une dislocation coin ; l'expression analytique du champ de déplacement comporte plusieurs termes qui doivent s'annuler simultanément pour donner lieu à une extinction totale ; le critère d'extinction (22) est remplacé par deux expressions vectorielles $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$ et $\vec{g} \cdot (\vec{b} \wedge \vec{u}) = 0$; ces deux relations ne sont satisfaites que pour une réflexion g dirigée selon la normale au plan de glissement; pour les autres réflexions satisfaisant à la première et non à la seconde condition les images comporteront un contraste résiduel que l'on apprend à reconnaître; deux réflexions sont nécessaires pour trouver la direction de \vec{b} ; un troisième vecteur g , non coplanaire avec les deux autres, sert à confirmer les prévisions faites sur la direction de \vec{b} . Autant que possible on choisit les vecteurs g de bas indices de Miller hkl et orientés perpendiculairement et aussi parallèlement à la direction de ligne; ce choix est destiné à faciliter l'identification de la nature de la dislocation.

- du vecteur déplacement d'un défaut plan.

La encore la méthode consiste à trouver trois réflexions g_i , $i=1$ à 3

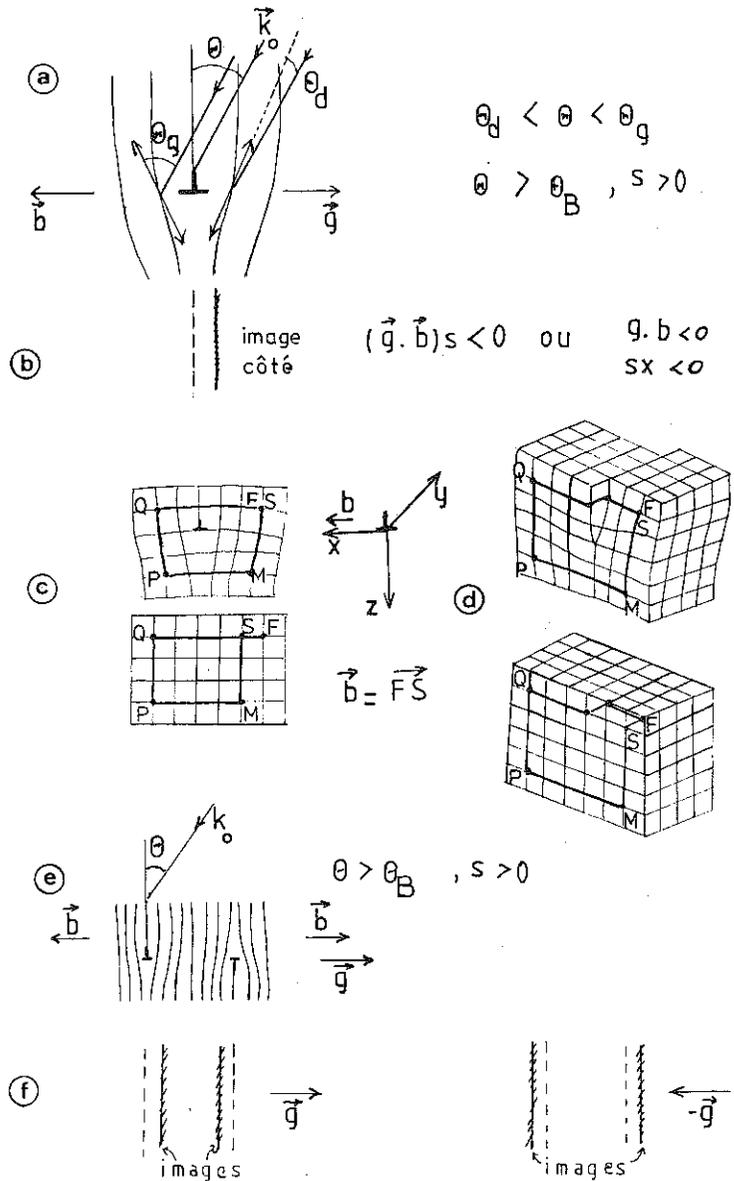


FIGURE 6.

- a- Rotation du réseau en présence de défauts élastiques, ou ce qui est équivalent, modification du paramètre d'excitation autour du défaut.
- b- Application: détermination du côté de la ligne de dislocation où se forme l'image.
- c- Circuit de Burgers d'une dislocation coin; tièdre de référence utilisé dans le critère énoncé en -b-.
- d- Circuit de Burgers d'une dislocation vis.
- e- dipôle.
- f- Prévion du changement de largeur de l'image d'un dipôle lorsque le vecteur de réflexion change de signe.

dans lequel \vec{R} ; est le champ de déplacement du défaut. L' argument de l'exponentielle présente dans la relation (15) devient en tenant compte de (19):

$$(20) \quad \Delta \vec{k} \cdot \vec{r}'_n = (\vec{g} + \vec{s}) \cdot (\vec{r}'_n + \vec{R}_n) \sim \vec{g} \cdot \vec{R} + \vec{s} \cdot \vec{r}'_n$$

Cette expression du fond sombre pour le cristal imparfait diffère de celle précédemment trouvée pour le cristal parfait par un terme de phase supplémentaire $\exp -2i\pi \vec{g} \cdot \vec{R}$

telles que $\vec{g}_i \cdot \vec{R} = n_i$ où n_i est un entier ou zéro; les réflexions utilisées sont d'ordre le plus faible possible; la détermination de $R[uvw]$ se ramène ensuite à la résolution d'un système d'équations linéaires en u, v, w :

$$\begin{aligned} g_i [h_i k_i l_i] \\ u h_i + v k_i + w l_i &= p \\ u h_2 + v k_2 + w l_2 &= q \end{aligned}$$

$u h_3 + v k_3 + w l_3 = r$ où p, q, r sont des entiers ou zéro. Pour interpréter les résultats obtenus il faut se souvenir que tout vecteur \vec{r}'_n du réseau satisfait le système précédent, donc le vecteur \vec{R} pourra être déterminé à un vecteur \vec{r}'_n près.

Rotation locale du réseau. Sens du vecteur \vec{R}

La présence de défauts élastiques s'analyse aussi en termes de rotations locales $\Delta\theta$ du réseau; le paramètre d'excitation $s = g\Delta\theta$ de la réflexion \vec{g} est simultanément modifié. En se rappelant que l'amplitude diffusée dans la direction \vec{k}_g sera maximum pour la valeur $s=0$ on peut faire un raisonnement qualitatif permettant de trouver de quel côté d'une ligne de dislocation se trouvera l'image de celle-ci. Reprenons l'exemple d'une dislocation coin (fig. 6a). La ligne est parallèle à la surface, les plans réflecteurs perpendiculaires à celle-ci et le paramètre d'excitation tel que $s > 0$. On constate intuitivement, à droite du défaut θ_d est inférieur à l'angle d'incidence θ , au contraire la valeur à gauche θ_g est supérieure à θ ; il peut donc exister des valeurs $\theta_d \sim \theta_g$ ce qui entraîne un renforcement de l'intensité diffractée à droite de la dislocation; en fond sombre l'image de la dislocation apparaîtra blanche et en fond clair elle sera noire (complémentarité des intensités transmises et diffractées, $I_o = 1 - I_g$) Le raisonnement qualitatif fait précédemment peut être poursuivi jusqu'à la détermination du sens du vecteur de Burgers; il est cependant nécessaire pour aller plus loin d'utiliser la définition de \vec{b} au moyen du circuit de Burgers, celui-ci est rappelé sur les figures 6.c et 6.d. La direction de

\vec{b} correspondant à cette définition a été reportée sur la Figure 6.a; on constate que la position de l'image apparaît alors située du côté de la ligne pour lequel est satisfaite l'inégalité suivante:

$$(23) \quad (\vec{g} \cdot \vec{b})s < 0$$

Si le signe de s et la direction de \vec{g} sont connus, cette relation (23) permet de trouver le sens de \vec{b} ; elle permet aussi d'analyser des défauts un peu plus complexes et en particulier de caractériser leur nature extrinsèque ou intrinsèque. Prenons l'exemple d'un dipôle (figure 6e).

Dans la relation (23) il est aisé de constater que la position de l'image change de côté lorsque le vecteur diffraction \vec{g} change de signe; cette remarque et le raisonnement qualitatif précédent permettent de définir des conditions expérimentales d'observation appropriées pour caractériser un dipôle; il suffit pour cela de réaliser deux images en condition à deux faisceaux, l'une avec le faisceau \vec{g} , l'autre avec le faisceau $-\vec{g}$; les images passeront d'une position interne à une position externe vis à vis de l'emplacement exact des lignes; la variation de la distance entre lignes est généralement très perceptible sur l'écran de visualisation du microscope ou sur l'image. En utilisant les raisonnements qualitatifs précédents il est laissé aux lecteurs le soin de trouver les caractéristiques des images qui permettent sans ambiguïté de caractériser la nature des boucles schématisées sur la Figure 7.

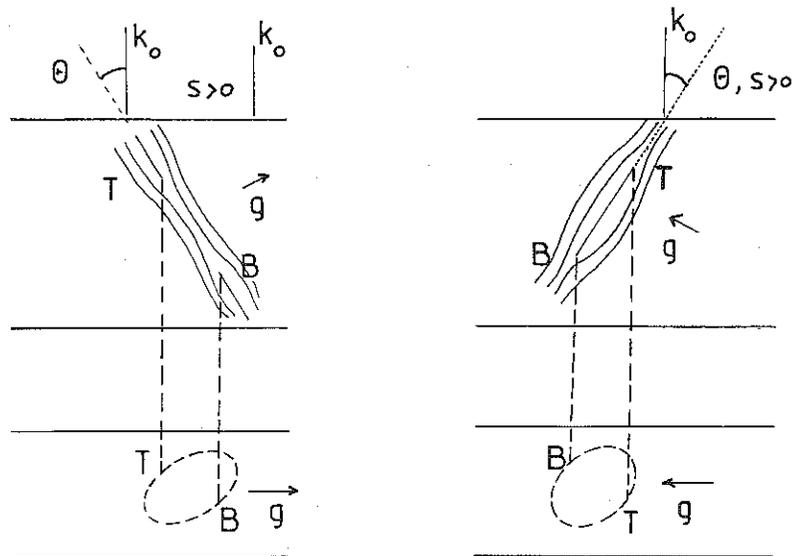


FIGURE 7. Question: déterminer la position de l'image associée aux deux boucles prismatiques lacunaire et interstitielle.

Module de \vec{R}

La valeur de R est déduite de l'analyse des images lorsque le nombre entier qui figure à droite de la relation (22) varie. Les calculs de profils de dislocations réalisés dans le cadre de la théorie dynamique ont permis d'établir quelques conditions expérimentales simples pour certains défauts; l'image double d'une dislocation pour $w=0$ en est un exemple. Remarquons aussi que pour les défauts plans la méthode générale permet de déterminer R en direction et module.

VIII. VALIDITE DE LA THEORIE CINEMATIQUE.

Au voisinage de $s=0$ l'intensité diffractée évaluée selon l'approximation cinématique:

$$I_g^{\text{cin}} = (\pi/\zeta_g)^2 \sin^2 \pi s t_z / (\pi s)^2$$

se réduit à la quantité:

$$\pi (\pi t_z)^2 / (\zeta_g)^2$$

croissante avec t_z ; cette relation conduit à des résultats absurdes (intensité diffractée > 1) si l'épaisseur croit au delà de $\zeta_g/3$. A 100 KeV la distance d'extinction associée à des réflexions g de bas ordres varie de 100Å environ pour des éléments lourds (comme l'or) à 1000Å pour des composés légers comme les feldspaths. Le domaine de validité de la théorie cinématique à $s=0$ est donc limité aux lames de faible épaisseur ($t \ll 300\text{Å}$ ou $t < \zeta_g/2$) Une autre difficulté de la théorie cinématique apparaît dans l'expression de la période ($1/s$) des franges d'égale épaisseur; celle-ci devrait être infinie à $s=0$ alors qu'en pratique elle tend vers une valeur finie.

En dehors de $s=0$ la théorie cinématique apparaît comme une bonne approximation pourvu que $s \zeta_g \gg 1$ même pour des cristaux épais.

APPENDICE 1. Approximation de Born de la diffusion élastique.

Dans le chapitre I il a été expliqué comment le calcul des champs d'onde transmis et diffractés repose sur deux points :

-a-la description de la diffusion élastique élémentaire d'une onde plane incidente par un centre diffusant,

-b-la composition des ondes élémentaires émises par tous ces centres repérés par le vecteur \vec{r}_i . Le champ d'onde total, mesuré en un point P, résulte de l'interférence des ondelettes élémentaires cohérentes.

Nous rappelons ici les expressions obtenues en précisant les notations; une onde plane incidente de vecteur d'onde \vec{k}_0 interagit avec le potentiel atomique $V(\vec{r}-\vec{r}_i)$ existant autour du centre diffusant i ; ψ_0 est l'amplitude du faisceau incident. L'amplitude $d\psi_s(i,P)$ de l'onde sphérique émise par le volume $d\tau$ entourant le centre diffuseur i et arrivant au point est donnée par l'expression (A1)(Figure.A1)

$$(1) \quad d\psi_s(i,P) = \psi_0 \exp 2i\pi \vec{k}_0 \cdot \vec{z}_i \frac{\exp 2i\pi k |\vec{z}' - \vec{z}_i|}{|\vec{z}' - \vec{z}_i|} V(\vec{z}_i) d\tau$$

La diffusion élastique se traduit par l'égalité des normes des vecteurs d'onde \vec{k}_0 et \vec{k} :

$$(A.2) \quad \|\vec{k}_0\| = \|\vec{k}\|$$

L'approximation de Born implique que les diffusions ont une faible amplitude c'est à dire que :

$$(A.3) \quad V(\vec{r}_i) \ll E \text{ où } E \text{ est l'énergie totale d'un électron.}$$

Si les distances $\|\vec{r}\|, \|\vec{r}-\vec{r}_i\|$ sont très grandes devant $\|\vec{r}_i\|$, l'expression (A.1) peut être réécrite en tenant compte des relations approchées suivantes:

au dénominateur $\|\vec{r}-\vec{r}_i\| \sim r$

dans l'exponentielle

$$\|\vec{r}-\vec{r}_i\| \sim r - \frac{\vec{k} \cdot \vec{r}_i}{k_0}$$

soient les expressions équivalentes (A.4) et (A.5) ; dans la dernière relation nous faisons intervenir le vecteur $\Delta\vec{h}$:

$$(A.4) \quad d\psi_s(i, P) = \psi_0 \exp 2i\pi(\vec{k}_0 - \vec{k}) \cdot \vec{r}_i \quad \frac{\exp 2i\pi k_0 z}{z} \sqrt{(\vec{z}_i)} d\vec{z}_i$$

$$(A.5) \quad \text{ou} \quad d\psi_s(i, P) = \psi_0 \exp -2i\pi \Delta\vec{k} \cdot \vec{r}_i \quad \frac{\exp 2i\pi k_0 z}{z} \sqrt{(\vec{z}_i)} d\vec{z}_i$$

$\Delta\vec{k} = \vec{k} - \vec{k}_0$

L'expression (A.5) met en évidence le déphasage entre une onde diffusée à l'origine et une autre diffusée au point i, déphasage qui s'exprime par l'expression caractéristique ($\exp -2i\pi \Delta\vec{k} \cdot \vec{r}_i$). La composition des ondes résulte de la sommation sur les éléments de volume indépendants les uns des autres; selon le domaine d'intégration on définit ainsi:

-l'amplitude diffusée par un atome:

$$A.6) \quad \psi_s(\text{atome}, P) = \psi_0 \frac{\exp 2i\pi k_0 z}{z} \int_{\text{atome}} \sqrt{(\vec{z}_i)} \exp -2i\pi \Delta\vec{k} \cdot \vec{r}_i d\vec{z}_i$$

$$\text{ou:} \quad = f(\theta) \psi_0 \frac{\exp 2i\pi k_0 z}{z}$$

$f(\theta)$ est le facteur de diffusion atomique.

-l'amplitude diffusée par une maille:

$$(A.7) \quad \psi_s(\text{maille}) = \psi_0 \frac{\exp 2i\pi k_0 z}{z} \sum_j \text{atomes de la maille} f_j(\theta) \exp -2i\pi \Delta\vec{k} \cdot \vec{r}_j$$

Le terme préexponentiel ($\exp 2i\pi k_0 r/r$) décrit la décroissance des ondes sphériques avec la distance au point P d'observation; c'est un terme constant qu'on omet dans la suite des calculs:

$$(A.8) \quad \psi_s(\text{maille}) \approx \sum_j \text{atomes de la maille} f_j(\theta) \exp -2i\pi \Delta\vec{k} \cdot \vec{r}_j = F(\theta)$$

L'amplitude diffractée est particulièrement importante lorsque l'exponentielle vaut 1 quelque soit \vec{r}_j , c'est à dire si

$$(A.9) \quad \Delta\vec{k} \cdot \vec{r}_j = \text{un entier.}$$

Cette condition est satisfaite lorsque $\Delta\vec{k}$ est un vecteur du réseau réciproque

APPENDICE 2. Calcul du facteur de forme pour un échantillon parallélépipédique.

L'amplitude diffusée (eq.7) apparait comme le produit de trois intégrales de même type (A.11)

$$(A.10) \quad \Psi_S = \frac{F_g}{V_c} \int_0^{t_{3c}} \int_0^{t_y} \int_0^{t_z} \exp(-2i\pi(s_x x + s_y y + s_z z)) dx dy dz$$

$$(A.11) \quad \int_0^{t_{3c}} \exp(-2i\pi s_x x) dx = \left[\frac{\exp(-2i\pi s_x x)}{-2i\pi s_x} \right]_0^{t_{3c}}$$

(A.11) est facilement transformée en (A.12)

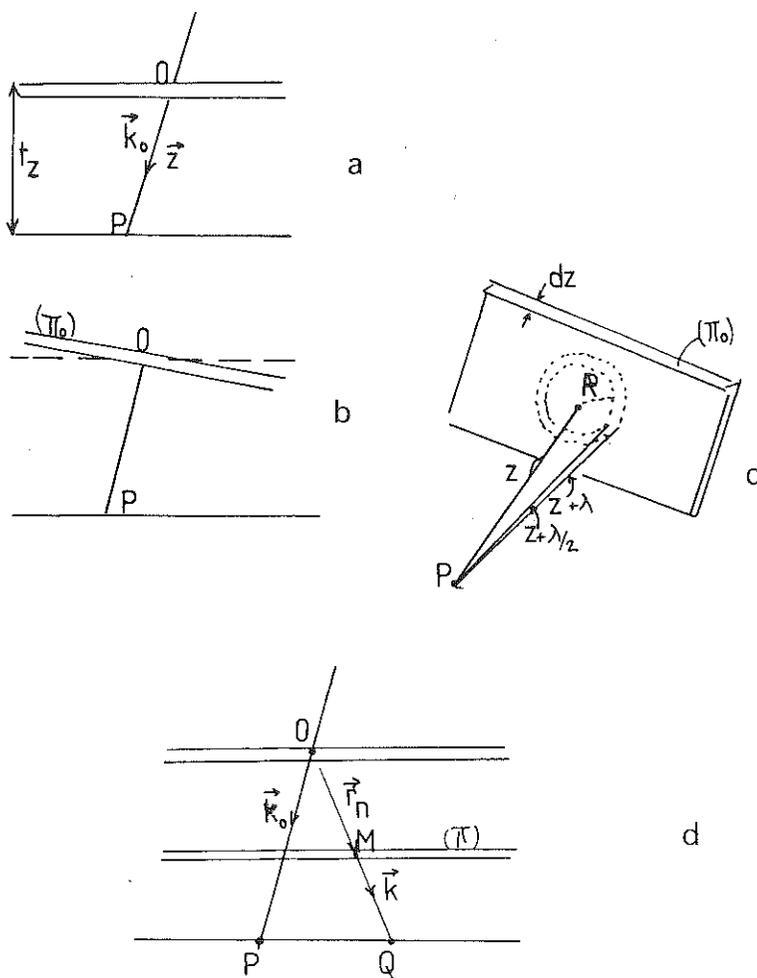
$$(A.12) \quad \bar{\Psi}_S = \frac{F_g}{V_c} \exp(-i\pi(s_x t_x + s_y t_y + s_z t_z)) \frac{\sin \pi s_x t_x}{\pi s_x} \frac{\sin \pi s_y t_y}{\pi s_y} \frac{\sin \pi s_z t_z}{\pi s_z}$$

Lorsque l'échantillon se réduit à une lame d'épaisseur t_z très inférieure à t_y et t_x et en supposant $s_x = s_y = 0$ l'intensité diffractée I_g devient:

$$I_g = \left(\frac{F_g}{V_c} \right)^2 \left(\frac{\sin \pi s_z t_z}{\pi s_z} \right)^2$$

APPENDICE 3.

On se propose de démontrer l'expression différentielle de l'amplitude diffusée par un plan de centres diffusants distant de z du point P d'observation (figure a). Chaque centre diffusant émet une ondelette, la composition de toutes ces contributions est réalisée en utilisant un procédé de calcul classique en optique. Le plan est divisé en zones annulaires dont les distances des bords au point P diffèrent entre elles d'une demi-longueur d'onde (figure c); deux zones successives sont ainsi en opposition de phase et leur contribution s'annule dans le calcul de $d\psi$. Le rayon de la première zone se déduit simplement à partir de la figure: $R \sim \sqrt{\lambda z}$;



à l'intérieur de la première zone ($x < R$) l'amplitude diffusée par une distribution annulaire de largeur dx au point P s'écrit:

$$(A13) \quad d\psi(1^{\circ}\text{zone}, P) = \psi_0 \int \frac{\exp P (2i\pi k_0 (x^2 + y^2)^{1/2})}{(x^2 + y^2)^{1/2}} (2\pi x dx) dz$$

où f est l'amplitude diffusée par unité d'aire. L'expression (A13) se calcule à partir d'un diagramme phase-amplitude ou par intégration directe en posant quelques approximations; négligeons x^2 devant z^2 , il vient:

$$(z^2 + x^2)^{1/2} \sim z \text{ au dénominateur}$$

$$(z_2 + x_2)^{1/2} \sim z(1 + (x^2/2z^2)) \text{ dans l'exponentielle.}$$

L'équation (A.13) devient:

$$(14) \quad d\psi(1^{\circ}\text{zone}, P) = \psi_0 f \frac{\exp 2i\pi k_0 z}{z} dz \int_0^R \exp\left(\frac{i\pi k_0 x^2}{z}\right) (2\pi x dx)$$

$$= 2i\pi\lambda \int dz \psi_0 \exp(2i\pi k_0 z)$$

On montre (par exemple à partir du diagramme phase-amplitude) que l'amplitude totale diffusée par le plan π_0 est la moitié de l'amplitude diffusée par la 1^o zone;

$$(15) \quad d\psi(\text{totale}, (\pi_0), P) = i\pi\lambda \int dz \psi_0 \exp(2i\pi k_0 z)$$

f amplitude diffusée par unité d'aire est exprimée en fonction du facteur de structure, de la distance entre plans parallèles à la surface et du volume de la maille élémentaire:

$$(16) \quad f = F n \frac{\Delta F(d_h \sqrt{V_c})}{h_k \ell}$$

L'expression (15) est communément explicitée en utilisant un coefficient z_g défini à partir de f , soit

$$(17) \quad z_g = \pi d_h \sqrt{V_c} / \lambda f = \pi V_c / \lambda F$$

$$(18) \quad d\psi(\text{plan } \pi_0, P) = (i\pi/z_g) \exp 2i\pi k_0 z dz$$

(18) est l'expression de l'amplitude totale diffusée par le plan π_0 dans la direction \vec{k}_0 .

Si l'on veut à présent exprimer l'amplitude diffusée dans la direction \vec{k} , par un plan (π) passant par le point M distant de \vec{r}_n de l'origine O il faut tenir compte du terme de déphasage évalué précédemment dans l'appendice 1, soit $\exp -2i\pi\Delta\vec{k}\cdot\vec{r}_n$;

$$(19) d\psi(\text{plan } \pi, Q) = (i\pi/\zeta_g) \exp 2i\pi k_0 z \exp -2i\pi\Delta\vec{k}\cdot\vec{r}_n dz$$

Le terme $\exp 2i\pi k_0 z$ où $z=OP=\text{cte}$ est omis par la suite; nous utiliserons fréquemment par la suite la relation (20):

$$(20) d\psi(\text{plan } \pi, \text{direction } k, Q) = (i\pi/\zeta_g) \exp -2i\pi\Delta\vec{k}\cdot\vec{r}_n dz$$

CHAPITRE VI

THEORIE DYNAMIQUE
CONTRASTE DES DEFAUTS

par Annick GERVAIS

THEORIE DYNAMIQUE
CONTRASTE DES DÉFAUTS

Annick GERVAIS

I. INTRODUCTION.

La théorie cinématique suppose que l'intensité transmise I_0 est toujours supérieure à l'intensité diffusée I_g . Nous avons vu dans le dernier paragraphe du chapitre Théorie Cinématique que cette condition est satisfaite moyennant l'utilisation de lames très minces ($<300\text{\AA}$) et des conditions d'excitations s différentes de zéro. La théorie dynamique prend le relai de la théorie cinématique en décrivant comment l'amplitude transmise $\phi_0(z)$ est modifiée par l'amplitude $\phi_g(z)$.

Il existe de nombreuses formulations équivalentes de la théorie dynamique, nous choisirons d'utiliser la formulation "optique" qu'en ont donné Howie et Whelan (2) et qui est d'autre part très souvent utilisée dans les calculs d'image de défauts (13). Le fondement réel de la théorie dynamique est cependant mieux décrit en utilisant le concept de surface de dispersion à plusieurs nappes introduit par Ewald et le modèle de la théorie des bandes. (surface de dispersion: surfaces de l'espace réciproque d'énergie constante $E(\vec{k}) = \text{cte}$).

II. EQUATIONS DE LA THEORIE DYNAMIQUE.

Selon l'approche "optique" le champ d'onde total se propageant dans la lame s'exprime à une profondeur z par l'équation (1)

$$(1) \Psi(\vec{r}) = \phi_0(z) \exp 2i\pi \vec{k}_0 \cdot \vec{r} + \phi_g(z) \exp 2i\pi \vec{k} \cdot \vec{r} \text{ où}$$

$$(2) \vec{k} = \vec{k}_0 + \Delta \vec{k} = \vec{k}_0 + \vec{g} + \vec{s}.$$

La théorie cinématique supposait l'indépendance de l'amplitude transmise ϕ_0 avec z ; la théorie dynamique décrit les échanges d'amplitudes $d\phi_0$ et $d\phi_g$ des deux faisceaux lors des rediffusions qui vont conduire à une variation de ϕ_0 avec z . Les seules possibilités retenues (dans le cadre de l'approximation de la colonne) sont cependant:

- la diffusion en avant $\vec{k}_0 \rightarrow \vec{k}_0$ ou $\vec{k} \rightarrow \vec{k}$

-la rediffusion $\vec{k}_0 \rightarrow \vec{k}$ ou $\vec{k} \rightarrow \vec{k}_0$

Le pouvoir diffusant d'une couche d'épaisseur dz a été calculé précédemment dans le cadre de la théorie cinématique et de l'approximation de la colonne, il vaut $(i\pi/z_0)dz$ pour la diffusion en avant et $(i\pi/z_g)dz$ pour la rediffusion. (relation (15)).

A partir des hypothèses précédentes nous pouvons expliciter la variation $d\phi_g$ de l'amplitude diffractée à la sortie de la couche d'épaisseur dz (Figure 1)

$$(3) \quad d\phi_g = (i\pi/z_0)\phi_0(z) + (i\pi/z_g)\phi_0(z) \exp 2i\pi(\vec{k}_0 - \vec{k}) \cdot \vec{r} dz$$

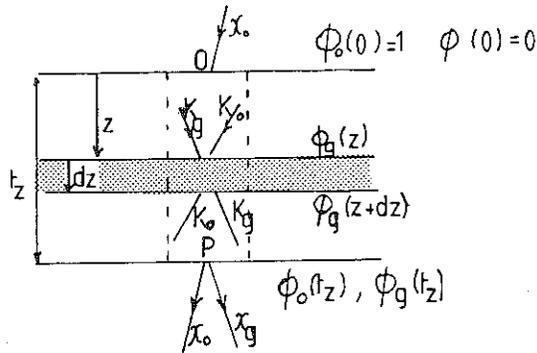


Figure 1.

Décomposition de la lame en couches d'épaisseur dz ; $\phi_0(z)$ et $\phi_g(z)$ amplitudes à l'entrée de la lame; $\phi_0(z+dz) \sim \phi_0 + d\phi_0$, 0 ; et $\phi_g(z+dz) \sim \phi_g + d\phi_g$ amplitudes à la sortie.

Dans cette expression le premier terme proportionnel à ϕ_g est la contribution de la diffusion en avant $\vec{k} \rightarrow \vec{k}$; le second terme proportionnel à $\phi_0(z)$ est lié à la rediffusion $\vec{k}_0 \rightarrow \vec{k}$. Ce second terme contient également un facteur de phase dû à la diffraction $\vec{k}_0 \rightarrow \vec{k}$ et précédemment introduit dans les relations (2) et (3) de la théorie cinématique. Le coefficient i est équivalent à un déphasage supplémentaire de $\pi/2$ entre les ondes incidentes $\phi_0(z)$ et $\phi_g(z)$ à l'entrée de la lame et les ondes $\phi_0(z+dz)$, $\phi_g(z+dz)$ à la sortie de celle-ci. (cf appendice 3 du chapitre précédent). Par analogie avec le cas précédent la variation d'amplitude du champ d'onde transmis s'écrit facilement;

$$(4) \quad d\phi_0 = (i\pi/z_0)\phi_0(z) + (i\pi/z_g)\phi_g(z) \exp 2i\pi(\vec{k} - \vec{k}_0) \cdot \vec{r} dz.$$

le produit scalaire contenu dans les exponentielles est exprimé comme au paragraphe VI du chapitre précédent (eq.15) en tenant compte de l'orientation de l'axe de la colonne selon la direction $O\vec{z}$ soit:

$$(\vec{k}_0 - \vec{k}) \cdot \vec{r} = \Delta \vec{k} \cdot \vec{r} = sz$$

III. LE CRISTAL PARFAIT. SURFACE DE DISPERSION. INTENSITES TRANSMISE ET DIFFRACTEE. ABSORPTION, TRAITEMENT PHENOMENOLOGIQUE.

L'intégration des équations (3) et (4) est faite en appendice. Le premier résultat important du calcul aboutit à l'existence de deux vecteurs d'ondes transmis $(\vec{k}_0)^1$ et $(\vec{k}_0)^2$ au voisinage d'une réflexion de Bragg à la place de \vec{k}_0 loin de ces mêmes conditions de réflexion. Pour discuter plus avant ces résultats nous utiliserons la représentation des surfaces de dispersion, bonne visualisation des résultats de la théorie dynamique à deux ondes, (figures 2a et 2b). Chaque noeud (cas à 2 ondes, 0 et G seulement) du réseau réciproque est le centre d'une sphère de rayon $1/\lambda$ dont nous avons exagérément augmenté la valeur de la longueur d'onde; le centre C de la sphère d'Ewald utilisé en théorie cinématique est situé sur le cercle de centre O. Le domaine de validité de la théorie cinématique correspond à l'identification de la surface de dispersion $E(\vec{k}) = cte$ avec ces cercles centrés sur les noeuds du réseau réciproque. A proximité de la réflexion de Bragg ($\theta = \theta_B$), la surface de dispersion se compose de deux nappes (1) et (2) dont une image agrandie est figurée en 2b.

Les résultats des calculs se traduisent en premier lieu par l'existence des deux vecteurs $(\vec{k}_0)^1 = \vec{D}_1 \vec{O}$ et $(\vec{k}_0)^2 = \vec{D}_2 \vec{O}$ qui remplacent le vecteur d'onde $\vec{k}_0 = \vec{CO}$ de la théorie cinématique.

La propagation des champs d'ondes à l'intérieur du cristal est décrite au moyen d'ondes de Bloch $B^i(\vec{r})$ dont l'expression :

$B(\vec{r}) = \phi_k(\vec{r}) \exp 2i\pi \vec{k}_0 \cdot \vec{r}$ ressemble à celle d'une onde plane multipliée par un terme ϕ_k qui possède la symétrie du réseau.

$$\phi_k(\vec{r}) = \phi_k(\vec{r} + \vec{L})$$

$= \sum C_g \exp 2i\pi \vec{g} \cdot \vec{r}$. D'où l'expression de l'onde de Bloch utilisée dans les calculs lorsque la sommation \sum est limitée aux seuls faisceaux 0 et G (expression (6) de l'appendice). Ces ondes de Bloch sont qualitativement représentées sur la Figure 3; l'onde 2 "se faufile" entre les plans atomiques, tandis que l'onde 1 est concentrée sur ceux-ci. La différence de longueur d'onde entre les vecteurs k_0 et k_0 donne lieu à des battements si les amplitudes ψ^i des deux ondes de Bloch sont comparables. L'intensité du champ sombre donnée en (5)

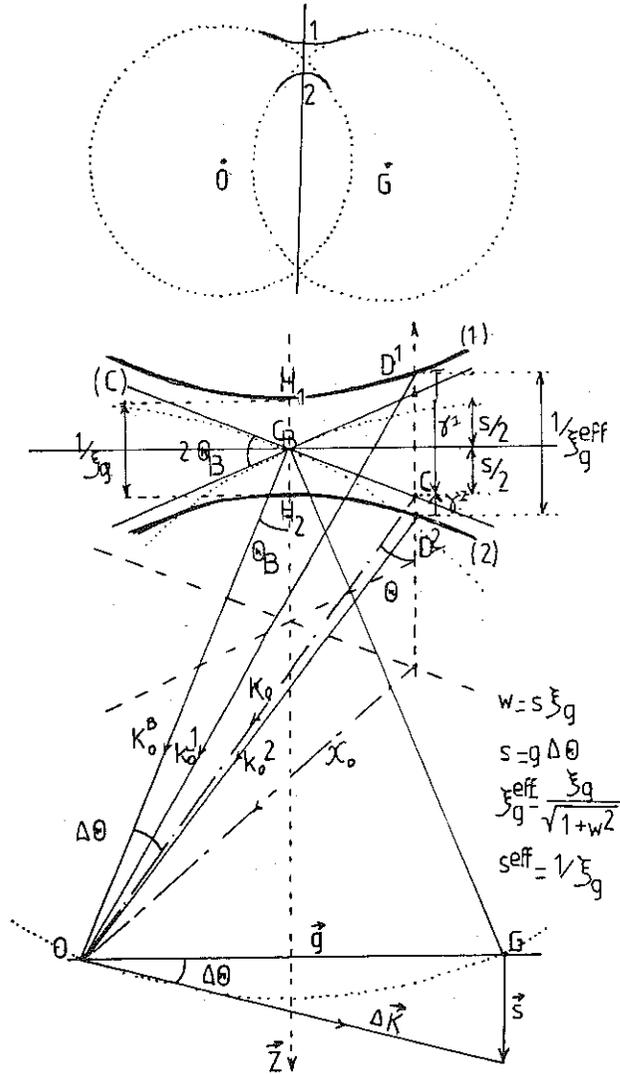


Figure 2.

-a- surface de dispersion; au voisinage des conditions de diffraction sur G décomposition de la surface en deux nappes; approximation des deux faisceaux.

-b- définition des paramètres intervenant dans le calcul des champs d'ondes dans le cadre de la théorie dynamique et dans l'approximation des deux ondes O et G . $\gamma_1 - \gamma_2 = \Delta \vec{k} = s^{eff} = 1/z^{eff}$

$$(5) \quad |\phi_g|^2 = (\pi/z_g)^2 (\sin^2(\pi t_z s^{\text{eff}}) / (\pi s^{\text{eff}})^2)$$

montre que la périodicité des franges d'épaisseur est $(z_g)^{\text{eff}}$ où

$$(6) \quad s^{\text{eff}} = 1/(z_g)^{\text{eff}} = (1+w^2)/z_g$$

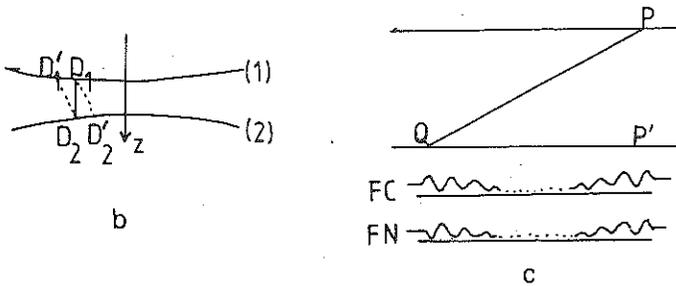


Figure 3.

Représentation qualitative des deux ondes de Bloch B^1 et B^2 .

L'amplitude des ondes de Bloch présente la périodicité du réseau;

La symétrie des deux ondes est différente; l'onde 2 se faufile entre les plans au contraire de l'onde 1 pour laquelle les ventres d'amplitude se situent au niveau des plans atomiques.

Lorsque l'épaisseur varie de $1/2z_g$ l'intensité à la sortie de la lame bascule du faisceau transmis au faisceau diffracté. Ce résultat est un des plus importants de la théorie dynamique.

La relation (5) se réduit à l'expression cinématique si $s \gg 1/z_g$ c'est à

dire (d'après la figure 2b) pour s^{eff}_s .

L'absorption est introduite dans la théorie du contraste des images pour rendre compte de la rapide atténuation des franges d'épaisseur avec la dimension du cristal. On l'interprète en supposant qu'une des deux ondes de Bloch B^1 est notablement absorbée (au sens de la microscopie cela signifie que les électrons sont diffusés en dehors de l'ouverture des diaphragmes). Cet effet est appelé absorption anormale. L'onde de Bloch la plus absorbée est celle qui est associée à un champ d'onde le plus proche du noyau des atomes, là où des effets comme la diffusion par des phonons par exemple ont plus de chances de se produire que dans une autre partie du cristal; l'énergie cinétique, proportionnelle au carré des vecteurs d'onde, est la plus grande pour les états associés à la surface d'onde (1), au contraire $(E_{\text{pot}})^1 < (E_{\text{pot}})^2$ c'est donc l'onde (1) qui doit être la plus absorbée.

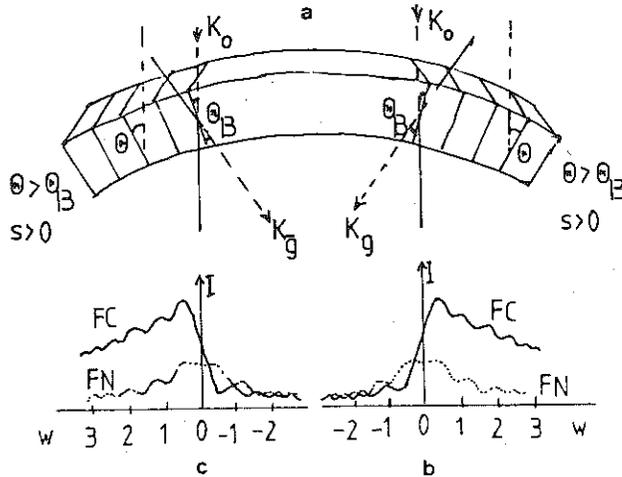


Figure 4.

Représentation des contours d'extinction d'une lame courbée. asymétrie de l'intensité de l'image en fond clair en présence d'absorption.

Ce résultat est très important, nous allons l'illustrer sur deux exemples:

-a- asymétrie des contours d'extinctions en champ clair: figure 4. dans les cristaux épais une asymétrie du profil des contours d'extinction se produit autour du point O de la figure 4; à droite de O, w est >0 , la forte valeur de l'intensité transmise est attribuée:

-à l'excitation de l'onde (1) $\{(C_0)^1$ grand}, qui est aussi l'onde la moins absorbée.

-le centre sombre du contour d'extinction correspond à l'excitation de l'onde (2) la plus absorbée.

-b- conditions favorables pour enregistrer une micrographie. Ces conditions sont bien évidemment celles d'une forte intensité transmise et donc le raisonnement précédent indique qu'il est souhaitable d'opérer à $s > 0$ plutôt qu'à $s < 0$. Dans les équations de la théorie dynamique l'absorption est introduite en remplaçant les distances d'extinction par des expressions complexes:

$$(7) \quad 1/z_0 \rightarrow 1/z_0 + i/z'_0$$

$$(8) \quad 1/z_g \rightarrow 1/z_g + i/z'_g$$

L'absorption anormale dépend de z'_g , elle est généralement exprimée au moyen du rapport z_g/z'_g ; on utilise aussi dans les calculs les quantités z_g/z'_0 , et z_0/z'_0 , cette dernière est indicative de l'absorption moyenne. En général les systèmes de franges, franges d'égale épaisseur, défauts plans, sont très sensibles au rapport z_g/z'_g et servent parfois à le déterminer (24); les dislocations y sont au contraire relativement peu sensibles.

IV. LE CRISTAL IMPARFAIT.

Les défauts sont traités dans les équations de la théorie dynamique à partir du terme supplémentaire de phase $: 2i\pi \vec{g} \cdot \vec{R}$ exactement comme dans le cadre de la théorie cinématique. Les équations (3) et (4) sont souvent exprimées sous une forme différente à partir d'un changement de variable, ces nouvelles équations font apparaître la rotation locale des plans réflecteurs contenue dans le coefficient $\vec{g} \cdot d\vec{R}/dz$; ainsi les défauts élastiques sont-ils observés sur l'image à travers la modification locale du paramètre d'excitation s.

$$(10) \quad d\phi_0/dz = (\pi i/z_g) \phi_g$$

$$(11) \quad d\phi_g/dz = (\pi i/z_g) \phi_0 + (2\pi i s + 2\pi i \vec{g} \cdot d\vec{R}/dz) \phi_g$$

Ce sont ces équations de la théorie dynamique à deux ondes, utilisant l'approximation de la colonne et incluant l'absorption qui sont utilisées dans nombre de programmes de calculs d'images par ordinateur. (13). Les données à l'entrée de ces programmes comportent des paramètres expérimentaux qu'il faut enregistrer en même temps que les micrographies de défauts à analyser. Ce sont:

- 1-la réflexion g
- 2-l'écart aux conditions de Bragg s
- 3-les directions caractéristiques des défauts: lignes \vec{u} de dislocations, plans de fautes etc
- 4-la direction du faisceau incident
- 5-le plan de la lame
- 6-l'épaisseur de l'échantillon

Les données numériques également nécessaires sont:

- a-la distance d'extinction z_g
- b-les coefficients d'absorption z'_0/z'_0 et z'_g/z'_g
- c-la longueur d'onde des électrons.

L'approximation de la colonne utilisée dans l'établissement des équations (10)(11) n'est plus appropriée pour les très petits défauts de dimensions voisines de la largeur de celle-ci ($\sim qqs \sqrt{\lambda E_z}$). En effet à l'intérieur de la colonne on suppose que le champ de déformation $R(x,y,z)$ ne dépend que de la cote z . ($R(x,y,z) \sim R(z)$) Des calculs exacts sont alors nécessaires(25). Les simulations d'images de défauts ont été très utiles pour résoudre un certain nombre de problèmes:

- influence de l'anisotropie élastique sur le contraste de défauts "élastiques"
- influence de la symétrie cristalline sur l'aspect des images
- établissement de critères d'identification:
 - de la condition d'extinction
 - de la décoration de dislocations etc

Les matériaux minéralogiques souvent anisotropes du point de vue élastique et fréquemment sujets à une dégradation du contraste sous l'effet des dégats d'irradiation comme le quartz et les feldspaths font une grande part à la caractérisation au moyen de simulations.

-explication qualitative de l'origine du contraste des défauts en présence d'absorption.

L'intensité d'une image est donnée, on l'a vu précédemment, par le carré des expressions de $\phi_o(t_z)$ et $\phi_g(t_z)$ obtenues à la sortie de la lame (expressions (13) et (14) de l'appendice). Supposons la présence d'un défaut incliné selon PQ (Figure 5); dans le cristal parfait situé au dessus de la ligne (ou du plan) PQ les ondes de Bloch sont excitées proportionnellement à ψ^1 et ψ^2 . En dessous du défaut ces coefficients d'excitation deviennent ψ'^1 et ψ'^2 ; a priori ils dépendent des ψ^1 et ψ^2 :

$$(12) \quad \psi'^1 = a \psi^1 + b \psi^2$$

$$(13) \quad \psi'^2 = c \psi^1 + d \psi^2$$

Dans ces relations (12) et (13) a et d dépendent du paramètre d'excitation s et du déphasage α du défaut ($\alpha = 2\pi \vec{g} \cdot \vec{R}$); les termes b et c traduisent les transitions de la nappe (1) à la nappe (2) et seront donc exprimés en fonction de la différence de longueur d'onde des vecteurs \vec{k}_o^1 et \vec{k}_o^2 :

$$(k_o^2)_z - (k_o^1)_z = \gamma^2 - \gamma^1 = s^{eff} = (\sqrt{1+w^2}) / \zeta_g .$$

C'est ce coefficient s^{eff} qui donne lieu aux franges de battements rencontrées dans un cristal parfait en forme de coin (relation (5)).

Figure 5. →

-a- coefficients d'excitation des ondes de Bloch au dessus et au dessous du défaut.

-b- rappel des expressions de l'amplitude à la sortie de la lame.

-c- défaut incliné dans la lame (dislocation ou défaut plan);

expression de l'amplitude à la sortie de la lame sous le défaut.

-d- amplitudes au niveau du point Q

-e- amplitude au niveau du point P'.

Par analogie avec les relations (A13) et (A14)(appendice) du cristal parfait on pose:

$$(14) \quad \phi_o(t_z)=u \psi'^1 + v \psi'^2$$

$$(15) \quad \phi_g(t_z)=p \psi'^1 + q \psi'^2$$

où les ψ'^i sont les coefficients d'excitation des ondes de Bloch en présence du défaut.

Sur la figure 5 sont représentés à la surface d'entrée de la lame les points D_1 et D_2 associés aux deux ondes de Bloch 1 et 2 et aux coefficients ψ^1 et ψ^2 . Au point Q situé à la partie inférieure de la lame il parvient l'onde 2 seulement, l'onde 1 étant absorbée; la présence du défaut va modifier l'onde incidente dont le coefficient devient ψ'^2 , il se crée aussi une autre onde de Bloch 1 associée au coefficient ψ'^1

$$\text{au point Q : } \psi'^1 = b \psi^2 \quad \text{et} \quad \psi'^2 = d \psi^2$$

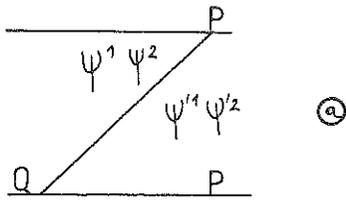
les ondes transmises et diffractées sont décrites par les relations (14) et (15) précédentes; formellement elles sont identiques à celles obtenues pour un cristal parfait; le contraste sera semblable à celui de franges d'égale épaisseur dont la période du battement sera déduit de la distance entre les points D_2 et D'_1 ; les images en fond clair et fond sombre seront pseudo-complémentaires au lieu d'être strictement complémentaires pour les franges d'épaisseur.

Considérons à présent ce qui se passe près du point P de la face d'entrée; le défaut va créer de nouvelles ondes de Bloch dont les coefficients d'excitation sont donnés par les relations (12) et (13); l'onde 1 est atténuée complètement lorsqu'elle arrive au dessus de la face de sortie. Les ondes transmise et diffractée s'écrivent alors

$$\phi_o = v \psi'^2$$

$$\phi_g = q \psi'^2$$

ces expressions sont semblables car il y apparait le même terme $\exp 2i\pi \gamma^2 z'$ dans v et q; les franges apparaitront avec la variation de l'épaisseur z' du cristal sous le défaut; les battements proviennent du terme ($s^{eff} = 1/\zeta_g$) contenu dans le coefficient d de l'expression (13) de ψ'^2 ; les images en fond clair et en fond noir présenteront les mêmes oscillations.

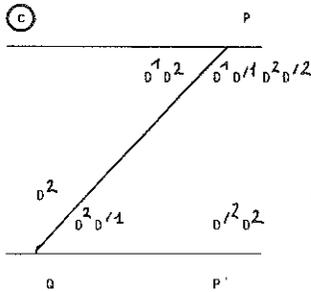


$$\begin{aligned} \psi \cdot 1 &= a \psi \cdot 1 + b \psi \cdot 2 \\ \psi \cdot 2 &= c \psi \cdot 1 + d \psi \cdot 2 \end{aligned}$$

(b)

$$\begin{aligned} \phi_o &= C_o \psi \cdot 1 \exp 2i\pi\gamma \cdot 1 z + C_o \psi \cdot 2 \exp 2i\pi\gamma \cdot 2 z \\ \phi_g &= C_g \psi \cdot 1 \exp 2i\pi\gamma \cdot 1 z + C_g \psi \cdot 2 \exp 2i\pi\gamma \cdot 2 z \end{aligned}$$

(c)



$$\begin{aligned} \phi_o(t_z) &= u\psi \cdot 1 + v\psi \cdot 2 \\ \phi_g(t_z) &= p\psi \cdot 1 + q\psi \cdot 2 \end{aligned}$$

(d) au point O.

$$\begin{aligned} \psi \cdot 2 / \psi \cdot 1 &= b \psi \cdot 2 \\ \psi \cdot 2 &= d \psi \cdot 2 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \phi_o &= u\psi \cdot 1 + v\psi \cdot 2 \\ \phi_g &= p\psi \cdot 1 + q\psi \cdot 2 \end{aligned}$$

(e) au point P'.

$$\begin{aligned} \psi \cdot 1 \psi \cdot 2 / \psi \cdot 1 \psi \cdot 2 \\ \psi \cdot 2 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \phi_o &= v\psi \cdot 2 \\ \phi_g &= q\psi \cdot 2 \end{aligned}$$

Figure 5.

Cette propriété du contraste des défauts est très importante car elle permet de trouver aisément le sens de l'inclinaison ; nous avons illustré au chapitre précédent (Figure 7) comment deux boucles de nature différentes pouvaient donner lieu au même déplacement de l'image, l'ambiguïté est levée dans ce cas par la connaissance de l'orientation du plan de la boucle.

Ce résultat est vérifié pour de très nombreux défauts, fautes planes, dislocations, joints de macles et micromacles, joints de grains.

-dislocations.

Les simulations montrent que l'intensité du contraste des images de dislocations est fonction du nombre $n = (\vec{g} \cdot \vec{b})$ et des conditions de diffraction; n est entier pour les dislocations parfaites, non entier pour les dislocations partielles. Ainsi une dislocation partielle est généralement invisible si n est égal à $1/3$, visible si $n=2/3$. (cf TD DEFAUTS D'EMPILEMENTS).

Les conditions de diffraction associées à un entier >1 ne sont pas utilisées sauf $n=2$ si l'excitation $w=0$, l'image présente alors une double ligne. Lorsque cette condition est reconnue sur les images elle permet de déterminer \vec{b} en module (cf chapitre précédent au §VII.4).

Le contraste résiduel des dislocations coin est fonction du paramètre m défini par Howie & al, $m=1/8(\vec{g} \cdot (\vec{b} \wedge \vec{u}))$; l'extinction complète est associée à $\vec{g} \cdot \vec{b}=0$ et $m < 0.08$; la légère déformation des plans parallèles au plan de glissement (\vec{u}, \vec{b}) est à l'origine de ce contraste qui possède de plus la propriété d'être symétrique par rapport à la ligne de dislocation.

Les images de dislocations parallèles, de même vecteur de Burgers et très proches ne sont pas a priori identiques; une interprétation erronée peut conduire à l'hypothèse de différents vecteurs de Burgers; dans certains matériaux anisotropes à structure lamellaire comme le graphite cet effet est prépondérant. Cependant dans la plupart des cas où les dislocations sont isolées, la similitude des images obtenues dans des conditions de diffraction différentes est un bon test de l'identité des vecteurs \vec{b} .

Nous verrons un exemple de détermination du point d'entrée et du point de sortie (face inférieure) d'une dislocation à partir de deux images prises en fond clair et en fond noir dans un des exercices de travaux dirigés.

-Défauts plans

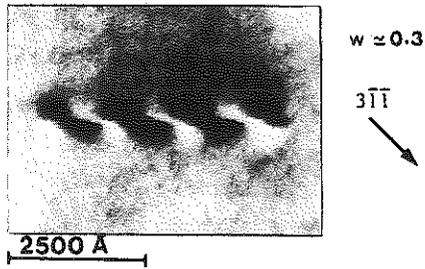
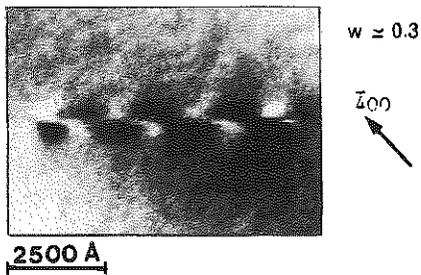
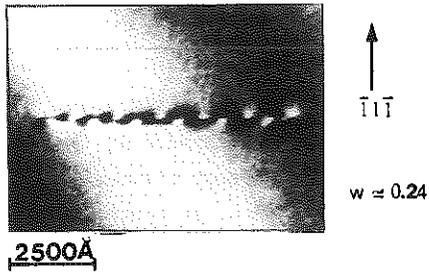
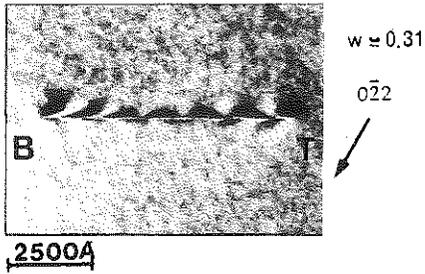
Les calculs de profils de franges réalisés notamment par le groupe d'Amelinckx ont permis d'établir des critères d'identification des défauts plans de nature différente (17); les simulations montrent également que le contraste des franges dépend du produit $\vec{g} \cdot \vec{R}$, la comparaison de profils calculés et expérimentaux fournit le module de R ; cette méthode est courante pour déterminer le vecteur déplacement de joints de grains en position de coïncidence, elle est appliquée à la mesure des vecteurs faute de faible module dans les feldspaths déformés en laboratoire.

V. ILLUSTRATIONS.Dislocations.

L'utilisation du critère d'extinction repose sur la reconnaissance de la condition $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$; les images résiduelles sont situées de part et d'autre de la ligne de dislocation et sont peu sensibles au paramètre w ; au contraire la condition $\vec{g} \cdot \vec{b} = 1$ est caractérisée par un contraste oscillant (défaut incliné) très prononcé et une image qui se situe de plus en plus d'un côté de la dislocation à mesure que w croît. Ces observations sont déduites de la comparaison d'images expérimentales et simulées. La première micrographie présente des images prises pour deux dislocations dans le silicium; ce sont des dislocations mixtes à 60° , celle de droite est décorée par de la silice; le contraste résiduel situé de part et d'autre de la ligne est bien visible pour la dislocation non décorée et les réflexions $\bar{4}00$ et $3\bar{1}\bar{1}$; les images oscillantes et situées plus particulièrement d'un côté de la ligne sont visibles pour la réflexion $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$ ($g \cdot b = 1$) et $0\bar{2}\bar{2}$ ($g \cdot b = 2$). La seconde micrographie illustre le changement de contraste d'une dislocation vis (C) pour la condition $g \cdot b = 1$ lorsque le paramètre w varie.

Les dislocations mixtes présentent un contraste résiduel. Cette planche montre que la nature d'une dislocation s'interprète plus facilement à proximité des conditions de Bragg $w \sim 0$. Les micrographies 3 et 4 présentent des simulations faites pour des dislocations contenues dans un échantillon de feldspath; on y reconnaît les mêmes modifications du contraste avec la valeur de $g \cdot b$ et w que dans le silicium; le contraste résiduel est extrêmement prononcé sur la planche 4. La dissymétrie des images résiduelles est étudiée au moyen de simulations sur la planche 5 (feldspath); les résultats s'appliquent aussi aux images de la planche I du silicium.

DISLOCATION D



DISLOCATION E

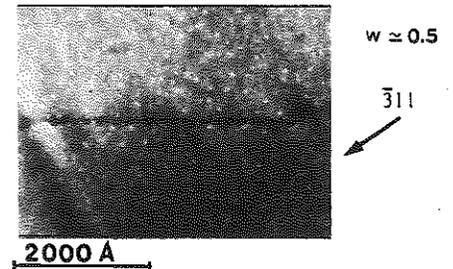
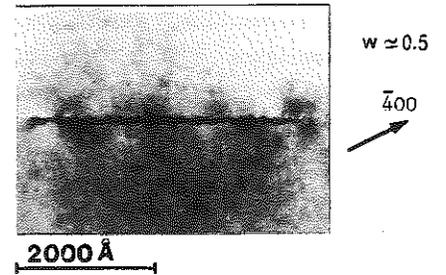
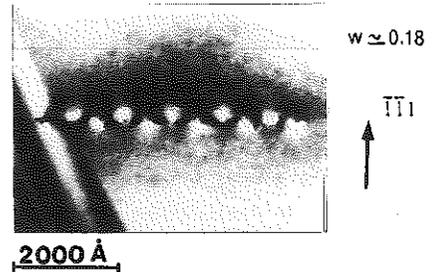
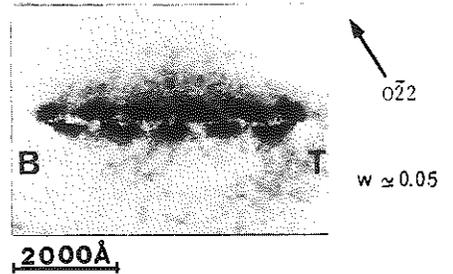


Planche 1

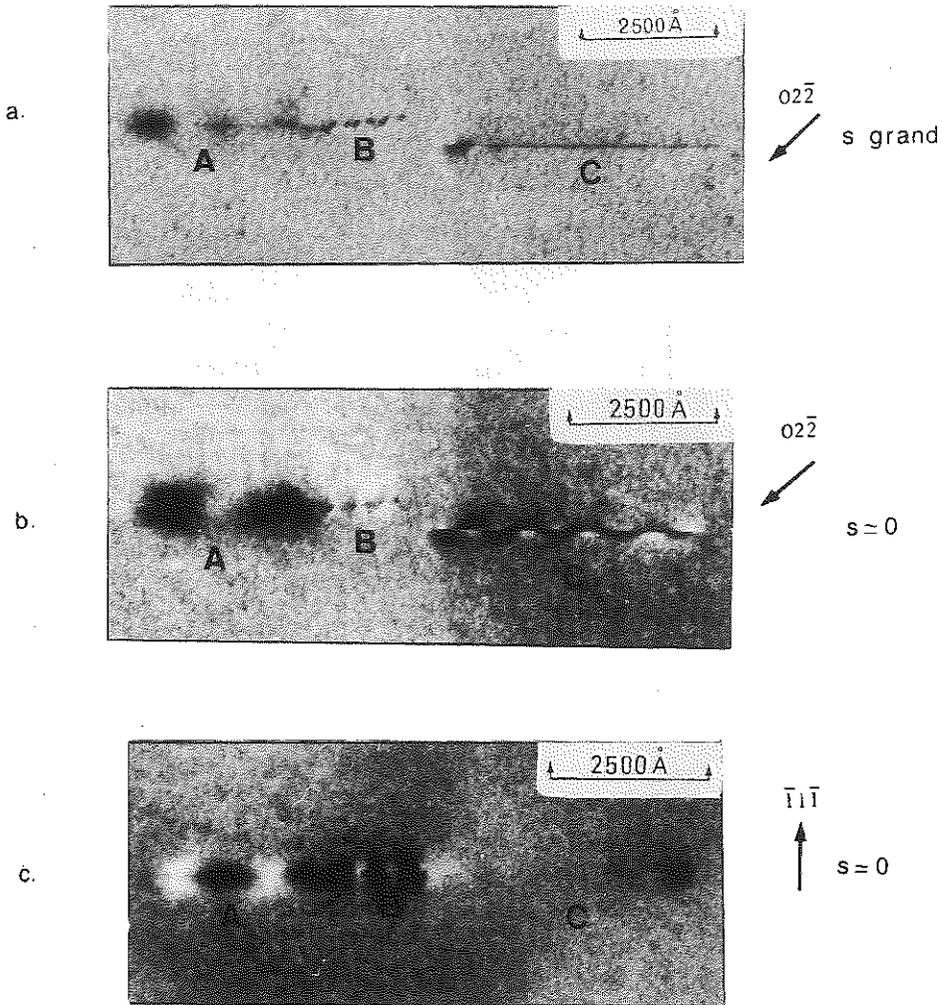
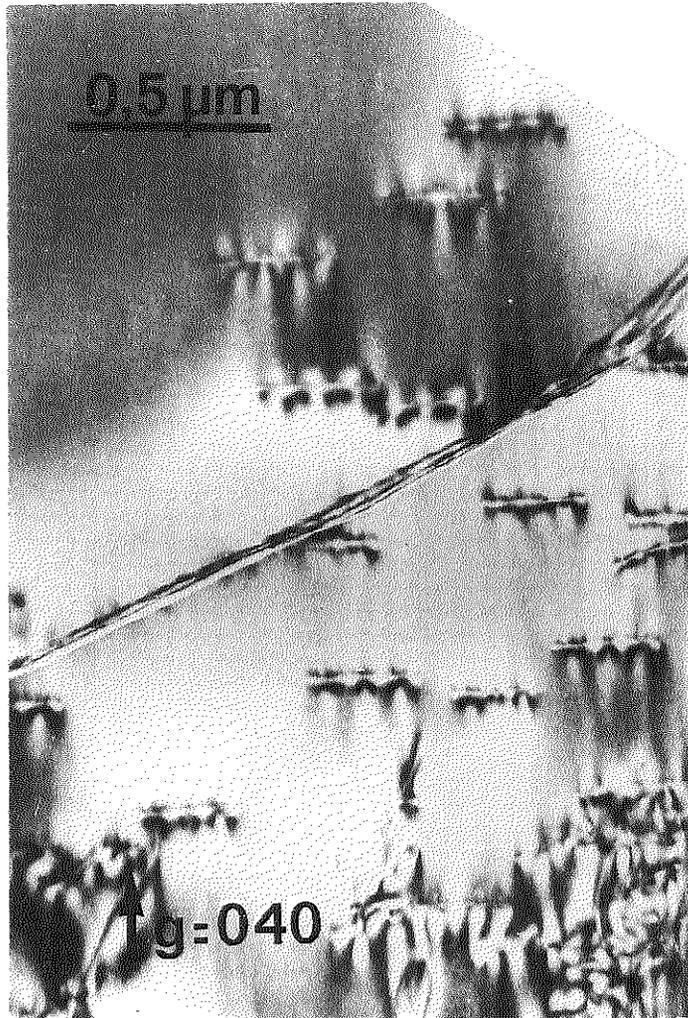
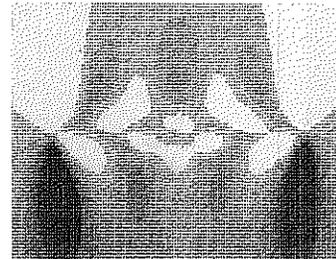


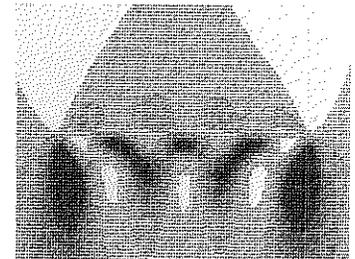
Planche 2



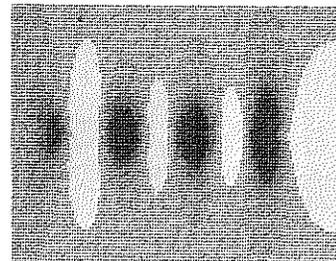
type $\vec{g} \cdot \vec{b} \neq 0$
w=0



w=0,4



type $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$
w=0



w=0,8

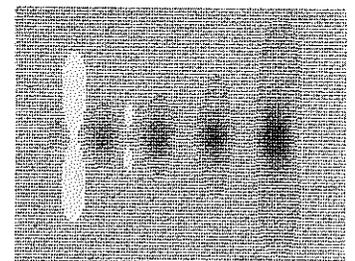
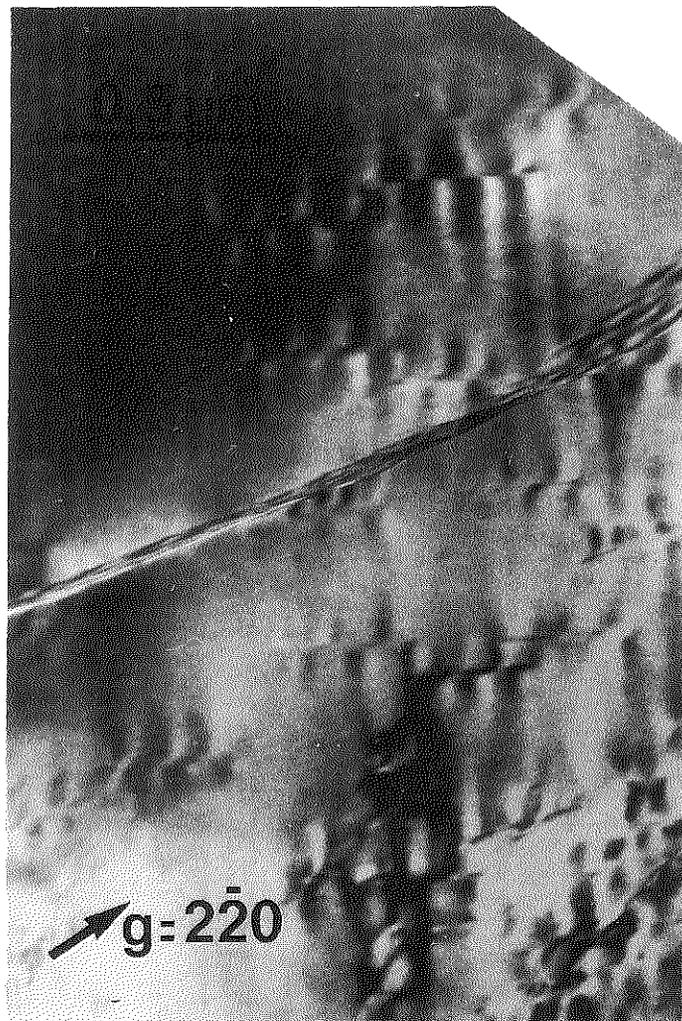
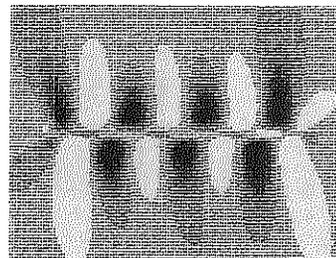


Planche 3

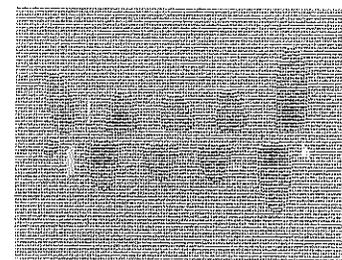


$l = [100]$ type $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$

$w = 0$

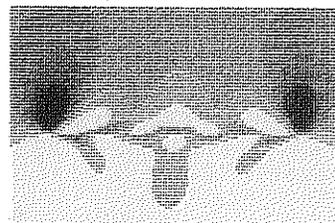


$w = 0,6$



type $\vec{g} \cdot \vec{b} \neq 0$

$w = 0$



$w = 0,8$

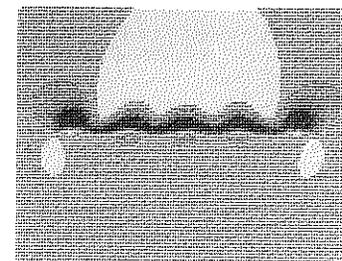


Planche 4

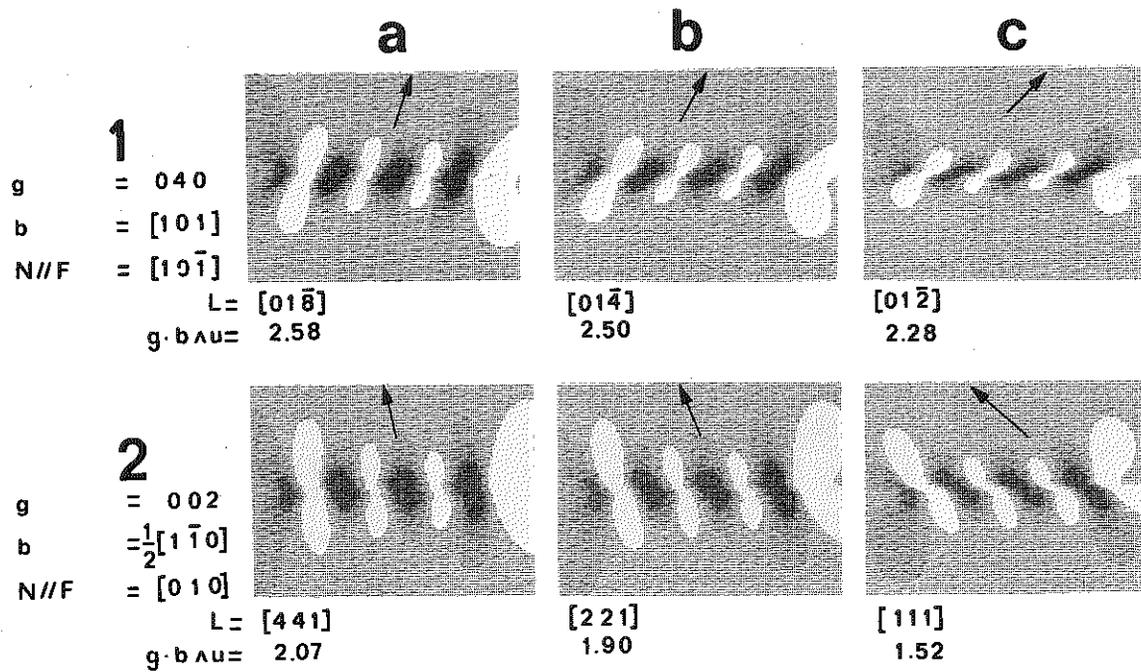


Planche 5

LEGENDES DES PLANCHES DE MICROGRAPHIE.

Planche 1.

Dislocations à 60° dans le silicium; dislocation D non décorée contrairement à la dislocation E. Contraste $g.b \neq 0$ pour les réflexions $0\bar{2}2$ et $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$; contraste résiduel ($g.b=0$) pour les réflexions $\bar{4}00$ et $3\bar{1}\bar{1}$

Planche 2.

Dislocation vis C : contraste variable avec w pour la condition $g.b=1$ extinction totale de C vis à vis de A et B pour la dernière réflexion $\bar{1}\bar{1}\bar{1}$

Planche 3.

Dislocations dans un feldspath; à gauche la micrographie, à droite les simulations; le contraste est bien simulé par la condition $w=0$ et $g.b \neq 0$

Planche 4.

Mêmes dislocations que sur la planche 3 mais pour une condition de réflexion associée à $g.b = 0$

Planche 5.

Dislocations dans un feldspath; le contraste résiduel ($g.b = 0$) dépend de $g.bAu$ et de l'angle entre le vecteur g et la direction de ligne u (effet de cisaillement du contraste)

Défauts plans. les images suivantes concernent un même échantillon d'olivine dans lequel apparaissent des défauts plans. D'après les études de contraste menées sur les défauts plans on sait qu'ils peuvent appartenir à une des variétés suivantes:

- défauts plans de type α d'après la nomenclature du groupe d'Amelincx
- les défauts $\alpha = \pi = 2\pi \vec{q} \cdot \vec{R}$ sont appelés antiphases.
- les parois δ , comme les parois de domaines magnétiques dans N_1O

La première constatation faite sur des images réalisées avec différents vecteurs de réflexion est l'identité du fond continu de part et d'autre du défaut; ceci indique qu'il n'y a pas de désorientation des réseaux de part et d'autre, on peut donc exclure les parois δ et les domaines d'inversion. Le contraste présent est celui d'une paroi d'antiphase et se distingue sur la planche 6 par les caractères suivants:

- les franges sont symétriques en fond clair et en fond sombre par rapport à la frange centrale pour $w=0$.

- la frange centrale blanche en fond clair est noire en fond sombre

- lorsque le vecteur de réflexion change de signe les images sont inchangées en fond clair comme en fond sombre.

- lorsqu'une paroi d'antiphase intercepte un contour d'épaisseur les franges supplémentaires apparaissent à l'extérieur en laissant la frange centrale inchangée. La nature de la faute étant déterminée il faut calculer le vecteur déplacement en grandeur et sens; ceci est réalisé à partir des réflexions conduisant à des extinctions et à des franges de "caractère π ". Ainsi pour l'orientation de la paroi imagée sur la planche 6 les extinctions ont lieu pour les réflexions 111, 131, 004; le caractère π est observé pour 002 et 131.

Les extinctions conduisent à un système d'équations linéaires:

$$u + v + w = p$$

$$u - 3v + w = q$$

$$4w = r$$

Le vecteur R compatible est de la forme $R // [(3p+q-r)/4, (p-q)/4, r/4]$ Le caractère π pour 002 implique que r soit impair; de même pour la réflexion 131 une nouvelle condition est trouvée: p et q ne sont pas de même parité; ceci amène à considérer deux possibilités pour R

$$R_1 = [0, -1/4, 1/4] \text{ ou } R_2 = [1/2, -1/4, 1/4]; \text{ La non extinction de}$$

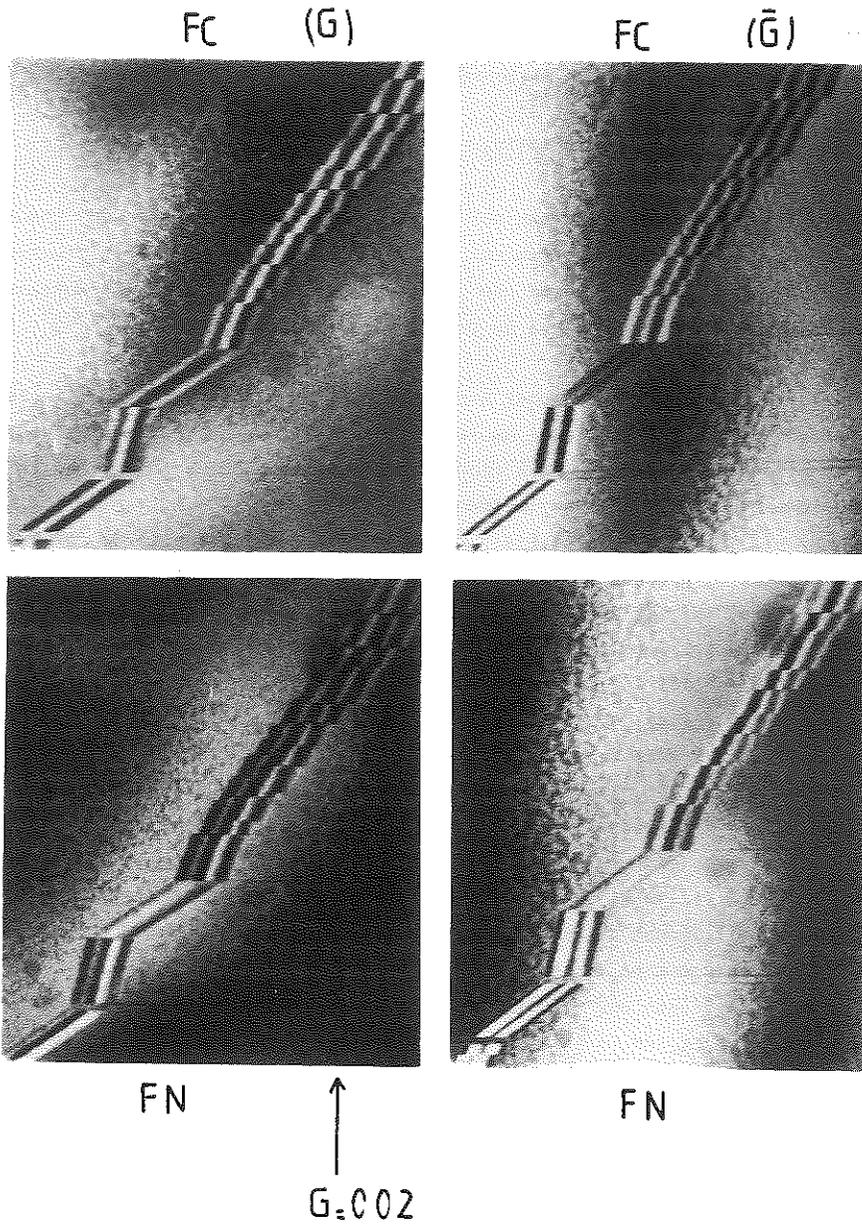


Planche 6.

Parois d'antiphases dans l'olivine; contraste de franges caractéristique de la valeur du déphasage $\alpha = 2\pi g \cdot R = \pi$

la paroi pour la réflexion 120 montre que R_1 est la solution cherchée; ce vecteur appartient au sous-réseau de l'oxygène. D'autres exemples seront traités en travaux dirigés.

VI. CONCLUSION AUX DEUX CHAPITRES DE THEORIE CINEMATIQUE ET DYNAMIQUE.

Nous avons essayé de montrer dans les deux chapitres de théorie cinématique et dynamique comment l'utilisation conjointe des informations fournies par le diagramme de diffraction et l'image permettaient l'identification des défauts de réseau et des inclusions.

A.# Une image de défaut, pour être interprétée, nécessite la maîtrise des paramètres expérimentaux qui agissent sur elle; très schématiquement deux situations se présentent et à chacune d'elle est associée l'application de la théorie dynamique ou de la théorie cinématique.

-a- Il s'agit d'identifier un défaut. Il est souhaitable et même nécessaire de prendre des images interprétables sans ambiguïté; pour cette raison les micrographies sont enregistrées en orientant le cristal de façon à exciter deux faisceaux seulement en "conditions dynamiques" ($s \neq 0$); tout défaut incliné sur la lame est associé à un système de franges ou d'oscillations caractéristiques. (cf paragraphes IV et V de ce chapitre.) La théorie dynamique explique comment ces oscillations (ou franges) résultent d'un battement entre des ondes de vecteurs \vec{k}_0^1 et \vec{k}_0^2 légèrement différents. Sur l'image c'est l'interfrange associé à ces battements qui est visible, on l'appelle distance d'extinction effective: $(z_g)^{eff} = z_g / (\sqrt{1+w^2})$; $(z_g)^{eff}$ est le paramètre essentiel de la théorie dynamique; il dépend du facteur de structure F_g de la réflexion considérée et de l'écart $w (w = s z_g)$ aux conditions de Bragg.

-b- Si le défaut est identifié et que l'intérêt se porte vers la structure fine de celui-ci, il est avantageux d'adapter les conditions d'excitations $s (s = g \Delta \theta)$ de sorte que seules les parties fortement désorientées du cristal autour du défaut ($\Delta \theta$ grand $\rightarrow s$ grand (à g fixé)) donnent lieu à un contraste, interprété en terme d'image cinématique.

B.# Un large domaine d'application de la microscopie électronique est lié à l'identification de phases : monocristaux, polycristaux, inclusions dans une matrice. Comme dans le cas précédent les diagrammes de diffraction sont corrélés à des images, principalement des fonds sombres; mais cette

fois le cristal est orienté de façon à faire coïncider le faisceau d'électrons avec une rangée dense du cristal; tant que l'ouverture du faisceau d'électrons est faible (approximation du "faisceau d'électrons parallèle ") la théorie cinématique s'applique c'est à dire que l'intensité des taches de diffraction est donnée par la relation (8) du chapitre théorie cinématique. Les méthodes récentes d'études structurales en mode "faisceaux convergents" nécessitent pour interpréter les diagrammes de diffraction l'emploi d'une théorie dynamique élaborée. Ce domaine n'a pas été abordé dans le cadre de cette école.

APPENDICE. Equations de la théorie dynamique; intégration; Nous donnons ici les principaux résultats de l'intégration du système d'équations différentielles:

$$(1) \quad d\phi_0/dz = (i\pi/z_0)\phi_0(z) + (i\pi/z_g)\phi_g(z) \exp 2i\pi sz$$

$$(2) \quad d\phi_g/dz = (i\pi/z_0)\phi_0(z) + (i\pi/z_g)\phi_g(z) \exp -2i\pi sz$$

L'élimination de ϕ_g conduit à une équation différentielle du 2nd degré:

$$(3) \quad d^2\phi_0/dz^2 - 2i\pi s(d\phi_0/dz) + (\pi^2/z_g^2)\phi_0 = 0$$

dont une solution est de la forme $\phi_0 \sim \exp 2i\pi \gamma z$ où γ est solution de:

$$\gamma^2 - \gamma s + (z_g)^{-1/2}/4 = 0$$

si de plus on pose $w = s z_g$ paramètre sans dimension, il vient:

$$(4) \quad \gamma^1 = (s - \sqrt{s^2 + 1}/(z_g)^2)/4 = (w - \sqrt{w^2 + 1})/2z_g$$

$$(5) \quad \gamma^2 = (s + \sqrt{s^2 + 1}/(z_g)^2)/4 = (w + \sqrt{w^2 + 1})/2z_g$$

ϕ_0 possède donc deux solutions indépendantes que nous appelons ϕ_0^i ; elles s'expriment au moyen de constantes à définir (C_0^i) , avec $i=1,2$; $\phi_0^i = C_0^i \exp 2i\pi \gamma^i z$; il en est de même pour les solutions indépendantes $\phi_g^i = C_g^i \exp 2i\pi \gamma^i z$ avec:

$$(C_g^i)/(C_0^i) = 2\gamma^i z_g = w + (-1)^i \sqrt{1+w^2}$$

Il apparaît ainsi que le champ d'onde total

$$\Psi(\vec{r}) = \phi_0(\vec{r}) \exp 2i\pi \vec{k}_0 \cdot \vec{r} + \phi_g(\vec{r}) \exp 2i\pi \vec{k}_g \cdot \vec{r}$$

possède également deux solutions indépendantes

$$\Psi(\vec{r}) = \psi^1 B^1(\vec{r}) + \psi^2 B^2(\vec{r}) \quad \text{où } B^i(\vec{r}) \text{ est défini par la relation (6)}$$

$$(6) \quad B^i(\vec{r}) = (C_0^i)^i \exp(2i\pi \vec{k}_0 \cdot \vec{r}) + (C_g^i)^i \exp(2i\pi (\vec{k}_0 + \vec{g}) \cdot \vec{r})$$

Chacune des deux ondes B^i , appelées ondes de Bloch, est liée à une nappe (i) de la surface de dispersion et sa probabilité d'excitation est ψ^i

La normalisation des fonctions: $(B^i)^2=1$ conduit aux expressions de définition de C_o^i et C_g^i

$$(7) (C_o^1)^1 = (C_g^2)^2 = \cos \beta/2$$

$$(8) (C_o^2)^2 = -(C_g^1)^1 = \sin \beta/2$$

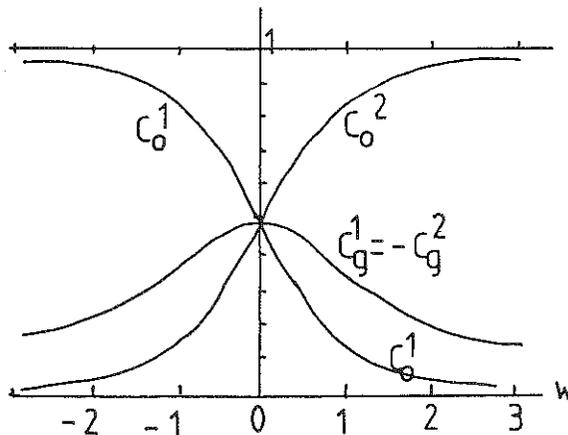
où β est tel que $w = \cotg \beta = s z_g$

Les ψ^i sont déterminés à leur tour à partir des conditions aux limites sur la surface d'entrée, ils ont pour valeurs:

$$(10) \psi^1 = \cos \beta/2 \quad \text{et} \quad \psi^2 = \sin \beta/2$$

$$(11) \cos \beta = w / (\sqrt{1+w^2}) \quad \sin \beta = 1 / (\sqrt{1+w^2})$$

La variation des $(C_o^i)^1$ et $(C_g^i)^1$ est représentée ci-contre en fonction du paramètre sans dimension w ; cette courbe montre que l'onde B^1 est plus excitée lorsque $w > 0$ (C_o^1) est en effet maximum lorsque $w > 0$). Ce résultat servira un peu plus tard lorsque nous aurons introduit l'absorption.



A la sortie du cristal considéré comme une lame à faces parallèles d'épaisseur t_z le champ d'onde total est déduit des relations suivantes:

$$(12) \psi(\vec{r}) = \phi_o(t_z) \exp 2\pi i \vec{\chi}_o \cdot \vec{r} + \phi_g(t_z) \exp 2\pi i \vec{\chi}_g \cdot \vec{r}$$

où $(\hbar^2/2me)(\chi_o)^2 = E$ et

$K_{oz} = \chi_{oz} + (2\zeta_o)^{-1}$ cette relation s'interprète par l'existence d'une réfraction du vecteur incident dirigé selon χ_o dans le vide et K_o dans le cristal

Les amplitudes transmises et diffractées sont définies à leur tour par:

$$(13) \phi_o(t_z) = \Gamma_1 \psi^i (C_o)^i \exp 2\pi i \gamma^i t_z$$

$$(14) \phi_g(t_z) = \Gamma_1 \psi^i (C_g)^i \exp 2\pi i \gamma^i t_z$$

ou plus explicitement par

$$(13') \phi_o(t_z) = \cos X - i \cos \beta \sin X$$

$$(14') \phi_g(t_z) = i \sin \beta \sin X$$

avec $X = (\pi t_z / \zeta_g) / \sqrt{1 + w^2}$

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.

(1) P.B.Hirsch. Electron Microscopy of defects in crystals, p.284 in Fifty years of Electron Diffraction, Ed. P. Goodman (1981), D.Reidel Pu-blihing Cie.

PRINCIPAUX LIVRES TRAITANT DE LA DIFFRACTION ET DE LA MICROSCOPIE ELECTRONIQUE.

ECOLEES D'ETE.

(2) Electron Microscopy of thin crystals. P.B.Hirsch, A.Howie, R.B Nicholson, D.W.Pashley, M.J.Whelan. London Butterworths (1965).

(3) Modern Diffraction and Imaging Techniques in Material Science, Ed., S.Amelinckx, R.Gevers, G.Remaut, J.Van Landuyt, North-Holland Publ (1969).

(4) Méthodes et Techniques nouvelles d'Observation en Métallurgie Physique, Ed. B.Jouffrey, Soc. Franc. Microscopie Electronique (1972).

(5) Diffraction des Electrons, Ed. L.Lafourcade, J.A.de Saja, SFME (1973)

(6) Electron Microscopy in Materials Science, Ed. V.Valdrè, E.Ruedl Commission of the European Communities (1975).

(7) Microscopie en Sciences des Matériaux. Ed. B.Jouffrey, A.Bourret, C.Collieux. Editions du CNRS (1981).

OUVRAGES GENERAUX.

(8) B.K.Vainshtein, Structure Analysis by Electron diffraction, Pergamon Press (1964).

(9) J.M.Cowley. Electron Diffraction and the nature of Defects in Crystals. Aust. Acad. Sci. Publ. J-5 (1965).

(10) Z.G.Pinsker, Electron Diffraction, Butterworths (1967)

(11) B.B Zvyagin, Electron Diffraction Analysis of Clay Mineral Structures; Monographs in geoscience; Plenum, New-York (1967).

(12) O.Johari, G.Thomas. The Streographic Projection and its Applications Techniques of Metals Research, vol IIa, New-York, Interscience. (1969).

(13) A.K.Head, P.Humble, L.M.Clarebrough, A.J.Morton C.T.Forwood, Computed Electron micrographs and defects identification. North Holland (1973).

(14) P.R.Swann, High Voltage Microscopy, London Academic Press (1974).

(15) J.W.Edington, Practical Electron Microscopy in Materials Science, vol 1-4, Philips Technical Library, London-Mac-Millan (1975).

(16) J.M.Cowley Diffraction physics, North Holland Press (1975).

(17) H.R.Wenk, Electron Microscopy in Mineralogy, Berlin, Springer (1976).

- (18) J-P.Eberhart Méthodes Physiques d'Etudes des Minéraux et des Matériaux Solides.Doin(1976).
- (19) Diffraction and Imaging Techniques in Material Science, 1S.Amelinckx,R.Gevers,J.Van Landuyt,North-Holland (1978)
- (20) G.T.Thomas,M.J.Goringe,Transmission Electron Microscopy of Materials ,New-york,Wiley(1979)
- (21) J.Gjonnes in ref(1),408
- (22) S.Amelinckx in A.I.P.conf.proc.n°53,102 (1979).
- (23) P.B.Hirsch,A.Howie,M.J.Whelan,Phil Trans Roy Soc A252,49(1960)
- (24) M.Sacerdoti,E.Carletti,L.Morettini,G.Martinelli,Phys Chem Min 11,2(1984)
- (25) A.Howie,Z.S.Basinski,Phil Mag,17,1039(1968).

CHAPITRE VII
METHODE DES FAISCEAUX FAIBLES

par Madeleine GANDAIS

METHODE DES FAISCEAUX FAIBLES

Madeleine GANDAIS

INTRODUCTION

Les premières études de dislocations par microscopie électronique ont été effectuées avec des images en champ clair et en champ sombre de cristaux orientés au voisinage de la position de Bragg pour une réflexion g_{hkl} . Ces images sont dites en condition dynamique à deux faisceaux (l'un transmis, l'autre diffracté). En condition à deux faisceaux le contraste des images dépend d'une seule famille de plans réticulaires, celle qui diffracte, ce qui simplifie l'interprétation (A. Gervais, ce volume). L'étude complète d'une dislocation nécessite une série d'images différant entre elles par la réflexion g , pour examiner différentes familles de plans. Autour d'une dislocation, en effet, les familles de plans ne sont pas toutes également déformées (C. Willaime, ce volume). En condition dynamique les images sont très contrastées mais elles ont un inconvénient: l'image d'une dislocation est large - de l'ordre de 30 à 50nm dans les minéraux - car la déformation élastique du réseau s'étend loin du coeur de la dislocation. Pour cette raison, les détails fins proches du coeur ne sont pas visibles.

La méthode des faisceaux faibles a été développée par Cockayne et al. en 1969 pour obtenir des images très fines des dislocations. Le principe est le suivant: on considère toujours une seule famille de plans diffractant mais on écarte le cristal de la position de Bragg pour amener en position de diffraction des portions de plans déformés proches du coeur de la dislocation (figure 1). Ainsi l'image de la dislocation se rapproche du coeur et s'affine. L'intensité diffractée par le faible volume de cristal en position de Bragg n'est pas très élevée. L'image de la dislocation en champ clair manque de contraste car elle est plongée dans l'image claire du cristal. Au contraire l'image en champ sombre malgré sa faible intensité est bien contrastée

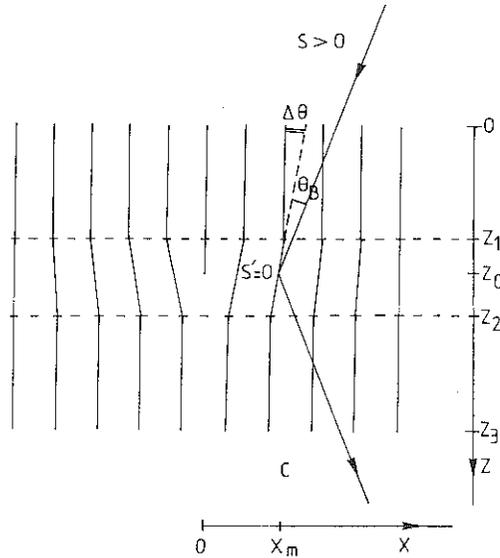


Figure 1: Schéma de déformation du réseau autour d'une dislocation. Cristal hors position de Bragg avec une colonne C traversant la région où le réseau est en position de Bragg, à la distance x_m de la dislocation. θ_B : angle de Bragg; s et s' : paramètres d'écart à l'incidence de Bragg.

car elle se détache du fond sombre du cristal (figure 2). C'est donc cette image en champ sombre, appelée image en faisceau faible, que l'on cherche à interpréter. On utilisera pour cela les notations conventionnelles définies par A. Gervais:

La réflexion employée pour former l'image est appelée g , la famille de plans réfléchissant (hkl) étant définie par le vecteur $\vec{OG} = \vec{g}$, de module g (figure 3). L'écart à l'incidence de Bragg est caractérisé par le vecteur réciproque \vec{s}_g de direction normale à la lame cristalline et de module $s_g = g \Delta\theta$, où $\Delta\theta$ est l'écart angulaire à l'incidence de Bragg. La distance d'extinction relative à la réflexion

Légende de la figure 2.

Images de dislocations dans un feldspath (METHT, 600 KV).

a, b et c: condition dynamique ($g = 002$).

a) champ clair; b) champ sombre

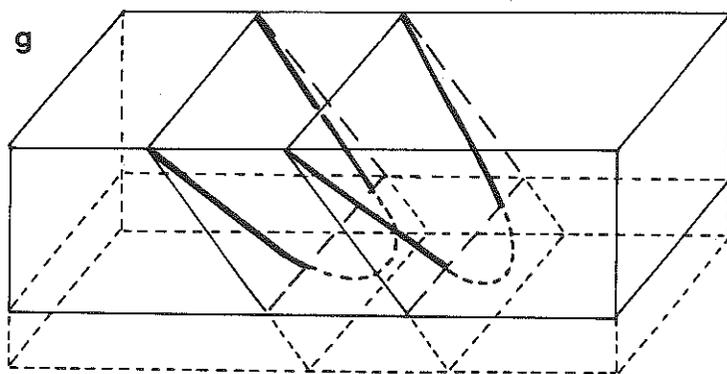
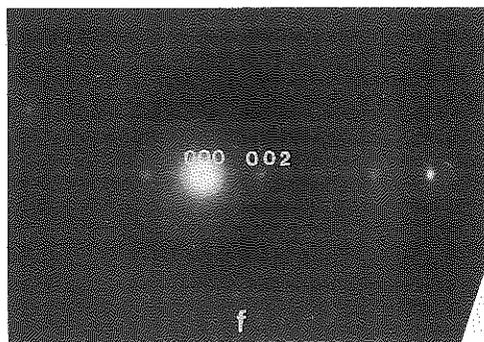
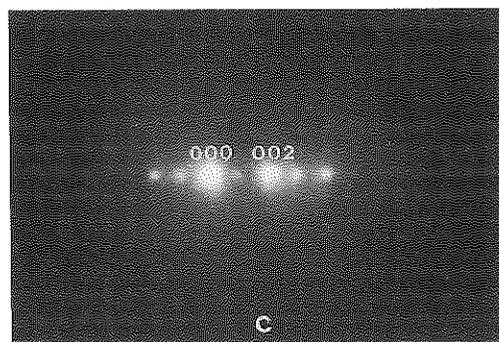
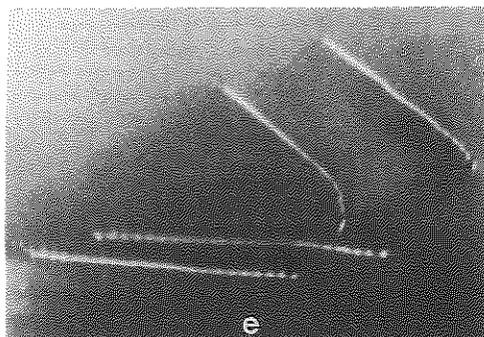
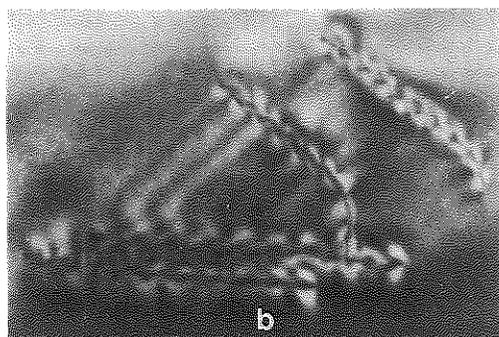
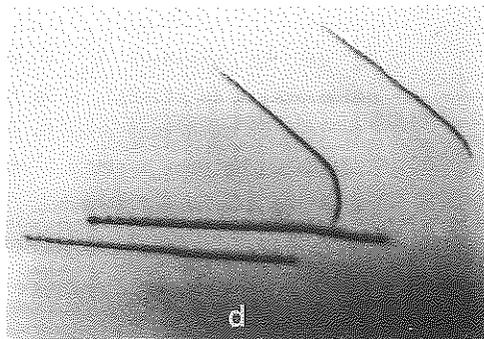
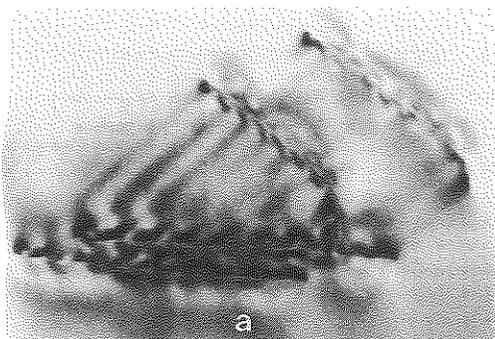
c) diagramme de diffraction correspondant

d, e et f: condition cinématique.

d) champ clair; e) champ sombre, faisceau faible g , $4g$ ($g = 002$)

f) diagramme de diffraction correspondant

g) disposition dans la lame mince des deux dislocations présentées sur cette figure.



g est la grandeur $\xi_g = rV / \lambda F_g$ où V est le volume de la maille élémentaire du cristal, λ la longueur d'onde des électrons et F_g le facteur de structure pour la réflexion g . Comme on considère une seule réflexion on peut omettre l'indice g pour les grandeurs s et ξ et F . C'est ce que nous ferons.

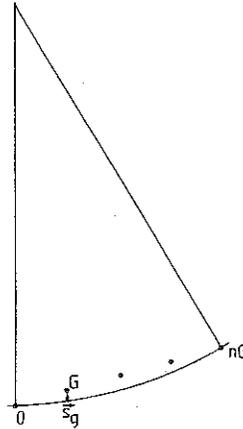


Figure 3: Sphère d'Ewald et réseau réciproque.

1. CONTRASTE DES DISLOCATIONS - APPROCHE QUALITATIVE.

L'image des dislocations en faisceaux faibles a été interprétée qualitativement de façon simple par Cockayne (1978) en utilisant les résultats de la théorie de la diffraction des électrons par un cristal parfait dans l'approximation de la colonne. On divise le cristal en petites colonnes parallèles aux plans diffractant et on considère que l'intensité du faisceau transmis et celle du faisceau diffracté à la sortie d'une colonne dépendent uniquement de leur orientation par rapport aux plans diffractant dans cette colonne. Les résultats de la théorie peuvent se résumer à ce qui suit:

On considère une lame à faces parallèles de cristal parfait dans laquelle se propagent le faisceau transmis et le faisceau diffracté g . Les intensités respectives I_0 et I_g sont des fonctions périodiques de la profondeur z et vérifient la relation de conservation d'énergie $I_0 + I_g = 1$ pour tout z (figure 4). La période des oscillations ainsi que les valeurs extrêmes des intensités dépendent de l'écart à l'incidence de Bragg. A l'incidence de Bragg ($s = 0$), la période des oscillations est la distance d'extinction ξ définie précédemment.

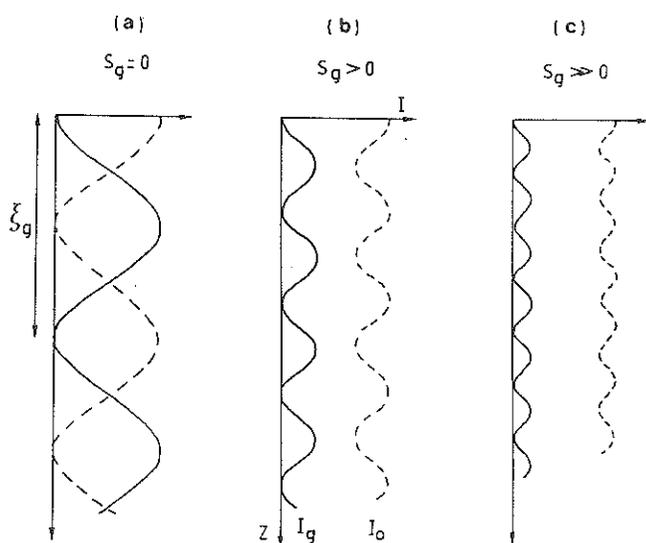


Figure 4: Intensité transmise I_0 (traits tiretés) et intensité diffractée I_g (traits pleins) en fonction de la profondeur z dans un cristal parfait. a) : cristal en position de Bragg; b) et c) : cristal hors position de Bragg.

L'intensité transmise varie entre le maximum égal à 1 (en particulier sur la face d'entrée à $z = 0$) et le minimum égal à 0, et l'intensité diffractée varie entre 0 (en particulier sur la face d'entrée) et 1. Quand on s'écarte de l'incidence de Bragg ($s \neq 0$), la période des oscillations décroît: $\xi' < \xi$. L'intensité transmise varie entre 1 et $I_{tm} \neq 0$ tandis que l'intensité diffractée varie entre 0 et $I_{gm} = 1 - I_{tm}$. Plus l'écart à l'incidence de Bragg augmente, plus la période des oscillations diminue de même que l'amplitude des variations d'intensité $\Delta I = 1 - I_{tm} = I_{gm}$.

Soit maintenant une dislocation dans une lame de cristal écarté de la position de Bragg, à la distance z_0 de la face d'entrée. Pour décrire la déformation du réseau autour de la dislocation, on utilise le modèle simple représenté sur la figure 1: on admet que les plans réticulaires courbés par la déformation se décomposent en trois portions de plans parfaitement plats, respectivement situés dans trois tranches du cristal. Dans la première tranche (entre $z = 0$ et $z = z_1$) et dans la troisième tranche (entre $z = z_2$ et $z = z_3$) les plans sont

parallèles aux plans réticulaires des régions de cristal parfait et l'écart à l'incidence est défini par le paramètre $s \gg 0$. Dans la seconde tranche de faible épaisseur, entre $z = z_1$ et $z = z_2$, les plans sont inclinés par rapport à ceux de la région parfaite et l'écart à l'incidence de Bragg est défini par le paramètre s' . Dans ce modèle, s' ne dépend que de la distance x du point considéré à la dislocation. Suivant l'hypothèse de Cockayne et al. (1969), l'intensité diffractée atteint son maximum dans la colonne C qui traverse la région où le réseau est en condition de Bragg ($s' = 0$). Cette condition est satisfaite d'un seul côté de la dislocation, à une distance x_m du coeur. On considère cette colonne C. En examinant les courbes de l'intensité diffractée par un cristal parfait en fonction de l'épaisseur (figure 4), on peut déduire l'aspect de l'intensité diffractée par la colonne C (figure 5). Entre 0 et z_1 , loin de la position de Bragg, l'intensité diffractée en fonction de la profondeur suit la courbe de figure 4.c; elle varie avec une périodicité $\xi' \ll \xi$ et une amplitude $\Delta I \ll 1$. Entre z_1 et z_2 , près de la position de Bragg, l'intensité suit la courbe de la figure 4.a; elle croît jusqu'à un maximum et continuerait en variant avec une périodicité voisine de ξ et une amplitude ΔI proche de 1. Mais au dessous de z_2 , le réseau

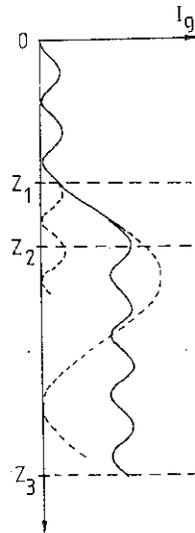


Figure 5: Faisceau faible: intensité diffractée, en fonction de l'épaisseur, par la colonne C de cristal traversant la zone en position de Bragg.

est à nouveau loin de la position de Bragg de sorte que l'intensité diffractée varie en fonction de la profondeur avec la même périodicité et la même amplitude qu'entre 0 et z_1 . A la face de sortie, en z_3 , l'intensité diffractée par la colonne C est beaucoup plus grande qu'à travers les zones du cristal parfait. La figure 6 représente l'intensité diffractée par le cristal en fonction de x distance au coeur de la dislocation. On note un pic d'intensité à la distance x_m , qui constitue l'image de la dislocation. La valeur exacte de l'intensité diffractée ne peut pas être déduite de ce raisonnement simple. Mais on conçoit qu'elle dépend de l'intensité diffractée juste à l'entrée de la zone déformée, et que par conséquent elle varie entre deux valeurs extrêmes suivant la position de la dislocation par rapport à la période ξ' . Ainsi, l'image d'une dislocation parallèle à la lame cristalline est plus ou moins brillante suivant la position de la dislocation dans une tranche d'épaisseur ξ' et l'image d'une dislocation inclinée par rapport à la lame présente un contraste oscillant de périodicité ξ' .

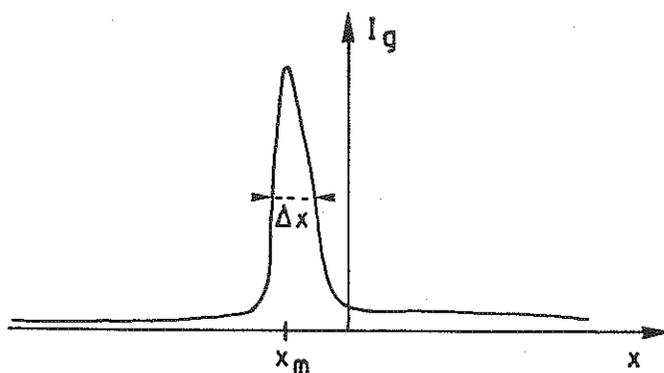


Figure 6: Faisceau faible: Intensité diffractée en fonction de la distance x à la dislocation; x_m : position de l'image.

2. CONTRASTE DES DISLOCATIONS- APPROCHE QUANTITATIVE.

Des résultats quantitatifs ont été déduits de calculs utilisant l'approximation de la colonne en théorie cinématique (De Ridder et Amelinckx 1971). Dans ce traitement, on définit une dislocation parallèle aux faces de la lame cristalline suivant la direction Oy' , à la profondeur $z = z_0$ (figure 7). En un point P, le champ de déplacement \vec{R} dû à la dislocation s'écrit sous la forme:

$$(1) \quad \vec{R} = \frac{\vec{b}}{2\pi} \left(\theta + \varepsilon \frac{\sin 2\theta}{4(1-\nu)} \right)$$

Dans cette expression θ est l'angle $(\vec{O'P}, \vec{O'x'})$, \vec{b} est le vecteur de Burgers, ν le module de Poisson (égal à $1/3$ dans la plupart des matériaux), et ε vaut 0 pour une dislocation vis et 1 pour une dislocation coin.

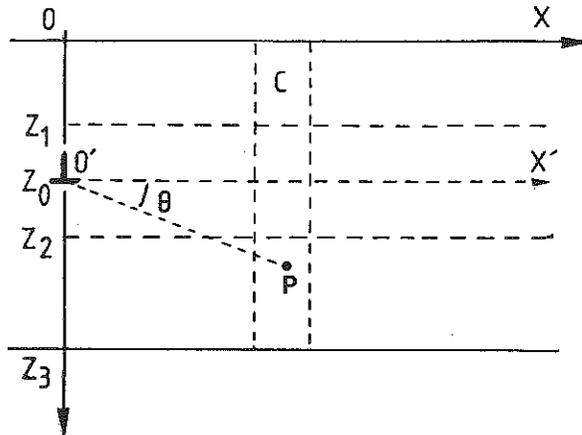


Figure 7: Dislocation dans un cristal mince. Approximation colonne.

Amplitude du faisceau diffracté.

Dans une colonne C, à la distance x de la ligne de dislocation, l'amplitude diffractée par le cristal est donnée par la formule:

$$(2) \quad A = \int_0^z e^{2\pi i(sz + \vec{g} \cdot \vec{R})} dz$$

On utilise le même modèle de dislocation que précédemment, et on divise le cristal en trois tranches. Dans la première et dans la troisième tranche $\vec{R} \approx 0$, donc $\vec{g} \cdot \vec{R}$ est négligeable. L'expression (2) se décompose alors en trois termes:

$$(3) \quad A = \int_0^{z_1} e^{2\pi isz} dz + \int_{z_1}^{z_2} e^{2\pi i(sz + \vec{g} \cdot \vec{R})} dz + \int_{z_2}^z e^{2\pi isz} dz$$

Le premier et le troisième termes sont négligeables parce que s est très grand. Le second terme correspond à l'amplitude diffractée par le coeur de la dislocation. Dans le modèle de dislocation considéré, on assimile les plans courbés à leur plan tangent au point d'inflexion (à $z = z_0$). On développe \vec{R} en série de Taylor:

$$(4) \quad \vec{R} = \vec{R}_{z_0} + (z - z_0)(\partial \vec{R} / \partial z)_{z_0} + \dots$$

L'amplitude devient alors:

$$(5) \quad A = e^{2\pi i \vec{g} \cdot [\vec{R}_{z_0} - z_0 (\partial \vec{R} / \partial z)_{z_0}]} \int_{z_1}^{z_2} e^{2\pi i [s + (\partial \vec{R} / \partial z)_{z_0}] z} dz$$

Dans la zone du coeur, l'écart à la condition de Bragg vaut:

$$(6) \quad s' = s + (\partial \vec{g} \cdot \vec{R} / \partial z)_{z_0} = s + \vec{g} \cdot (\partial \vec{R} / \partial z)_{z_0}$$

s' est une fonction de la distance x entre la colonne C et la ligne de dislocation.

Position de l'image. (figure 4.b)

Suivant le critère de Cockayne et al. (1969), l'amplitude diffractée est maximale à la distance x_m pour laquelle $s' = 0$, d'où:

$$(7) \quad s = - \vec{g} \cdot (\partial \vec{R} / \partial z)_{z_0, x_m}$$

Etant donné que $(\partial \vec{R} / \partial z) = (\partial \vec{R} / \partial \theta)(\partial \theta / \partial z)$, on a:

$$(8) \quad \frac{\partial \vec{R}}{\partial z} = \frac{\vec{b}}{2\pi} \left(1 + \frac{\epsilon \cos 2\theta}{2(1-\nu)} \right) \frac{d\theta}{dz}$$

Pour $z = z_0$, $\theta = 0$ et $(\partial\theta/\partial z) \sim 1/x$, ce qui donne:

$$(9) \quad \left(\frac{\partial \vec{R}}{\partial z} \right)_{z_0} = \frac{\vec{b}}{2\pi} \left(1 + \frac{\epsilon}{2(1-\nu)} \right) \frac{1}{x}$$

On trouve pour la position du pic d'intensité:

$$(10) \quad x_m = \frac{\vec{g} \cdot \vec{b}}{2\pi s} \left(1 + \frac{\epsilon}{2(1-\nu)} \right)$$

Cette valeur ne dépend ni de l'épaisseur z_3 de la lame ni de la profondeur z_0 de la dislocation. Elle est inversement proportionnelle à s . Pour $s = 0,2 \text{ nm}^{-1}$, la distance x_m entre l'image et la dislocation est de l'ordre de 1nm.

Intensité diffractée.

Dans la colonne C, à la position x_m , l'intensité diffractée est proportionnelle à $(\sin \pi s' / \pi s')^2$, e étant l'épaisseur de la zone contenant la dislocation (A. Gervais, ce volume), de sorte que l'intensité maximale I_{\max} est proportionnelle à:

$$\lim_{s' \rightarrow 0} (\sin \pi s' / \pi s')^2 = e^2$$

La variation de \vec{R} est au plus égale à $\vec{b}/2$. En prenant $\Delta \vec{R} / \Delta z = \vec{b}/2$ On a une évaluation de l'épaisseur e à partir de l'équation (6):

$$(11) \quad 0 = s + \left(\frac{\partial \vec{g} \cdot \vec{R}}{\partial z} \right)_{z_0} \# s + \frac{\vec{g} \cdot \Delta \vec{R}}{\Delta z} = s + \frac{\vec{g} \cdot \vec{b}}{2e} \quad , \text{ donc:}$$

$$(12) \quad e = \left| \frac{\vec{g} \cdot \vec{b}}{2s} \right|$$

L'intensité I_{\max} est donc proportionnelle à: $(\vec{g} \cdot \vec{b})^2 / s^2$.

Largeur de l'image.

Soit Δx la largeur à mi-hauteur du profil d'intensité. On a:

$$(13) \quad I_{\max} / 2 = e^2 / 2 = (\sin \pi s' / \pi s')^2$$

s' représentant l'écart à l'incidence de Bragg à la position $x + \Delta x$.

En résolvant (13) on trouve:

$$(14) \quad s' \approx 1,4 \pi e$$

Par ailleurs, le développement en série de Taylor de (6) donne:

$$(15) \quad s' = s + \left(\frac{\vec{g} \cdot \partial \vec{R}}{\partial z \partial x} \right)_{\substack{z=z_0 \\ x=x_m + \Delta x}} \approx \Delta x \left(\frac{\vec{g} \cdot \partial^2 \vec{R}}{\partial z \partial x} \right)_{\substack{z=z_0 \\ x=x_m}} \\ = \Delta x \, 2\pi s^2 / \vec{g} \cdot \vec{b} \left(1 + \frac{\epsilon}{2(1-\nu)} \right)$$

A partir de ces deux expressions et de (12), on trouve:

$$(16) \quad \Delta x \approx \frac{1,4}{\pi^2 s} \left(1 + \frac{\epsilon}{2(1-\nu)} \right)$$

Pour $s = 0,2 \text{ nm}^{-1}$, la largeur de l'image à mi-hauteur est inférieure à 2 nm .

3- PROCEDURE EXPERIMENTALE

Les conditions pour obtenir des images de haute résolution doivent être remplies: le microscope doit être réglé en tension, l'objectif corrigé de l'astigmatisme et le faisceau diffracté \vec{g} aligné selon l'axe de l'objectif. L'intensité de l'image en fond noir étant faible, la mise au point est difficile mais on peut régler la focalisation en champ clair et maintenir les mêmes conditions de focalisation en champ sombre.

Les conditions de diffraction optimales s'obtiennent avec une réflexion g de facteur de structure important, un écart à la position de Bragg s de l'ordre de $0,2 \text{ nm}^{-1}$ (pour $\vec{g} \cdot \vec{b} \ll 2$) et aucune autre réflexion fortement excitée. La procédure expérimentale est alors la suivante:

- On choisit une réflexion g de fort facteur de structure.
- On règle le microscope pour une image en champ sombre avec la réflexion g .
- On place le cristal en position de Bragg pour la réflexion g

exclusivement, puis on l'écarte de cette orientation pour amener en position de Bragg une réflexion ng d'ordre supérieur (figure 3)

- On ajuste l'inclinaison du cristal pour exclure toute autre réflexion importante.

- On fait l'image en fond noir avec la réflexion g faiblement excitée.

On désigne les conditions de l'expérience par la notation: (g, ng) , ce qui signifie que l'image est effectuée avec la réflexion g et le cristal est proche de l'incidence de Bragg pour la réflexion ng . Lorsque le noeud ng est sur la sphère d'Ewald, l'écart à la position de Bragg pour la réflexion g est donnée par l'expression:

$$(17) \quad s = (n-1) g^2 \lambda / 2$$

ce qui donne pour l'écart angulaire:

$$(18) \quad \Delta\theta = (n-1) \theta_B$$

4 - APPLICATIONS

La méthode des faisceaux faibles a été utilisée pour étudier la structure fine des dislocations, des boucles de défaut, des petits précipités. Cockayne (1978) a donné de nombreux exemples d'application aux semi-conducteurs et aux alliages métalliques. N. et J.C. Doukhan (1978) ont présenté les travaux effectués dans le domaine des minéraux et des oxydes. J.C. Doukhan présente dans ce volume de nouveaux exemples d'application aux minéraux.

REMERCIEMENTS.

Les micrographies de la figure 2 ont été faites à l'Institut Max Planck de Stuttgart. Je remercie Horst Strunk qui m'y a accueillie et m'a enseigné la pratique des faisceaux faibles. Je remercie également Aline Ramos qui a participé à la rédaction de ce chapitre.

Bibliographie

Cockayne D.J.H. (1978) "The weak beam method of electron microscopy", dans "Diffraction and Imaging Technics in Material Science", Eds. S.Amelinckx, R.Gevers and J.Van Landuyt. North-Holland Publishing Company.

Cockayne D.J.H., Ray I.L.F. and Whelan M.J. (1969). " Investigations of Dislocation Strain Field using Weak Beams", Phil.Mag.,20, 1265-1270.

Doukhan N. et Doukhan J.C. (1978). "La méthode des faisceaux faiblement excités appliquée à l'étude des dislocations dissociées", J.Microsc.Spectrosc.Electron. 3, 285-294.

Doukhan J.C. "Déformation des minéraux", ce volume.

Gervais A. (1986) "Théorie Cinématique. Contraste des défauts", ce volume.

De Ridder R. et Amelinckx (1971). "Approximate Theoretical Treatment of Weak-Beam Dislocation Images", Phys. Stat. Sol. (b) 43 541-550.

CHAPITRE VIII

APPLICATION DE LA MICROSCOPIE
ELECTRONIQUE A LA DEFORMATION
DES MINERAUX

par Nicole et Jean Claude
DOUKHAN

**APPLICATION DE LA MICROSCOPIE ELECTRONIQUE
A LA DEFORMATION DES MINERAUX**

Nicole et Jean-Claude DOUKHAN

INTRODUCTION

L'utilisation de la microscopie électronique en transmission (MET) pour l'étude des roches et minéraux s'est considérablement développée depuis une vingtaine d'années. En particulier l'étude des défauts de réseau et des mécanismes de déformation plastique des minéraux a donné lieu à une littérature très abondante. La plupart des minéraux majeurs a été étudiée en MET : olivine, quartz, calcaire, quelques feldspaths et phyllosilicates, divers oxydes et sulfures, des pyroxènes, grenats... On n'essayera pas ici d'en donner une revue exhaustive mais on étudiera plutôt quelques cas à titre d'exemples. Auparavant on rappelle brièvement les concepts de base de la théorie de la plasticité cristalline afin de pouvoir interpréter et discuter les observations de défauts de réseau en MET. En effet, la déformation plastique des cristaux est due au mouvement de défauts de réseau (défauts ponctuels, dislocations, joints de grain, ...). La vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ est une fonction de la densité et de la mobilité de ces défauts et ces deux dernières grandeurs sont des fonctions de la contrainte appliquée σ , de la température T ... Une déformation plastique en régime stationnaire dans des conditions données T , σ , $\dot{\epsilon}$... doit donc laisser dans le cristal une structure de dislocations représentative de ces conditions qui peut permettre de remonter au mécanisme élémentaire contrôlant la mobilité des dislocations, donc la plasticité du matériau considéré.

A) RAPPELS DE METALLURGIE PHYSIQUE

1 - Défauts ponctuels

La figure 1 représente une structure cristalline très simplifiée : une seule sorte d'atomes situés aux noeuds d'un réseau carré.

Les divers défauts ponctuels possibles sont :

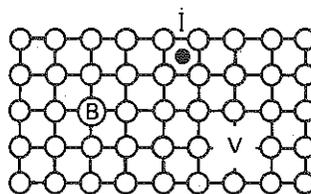


Figure 1. Défauts ponctuels.

- . la lacune V ou absence d'atome en un site normal,
 - . l'interstitiel ou atome en une position normalement interdite.
- Dans le cristal A, A_I est un auto interstitiel et B_I un hétéro interstitiel.

le substitutionnel ou atome de nature chimique différente en site normal, B_A .

On montre en thermodynamique statistique qu'un cristal de A pur (disons par exemple du silicium) en équilibre à la température T a une concentration atomique de lacunes (proportion de sites vacants)

$$C_V(T) = \exp - \frac{G_{Vf}}{kT} \quad (1)$$

où G_{Vf} est l'enthalpie libre de formation d'une lacune et k la constante de Boltzmann. L'échange d'une lacune avec un atome premier voisin constitue l'étape élémentaire de la migration des lacunes. Cette opération nécessite le franchissement d'une barrière d'énergie G_{Vm} . La migration d'un atome A donné est donc proportionnelle à la probabilité que cet atome ait pour premier voisin une lacune fois la probabilité que s'effectue l'échange A - V. On évalue cette mobilité des atomes via les lacunes par le coefficient d'auto-diffusion D_A

$$D_A = D_0 \exp - \frac{G_{Vf} + G_{Vm}}{kT} \quad (2)$$

et la distance quadratique moyenne parcourue par un atome dans un temps t est

$$\bar{X} = \sqrt{2 D t} \quad (3)$$

Pour un cristal ionique comme NaCl par exemple la situation est un peu plus compliquée car la neutralité électrique doit être respectée. Dans un cristal pur et stoechiométrique il y a autant de cations Na^+ que d'anions Cl^- . La création d'une lacune de Na^+ , V_{Na} , est nécessairement accompagnée soit d'une lacune de Cl^- , V_{Cl} , (paire de Schottky) soit d'un interstitiel de Na, Na_I , (paire de Frenkel). Dans le premier cas la concentration atomique d'équilibre à la température T de lacunes de Na est :

$$[V_{Na}] = [V_{Cl}] = \exp - \frac{G_{Sf}}{2kT} \quad (4)$$

où G_{Sf} est l'enthalpie libre de formation d'une paire de Schottky et la mobilité des ions Na par échange lacunaire est gouvernée par le coefficient de diffusion

$$D_{Na} = D_0 \exp - \frac{G_{Sf}/2 + G_{VNa m}}{kT} \quad (5)$$

Il y a un coefficient similaire pour l'anion. Les équations (4) et (5) décrivent le régime intrinsèque (cristal pur). Considérons maintenant le cas d'un cristal impur. D'un point de vue formel on introduit une molécule $MgCl_2$ en faisant d'abord deux lacunes de Na et deux de Cl, ce qui amène en surface $2Na^+$ et $2Cl^-$ (charge nette nulle). On remplit alors les deux V_{Cl} par les deux Cl^- de la molécule $MgCl_2$ et l'une des V_{Na} par Mg^{++} . Pour chaque substitution on a donc finalement 1 V_{Na} avec une charge < 0 et 1 Mg_{Na} avec une charge > 0 . La concentration totale de lacunes de sodium est alors :

$$[V_{Na}] = \exp\left(-\frac{G_{Sf}}{2kT}\right) + [Mg_{Na}] \quad (6)$$

A température pas trop élevée ou pour des cristaux assez impurs le premier terme est complètement négligeable, la concentration de $[V_{Na}]$ devient grande et indépendante de la température. C'est le régime extrinsèque auquel correspond un coefficient de diffusion de Na^+ par mécanisme lacunaire

$$D'_{Na} = D_0 [Mg_{Na}] \exp - \frac{G_{VNa} m}{kT} \quad (5')$$

Ce coefficient peut être supérieur à celui donné par (5) de plusieurs ordres de grandeur et cela peut augmenter considérablement la ductilité à chaud du matériau.

Un autre cas de régime extrinsèque est obtenu avec les cations qui sont des métaux de transition c'est-à-dire qui peuvent avoir plusieurs degrés d'oxydation. Ainsi dans un oxyde (ou silicate) de fer $3 Fe^{2+}$ peuvent être remplacés par $2 Fe^{3+}$ en laissant une lacune dans le sous-réseau cationique. La proportion de tels remplacements dépend de la pression partielle d'oxygène $p(O_2)$ qui est donc un paramètre important de l'équation rhéologique de tels matériaux.

Ces calculs de concentrations de défauts ponctuels sont traités en détail dans la plupart des manuels de métallurgie physique, science des matériaux, ou chimie de l'état solide.

2) Mouvement des dislocations

Il est bien connu que la déformation plastique des cristaux est dans la plupart des cas engendrée par le mouvement des dislocations. On distingue deux types de mouvements appelés glissement et montée. La figure 2, qui explicite ces mouvements, montre que le glissement se produit dans le plan contenant la ligne et le vecteur de Burgers. Ce mouvement est facile (se

produit sous faible contrainte) si les liaisons à rompre comme AB sont des liaisons faibles. La montée requiert la présence et la mobilité de lacunes ; la montée n'est donc possible qu'à haute température tandis que le glissement peut se produire à n'importe quelle température.

Mécanisme de glissement

Pour faire glisser la dislocation coin de la figure 2 de façon rigide d'un pas élémentaire b , il faut couper toutes les liaisons AB le long de la ligne de dislocation (soit $1/b$ liaisons par unité de longueur). L'énergie nécessaire est fournie par la contrainte appliquée qui doit donc être élevée. Une contrainte beaucoup plus faible peut cependant produire le même résultat plus lentement en rompant les liaisons l'une après l'autre. C'est ce que réalise la propagation d'un décrochement le long de la ligne de dislocation (figure 3).

On montre par la mécanique statistique qu'une ligne de dislocation en équilibre à la température T porte une concentration atomique de décrochements

$$C_k(T) = \exp - \frac{G_{kf}}{kT} \quad (7)$$

où G_{kf} est l'enthalpie libre de formation d'un décrochement.

Lorsque la dislocation glisse, ces décrochements doivent être reproduits. Sur une ligne droite il se nucléent en permanence des doubles décrochements qui s'élargissent, s'annihilent, ... (figure 4).

Sans contrainte, l'enthalpie libre de formation d'un double décrochement est G_{kk} , mais s'il y a une contrainte appliquée σ , elle contribue pour $\sigma \lambda b^2 = n \sigma b^3$ et la concentration devient :

$$C_{kk}(T, \sigma) = \exp - \frac{G_{kk} - n \sigma b^3}{kT} \quad (8)$$

La distance à parcourir pour chaque décrochement ($1/2$) diminue donc lorsque σ augmente. De même la vitesse des décrochements augmente avec σ et finalement la vitesse de la dislocation ainsi que la vitesse de déformation. Ce modèle est donc la base des théories microdynamiques de la plasticité cristalline. Il existe bien d'autres modèles qui sont développés dans les traités sur la théorie des dislocations et de la plasticité.

Notons, pour clore ce paragraphe, que dans les cristaux à liaisons fortes (covalents ou iono-covalents), des dislocations de même vecteur de Burgers et glissant dans le même plan sous une contrainte donnée, ont

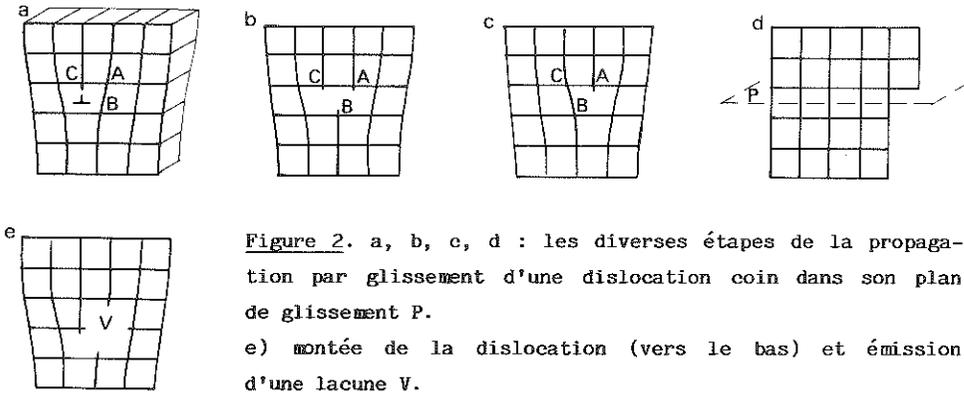


Figure 2. a, b, c, d : les diverses étapes de la propagation par glissement d'une dislocation coin dans son plan de glissement P.
 e) montée de la dislocation (vers le bas) et émission d'une lacune V.

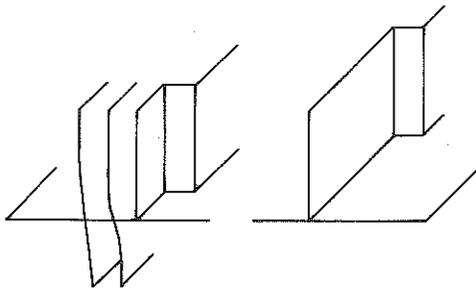


Figure 3. Etapes de la propagation d'un décrochement le long d'une dislocation coin.

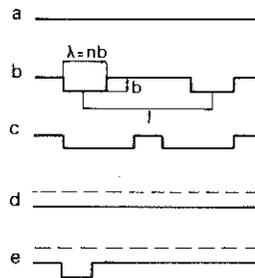


Figure 4. Nucléation et propagation de doubles décrochements. En d et e les pointillés représentent la position initiale de la dislocation.

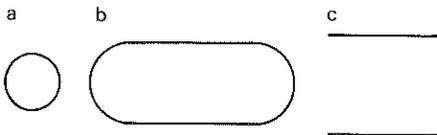


Figure 5. Evolution d'une boucle de dislocation dont une orientation a une faible mobilité.

souvent des vitesses qui varient très fortement avec leurs orientations. Certaines orientations (généralement des directions cristallographiques simples) ont une vitesse quasi nulle. Supposons que la situation initiale était une boucle circulaire de dislocation. Sous l'action d'une contrainte, les parties les plus mobiles de la boucle vont se déplacer et sortir laissant dans le plan de glissement deux dislocations rectilignes dans l'orientation de faible mobilité (figure 5). On dit que ces segments de dislocations subissent une forte friction de la part du réseau cristallin (friction de Peierls) ; cette friction diminue lorsqu'on élève la température et les orientations préférentielles des dislocations disparaissent progressivement.

Mécanisme de montée

La déformation à basse température conduit très généralement à l'augmentation parfois spectaculaire de la densité de dislocations. Les dislocations mobiles s'enchevêtrent, se bloquent et créent une contrainte interne. Si la contrainte appliquée est constante, la vitesse de déformation ralentit ou même s'annule. C'est l'écroutissage. A haute température, la montée des dislocations devient possible, ce qui leur permet de contourner des obstacles et de poursuivre leur mouvement de glissement. En outre, des dislocations opposées s'attirent et s'annihilent diminuant la densité de dislocations. Enfin, les autres dislocations se réarrangent en sous-joints diminuant ainsi la contrainte interne. C'est la restauration. Parfois de nouveaux grains à faible densité de dislocations sont nucléés dans les grains écroutés, c'est la recristallisation. Ces processus sont gouvernés par la montée des dislocations. La vitesse de montée dépend de la vitesse à laquelle les lacunes arrivent sur les dislocations, donc de leur coefficient de diffusion et de la force d'interaction dislocation - lacune. Les calculs conduisent à une loi de comportement pour le fluage stationnaire (durcissement contrebalancé par la restauration, contrainte appliquée constante) :

$$\dot{\epsilon} (T, \sigma) = \dot{\epsilon}_0 \sigma^n \exp - \frac{Q}{kT} \quad (9)$$

où $\dot{\epsilon}_0$ et n sont des constantes ($n \approx 3$) et Q est l'énergie d'activation de la diffusion de l'espèce chimique la plus lente. En MET on observe des sous-joints, des jonctions et une faible densité de dislocations libres ; ces configurations sont très différentes de celles produites par de la déformation à basse température.

B) ETUDES DE CAS

1 - Systèmes de glissement dans les silicates

Un système de glissement $(h\ k\ l)$ $[u\ v\ w]$ est la combinaison plan de glissement, direction de glissement ou vecteur de Burgers des dislocations mobiles. En règle générale, les vecteurs de Burgers possibles sont les plus petites translations du réseau car l'énergie élastique des dislocations correspondante varie comme b^2 (et des dislocations de grande énergie ont peu de chances d'exister).

Pour le plan de glissement, la situation est moins claire. Dans les métaux compacts les plans de glissement sont les plans les plus denses tels les plans $\{111\}$ de la structure CFC. Ce sont en effet les plans les plus espacés et dans un modèle simple de cristal les atomes sont représentés par des sphères dures empilées de façon compacte. On conçoit bien que le glissement d'une partie du cristal sur l'autre se fait plus facilement entre les plans les plus espacés. Ce modèle peut être transposé aux silicates ayant une structure assez compacte mais il faut y adjoindre une restriction importante. Dans nombre de silicates les liaisons chimiques sont fortement anisotropes et le glissement se produit dans des plans (ou à des niveaux dans la maille cristalline) tels que les liaisons fortes ne sont pas rompues. On illustre ces idées par quelques exemples.

Exemple 1 : Olivine orthorhombique (Pbca) $a = 4,76 \text{ \AA}$; $b = 10,21 \text{ \AA}$; $c = 5,99 \text{ \AA}$.

Les vecteurs de Burgers possibles sont \vec{a} et \vec{c} (on n'a jamais observé de dislocations \vec{b}). Les plans de glissement contenant \vec{a} sont de type $(0\ k\ l)$ et ceux contenant \vec{c} de type $(h\ k\ 0)$. La structure cristalline de l'olivine est bâtie à partir d'un réseau hexagonal compact d'ions O^{2-} rempli d'ions Si^{4+} et Mg^{2+} en sites tétraédriques et octaédriques respectivement. Les plans denses de l'olivine sont donc ceux du réseau hexagonal compact. En outre les tétraèdres SiO_4 sont isolés de sorte que le glissement dans les plans denses ne rompt pas les liaisons fortes Si-O. Les systèmes de glissement de l'olivine sont (001) $[100]$, (100) $[001]$, $\{110\}$ $[001]$, (010) $[100]$. Le cliché a de la planche I montre deux familles orthogonales de dislocations dans une lame mince (010) d'olivine. Il s'agit de dislocations vis \vec{a} et \vec{c} présentant les directions préférentielles marquées et la grande densité typiques de la déformation basse température en régime de Peierls (pas de montée, friction de réseau). Le cliché b (planche I) montre ces mêmes dislocations \vec{a} et \vec{c} arrangées en sous-joint de flexion, cette dernière configuration est typique d'une déformation à haute température gouvernée par la montée.

Exemple 2 : Le disthène et les polymorphes Al_2SiO_5 . Le disthène est triclinique ($P\bar{1}$) ; $a = 7,12 \text{ \AA}$; $b = 7,85 \text{ \AA}$; $c = 5,57 \text{ \AA}$. On peut le décrire comme un sous-réseau CFC de gros anions O^{--} dans lequel se logent les Si^{4+} et Al^{3+} en sites tétraédriques et octaédriques respectivement. Les tétraèdres SiO_4 étant isolés on pourrait supposer que, comme dans l'olivine, les plans de glissement sont les plans les plus denses du sous-réseau anionique contenant les plus petites translations du réseau du disthène. Il faut cependant tenir compte du fait que les structures cristallines des trois polymorphes Al_2SiO_5 sont bâties sur un squelette de chaînes d'octaèdres AlO_6 parallèles à l'axe $[001]$. Ces chaînes sont très rigides et ne doivent pas être rompues lors du glissement des dislocations (figure 6).

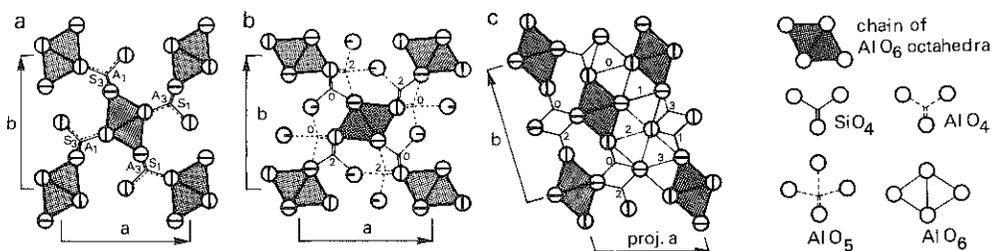


Figure 6. Représentations schématiques des structures cristallines des trois polymorphes Al_2SiO_5 . a/ sillimanite, b/ andalousite, c/ disthène.

Le seul système de glissement facile du disthène est donc $(100) [001]$ et la déformation plastique de ce minéral présente des particularités assez exceptionnelles. Ayant un seul type de dislocations et un seul système de glissement, il ne s'y produit ni jonctions ni enchevêtrement, il n'y a pas d'écroutissage et on trouve généralement des densités de dislocations assez faibles même dans les cristaux fortement déformés à basse température (planche I, c et d). La réponse du disthène à des sollicitations complexes nécessite l'activation d'autres modes de déformation : maclage, pliage ou rupture. Les autres polymorphes Al_2SiO_5 présentent également des systèmes de glissement qui évitent la rupture des chaînes d'octaèdres, ces plans de glissement sont donc encore parallèles à ces chaînes. Dans l'andalousite le glissement facile est $\{110\} [001]$, les plans $\{110\}$ étant les plans de clivage à liaisons faibles. L'orientation vis présente une très faible mobilité et les configurations de dislocations pour des déformations à basse

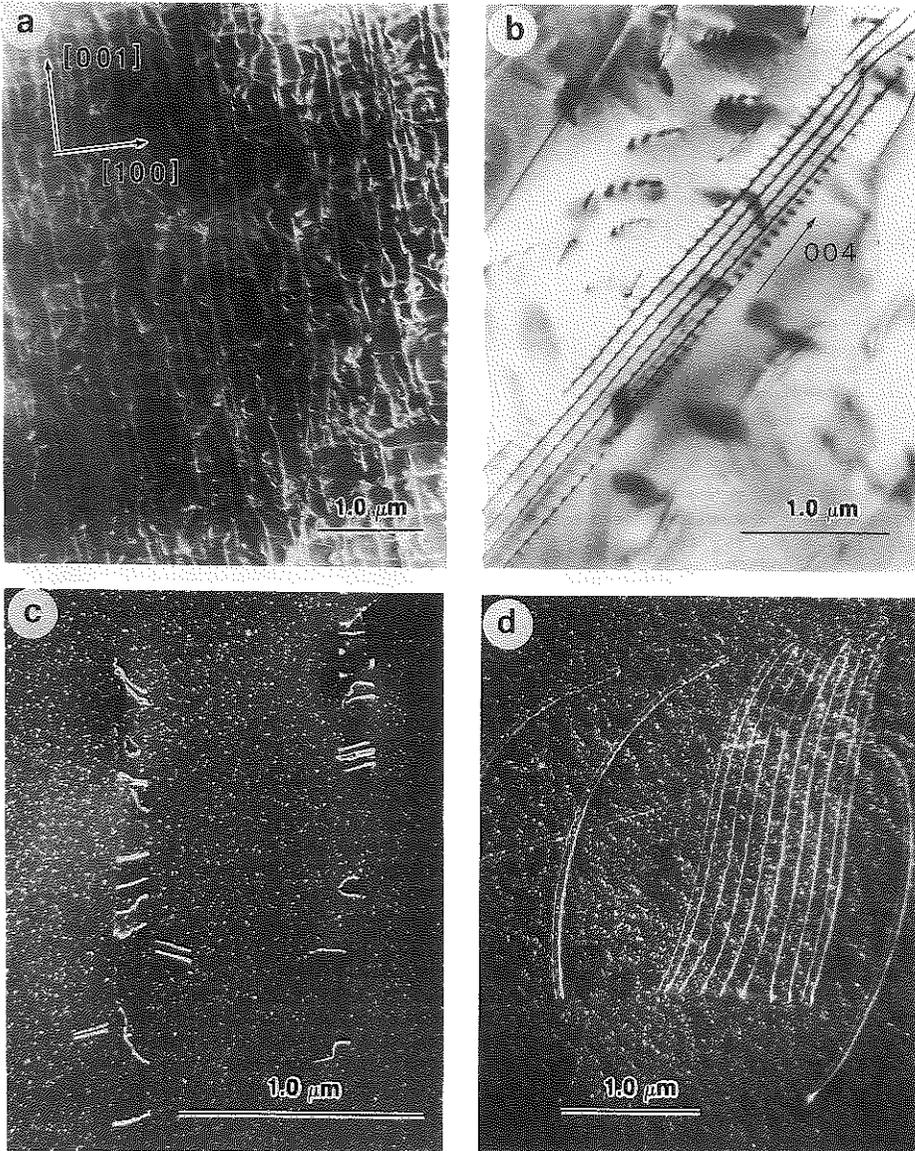


PLANCHE I : a) Olivine : configuration des dislocations \vec{a} et \vec{c} typique d'une déformation en régime de Peierls.

b) Olivine : configuration typique d'une déformation gouvernée par la montée.

c) dislocations \vec{c} dans (100) dans le diaspore déformé naturellement à $T \approx 500^\circ \text{C}$.

d) dislocations \vec{c} dans le diaspore déformé expérimentalement de 5 % à température ambiante.

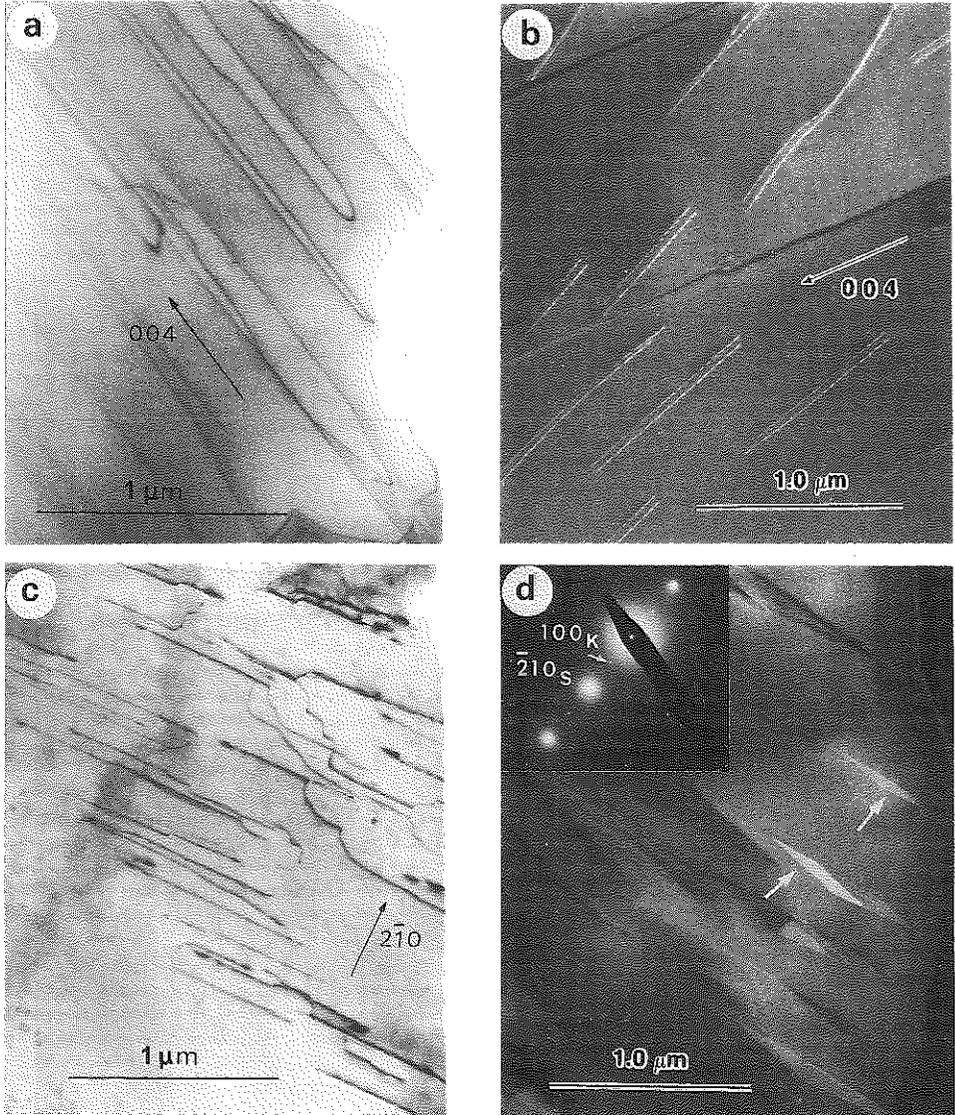


PLANCHE II : a) longues dislocations \vec{c} vis à faible mobilité laissées dans l'andalousite par une déformation expérimentale de 2 % à température modérée ($T = 450^\circ \text{C}$).
 b) dislocations \vec{c} dissociées dans la sillimanite déformée naturellement.
 c) dislocations \vec{a} dans (010) dans la sillimanite déformée expérimentalement à $P = 11 \text{ kbar}$ et $T = 900^\circ \text{C}$.
 d) sillimanite déformée expérimentalement dans le champ de stabilité du disthène. Des fines lamelles de disthène se forment sur les dislocations largement dissociées de la sillimanite. Le disthène est imagé avec le faisceau diffracté $(100)_K$ (champ sombre).

température sont caractéristiques (planche II a). Dans la sillimanite, outre les glissements \vec{c} faciles dans des plans (h k 0), on peut aussi activer les glissements (100) [010] et (010) [100] qui tous préservent l'intégrité des chaînes d'octaèdres (planche II, b et c).

Signalons enfin que lorsque l'on déforme l'un de ces polymorphes dans des conditions T et P situées dans le champ de stabilité d'un autre polymorphe, les dislocations tendent à se dissocier largement en formant des fautes d'empilement qui sont des lamelles de cet autre polymorphe (planche II, d). Ceci montre que la déformation plastique peut assister la transformation polymorphique et accélérer son étape de nucléation.

Exemple 3 : Le quartz (P3,21) $a = 4,6 \text{ \AA}$; $c = 5,1 \text{ \AA}$. C'est un tectosilicate et, quel que soit le plan de glissement, des liaisons fortes Si-O doivent être rompues lors du glissement des dislocations. On a trouvé expérimentalement que de faibles quantités d'eau introduites dans le réseau du quartz le ramollissent considérablement et il est vraisemblable que tous les quartz déformés naturellement sont des quartz humides. Le mécanisme du ramollissement hydrolytique n'est pas bien connu mais l'hypothèse la plus fréquente est que l'eau hydrolyse les liaisons fortes et favorise la formation de doubles décrochements et leur propagation. Elle favorise aussi la montée des dislocations.

Le quartz sec est extrêmement dur. Sous très forte contrainte ($\sigma \approx 30$ à 50 kbar) et à très haute température ($T \approx 1300^\circ \text{ C}$) les dislocations de vecteur de Burgers \vec{a} et \vec{c} sont typiques du glissement contrôlé par la friction de réseau (planche III, a et b). Il n'y a aucune évidence de montée. Ceci signifie que les énergies de formation et de migration des défauts ponctuels sont très élevées et que les coefficients d'autodiffusion sont très faibles même à 1300° C . Le fait que l'on observe de nombreux plans de glissement ((0001), $\{10\bar{1}0\}$, $\{10\bar{1}1\}$, $\{10\bar{1}2\}$, $\{20\bar{2}1\}$, $\{11\bar{2}0\}$, ...) signifie sans doute simplement qu'ils sont tous sensiblement équivalents et très difficiles à activer.

Dans le quartz humide, la déformation plastique peut être activée expérimentalement dès $T \approx 400^\circ \text{ C}$. Aux températures les plus basses les dislocations sont très peu mobiles et pour assurer une vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ donnée il faut une très grande densité ρ de dislocations ($\dot{\epsilon} = \rho v b$, équation d'Orowan avec $v = v(\sigma, T) =$ vitesse de glissement d'une dislocation). Lorsqu'on élève la température, la densité de dislocations diminue, les

lignes présentent des orientations préférentielles caractéristiques du régime de friction de réseau. Lorsqu'on élève encore la température, ces orientations disparaissent tandis que des indications de montée des dislocations apparaissent (jonctions, tendance à la polygonisation, ...). En même temps on observe souvent de nombreuses petites bulles qui prouvent que l'eau (qui était en sursaturation) précipite (planche III, c, d et e).

2 - Influence de la structure de coeur

La mobilité de glissement des dislocations est dans un certain nombre de cas contrôlée par des mécanismes intéressant un petit nombre d'atomes dans la région du coeur des dislocations (c'est par exemple le cas de la nucléation et de la propagation des doubles décrochements). Ces mécanismes sont évidemment très sensibles à la structure de coeur des dislocations c'est-à-dire à leur mode de dissociation. On peut en effet penser que dans la plupart des minéraux, qui ont de grosses mailles avec beaucoup d'atomes, les dislocations sont dissociées au moins faiblement car les vecteurs de Burgers sont grands et la dissociation diminue l'énergie du coeur. La dissociation est d'autant plus large que la faute correspondante a une faible énergie par unité de surface et le gain d'énergie est d'autant plus grand que les vecteurs de Burgers partiels font entre eux un angle plus faible. Cette dissociation peut être glissile (dans le plan de glissement) ou sessile (hors du plan de glissement). Dans ce dernier cas, si la dislocation n'est pas vis, la dissociation se fait par montée et le glissement d'une telle dislocation peut être assez compliqué à analyser. Ce mouvement est gouverné par la mobilité des défauts ponctuels c'est-à-dire qu'il ne peut avoir lieu qu'à haute température.

Exemple 1. Les oxydes mixtes $A^{2+}B_2^{3+}O_4$ de structure spinelle (Fd3m). Cette structure cubique est constituée d'un sous-réseau anionique CFC d'ions O^{2-} dans lequel les cations sont distribués dans certains sites tétraédriques T et octaédriques O de sorte que le paramètre de la maille (arête du cube) vaut $\approx 8 \text{ \AA}$. Les sites T et O inoccupés sont interdits. Dans le spinelle direct les cations trivalents B occupent tous les sites O accessibles et les divalents tous les sites T accessibles. On le note $A[B_2]O_4$. Dans le spinelle inverse les cations trivalents B préfèrent le site T mais seule la moitié peut s'y loger. On le note $B[AB]O_4$. Dans le spinelle désordonné les divers cations se distribuent au hasard dans T et O. On le note $A_x B_{1-x} [A_{1-x} B_{1+x}] O_4$ ($x = 0$ correspond au spinelle inverse, $x = 1$ au

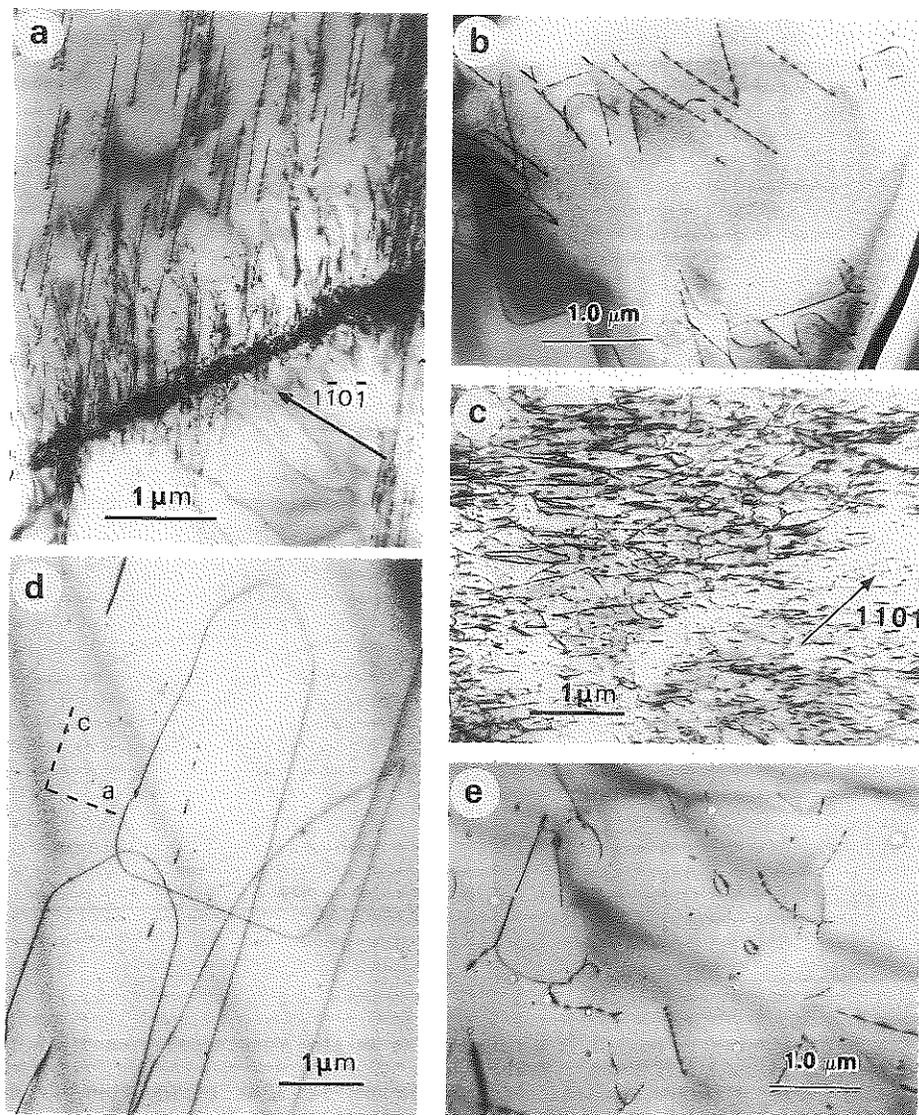


PLANCHE III : Déformation expérimentale du quartz.

- a) et b) quartz sec déformé à 1300°C ; contrainte nominale 14 kbar et 30 à 50 kbar près des têtes de fissures qui sont les seuls endroits où des dislocations a et c sont activées dans divers plans.
- c) quartz humide déformé à basse température ($T = 580^{\circ}\text{C}$) : très grande densité de dislocations.
- d) quartz humide déformé à température modérée ($T = 690^{\circ}\text{C}$) : régime de glissement contrôlé par la friction de réseau.
- e) quartz humide déformé à haute température ($T = 900^{\circ}\text{C}$) : glissement et montée des dislocations ; l'eau sursaturée a précipité en petites bulles.

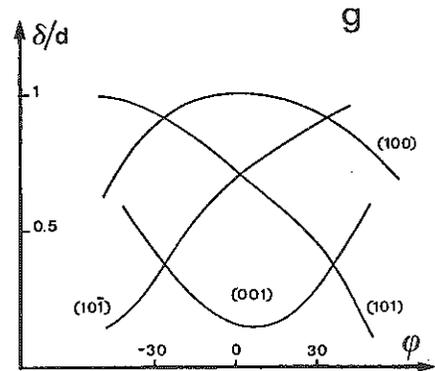
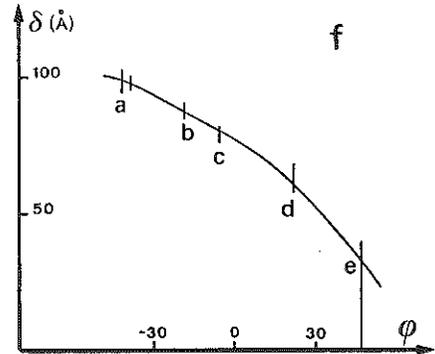
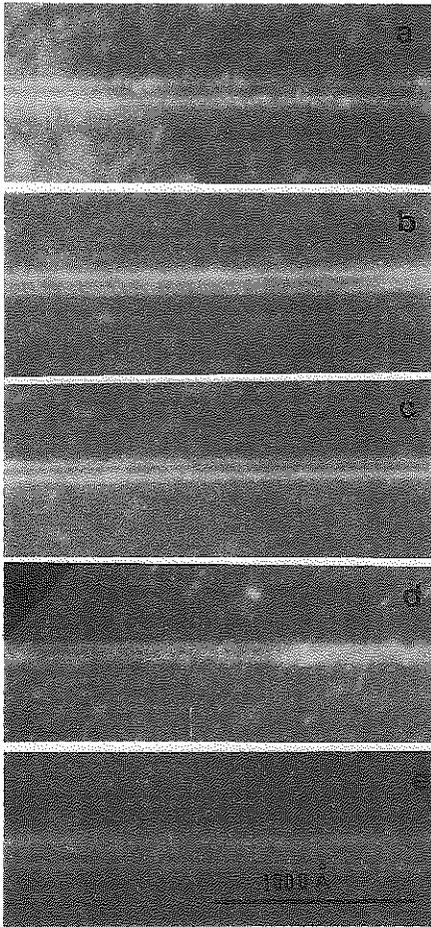


PLANCHE IV : Spinelle $MgAl_2O_4$: détermination du plan de dissociation d'une dislocation coin.

- a) → e) série d'images en faisceau faible de la même dislocation (ligne // $[010]$, $b = 1/2 [101]$) pour diverses inclinaisons de la lame.
- f) largeur de dissociation apparente δ en fonction de l'inclinaison φ de la lame. (Les points a, b, ... e, correspondent aux micrographies précédentes).
- g) courbes δ/d en fonction de φ pour divers plans d'indices simples passant par la ligne de dislocation ($d =$ vraie largeur de dissociation). La comparaison de f) et g) montre sans ambiguïté que le plan de dissociation est le plan (101).

spinelle direct et $x = 1/3$ au désordre complet). Enfin les spinelles peuvent être déficitaires en cations. Formellement on obtient un tel spinelle en remplaçant $3A^{2+}$ par $2B^{3+}$ et une lacune cationique. On note ce spinelle $A_{1-3x} B_{2+2x} V_x O_4$. Cette déficience peut provenir soit d'un écart à l'équimolarité, (c'est le cas du spinelle $MgO.nAl_2O_3$ avec $1 \leq n \leq 3,5$) soit d'un écart à la stoechiométrie lorsqu'il y a des cations de métaux de transition, la déficience est alors une fonction croissante de T et de $p(O_2)$. Ainsi une chromite de formule nominale $Fe^{3+} [Fe^{2+}Cr] O_4$ qui devient non stoechiométrique, a pour formule $Fe^{3+} [Fe_{1-3x}^{2+} Fe_{2x}^{3+} Cr V_x] O_4$.

Dans la structure spinelle les vecteurs de Burgers sont du type $1/2 \langle 110 \rangle$ ($\approx 5,7 \text{ \AA}$). A cause de la distribution des cations ils sont deux fois plus grands que les vecteurs correspondants du sous-réseau anionique. Ceci suggère une première dissociation en deux vecteurs égaux et colinéaires. La faute correspondante n'affecte que le sous-réseau cationique, et elle peut se produire dans n'importe quel plan. Les calculs, aussi bien que l'observation en MET, indiquent que la faute la moins chère et la plus fréquente est du type dissociation de montée : vecteur de Burgers $1/2 [101]$ dissocié en deux parties égales $1/4 [101]$ dans (101) - (planche IV).

Bien sûr une telle dissociation de montée ne peut se produire que pour une ligne de dislocation qui se trouve à l'intersection de son plan de glissement et du plan de dissociation $\{110\}$. A l'inverse on peut dire que lorsqu'une boucle de dislocation s'agrandit sous l'action d'une contrainte appliquée, le segment de dislocation qui a l'orientation adéquate se dissocie par montée et voit sa mobilité considérablement ralentie.

Dans le spinelle $MgAl_2O_4$ déformé à haute température (1600° C) l'analyse détaillée des directions à faible mobilité indique que la dissociation de montée se produit dans plusieurs plans (planche V, a et b). Ces dislocations dissociées ont une mobilité de glissement tellement faible que leur mouvement de montée (dans le plan de dissociation) peut s'avérer plus rapide et être le mode principal de déformation dans un monocristal soumis à une contrainte uniaxiale.

Pour le spinelle non-équimolaire $MgO . n Al_2O_3$ avec $n \geq 2$ la situation reste semblable pour la structure de coeur des dislocations mais il en résulte des propriétés thermomécaniques très différentes. Les dislocations coin sont toujours dissociées par montée dans le plan (110) perpendiculaire au vecteur de Burgers mais les largeurs de dissociation sont plus grandes. Ceci s'interprète bien en notant que l'énergie de faute est due au fait

que l'on a trop rapproché certains cations dans le plan de faute. Dans la mesure où certains sites sont vacants dans les spinelles déficitaires, cette énergie de faute est diminuée et la largeur de dissociation augmentée. En outre, grâce à ces lacunes de composition, les cations peuvent être très mobiles dans le plan de faute et s'intervertir permettant à la dislocation dissociée de glisser. Le freinage de type visqueux dû à ce réarrangement cationique est d'autant plus faible que n est plus grand.

Notons pour terminer cet exemple du spinelle que la déformation par fluage à chaud conduit à une configuration de dislocations réorganisées en sous-joints plus ou moins bien formés, les déformations aux plus hautes températures ou les plus lentes conduisant aux sous-joints les mieux formés. Ceci est bien observé dans les chromites d'ophiolites que l'on suppose avoir été déformées vers 1200 à 1300° C à des vitesses $\dot{\epsilon} \approx 10^{-12}$ à 10^{-14} s^{-1} (planche V, c):

Exemple 2. Spodumène $\text{LiAlSi}_2\text{O}_6$ monoclinique (C2/c), $a = 9,45 \text{ \AA}$; $b = 8,39 \text{ \AA}$; $c = 5,21 \text{ \AA}$ $\beta = 110,10^\circ$. Dans ce cas encore il est intéressant de décrire la structure comme un sous-réseau anionique plus ou moins compact et truffé de cations en sites T et O (figure 7). Ces cations forment des couches alternées T et O, la couche T contenant les liaisons fortes Si-O, il est naturel de supposer que les dislocations glissent dans la couche O. Les plans d'oxygène supérieur et inférieur étant des couches compactes extrêmement distortues il n'est pas évident de trouver un chemin de glissement du plan supérieur sur l'inférieur qui éviterait un écrasement important des sphères dures d'oxygène.

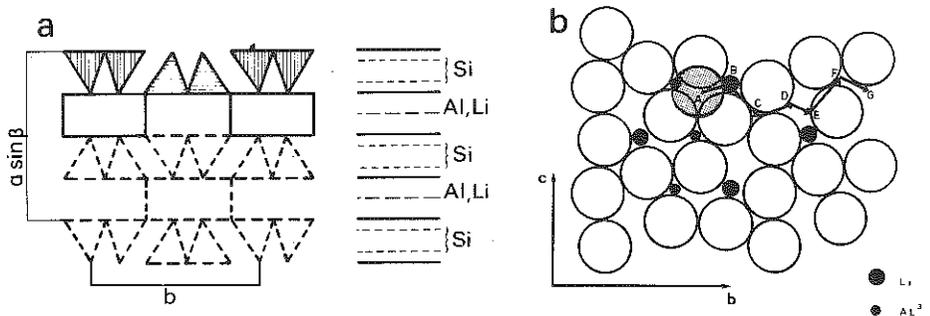


Figure 7. Structure cristalline du spodumène : a) projection selon la direction \vec{c} ; b) plan d'oxygène inférieur d'une couche O ; seul un atome du plan supérieur est représenté (hachuré).

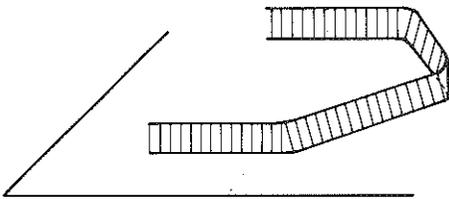
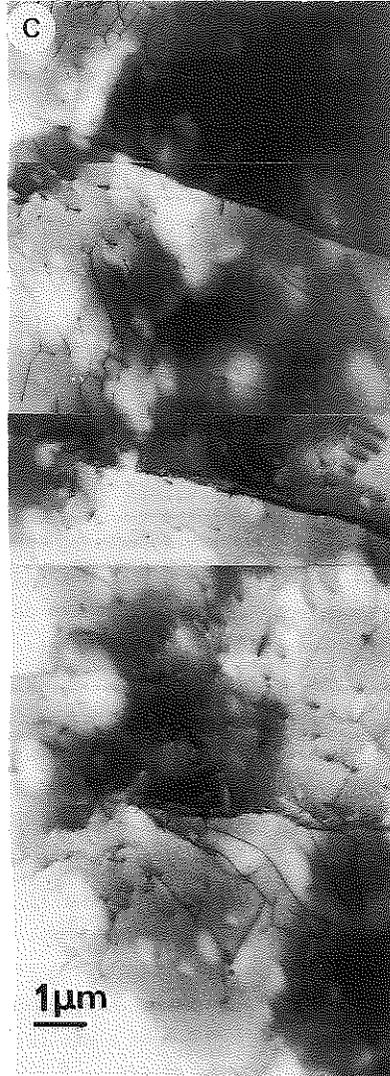
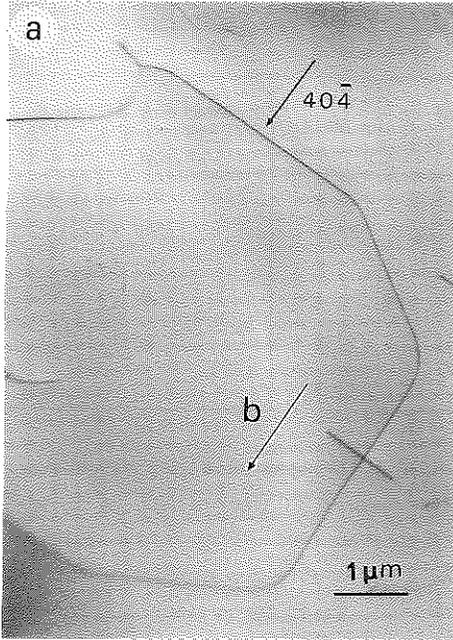
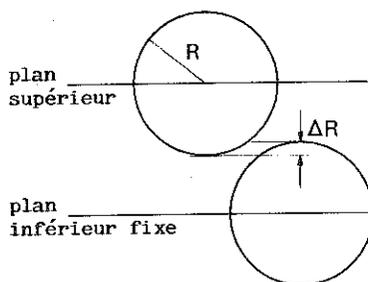


PLANCHE V : a) boucle polygonale observée dans un spinel $MgAl_2O_4$ déformé de 0,1 % à 1 600° C. Le plan de glissement est (111). Les segments vis, coin, et $\pm 60^\circ$ ont une faible mobilité car ils sont dissociés de façon sessile.

b) représentation schématique de la dissociation de montée de la boucle a).

c) chromite d'ophiolite : polygonisation (sous-joints régulièrement espacés).

Le tableau ci-dessous donne les résultats d'une analyse purement géométrique pour divers systèmes de glissement envisageables.



Système de glissement	$\Delta R/R$	Proportion d'ions O ²⁻ écrasés lors du glissement
(010) [100]	80 %	100 %
(010) [001]	42 %	100 %
(100) [001]	13 %	100 %
(110) [001]	42 %	67 %
(110) $\frac{1}{2}$ [1 $\bar{1}$ 0]	30 %	33 %
(100) [010]	13 %	33 %

Aucun système ne semble facile et le spodumène est effectivement un minéral dur. Il faut cependant considérer la possibilité de dissociation pour les deux vecteurs de Burgers du plan (100), \vec{b} et \vec{c} . On cherche une dissociation qui diminuerait le $\Delta R/R$, c'est-à-dire des dissociations similaires à celles de Shockley dans le CFC. Pour le vecteur de Burgers \vec{c} l'analyse géométrique indique qu'on ne diminue jamais vraiment $\Delta R/R$ pour l'ensemble des ions oxygènes. Par contre pour \vec{b} la dissociation $\vec{AG} \rightarrow \vec{AD} + \vec{DG}$ diminue de façon sensible $\Delta R/R$ mais les cations Al se retrouvent en position T dans une configuration très proche de celle qu'ils ont dans la variété γ stable à haute pression (> 10 kbar).

Les observations en MET sont consistantes avec cette analyse. Dans le spodumène naturellement déformé les dislocations ne sont pas dissociées (ou très faiblement), on voit surtout des dislocations \vec{c} (vecteur de Burgers le plus petit). Par contre la déformation expérimentale sous forte pression de confinement créée par indentation ($P \approx 20$ à 30 kbar) induit essentiellement des dislocations \vec{b} dissociées (planche VI, a et b). On ne peut pas caractériser complètement le vecteur de faute par analyse du contraste des franges. Ce vecteur de faute a peut-être des indices de Miller irrationnels. En tout cas, les résultats de l'analyse du contraste ($\vec{R} = [0, 1/2, \omega]$ avec $-0,25 < \omega < -0,1$) sont tout-à-fait compatibles avec le modèle géométrique développé plus haut.

Pour tester la validité de ce modèle on peut l'étendre aux autres clinopyroxènes C2/c et même aux orthopyroxènes qui peuvent également être vus comme des alternances de couches T et O selon la direction [100].

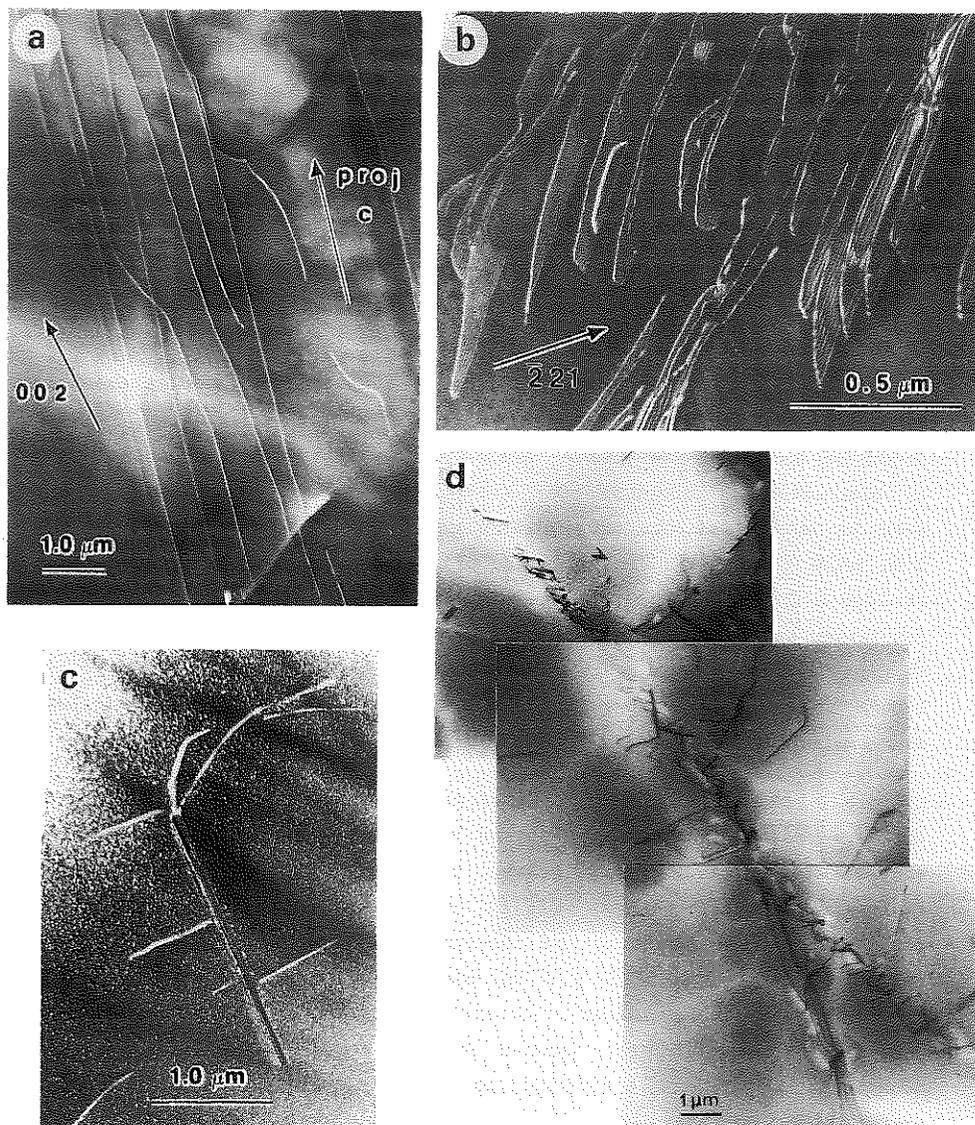


PLANCHE VI : a) Spodumène naturellement déformé : dislocations \vec{c} non dissociées.

b) Spodumène indenté : dislocations \vec{b} largement dissociées dans (100).

c) et d) Chromite d'ophiolite contenant des inclusions de diopside.

En c), la densité d'inclusions est importante ; elles épinglent les dislocations ce qui conduit à un durcissement important ; la chromite se fragmente. En d), la densité d'inclusions est plus faible, la ductilité subsiste : des sous-joints se tricotent sur les inclusions.

L'accord entre modèle et observations en MET semble actuellement tout-à-fait satisfaisant. Il peut donc y avoir dans les minéraux des fautes conservatives dont le vecteur de faute n'est pas complètement caractérisable par analyse du contraste car le produit $\vec{g} \cdot \vec{R}$ n'est pas entier, \vec{R} n'ayant pas de composantes rationnelles.

3 - Divers

On a regroupé dans ce chapitre quelques observations de configurations de dislocations laissées par des déformations diverses.

Exemple 1. Epinglage des dislocations mobiles par des petites phases étrangères (inclusions ou précipités). On a rencontré ce phénomène dans certaines chromites contenant une grande densité de petites inclusions en baguettes ou plaquettes de diopside. Ces inclusions sont en relation épitaxiale avec la matrice et ont probablement cristallisé en même temps à partir d'un magma très chaud. Cet épinglage des dislocations a durci les chromites et leur a donné un comportement fragile qui a conduit à la dissémination des grains de chromites dans de l'olivine (mécanisme de pull-apart). Lorsque la densité d'inclusions reste relativement faible, les dislocations peuvent encore se propager et les inclusions sont simplement le lieu privilégié de formation des sous-joints (planche VI, c et d).

Exemple 2. Dipôles et débris. On a décrit brièvement deux régimes de déformation extrêmes. D'une part, à basse température, le régime de glissement contrôlé par la friction de réseau, qui conduit à une configuration de dislocations rectilignes peu mobiles, et d'autre part, le régime de haute température qui conduit à des dislocations organisées en sous-joints. Entre ces deux régimes il y a un mode de déformation où les obstacles au glissement sont les autres dislocations traversant le plan de glissement. Une telle dislocation est appelée "arbre" et l'ensemble de ces arbres constitue la "forêt". L'intersection des dislocations mobiles avec les arbres crée des crans qui freinent les dislocations mobiles. Celles-ci finissent par laisser dans leur sillage des "débris" tels que des dipôles (figure 8). Dans ce régime de déformation, la température n'est pas assez élevée pour permettre la montée des dislocations mais la diffusion dans le coeur des dipôles est possible et sous l'action de leur tension de ligne ces dipôles se réarrangent rapidement en une série de petites boucles circulaires. Ce mécanisme est illustré par la planche VII; il est typique des températures intermédiaires permettant une diffusion efficace dans les coeurs ("pipe-diffusion") mais pas en volume ("bulk-diffusion").

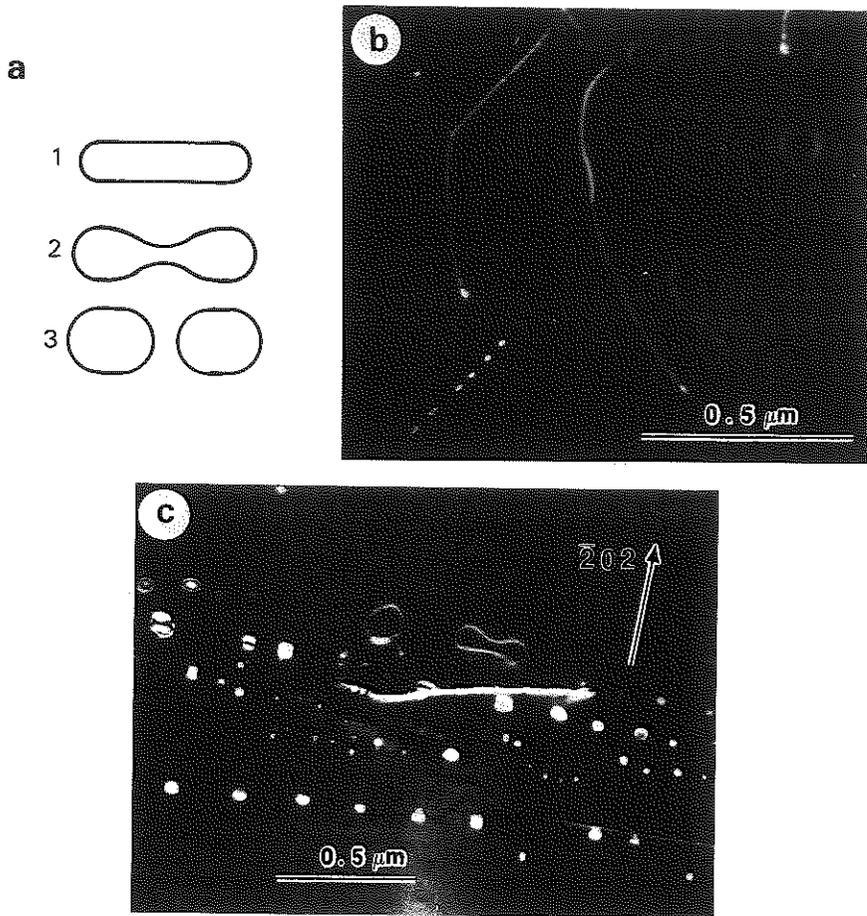


PLANCHE VII : Evolution des dipoles par "pipe diffusion".

- a) mécanisme.
- b) olivine déformée expérimentalement à 1 200° C.
- c) orthoénstatite déformée en fluage à 1 000° C.

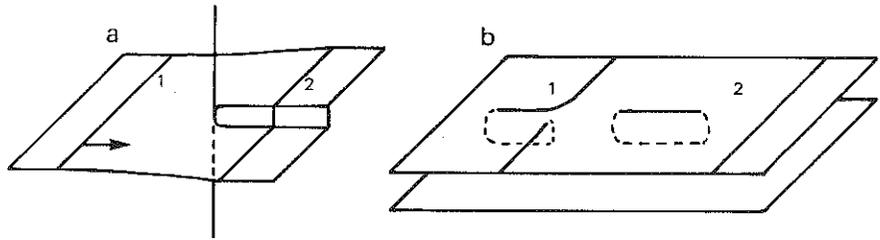


Figure 8 : a) Schéma de principe de formation des crans par intersection avec un arbre.
 b) L'accumulation de crans conduit à la formation d'un dipole coin laissé dans son sillage par la dislocation vis.

CONCLUSION

Les quelques cas étudiés ici n'ont pas du tout la prétention de représenter une revue exhaustive de l'utilisation de la MET pour étudier la déformation des minéraux. Les cas présentés ont été délibérément choisis parmi les études effectuées par les auteurs, non parce que ces études seraient meilleures que d'autres mais simplement parce qu'elles leur sont plus familières.

Il faut aussi noter que la dissociation de montée présentée dans le cas de la structure spinelle n'est pas exceptionnelle mais n'est cependant pas la règle générale. Dans la plupart des cristaux, et sans doute des minéraux, les dissociations des dislocations sont de type glissile (c'est-à-dire dans le plan de glissement contenant la ligne de dislocation et le vecteur de Burgers total).

On a présenté quelques analyses cristallographiques permettant de prédire grossièrement le comportement des dislocations dans diverses structures cristallines. En fait, il s'agit là d'une présentation "pédagogique" et il faut être conscient que dans la plupart des cas l'observation en MET précède l'analyse théorique qui n'est qu'une tentative d'interprétation. Pour les silicates, cette interprétation oscille entre un modèle de cristal covalent (liaisons Si-O fortes et dirigées) et un modèle de cristal ionique (sous-réseau anionique compact). Ceci est dû au fait que l'on ne sait pas encore bien décrire les ionocovalents que sont les silicates.

BIBLIOGRAPHIE SOMMAIRE**A) Manuels généraux (du simple au plus spécialisé)**

- sur les défauts ponctuels
 - R. COLLONGUES (1971), La non-stoechiométrie, Masson.
 - R.A. SWALIN (1977), Thermodynamics of solids, Mc Graw Hill.
 - N.N. GREENWOOD (1968), Ionic crystals, lattice defects and non stoichiometry, Butterworths.
 - L. EYRING et M. O'KEEFFE (1970), The chemistry of extended defects in non metallic solids, North Holland.
- sur les dislocations
 - D. HULL et D.J. BACON (1984), Introduction to dislocations, Pergamon.
 - J. HIRTH et J. LOTHE (1981), Theory of dislocations, Mc Graw Hill (calculs élastiques très détaillés).
 - J. FRIEDEL (1970), Dislocations, Pergamon.
- sur les modèles de déformation plastique, le fluage à haute température...
 - A. NICOLAS et J.P. POIRIER (1976), Crystalline plasticity and solid state flow in metamorphic rocks, Wiley.
(exposé clair avec un minimum de développements mathématiques).
 - J.P. POIRIER (1976), Plasticité à haute température des solides cristallins, Eyrolles.
 - J.P. POIRIER (1985), Creep of crystals, Cambridge University press.
- observation en MET de défauts dans des minéraux déformés
 - H. WENK (1976), Electron microscopy in mineralogy, Springer.
 - Les "Reviews in mineralogy" édités par la Mineralogical Society of America.
 - Les monographies spécialisées n° 24, 31 et 36 de l'American Geophysical Union.
 - Vol 24 Mechanical behaviour of crustal rocks (1972).
 - Vol 31 Point defects in minerals (1985).
 - Vol 36 Mineral and rock deformation (1986).

B) Articles spécialisés

- Revue C.B. RALEIGH (1967), Plastic deformation of the upper mantle silicate minerals. Geophys. J.R. Astron. Soc. 14, 45-49.
- M.S. PATERSON (1976), Some current aspects of experimental rock deformation. Phil. trans. R. Soc. Lond A283, 163-172.
- J.A. TULLIS (1979), High temperature deformation of rocks and minerals. Rev. Geophys. Space Physics 17, 1137-1154.

T. BRETHERAU, J. CASTAING, J. RABIER et P. VEYSSIERE (1979), Mouvement des dislocations et plasticité à haute température des oxydes binaires et ternaires. *Advances in Physics* 28, 835-1014.

Olivine

W.B. DURHAM & C. GOETZE (1977), Plastic flow of oriented single crystals of olivine. I mechanical data ; II observations and interpretations of the dislocation structures. *J. Geophys. Res.* 82, 5737-5770.

P. POUMELEC & O. JAUL (1984), Influence of P_{O_2} and P_{H_2O} on the high temperature plasticity of olivine ; dans *Deformation of ceramic materials II*. TRESSLER et BRADT (eds) Plenum Press p. 281-306.

D.H. KOHLSTEDT & D.L. RICOUT (1984), High temperature creep of silicate olivine ; dans *Deformation of ceramic materials II*, TRESSLER et BRADT (eds) Plenum Press p. 251-280.

Al₂SiO₅

J.C. DOUKHAN, N. DOUKHAN, P.S. KOCH & J.M. CRISTIE (1985), TEM investigation of lattice defects in Al₂SiO₅ polymorphs and plasticity induced polymorphic transformations. *Bull. Mineral* 108, 81-96.

Quartz

D.J. MORRISON-SMITH, M.S. PATERSON & B.E. HOBBS (1976), An electron microscope study of plastic deformation in single crystals of synthetic quartz. *Tectonophysics*, 33, 43-79.

J.C. DOUKHAN & L. TREPIED (1985), Plastic deformation of quartz single crystals. *Bull. Mineral*, 108, 97-123.

Spinelles

P. VEYSSIERE, J. RABIER, H. GAREM & J. GRILHE (1978), Influence of temperature on dissociation of dislocations and plastic deformation in spinel oxides. *Philos. Mag.* 38A, 61-79.

W.T. DONLON, T.E. MITCHELL & A.H. HEUER (1979), Climb dissociation of network dislocations in non-stoichiometric MgAl spinel. *Philos. Mag.* A40, 341-366.

N. DOUKHAN, R. DUCLOS & B. ESCAIG (1979). Sessile dissociation in the stoichiometric spinel Mg Al₂O₄. *J. Physique* 40, 381-387.

N. DOUKHAN, J.C. DOUKHAN, A. NICOLAS & D. SECHER (1984), TEM analysis of the deformation of chromites from ophiolites. *Bull. Mineral.* 107, 777-793.

Pyroxènes

J.C. DOUKHAN, N. DOUKHAN, L. NAZE et J.C. VAN-DUYSEN (1986), Défauts de réseau et plasticité cristalline dans les pyroxènes ; une revue. *Bull. Mineral.* (1986) 109, 377-394.

CHAPITRE IX

INTERPRETATION DES
MICROSTRUCTURES D'EXSOLUTION
DES FELDSPATHS TERNAIRES.
UTILISATION DE LA MICROSCOPIE
ELECTRONIQUE PAR TRANSMISSION
COMBINEE AVEC DES DONNEES DE
TERRAIN

par William L. BROWN

INTERPRETATION DES MICROSTRUCTURES D'EXSOLUTION DES FELDSPATHS
TERNAIRES - UTILISATION DE LA MICROSCOPIE ELECTRONIQUE PAR
TRANSMISSION COMBINEE AVEC DES DONNEES DE TERRAIN

William L. BROWN

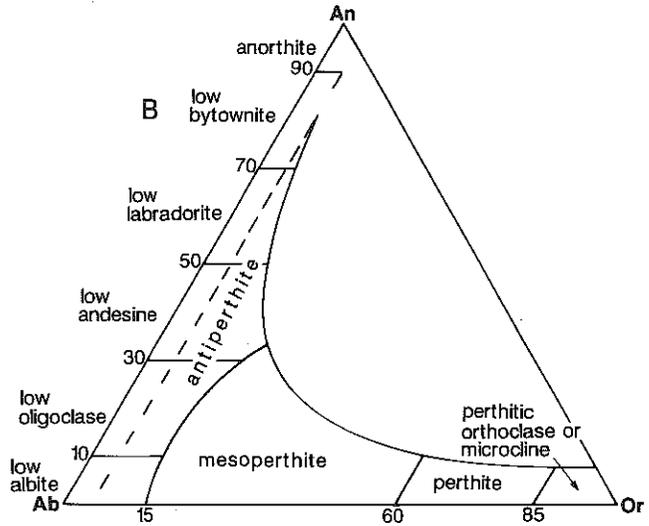
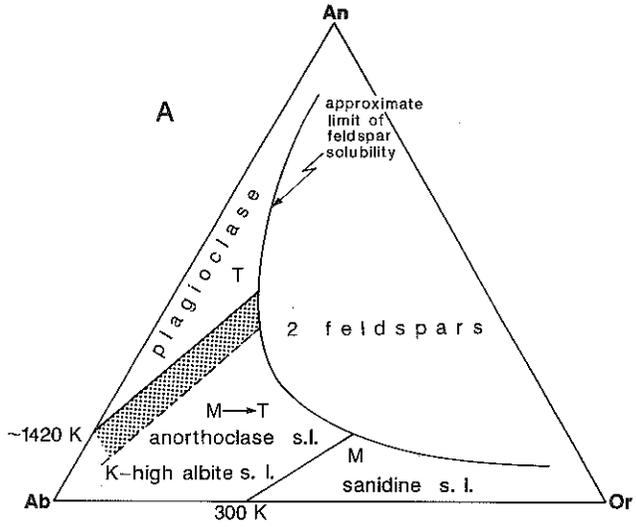
I - INTRODUCTION

La microscopie électronique par transmission est la méthode la mieux adaptée pour l'étude de cristaux comportant des microdomaines de compositions différentes. Ces microdomaines peuvent se former à partir d'un cristal homogène par différents processus de démixtion, ou exsolution, qui produisent un abaissement de l'enthalpie libre du cristal en fonction des conditions imposées et entre autres de l'histoire thermique. Si les deux microdomaines exsolvés ont même symétrie et même structure cristalline, le réseau peut être continu à travers la ou les interfaces entre les domaines ou les phases. Dans ce cas, l'exsolution peut se faire soit par une nucléation (homogène ou hétérogène) soit par une décomposition spinodale (Gibbs, 1928 ; Cahn, 1968). De plus, l'interface peut avoir une orientation préférentielle qui est déterminée par la minimisation de l'énergie de l'interface. Pour une introduction à la théorie de l'exsolution avec des applications aux feldspaths, le lecteur peut consulter les revues de Willaime (1981, 1984) publiées dans les ouvrages de la Société Française de Minéralogie et de Cristallographie.

Les microstructures d'exsolution observées dans les feldspaths ternaires de divers environnements géologiques sont assez compliquées à cause de l'interaction de plusieurs processus ; leur interprétation n'est donc pas immédiatement évidente. Pour ce faire, il faut une bonne caractérisation des différentes microstructures et un moyen indépendant de les classer suivant leur histoire thermique. Leur caractérisation comprend tous les aspects microstructuraux et microtexturaux, ainsi que les compositions chimiques des phases et la composition globale du cristal. Les premières études des microstructures utilisaient des échantillons isolés dont l'histoire thermique était mal établie. Cette dernière ne peut être connue que dans des contextes géologiques précis et bien étudiés. Nous décrirons comme exemple les microstructures dans les feldspaths alcalins et ternaires d'un petit massif intrusif lité. La position de l'échantillon par rapport à la forme de l'intrusion et par rapport au litage magmatique a fourni un classement thermique des échantillons et a permis une interprétation des microstructures et l'établissement des différentes étapes de leur formation.

II - RAPPELS SUR LES FELDSPATHS

Il existe entre les trois pôles des feldspaths des roches ($\text{CaAl}_2\text{Si}_2\text{O}_8$, anorthite, An - $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$, albite, Ab - KAlSi_3O_8 , orthose, Or) un assez grand domaine d'immiscibilité régi par un solvus (Fig. 1A). Ce solvus existe pour tous les états d'ordre des feldspaths, mais sa largeur augmente quand l'état d'ordre ou la pression augmentent, ou quand la température baisse - le solvus est appelé inconditionnel ou indépendant de l'ordre, parce que son existence



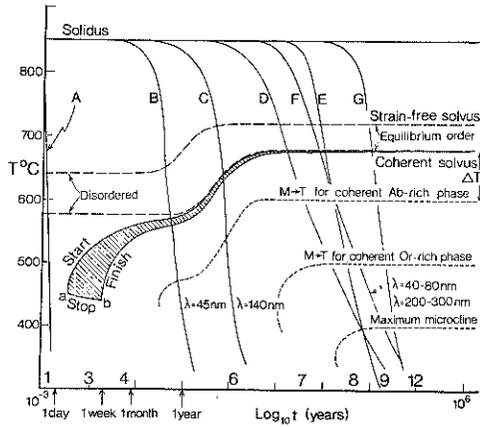


Fig. 2. Diagramme temps - température - transformation (TTT) à basse pression pour des feldspaths alcalins (sans An) de composition près de $Ab_{75-55} Or_{25-45}$ refroidis de façon continue à partir du solidus (environ de 850°C). Les températures des solvi incohérents (strain-free) et cohérents croissent avec l'ordre en fonction du temps. Les courbes start, stop et finish pour la décomposition spinodale sont indiquées et définissent un domaine hachuré sur la figure. Les courbes, A à I, s'appliquent à des intrusions magmatiques différentes (Tiré de Brown et Parsons, 1984a, Fig. 10).

Fig. 1. A. Limite approximative de la solubilité des feldspaths (en % mol.) dans le système An-Ab-Or à basse pression en l'absence d'eau. Trois domaines de feldspaths désordonnés existent : (1) domaine M, de feldspaths monocliniques à haute température et après trempe à température ambiante, (2) domaine T, de feldspaths tricliniques à haute température et après trempe à température ambiante et (3) domaine $M \rightarrow T$, de feldspaths monocliniques à haute température et tricliniques après trempe à température ambiante, les deux lignes droites donnant la température de transformation. B. Nomenclature pour des feldspaths ternaires ordonnés, dans lesquels la séparation de phases exsolvées est en-dessous de la résolution d'un microscope optique (en % mol.).

n'est pas conditionnée par l'état d'ordre, contrairement à la situation dans les plagioclases s.s. De plus les feldspaths homogènes qui cristallisent normalement en dehors du solvus sont soit monocliniques soit tricliniques, suivant la teneur en Or et l'état de désordre. Lors du refroidissement de tels feldspaths, plusieurs processus peuvent avoir lieu en fonction de la vitesse de refroidissement et de la composition :

(1) Des feldspaths monocliniques riches en Ab se transforment de façon instantanée et réversible par un cisaillement spontané (transformation de déplacement) en feldspaths tricliniques avec formation de macles de type Albite et Péricline.

(2) Le feldspath homogène s'exsolvé pour donner des domaines riches ou pauvres en Or. Pour des feldspaths alcalins dépourvus ou très pauvres en An, cette exsolution est très rapide. Pour éviter cela il faut tremper le feldspath, parce que cette exsolution n'implique qu'une interdiffusion des atomes K et Na. Si le feldspath contient de l'An, l'exsolution est beaucoup moins rapide, parce qu'il faut en plus une interdiffusion des atomes Al et Si qui est plus lente d'un facteur d'au moins 10^6 à 700°C .

(3) Les atomes de Al et Si s'ordonnent dans le feldspath par interdiffusion à très courte distance. Si le feldspath est monoclinique, la mise en ordre produit une transformation de phase diffusive avec développement de macles de type Albite et Péricline très semblables à celles induites par une transformation de déplacement.

(4) Le feldspath peut réagir avec de l'eau à plus basse température donnant une séparation bien nette des deux phases déjà exsolvées et éventuellement une augmentation du degré d'ordre. Ce processus est appelé deutérique ou hydrothermal suivant l'origine de l'eau.

III - RAPPELS DES PROPRIETES GENERALES DES EXSOLUTIONS

Pour bien caractériser une microstructure d'exsolution dans les feldspaths ternaires il faut spécifier un certain nombre de propriétés :

(1) La composition globale des exsolutions est très variable et couvre les domaines des perthites et antiperthites (Fig.1B). Dans le cas de cristaux zonés la composition locale est très importante parce que les microstructures varient en fonction du zoning. Un des buts de l'étude des exsolutions est de déterminer cette variation.

(2) La microstructure comporte normalement deux phases qui sont caractérisées par leurs compositions et leurs états structuraux, qu'on détermine plus ou moins facilement à partir de leurs diagrammes de diffraction.

(3) La morphologie de l'intercroissance est très variable. Cette morphologie est spécifiée par la proportion des deux phases, par l'échelle et l'orientation des interfaces des domaines, par la cohérence des interfaces et par la présence ou l'absence de macles dans l'une ou l'autre des phases. En général la morphologie est très régulière et ne varie pas avec la position dans le cristal, sauf dans les cristaux zonés ou dans les cristaux ayant subi un grossissement deutérique. Dans ce dernier cas la morphologie peut varier soit en liaison avec les bords du cristal ou avec les plans de compositions des macles de croissance, soit de façon aléatoire.

Malgré la complexité locale apparente des microstructures, la régularité à toutes les échelles et la totale cohérence le long de toutes les interfaces de la presque totalité des exsolutions suggèrent qu'un équilibre mécanique local règne. On en déduit que les microstructures sont contrôlées par les contraintes élastiques locales et qu'elles se modifient en réponse aux variations de celles-ci produites par des changements de composition, d'ordre et de symétrie des phases. Un modèle permettant le calcul des orientations possibles des interfaces supposant une cohérence totale des réseaux a été développé et appliqué aux feldspaths (Willaime et Brown, 1974, 1985).

Dans les exsolutions les plus simples, la morphologie est lamellaire, continue ou discontinue (lenticulaire), suivant la proportion des phases, tandis que les transformations des deux phases induisent la formation de morphologies non-lamellaires et celle de macles périodiques ou non. On peut classer les morphologies observées en plusieurs types du simple au complexe. Etant donné qu'on observe des reliques de types plus simples dans les types plus complexes, on suppose une évolution du simple au complexe avec l'avancement de la mise en ordre de Al et Si. Cette évolution est corrélée aussi avec un refroidissement de plus en plus lent. Nous reconnaissons quatre types de microstructures fines :

- (1) intercroissances simples, cohérentes et lamellaires
- (2) intercroissances cohérentes et lamellaires avec des macles polysynthétiques périodiques dans la phase albitique
- (3) intercroissances non-lamellaires avec maclage complexe et une forme ondulée ou en zig-zag (phase potassique) ou en losange (phase sodique)
- (4) intercroissances irrégulières en forme et en échelle, partiellement incohérentes.

Les processus qui jouent un rôle dans la formation des microstructures sont exsolution, maturation de la composition des phases et des profils de composition, grossissement, transformation de symétrie avec formation de macles et migration des interfaces. De plus il peut se superposer un grossissement irrégulier et des interactions aux joints de grains dus aux fluides.

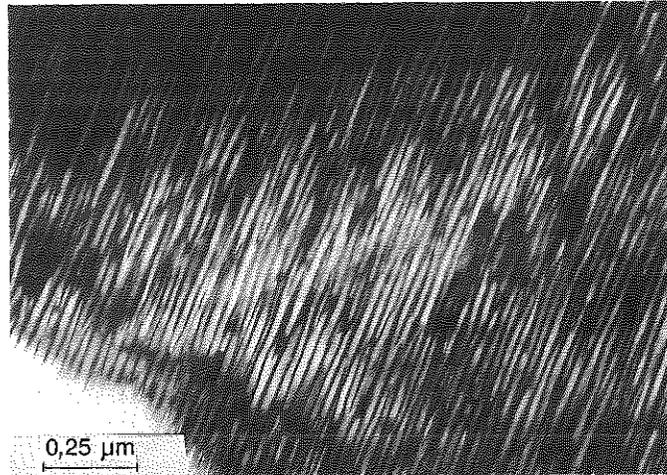


Fig. 3. Micrographie en champ clair d'une cryptoperthite des roches volcaniques des Collines Euganéennes, Italie du Nord. Faisceau électronique $\sim \parallel c$, lamelles $\sim \parallel (601)$ (Tiré de Parsons et Brown, 1984, Fig. 5).

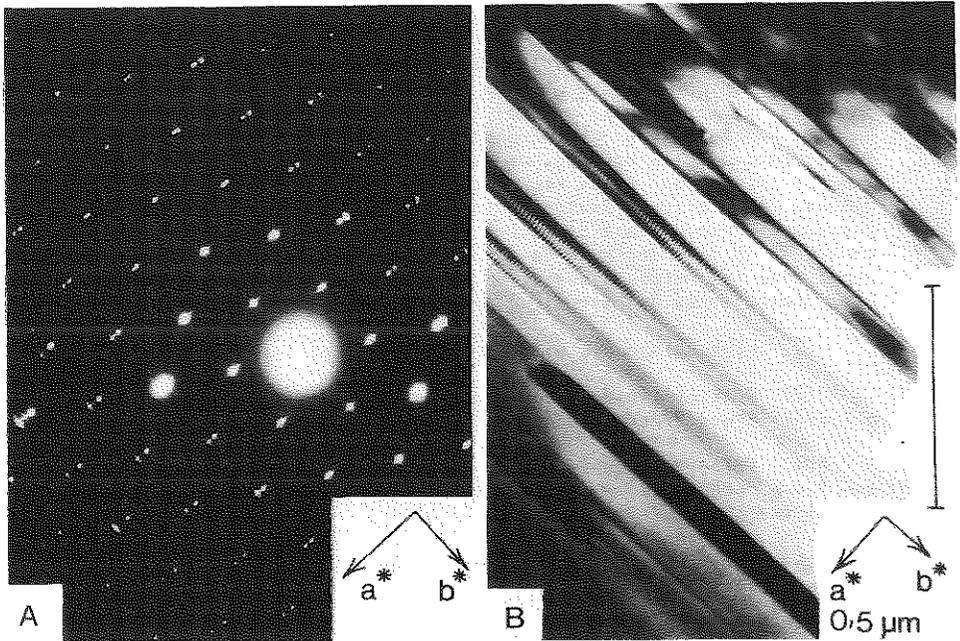


Fig. 4. Cryptoperthite d'un gabbro à deux perthites, Klokken, Groënland du Sud. A. Diagramme de diffraction du plan a^*b^* montrant des groupes de taches composés d'une tache d'orthose liée par une traînée à la tache satellite centrale de l'oligoclase maclé Albite. Des traînées sur les taches $0k0$ sont dues à des macles de type Péricline. B. Micrographie correspondante en champ clair montrant des macles Albite et Péricline (éclairée ou à l'extinction) dans les lamelles d'oligoclase, qui alternent avec des lamelles d'orthose. Barre d'échelle $0,5 \mu\text{m}$. (Tiré de Parsons et Brown, 1983)

IV - DESCRIPTION ET INTERPRETATION DES MICROSTRUCTURES

Les échantillons étudiés en détail proviennent de l'intrusion syénitique de Klokken (Groënland du Sud). Cette intrusion comporte un anneau externe incomplet de gabbro alcalin et une zone interne ovale de syénites montrant une variation de l'extérieur vers le centre allant de syénogabbro vers des syénites non-litées puis vers des syénites litées (Parsons, 1979). La série est entièrement hypersolvus et la composition des feldspaths varie de labrador-andésine vers des feldspaths alcalins presque dépourvus d'anorthite. Les feldspaths des syénogabbros et syénites les plus basiques ont un coeur de plagioclase avec une bordure de plus en plus large de feldspath alcalin, tandis que le coeur de plagioclase est absent dans les syénites. Nous avons étudié les microstructures en fonction de la composition des feldspaths déterminée à la microsonde électronique et de leur position dans l'intrusion, cette dernière déterminant l'histoire thermique (par exemple Brown et al., 1983; Brown et Parsons, 1984a,b; Parsons et Brown, 1984). Cette démarche nous a permis de comprendre l'origine et l'évolution des microstructures en fonction de la vitesse de refroidissement (établissement d'un diagramme temps - température - transformation, TTT) et de la composition (établissement d'une carte composition -microstructure).

1 - Effet de la vitesse de refroidissement

Nous étudierons d'abord l'effet de la vitesse de refroidissement pour les feldspaths très pauvres en An et dont la composition est près du sommet du solvus binaire. De tels feldspaths sont présents dans toutes les syénites litées de Klokken et dans beaucoup de roches de composition semblable. Les étapes initiales dans leur développement ne sont connues que dans les filons ou coulées de lave. La Figure 2 est un diagramme TTT pour de tels feldspaths, qui se refroidissent à partir de 850°C suivant des courbes A à I, montrant pour chaque courbe les températures du solvus incohérent (strain-free), du solvus cohérent, des transformations monoclinique \rightarrow triclinique pour les phases sodiques et potassiques et la courbe de microcline maximum. Seuls les feldspaths éjectés des volcans (courbe A) sont homogènes. Les feldspaths des filons et des laves (courbes B à E) sont exsolvés en deux phases, la phase sodique étant normalement maclée (courbes D et E), sauf rares exceptions de maturation incomplète où l'on trouve deux phases monocliniques. Tous ces feldspaths ont une symétrie globale monoclinique, leur morphologie est lamellaire (Fig.3), l'interface moyenne est orientée près de (601), et la périodicité est entre \sim 10 et 150 nm. Si la phase sodique est triclinique, elle est maclée soit Albite, soit Péricline avec une périodicité qui dépend de la largeur de la lamelle sodique et non de la périodicité des lamelles (Willaime et Gandais, 1972). Les plans de composition des macles sont perpendiculaires à l'interface moyenne, l'espacement régulier servant à minimiser l'énergie élastique. Là où il y a coexistence de macles des deux types, elles ne se coupent pas, mais se localisent dans différentes parties du feldspath ou dans différentes parties d'une lamelle (Fig.4). Dans de tels feldspaths la phase potassique varie de sanidine haute à basse température et la phase sodique de sanidine sodiane à albite haute température, intermédiaire

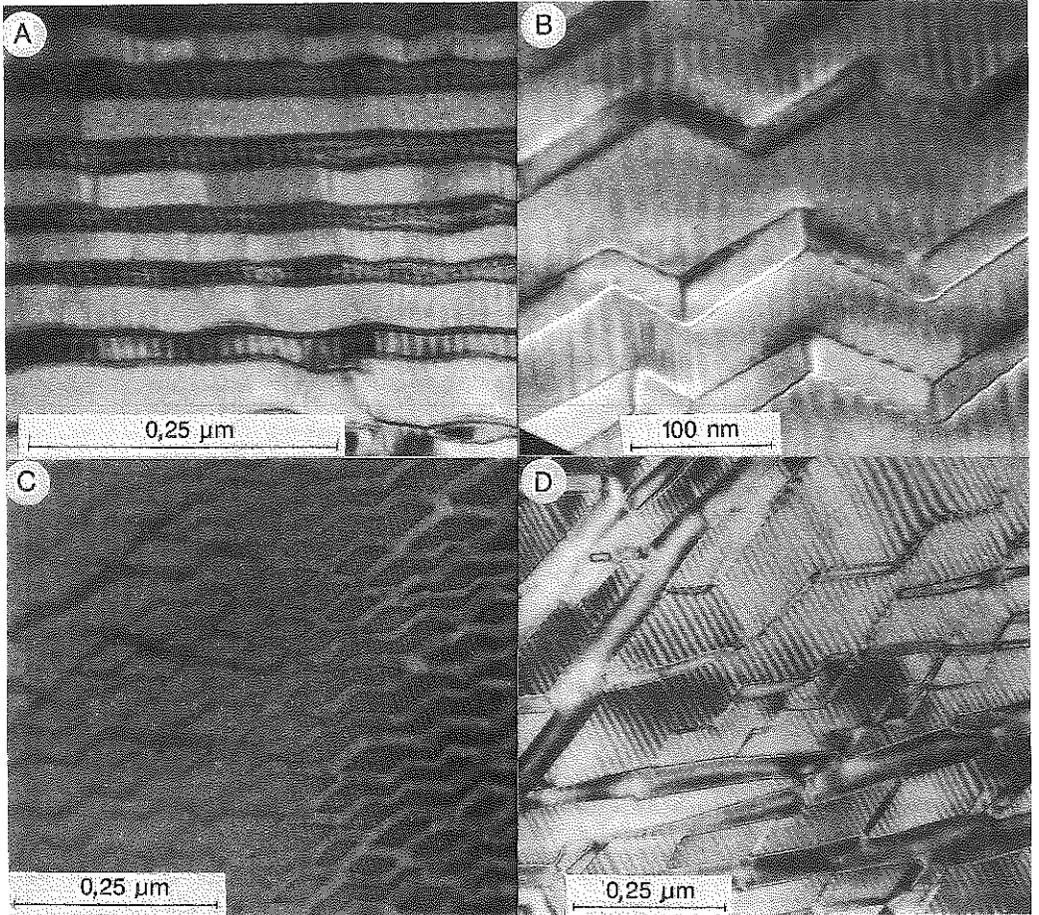


Fig. 5. Variations dans les microstructures des cryptoperthites du haut vers le bas de la série litée de la syénite de Klokken, Groënland du Sud. Micrographies en champ clair avec le faisceau électronique $\parallel c$. Les macles d'Albite donnent la trace de (010). A. Lamelles presque droites à onduleuses de microcline haut avec des macles d'Albite d'espacement irrégulier montrant une corrélation partielle entre les macles et les ondulations. Cristal plus riche en An. (Tiré de Brown et Parsons, 1984a, Fig. 3C). B. Lamelles en zig zag $\parallel (661)$ de l'albite ordonnée et du microcline ordonné dans "l'association diagonale", avec en plus des fines ondulations correspondant aux macles dans l'albite. (Tiré de Brown and Parsons, 1984a, Fig. 1B). C. Lamelles discontinues ou losanges d'albite maclée Albite et lamelles en zig zag ou obliques de microcline ordonné. (Tiré de Brown *et al.*, 1983, Fig. 5C). D. Présence de lamelles de deux orientations et de deux périodicités (l'une primaire et $\parallel b^*$, l'autre secondaire et oblique par rapport à b^*) avec du microcline maclé M aux intersections (Tiré de Brown *et al.*, 1983, Fig. 6A).

ou éventuellement albite basse température quand la vitesse de refroidissement diminue.

Quand la vitesse de refroidissement est encore plus lente, le feldspath a le temps de s'ordonner partiellement avant de s'exsolver, ce qui augmente la température de début de l'exsolution. Pour des vitesses de refroidissement plus lentes, le feldspath s'approche du degré d'ordre d'équilibre à chaque température (courbes F à I). La phase potassique devient triclinique et se macle à son tour et produit en conséquence des modifications dans la morphologie. L'état final est composé d'albite basse température et microcline maximum dans l'association diagonale où les interfaces sont parallèles à $\sim (661)$ (Fig.5). L'interprétation de l'association diagonale et les étapes possibles dans sa formation ont été le sujet de controverses (Brown et al., 1972; Lorimer et Champness, 1973; Willaime et al., 1973; Brown et Willaime, 1974; Willaime et Brown, 1974; Willaime et al., 1976; Champness et Lorimer, 1976; Carter et Champness, 1980; Fleet, 1982, 1984, 1985; Brown et al., 1983; Brown et Parsons, 1984 a,b; Parsons et Brown, 1983, 1984; Willaime et Brown, 1985). Jusqu'en 1983 les diverses interprétations se basaient sur l'étude d'échantillons isolés. C'est seulement par l'étude d'une série d'échantillons, dont l'histoire géologique est bien connue, qu'il est possible d'éliminer la plupart des éléments arbitraires dans l'interprétation.

Les étapes dans la formation et l'évolution des microstructures dans les feldspaths alcalins pauvres en An des syénites litées de Klokken sont représentées dans la Figure 6. Des détails des microstructures et de leurs relations avec la hauteur dans les séries litées sont illustrés dans Brown et al. (1983), Brown et Parsons (1984a,b), Parsons et Brown (1984) et Smith and Brown (1987, Chapter 19.2.2).

2 - Effet de la composition

Pour une vitesse de refroidissement donnée, la composition joue un rôle important. Dans le cas des feldspaths qui étaient monocliniques au moment de l'exsolution, un changement de composition a tendance à bloquer la mise en ordre du feldspath potassique et l'évolution des microstructures. Deux types de changements sont à considérer : (1) dans le rapport $Ab/(Ab + Or)$ et (2) dans la teneur en An.

(1) Si le rapport $Ab/(Ab + Or)$ varie, la proportion des deux phases varie de façon directe, parce que les phases ont une composition presque constante à température constante et à faible valeur de An. La morphologie est affectée de deux façons. Premièrement, si la morphologie est lamellaire quand les deux phases sont d'égale abondance, un changement de ce rapport produit d'abord des lamelles discontinues puis des domaines lenticulaires de moins en moins longs. Si le rapport augmente on observe des lentilles de feldspath potassique dans du feldspath sodique; si le rapport diminue on observe le contraire. Deuxièmement, si la teneur en An est moins de 5 %, un changement de ce rapport vers des faibles ou grandes valeurs bloque la mise en ordre du feldspath potassique (Fig.7). La morphologie correspondant à l'association diagonale ne se développe que si le rapport est entre $\sim 0,85$ et $0,33$. Si le rapport est inférieur à $0,33$, la morphologie est ondulée avec du microcline haute; si le rapport est in-

férieure à $\approx 0,24$, la morphologie est lenticulaire avec de la sanidine basse. Cette modification dans le développement de l'ordre dans le feldspath potassique est attribuée à l'influence des contraintes exercées par l'albite adjacente (Brown et Parsons 1984b).

(2) Si la teneur en An augmente, la mise en ordre du feldspath potassique est également freinée et l'on observe des microstructures lamellaires contenant de la sanidine basse, souvent avec la présence de dislocations périodiques le long de l'interface (Brown et Parsons, 1983). Cette observation a été attribuée à la lenteur de la diffusion de Si et Al et au blocage de la rotation de l'interface vers $(\bar{6}61)$ (Brown et Parsons, 1983, 1984b).

Si la teneur en An augmente en même temps que le rapport $Ab/(Ab + Or)$, le feldspath peut ne plus être monoclinique au début de l'exsolution (Fig. 1). Si le refroidissement est rapide, le feldspath ne s'ordonne pas beaucoup et peut se transformer par déplacement avec maclage (sanidine sodiane \rightarrow anorthose) avant de s'exsolver (Fig. 1a). L'exsolution dans de tels feldspaths n'a pas été étudiée en détail. Si le refroidissement est lent, le feldspath s'ordonne et s'exsolvent avant la transformation de déplacement. Avec diminution de Or on observe le passage de l'exsolution dans un feldspath monoclinique à celle dans un feldspath triclinique au moment de la croissance (plagioclase) avec formation des antiperthites (Fig. 1b). La variation de la morphologie des antiperthites fines peut être aisément observée dans des cristaux zonés avec coeur de plagioclase et bordure de feldspath alcalin (Smith et Brown, 1987, Chapter 19.2.2; Brown et Parsons, inédit).

V - CONCLUSIONS

On ne peut comprendre l'origine et l'évolution des microstructures d'exsolution dans les feldspaths ternaires qu'à trois conditions.

(1) Il faut qu'elles soient caractérisées au mieux à l'aide d'une étude chimique et morphologique détaillée. La méthode la mieux adaptée est la microscopie électronique par transmission.

(2) Il faut une très bonne connaissance des relations de phases et de la cinétique des transformations. De plus il faut pouvoir calculer les orientations des interfaces possibles entre les différentes phases.

(3) Il faut disposer de données de terrains sûres pour pouvoir déterminer l'histoire thermique des échantillons étudiés. Pour le faire, le mieux est d'étudier l'influence de la vitesse de refroidissement sur l'évolution des microstructures dans des feldspaths de composition constante, en combinaison avec l'étude de l'influence de la composition sur des feldspaths zonés à une même vitesse de refroidissement. Par cette méthodologie, on élimine au moins partiellement des interprétations basées exclusivement sur un ordonnancement des morphologies.

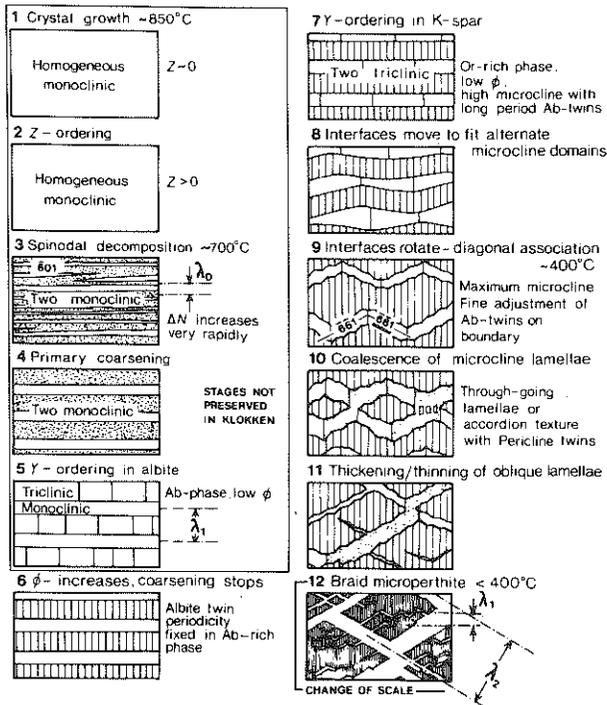


Fig. 6. Etapes dans le développement de microperthites en tresses (braid microperthite). (Tirés de Brown et Parsons, 1984a, Fig. 8).

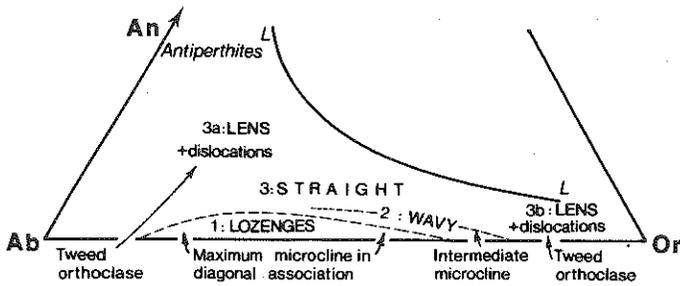


Fig. 7. Relations entre composition et microstructure dans les cryptoperthites formées lors du refroidissement lent de roches magmatiques (Tiré de Brown et Parsons, 1984b, Fig. 1B).

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- BROWN W.L., PARSONS I. (1983) Nucleation on perthite-perthite boundaries and exsolution mechanisms in alkali feldspar. *Phys. Chem. Minerals* 10, 55-61.
- BROWN W.L., PARSONS I. (1984a) Exsolution and coarsening mechanisms and kinetics in an ordered cryptoperthite series. *Contrib. Min. Petr.* 86, 3-18.
- BROWN W.L., PARSONS I. (1984b) The nature of potassium feldspar, exsolution microtextures and development of dislocations as a function of composition in perthitic alkali feldspars. *Contrib. Min. Petr.* 86, 335-341.
- BROWN W.L., WILLAIME C. (1974) An explanation of exsolution orientations and residual strain in cryptoperthites. In : "The Feldspars" W.S. MacKenzie et J. Zussman ed., Manchester University Press, p. 440-459.
- BROWN W.L., BECKER S.M., PARSONS I. (1983) Cryptoperthites and cooling rate in a layered syenite pluton : a chemical and TEM study. *Contrib. Min. Petr.* 82, 13-25.
- BROWN W.L., WILLAIME C., GUILLEMIN C. (1972) Exsolution selon l'association diagonale dans une cryptoperthite . Etude par microscopie électronique et diffraction des rayons X. *Bull. Soc. franç. Min. Crist.* 95, 429-436.
- CAHN J.W. (1968) Spinodal decomposition. *Trans. Metall. Soc. AIME*, 242, 166-180.
- CARTER S., CHAMPNESS P. (1980) The diagonal association in alkali feldspars. *Electron Microscopy* 1, 454-455.
- CHAMPNESS P.E., LORIMER G.W. (1976) Exsolution in silicates. In : "Electron Microscopy in Mineralogy" H.R. Wenk ed., Springer, Berlin, p.174-204.
- FLEET M.E. (1982) Orientation of phase and domain boundaries in crystalline solids. *Amer. Mineral.* 67, 926-936.
- FLEET M.E. (1984) Orientation of feldspar intergrowths : application of lattice misfit theory to cryptoperthites and e-plagioclase. *Bull. Minéral.* 107, 509-519.
- FLEET M.E. (1985) Orientation of phase and domain boundaries in crystalline solids : reply. *Amer. Mineral.* 70, 130-133.
- GIBBS J.W. (1928) *Collected works*. Yale University Press, New Haven.
- LORIMER G.W., CHAMPNESS P.E. (1973) The origin of the phase distribution in two perthitic alkali feldspar. *Phil. Mag.* 28, 1391-1403.

- PARSONS I. (1979) The Klokken gabbro-syenite complex, South Greenland : cryptic variation and origin of inversely graded layering. *J. Petrol.* 20, 653-694.
- PARSONS I., BROWN W.L. (1983) A TEM and microprobe study of a two-perthite alkali gabbro : implications for the ternary feldspar system. *Contrib. Min. Petr.* 82, 1-12.
- PARSONS I., BROWN W.L. (1984) Feldspars and the thermal history of igneous rocks. In : "Feldspars and Feldspathoids", W.L. Brown ed., D. Reidel Co., p.317-371.
- SMITH J.V., BROWN W.L. (1987) "The Feldspars" Springer, Berlin (sous presse).
- WILLAIME C. (1981) Les exsolutions dans les minéraux. In : "Les transformations de phases dans les solides minéraux" V. Gabis et M. Lagache eds., Soc. fr. Min. Crist., 501-531.
- WILLAIME C. (1984) Les transformations de phase à l'état solide, témoins de la cinétique de refroidissement des roches. Applications à l'exemple des feldspaths. In : "Thermométrie et barométrie géologiques" M. Lagache eds., Soc. fr. Min. Crist., 85-131.
- WILLAIME C., BROWN W.L. (1974) A coherent elastic model for the determination of the orientation of exsolution boundaries : application to feldspars. *Acta Cryst.* A30, 316-331.
- WILLAIME C., BROWN W.L. (1985) Orientation of phase and domain boundaries in crystalline solids : discussion. *Amer. Mineral.* 70, 124-129.
- WILLAIME C., GANDAIS M. (1972) Study of exsolution in alkali feldspars. Calculation of elastic stresses inducing periodic twins. *Phys. stat. sol.* A9, 529-539.
- WILLAIME C., BROWN W.L., GANDAIS M. (1973) An electron-microscopic and X-ray study of complex exsolution textures in a cryptoperthitic alkali feldspar. *J. Mat. Sci.* 8, 461-466.
- WILLAIME C., BROWN W.L., GANDAIS M. (1976) Physical aspects of exsolution in natural alkali feldspars. In : "Electron Microscopy in Mineralogy" H.R. Wenk ed., Springer, Berlin, p.248-257.

CHAPITRE X
MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A HAUTE
RESOLUTION

par Jany THIBAUT-DESSEAUX

Microscopie Electronique à Haute Résolution

J. THIBAUT-DESSEAUX

La microscopie électronique à haute résolution (MEHR) permet de visualiser les arrangements cristallins à l'échelle atomique. Cette technique permet donc de répondre à un certain nombre de questions que l'on se pose à propos de la structure des matériaux car l'information apportée (une image) est locale. Elle diffère en cela d'autres techniques telles que diffraction de RX ou neutrons qui ne donnent que des informations moyennées sur la taille du faisceau. Grâce à la MEHR les défauts locaux, les domaines de structures différentes, leur forme, les interfaces, les précipités peuvent être localisés exactement et imagés à l'échelle atomique. La connaissance de la structure du matériau est une étape essentielle pour comprendre des mécanismes comme la croissance cristalline ou bien l'évolution de la structure sous l'effet de différentes contraintes (déformation, température). Si les possibilités de la MEHR sont grandes, il ne faut pas en ignorer les limites. Dans ce cours, nous essaierons de rendre compte de ces deux aspects et nous donnerons des exemples d'application.

Le lecteur pourra se référer aux ouvrages suivant Experimental High Resolution Electron Microscopy (1) et Microscopie Electronique en Sciences des Matériaux (2).

Le lecteur est invité à lire les rappels en fin de texte. Ils concernent quelques notions fondamentales qui seront utilisées dans le cours et qui ne seront pas explicitées dans le texte pour ne pas l'alourdir.

I. FORMATION DE L'IMAGE EN MEHR

La formation de l'image en ME comprend deux étapes distinctes.

- i) Interaction des électrons avec la matière à observer.
- ii) Propagation des électrons (portant l'information sur le cristal) au travers des lentilles en particulier la lentille objectif qui donne la première image.

I.1 Interaction électrons-matière

Dans les cours de C. Willaime et A. Gervais a été décrite l'interaction électrons-matière. Cette interaction est très forte en général, de nombreux électrons sont diffractés. Les sections efficaces de diffusion sont très importantes contrairement aux cas des RX ou des neutrons. C'est pour cela d'ailleurs que l'on obtient immédiatement un diagramme de diffraction et une image dans le microscope. On ne reviendra pas en détails sur cette interaction. Il nous suffit de savoir que la fonction d'onde des électrons à la sortie d'un cristal parfait peut être décrite comme la somme de toutes les ondes planes créées par la diffraction des électrons sur les plans atomiques de distance $d_g = 1/g, 2/g, \dots$

$$\psi_s = \sum_{g \neq 0} a_g e^{i\varphi_g} \exp 2\pi i (\vec{g} + \vec{k}_0) \cdot \vec{r} \quad [1]$$

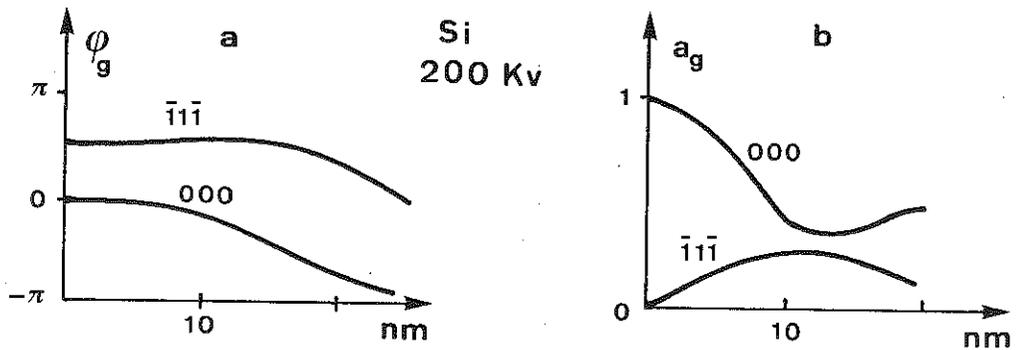


Fig. 1 : Variations en fonction de l'épaisseur du cristal Si(011) des phases (a) et des amplitudes (b) des faisceaux transmis 000 et diffractés 111.

$\exp(2\pi i \vec{k}_0 \cdot \vec{r})$ est la fonction d'onde incidente. a_g et φ_g sont les amplitudes et les phases de tous les faisceaux transmis ($g=0$) et diffractés. Le facteur $\exp(2\pi i \vec{g} \cdot \vec{r})$ vient du déphasage géométrique entre les faisceaux qui ne sont pas diffusés au même angle ($\theta_g = \lambda g$).

Comme il a été vu dans le cours de théorie dynamique, les amplitudes a_g et les phases φ_g dépendent de la structure du cristal, de son orientation mais aussi et surtout de son épaisseur z . Donc ψ_g dépend de l'épaisseur.

On notera que le spectre de l'objet (R3) à la sortie de l'objet a pour composantes de Fourier (R2) $a_g e^{i \varphi_g}$. La TF de ψ_g est en effet discrète et périodique (cristal parfait périodique). Le diagramme de diffraction (qui est justement le module carré de la TF) est un diagramme de "taches" (R4). Les amplitudes a_0 , a_g et les phases φ_0 , φ_g des faisceaux transmis et diffractés peuvent être calculées à partir de la théorie dynamique à N ondes (cf A. Gervais). En pratique on utilise très souvent la méthode dite "multicouches" qui ne sera pas détaillée ici.

Un exemple est donné figure 1 dans le cas du silicium orienté tel que l'axe $[011]$ soit parallèle au faisceau d'électrons. Sur les courbes ont été reportées les variations de a_0 et a_{111} (fig. 1a) et de φ_0 et φ_{111} (fig. 1b) avec l'épaisseur z du cristal.

1.2 Formation de l'image

La formation d'onde ψ_s à la sortie de l'objet porte toute l'information sur le cristal. Cette fonction d'onde ψ_s est reprise par la lentille objectif et une première image ψ_i est formée. L'image est ensuite agrandie par les lentilles intermédiaires et le projecteur. Pour plus de simplicité, on suppose par la suite le grandissement égal à 1. Ce qui est enregistré sur le plan film est donc l'intensité $|\psi_i(\vec{r})|^2$.

1.2.1. Microscope parfait

Si le microscope était parfait et sans défaut de mise au point ψ_i reproduirait exactement ψ_s .

Le schéma de formation de l'image pourrait se décrire par la suite de relations :

$$\begin{array}{ccccc} \text{Plan objet} & \xrightarrow{\quad} & \text{Plan focal} & \xrightarrow{\quad} & \text{Plan image} \\ \psi_s(\vec{r}) & \text{TF} & \tilde{\psi}_s(\vec{f}) & \text{TF}^{-1} & \psi_i(\vec{r}) = \psi_s(\vec{r}) \end{array}$$

L'intensité enregistrée $|\psi_s(\vec{r})|^2$ reproduirait la répartition d'électrons à la sortie de l'objet. Si l'objet est assez mince (cf cours A. Gervais) l'intensité donne alors une bonne représentation du cristal vu en projection le long du faisceau d'électrons supposé parallèle à l'axe optique.

1.2.2. Fonction de transfert du microscope réel

Le microscope est loin d'être parfait. Les aberrations de l'objectif sont très importantes et viennent perturber fortement la formation de l'image. En première approximation les aberrations des lentilles intermédiaires et du projecteur sont négligées.

Différentes aberrations et paramètres interviennent qui réduisent la qualité de l'image (fig. 2) en modifiant le spectre $\tilde{\psi}_s$ de l'objet.

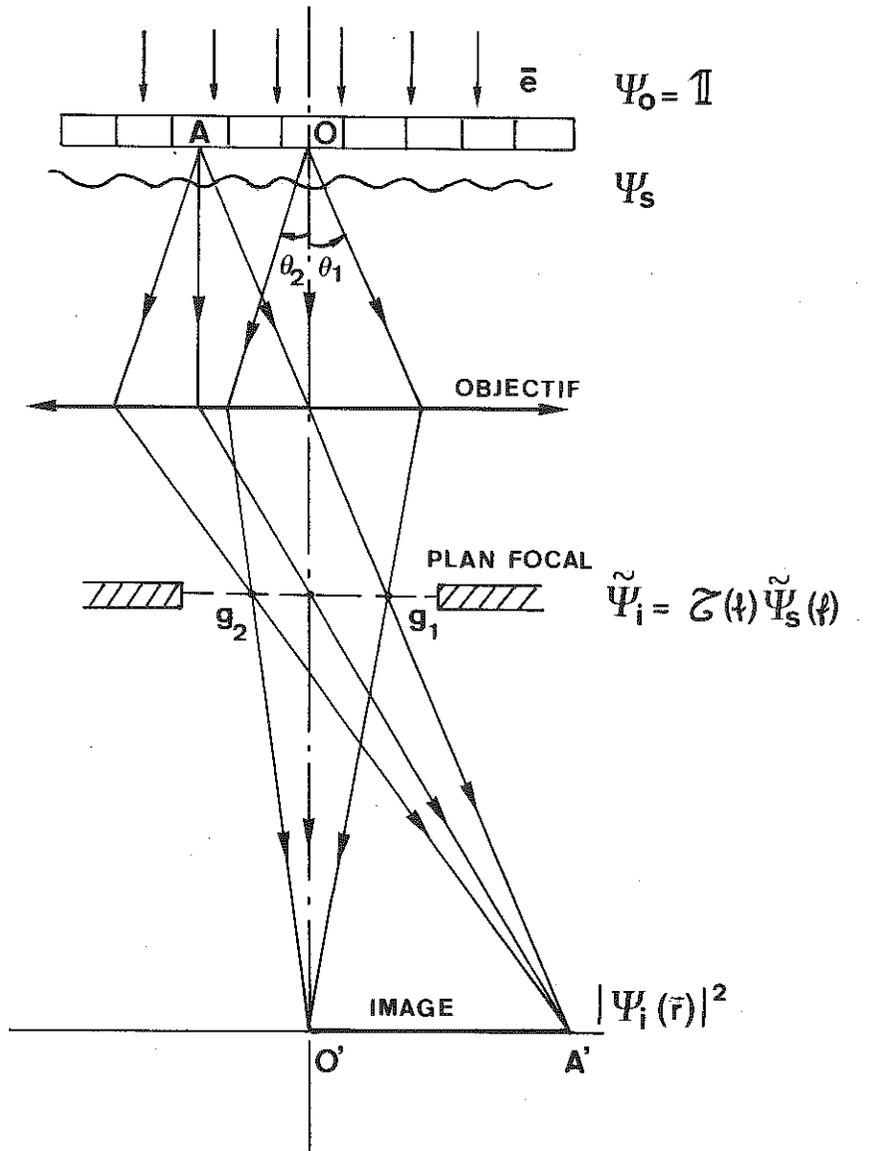


Fig. 2 : Formation de l'image en MEHR.

Aberration de sphéricité

C'est une aberration liée au défaut d'ouverture de la lentille. Elle est inhérente à la construction de l'objectif.

Des faisceaux issus d'un même point de l'objet A mais diffusés à des angles différents ne convergent pas au même point image A'. L'effet de défaut se traduit par un déphasage des composantes du spectre de l'objet $\tilde{\Psi}_S$.

$$\tilde{\Psi}'_S = \tilde{\Psi}_S \exp -2\pi i C_s (\lambda^3) \frac{f^4}{4}$$

où C_s est le coefficient d'aberration sphérique.

λ est la longueur d'onde des électrons. A 100 KV, $\lambda = 0,0037$ nm. Plus la fréquence spatiale f à imager est élevée (petite distance) plus l'influence du défaut est importante.

Défocalisation

En faisant varier le courant dans l'objectif, l'opérateur fait varier la mise au point. L'influence de ce paramètre Δz se traduit sur le spectre $\tilde{\Psi}_S$ par un déphasage proportionnel à Δz

$$\tilde{\Psi}'_S = \tilde{\Psi}_S \exp -2\pi i \lambda \Delta z \frac{f^2}{2}$$

Δz est négatif pour une sous focalisation.

Ici encore plus les électrons sont diffusés à de grands angles (fréquences spatiales élevées $\theta = \lambda f$) plus le déphasage dont ils sont affectés est grand.

Diaphragme objectif

Le diaphragme placé dans le plan focal de l'objectif limite le nombre de faisceaux d'électrons servant à reconstruire l'image. L'information contenue dans cette image sera donc réduite. On traduit cet effet par une fonction multiplicatrice "fenêtre".

$$\tilde{\Psi}'_S = \Psi_S D(\vec{f}, f_0)$$

où $D = 1$ à l'intérieur du diaphragme $|\vec{f}| < f_0$
 $D = 0$ à l'extérieur du diaphragme $|\vec{f}| > f_0$.

Une lentille possédant ce défaut donne d'un point image éclairé par un faisceau d'électrons incidents non parallèle et possédant une certaine dispersion en énergie une tache d'une certaine dimension. Cette aberration se traduit par deux fonctions multiplicatrices G_α , $G_{\delta z}$ qui jouent sur l'amplitude des faisceaux (3).

$$\tilde{\Psi}'_S = \Psi_S \cdot G_\alpha(f) G_{\delta z}(f)$$

α est l'ouverture du faisceau incident, δz la dispersion en focalisation due aux instabilités en tension, en courant objectif et à la dispersion énergétique du faisceau à l'émission.

D'autres facteurs interviennent qui perturbent l'image. Ce sont l'astigmatisme et mais aussi et surtout le défaut d'alignement du microscope (4). L'effet de ces paramètres ne sera pas détaillé ici cependant il peut être

FONCTION DE TRANSFERT

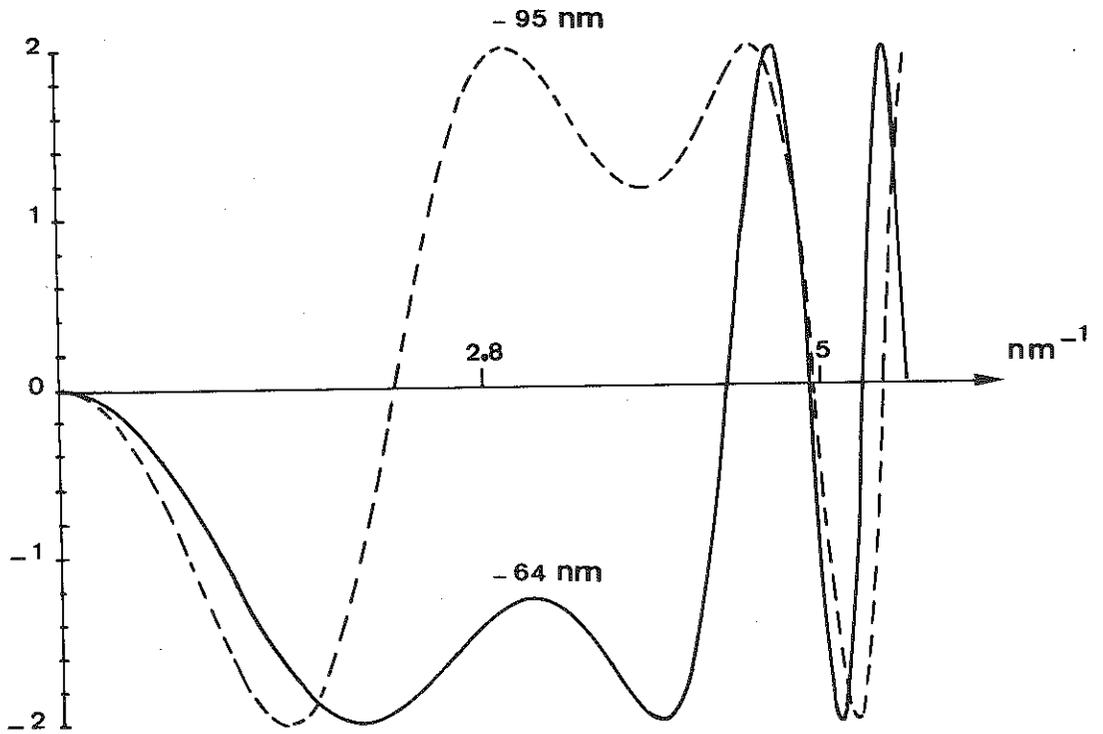


Fig. 3 : Fonction de transfert du microscope (200 KV, Cs=1,05 mm) pour deux défocalisations (- 64 nm et - 95 nm).

considérable (5).

Fonction de transfert

Les quatre paramètres cités interviennent donc pour modifier le spectre de l'objet. Ils affectent les phases ou bien les amplitudes. On dit que le spectre est modifié par la fonction de transfert des fréquences $\mathcal{G}(f)$.

$$\mathcal{G}(f) = D(\vec{f}, f_0) G_\alpha(\vec{f}) G_{\delta z}(\vec{f}) e^{-i\gamma(f)}$$

$$\text{où } \gamma(f) = 2\pi \left(C_s \frac{\lambda^3 f^4}{4} + \Delta z \lambda \frac{f^2}{2} \right)$$

Intensité dans l'image

Le schéma de transfert de l'information dans le microscope peut être représenté de la façon suivante :

$$\psi_s \xrightarrow{\text{TF}} \tilde{\psi}_s \xrightarrow{\mathcal{G}(f)} \tilde{\psi}_i = \mathcal{G}(f) \tilde{\psi}_s \xrightarrow{\text{TF}^{-1}} \psi_i$$

L'intensité dans l'image est donnée par $|\psi_i(\vec{r})|^2$ qui est en général différente de $|\psi_s|^2$.

$$I(\vec{r}) = \sum_{|g| < f_0} \sum_{|g'| < f_0} a_g a_{g'} \exp(i(\varphi_g - \varphi_{g'} - \gamma(g) + \gamma(g'))) \exp(2\pi i(\vec{g} - \vec{g}') \cdot \vec{r})$$

Pour obtenir une image de plans atomiques, il faut donc que le diaphragme objectif ait un diamètre suffisamment grand pour laisser passer les électrons diffractés par les plans à visualiser et que les aberrations soient alors suffisamment faibles pour que tous ces faisceaux puissent interférer de façon constructive; autrement dit que la résolution de l'appareil soit suffisante.

En général l'expression $I(\vec{r})$ n'est pas simple. Nous allons voir cependant dans la suite du cours deux cas où $I(\vec{r})$ se simplifie.

Le premier cas est le cas de l'objet de phase faible. C'est un cas très important car il permet d'étudier aussi les qualités de la lentille objectif et donc de définir la résolution.

Le deuxième cas est celui où le cristal à imager a une maille qui contient peu d'atomes, où le nombre de faisceaux à utiliser, pour faire l'image, est faible.

Nous verrons ensuite, sur un cas où l'intensité dans l'image ne se simplifie pas, les précautions à prendre pour interpréter les images de matériaux à structure complexe.

1.3 Objet de phase faible

Dans ce cas particulier l'objet, soit à cause de son épaisseur (très faible), soit à cause de sa structure et de ses éléments, diffuse peu les électrons (cadre de la théorie cinématique). Dans ces conditions

$$\psi_s = (1 + i\phi) e^{i\vec{k}_0 \cdot \vec{r}} \text{ avec } \phi \ll 1$$

l représente les électrons transmis, $i\phi$ représente l'amplitude complexe de fonction d'onde diffractée, elle est déphasée de $\pi/2$ par rapport à la fonction d'onde

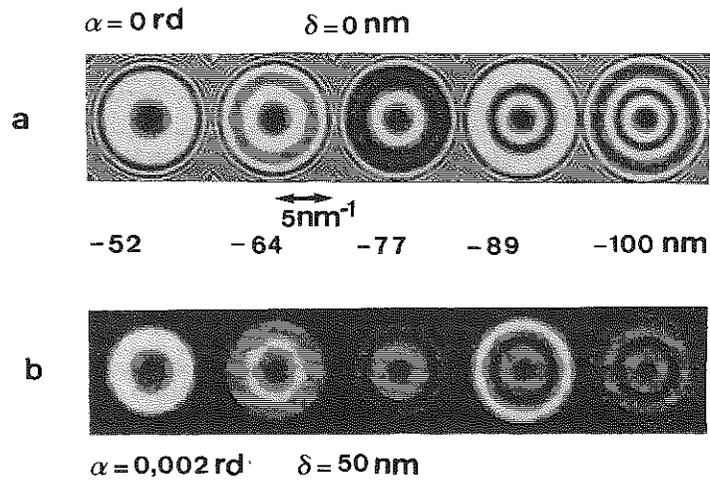


Fig. 4 : Fonctions de transfert du microscope (200 KV, $C_s=1,05 \text{ nm}$) pour différentes focalisations : - 52, - 64, - 77, - 89, - 100 nm et pour différentes conditions de cohérence (a) $\alpha=0 \text{ rd}$, $\delta z=0 \text{ nm}$, (b) $\alpha=0,002 \text{ rd}$, $\delta z=5 \text{ nm}$.

transmise ($\varphi_g - \varphi_0 = \pi/2$ dans l'équation [1]). ϕ est périodique si l'objet est un cristal parfait. Dans ces conditions chaque composante de Fourier g de ϕ sera affectée par la fonction $T(g) = -2\sin y(g)$ (en ne tenant pas compte de l'aberration chromatique).

Cette fonction $-2\sin y(f)$ est appelée fonction de transfert pour un objet de phase faible. Elle est utilisée pour caractériser le microscope. Elle varie périodiquement en fonction de la défocalisation. La figure 3 donne l'allure de la courbe pour deux focalisations particulières : la focalisation de Scherzer $\Delta z = -1,25 \sqrt{CS\lambda}$ et la focalisation $\Delta z = -1,9 \sqrt{CS\lambda}$ (à 200 KV, $Cs = 1,05$ mm). Ces courbes sont données sans l'atténuation due à l'aberration chromatique. Si on tient compte de cette dernière alors

$$T = -2G_\alpha(f)G_{\delta z}(f)\sin yg$$

La comparaison des courbes de transfert sans et avec atténuation est donnée fig. 4 pour différentes focalisations. Sur cette figure sont représentées les intensités de la fonction de transfert. Sachant que la fréquence limite de chaque diagramme est $(1/0,2)\text{nm}^{-1}$, on voit donc que cette fréquence est très atténuée dans les conditions utilisées de cohérence spatiale (demi ouverture du faisceau $\alpha = 0,002$ rd) et temporelle (instabilités $\delta z = 5$ nm).

I.4 Résolution du Microscope

I.4.1 Résolution liée à l'appareil

Le pouvoir de résolution est donné par la plus petite distance entre deux points séparés par l'appareil.

La fonction de transfert de l'appareil sert à définir cette résolution. C'est la plus haute fréquence spatiale transmise par le microscope.

On peut définir deux résolutions qui sont toutes valables à condition de préciser à chaque fois la définition.

Résolution de Scherzer : c'est l'inverse de fréquence spatiale correspondant au premier zéro de la fonction de transfert pour la défocalisation de Scherzer.

Résolution à 10 % : c'est l'inverse de la fréquence spatiale la plus élevée f_0 où la fonction de transfert descend à 10 % de sa valeur maximale. On peut l'appeler fréquence de coupure à 10 % (fig. 4). Dans l'exemple donné cette valeur correspond à 5 nm^{-1} . La résolution est donc $0,2$ nm.

I.4.2 Résolution liée à l'objet

La résolution dépend aussi du rapport signal sur bruit sur le plan film. En effet les électrons tombant sur la plaque créent un bruit c'est à dire une fluctuation locale de densité optique de la plaque liée au nombre de grains d'argent révélés. Ces fluctuations sont en $\sqrt{\pi/n}$ où n est le nombre d'électrons tombant sur la plaque. Si n est petit le bruit est fort. On ne pourra donc pas détecter de signal dont l'amplitude est inférieure au bruit (6). En général on admet comme limite de détectabilité un rapport signal sur bruit S/B de l'ordre de 5.

On peut calculer le nombre d'électrons tombant sur la plaque. Si d^2 est la surface image et j le flux d'électrons sur l'objet, t le temps de pose et f la fraction d'électrons passant à travers le diaphragme objectif (et donc contribuant à l'image) alors

$$n = fjtd^2$$

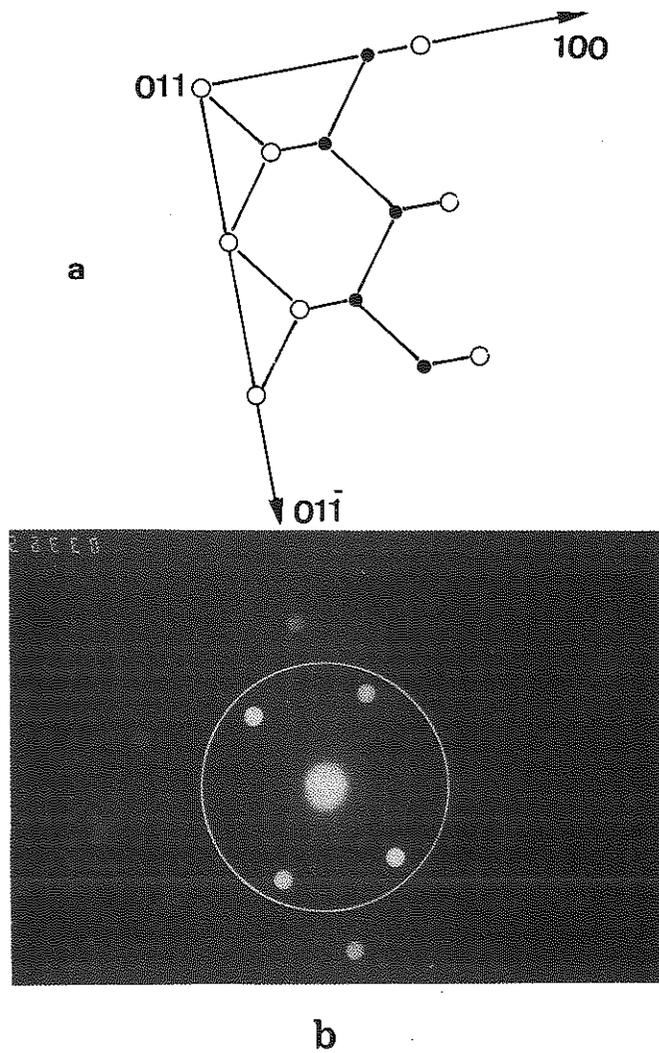


Fig. 5 : a) Projection de la maille du silicium selon la direction $[011]$.
b) Diffraction électronique de Si $[011]$.

Les fluctuations statistiques de contraste \sqrt{n}/n sur l'élément d'aire d^2 doivent donc être inférieures au signal ici $C = \Delta I/I_0$ contraste inhérent à l'objet d'extension d .

$$D' \text{ où } C \geq \frac{S}{B} \times \frac{1}{\sqrt{n}} = \frac{5}{\sqrt{f_j t d^2}}$$

D'où l'on tire la limite inférieure pour la largeur d détectable.

$$d \geq \frac{5}{C \sqrt{f N_C}}$$

où N_C est le nombre d'électrons tombant sur l'objet et $f \approx 0,1$.

Si l'on veut atteindre une résolution de 0,3 nm sur un objet n'ayant un contraste que de $C = 0,1$ alors la dose doit être sur l'objet de 2500 e/A². Dans ce cas, il est évident que les dommages d'irradiation pourront être très importants si l'objet est sensible.

Ce point illustre bien une des difficultés de l'observation en haute résolution des matériaux sensibles : s'il y a peu d'électrons le bruit est trop fort, s'il y en a trop, l'objet risque d'être détruit.

II. RESOLUTION D'UNE STRUCTURE SIMPLE Si{011}

Le silicium a une structure cubique diamant. La maille cubique possède 8 atomes. Les microscopes actuels (à 200 KV) permettent de résoudre des distances de l'ordre de 0,2 nm. On peut donc visualiser les plans (111) du silicium qui sont distants de 0,314 nm. Il faut pour cela orienter le cristal de façon à ce que l'axe [011] soit parallèle à l'axe optique. Dans cette projection la structure à visualiser est celle figurée en (fig. 5a).

Le diagramme de diffraction dans le plan focal objectif est celui donné (fig. 5b).

II.1 Intensité dans l'image

Afin de faire l'image, 5 faisceaux sont sélectionnés par le diaphragme objectif (figuré en trait blanc fig. 5b) : ce sont le faisceau transmis 000 et les 4 faisceaux 111.

Dans ces conditions symétriques dites conditions de Laue symétriques

$$\varphi_{g_1} = \varphi_{-g_1} = \varphi_{g_2} = \varphi_{-g_2} = \varphi_g ; a_{g_1} = a_{g_2} = a_{-g_1} = a_{-g_2} = a_g$$

l'intensité s'écrit :

$$\begin{aligned} I(\vec{r}) = & a_0^2 + 4a_g^2 + 4a_0 a_g \cos(\varphi_0 - (\varphi_g + \gamma_g)) [\cos(2\pi \vec{g}_1 \cdot \vec{r}) + \cos(2\pi \vec{g}_2 \cdot \vec{r})] \\ & + 2a_g^2 [\cos 4\pi \vec{g}_1 \cdot \vec{r} + \cos 4\pi \vec{g}_2 \cdot \vec{r}] \\ & + 4a_g^2 [\cos 2\pi (\vec{g}_1 - \vec{g}_2) \cdot \vec{r} + \cos 2\pi (\vec{g}_1 + \vec{g}_2) \cdot \vec{r}] \end{aligned}$$

Cette expression contient trois types de termes.

a) Des termes constants. Ils représentent le fond continu et dépendent de

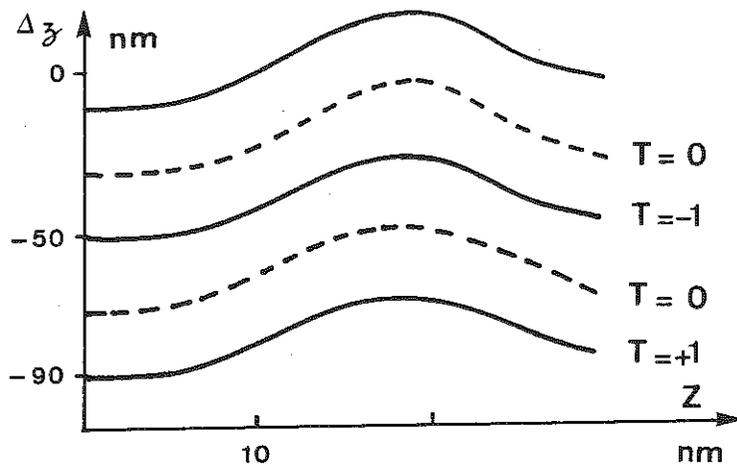


Fig. 6 : Variations de T en fonction de l'épaisseur z et de la focalisation. Les traits continus sont les lieux où $T=\pm 1$; $T=0$ sur les courbes en pointillés.

- l'épaisseur puisque a_o et a_g en dépendent.
- b) Des termes correspondant aux fréquences fondamentales \vec{g}_1, \vec{g}_2 .
- c) Des termes correspondant aux fréquences doubles $2\vec{g}_1$ et $2\vec{g}_2$ et aux fréquences d'intermodulation $\vec{g}_1 - \vec{g}_2, \vec{g}_1 + \vec{g}_2$.

On voit que les termes (b), portant l'information intéressante, sont affectés par la fonction

$$T(g) = \cos(\varphi_o - \varphi_g + \gamma_g)$$

Cette fonction dépend de l'épaisseur de l'échantillon par le biais de $\varphi_o - \varphi_g$. Le coefficient $a_o a_g$ du terme (b) est positif car a_o et a_g sont des amplitudes. Ce terme est un terme atténuateur de T en fonction de l'épaisseur (fig. 1a); Si $T = 1$ les fréquences fondamentales passent avec un contraste positif. On aura un maximum d'intensité sur les positions atomiques (données par \vec{r} tel que $\vec{g}_1 \cdot \vec{r} = m$ et $\vec{g}_2 \cdot \vec{r} = n$).

Si $T = -1$ les fréquences passent avec un contraste négatif. Les atomes sont "noirs". Le maximum d'intensité se trouve sur les tunnels de la structure.

Si $T=0$ l'intensité ne contient plus l'information sur la position des atomes puisque les fréquences doubles sont imagées.

II.2 Influence de la défocalisation

T varie périodiquement avec la défocalisation. La période est $\Delta z = 2d^2/\lambda$. Cependant l'aspect de l'image pour $T = +1$ et $T = -1$ (1/2 période) est le même.

II.3 Influence de l'épaisseur

$a_o, a_g, \varphi_o, \varphi_g$ dépendent de l'épaisseur z du cristal (fig. 1ab). Ils sont calculés par la théorie dynamique (méthode dite "multicouche").

On peut alors tracer des abaques donnant les valeurs de T en fonction de l'épaisseur et de la défocalisation fig. 6.

L'influence de Δz et z est illustrée sur la fig. 7 représentant le bord d'un cristal de silicium pour deux défocalisations - 50 nm et -90 nm.

Remarque

Quand l'épaisseur du cristal est très mince ($e < 5$ nm pour Si) $\varphi_g - \varphi_o \approx \pi/2$. Alors l'expression de l'intensité se réduit à

$$I(r) = cte - 4a_o a_g \sin \gamma_g [\cos 2\pi \vec{g}_1 \cdot \vec{r} + \cos 2\pi \vec{g}_2 \cdot \vec{r}]$$

On retrouve la variation de contraste d'un objet de phase faible. La fonction T ne dépend plus que de la défocalisation.

$$T = -\sin \gamma_g$$

Dans ces conditions l'interprétation est facilitée, il suffit de connaître Δz mais il est nécessaire de s'assurer que l'épaisseur est convenable.

III. RESOLUTION DE STRUCTURE - CAS DE $Mg_2Si_2O_6$

Nous allons montrer en utilisant les simulations d'images que, dans le cas où le cristal à observer a une structure plus compliquée, l'interprétation n'est pas

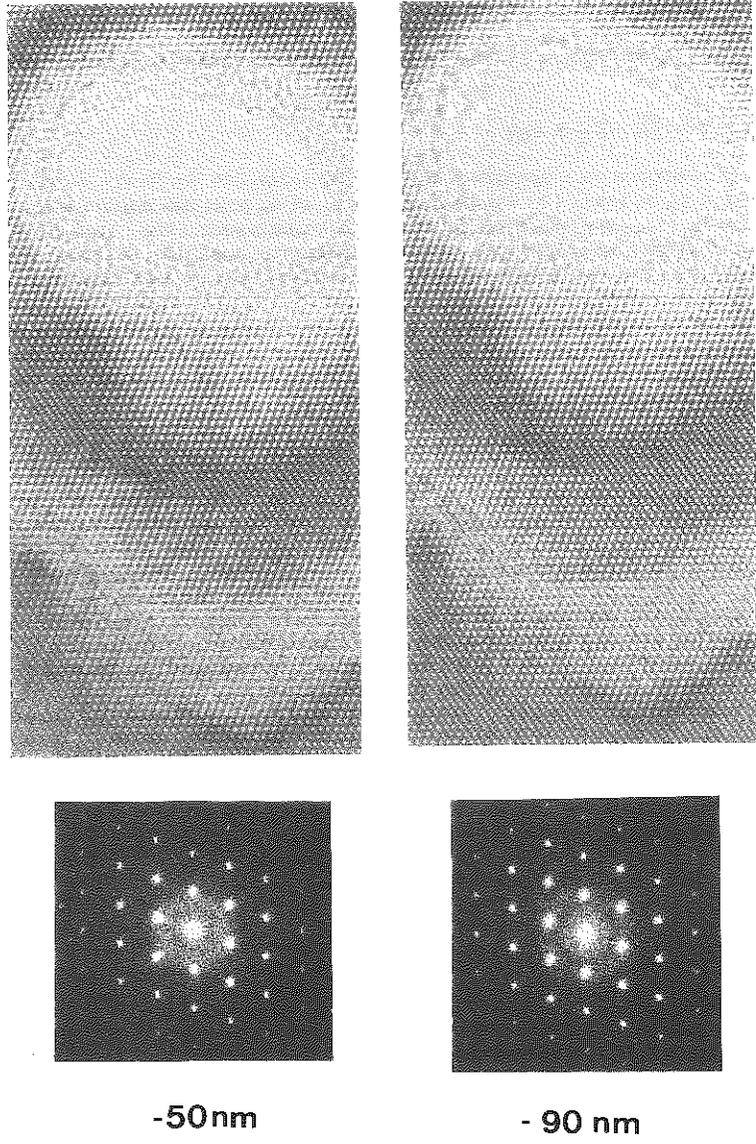


Fig. 7 : Variation du contraste au bord d'un trou dans Si(011) en fonction de la défocalisation mesurée par diffractogramme optique.

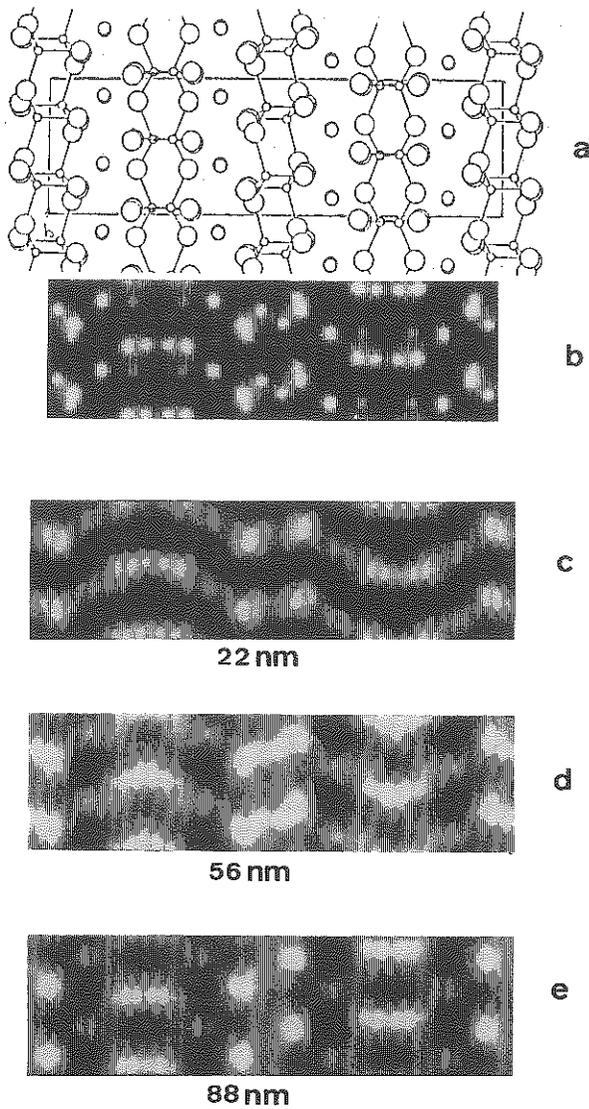


Fig. 8 : a) Structure d'un pyroxène $Mg_2Si_2O_6$ projetée selon l'axe $[010]$.
 b) Potentiel d'une maille projeté sur le plan (010) .
 c)d)e) Intensités de la fonction d'onde après un cristal d'épaisseur respectivement 22 nm, 56 nm, 88 nm.

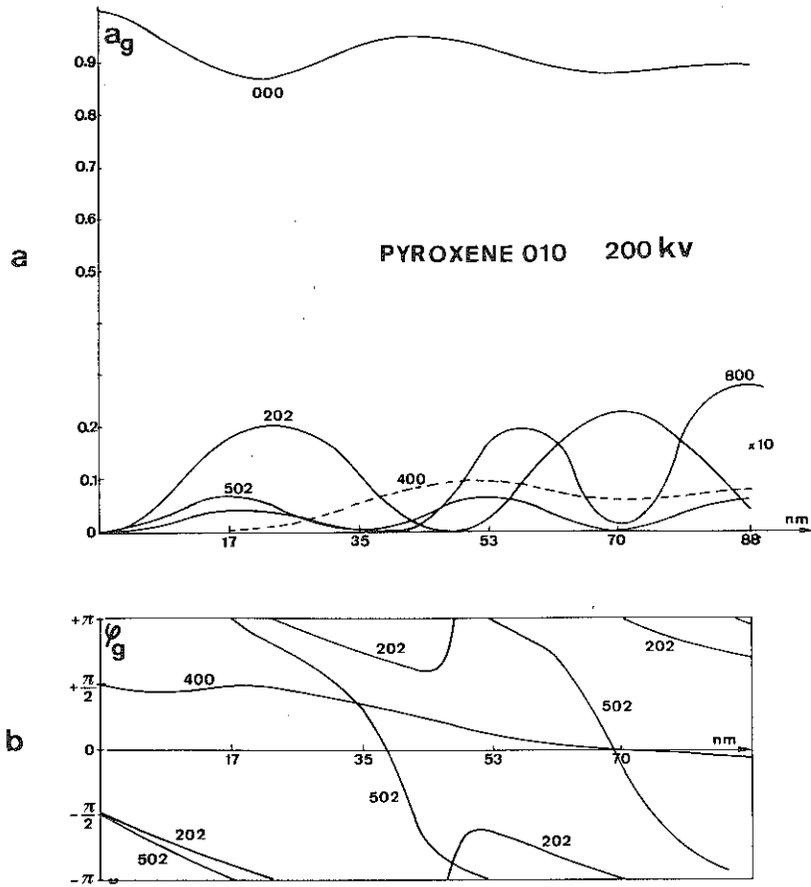


Fig. 9 : Variation des amplitudes (a) et des phases (b) de certains faisceaux diffractés par $Mg_2Si_2O_6$ (010) en fonction de l'épaisseur (200 KV).

aussi directe. Nous avons choisi un pyroxène à maille orthorhombique, l'orthoenstatite $Mg_2Si_2O_6$. Ce type de silicate est abondant dans la croûte terrestre. Sa structure a déjà été étudiée aux RX (7).

La maille de paramètres $a=1,82$ nm, $b=0,881$ nm, $c=0,518$ nm contient 80 atomes. Les images du cristal sont calculées de façon à ce que l'axe [010] soit parallèle à l'axe optique. La projection de la structure selon cet axe est donnée fig. 8a. Les chaînes de $(Si_2O_6)^{4-}$ sont bien visibles, ainsi que les cations Mg^{2+} .

Le potentiel cristallin projeté de cette maille est représenté fig. 8b. La structure est toujours très visible.

Ont été calculées ensuite les amplitudes et les phases des faisceaux diffractés (fig. 9). La distance d'extinction du faisceau 202 ($d_{202} = 0,25$ nm) est de l'ordre de 45 nm, celle du faisceau 502 ($d = 0,21$ nm) est de 35 nm, celle du faisceau 400 ($d = 0,455$ nm) est bien supérieure à 100 nm et celle du faisceau 800 ($d = 0,228$ nm) de l'ordre de 40 nm. Les faisceaux non figurés ont des intensités (pour $z < 88$ nm) inférieures à 10^{-3} .

Les figures 8c,d,e représentent la répartition d'électrons $(\psi_g(r))^2$ à la sortie de l'échantillon pour différentes épaisseurs.

Les figures 10 et 11 représentent les variations de contraste dans l'image en fonction de l'épaisseur et de la défocalisation respectivement pour un diaphragme objectif de rayon $4,1$ nm $^{-1}$ et $4,8$ nm $^{-1}$. Le premier diaphragme laisse passer les faisceaux diffusés par des plans distants de 0,24 nm (faisceaux : 400 ; 202) et le second permet le passage des faisceaux diffusés par des plans distants de 0,208 nm (faisceaux : 502, 800).

Dans le premier cas ($f_0 = 4,1$ nm $^{-1}$) à épaisseur faible ($z = 22$ nm) seuls les faisceaux 202 forment l'image. Le contraste varie périodiquement en focalisation, la $1/2$ période est $\Delta z = d^2/\lambda = 12,5$ nm. Quand l'épaisseur augmente ($z = 88$ nm) le faisceau 400 participe à l'image, la variation de contraste n'est plus simple.

Il faut remarquer que l'image, quelles que soient la focalisation ou l'épaisseur, ne ressemble guère à la structure. Elle ne porte en fait que l'information sur la symétrie des faisceaux utilisés pour faire l'image.

Dans le deuxième cas ($f_0 = 4,8$ nm $^{-1}$) le nombre de faisceaux admis à faire l'image est plus grand. Si les images sont plus détaillées que dans le cas précédent, il faut bien admettre qu'aucune ne donne une bonne représentation de la distribution d'intensité à la sortie du cristal.

Seule l'image \bar{d} ($z = +88$ nm, $\Delta z = -89$ nm) donne une image où les chaînes Si_2O_6 sont visualisées en noir.

Il faut insister sur le fait que l'on n'obtient qu'une représentation de la symétrie des faisceaux utilisés, altérée d'ailleurs par les aberrations du microscope. Quand la maille contient beaucoup d'atomes dont les distances interatomiques sont inférieures à la résolution du microscope, (ici 0,2 nm) les images ne peuvent représenter la structure à l'intérieur de la maille. Il faut noter aussi que de mauvaises conditions de travail (astigmatisme, mauvais alignement du microscope, ouverture du faisceau trop grande, instabilités de la tension, des courants de lentilles) peuvent détériorer complètement ces images déjà difficiles à interpréter.

Ce pessimisme doit être heureusement tempéré par le fait que bien souvent l'information intéressante à regarder pour les minéralogistes est constituée par les défauts qui perturbent la structure du matériau. Ce type d'information géométrique peut être extraite facilement grâce à la MEHR sans se préoccuper de la position exacte des atomes.

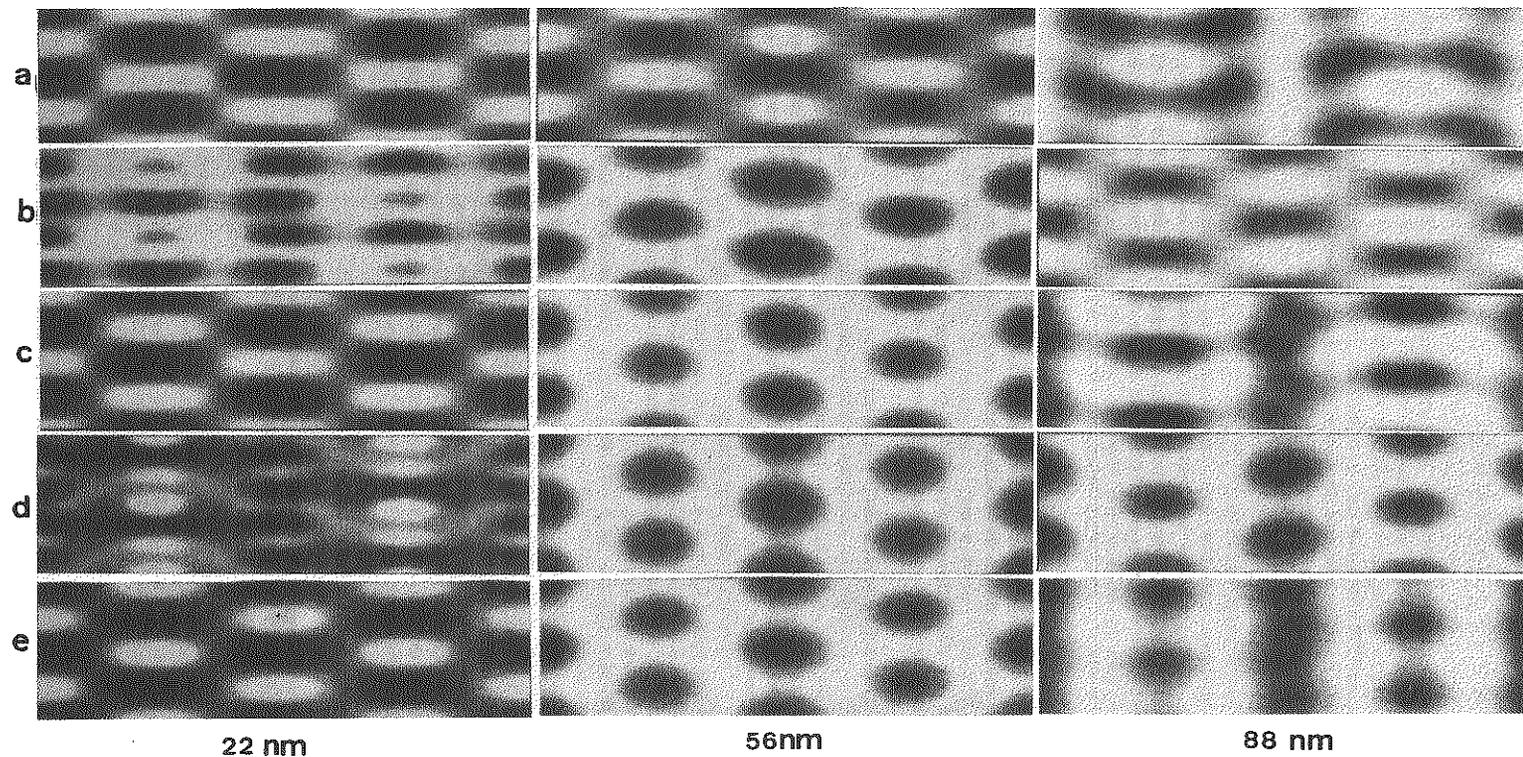


Fig. 10 : Variations du contraste dans l'image du cristal (7a) en fonction de l'épaisseur et de la focalisation (a) - 52,5 nm, (b) - 64,5 nm, (c) - 77 nm, (d) - 89 nm, (e) - 100 nm, pour un diaphragme objectif de $4,1 \text{ nm}^{-1}$.

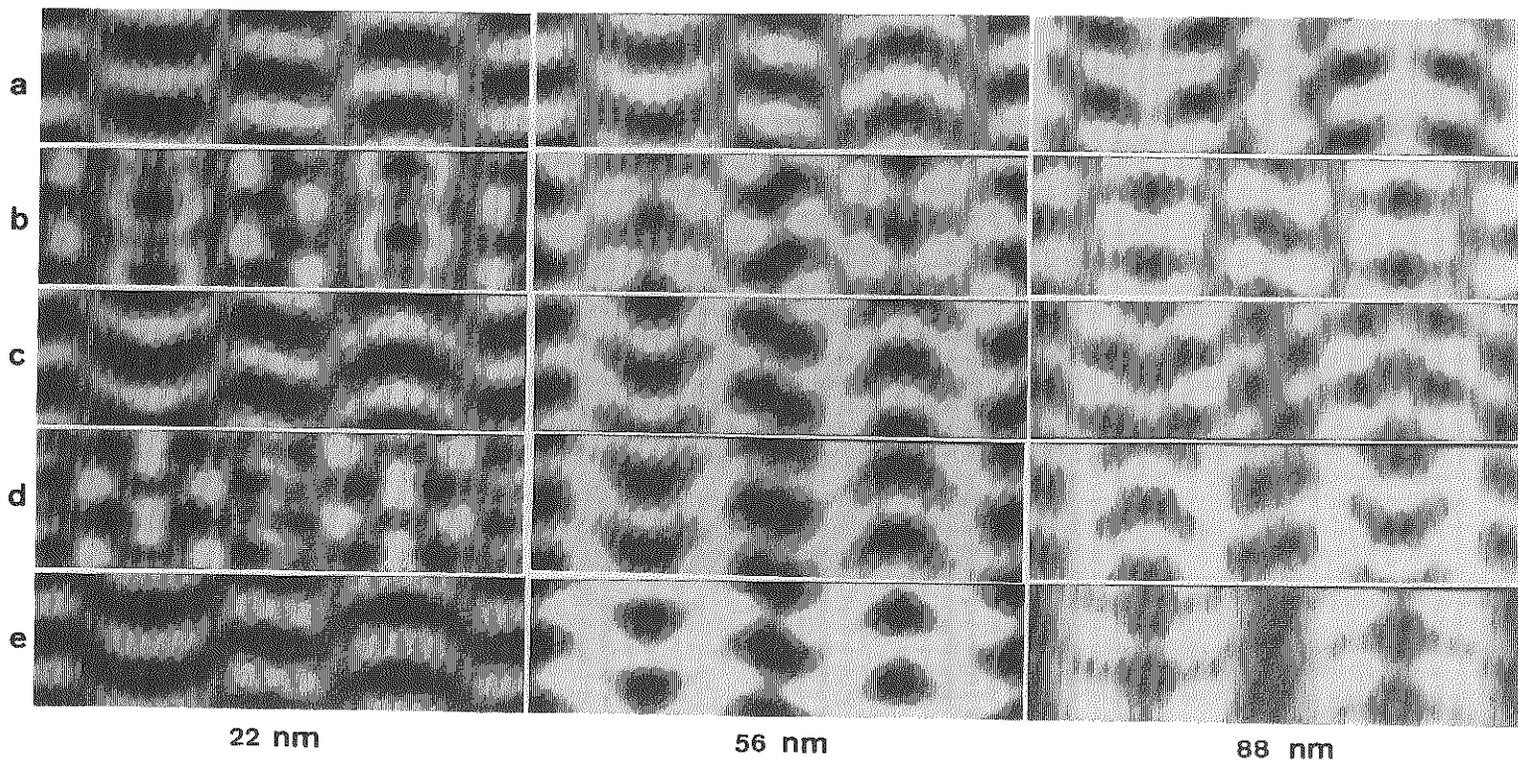


Fig. 11 : Contraste de l'image du cristal (7a) pour les mêmes conditions que dans la figure 10 mais pour un diaphragme objectif de $4,8 \text{ nm}^{-1}$.

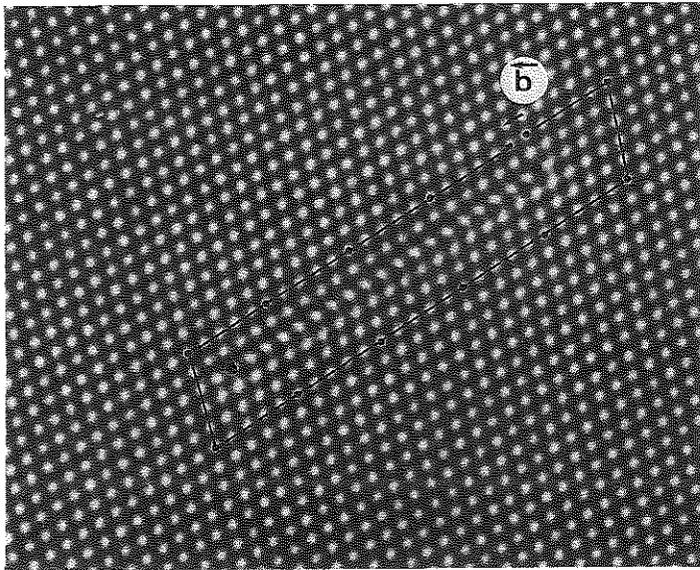


Fig. 12 : Dislocation à 60° dissociée dans Si(011). Le dessin du circuit de Burgers donne la projection de \bar{b} sur le plan (011).

III. CARACTERISATION DES DEFAUTS A L'ECHELLE ATOMIQUE

L'image enregistrée en MEHR est l'image de la projection d'un cristal. On a vu au chapitre précédent les restrictions qu'il fallait apporter à cette affirmation. Cependant on peut dire que l'on a en général et au moins la projection du réseau cristallin.

Si le réseau cristallin est perturbé localement par un défaut, alors ce défaut peut être localisé et caractérisé géométriquement grâce à la MEHR. De nombreux exemples ont été passés en revue dans les références 8 et 2 (M. Gandais).

Il y a là encore une restriction : il faut que ce défaut soit vu debout, c'est à dire que les distorsions autour du défaut soient dans le plan perpendiculaire au faisceau et les mêmes tout au long de l'axe de projection (axe de propagation des électrons). Ainsi les défauts ponctuels isolés lacunes, interstitiels, impuretés ne peuvent être détectés.

III.1 Défauts linéaires

III.1.1. Dislocation

La figure 12 donne un exemple de dislocation dans le silicium. Sa ligne est parallèle à l'axe $[011]$ axe de propagation des électrons. Cette dislocation est vue debout.

Un circuit de Burgers autour de la ligne de dislocation peut être construit. La projection de \vec{b} sur le plan (011) est obtenue ici $\vec{b}_p = 1/4[211]a$. C'est la projection du vecteur $b = 1/2[110]a$. La dislocation est donc une dislocation à 60° .

On remarque très bien sur la micrographie que la dislocation est dissociée. La largeur de la faute d'empilement peut être mesurée à une distance interatomique près.

Les dislocations partielles sont parfaitement analysables.

III.1.2. Sous-joints

Les sous joints se forment lors de la solidification.

Les dislocations qui les constituent peuvent être isolées et caractérisées de la même manière que précédemment à condition que le sous joint soit d'axe parallèle du faisceau d'électrons incidents, donc les dislocations alignées selon cet axe.

La figure 13 montre la variété des dislocations dans un sous joint synthétique de silicium. Les vecteurs de Burgers peuvent être déterminés ainsi que les distances entre dislocations. Les dislocations qui ne sont pas des dislocations de matrice ($1/2\langle 011 \rangle a$) sont mises en évidence (9). Cependant elles peuvent être toutes analysées par des réactions entre dislocations de matrice produites lors de la formation du sous-joint.

III.2 Défauts plans

Ces défauts interviennent dans la déformation des matériaux. Ils peuvent être des obstacles au glissement des dislocations et donc durcir le matériau, mais ils peuvent être aussi le siège de glissement intergranulaire. Leur rôle vis à vis de la ségrégation d'impuretés et de la précipitation en phase solide est très important. Toutes ces raisons en font des "objets" à étudier. La MEHR peut apporter certains renseignements structuraux et géométriques sur ces défauts. Nous allons voir quelques exemples.

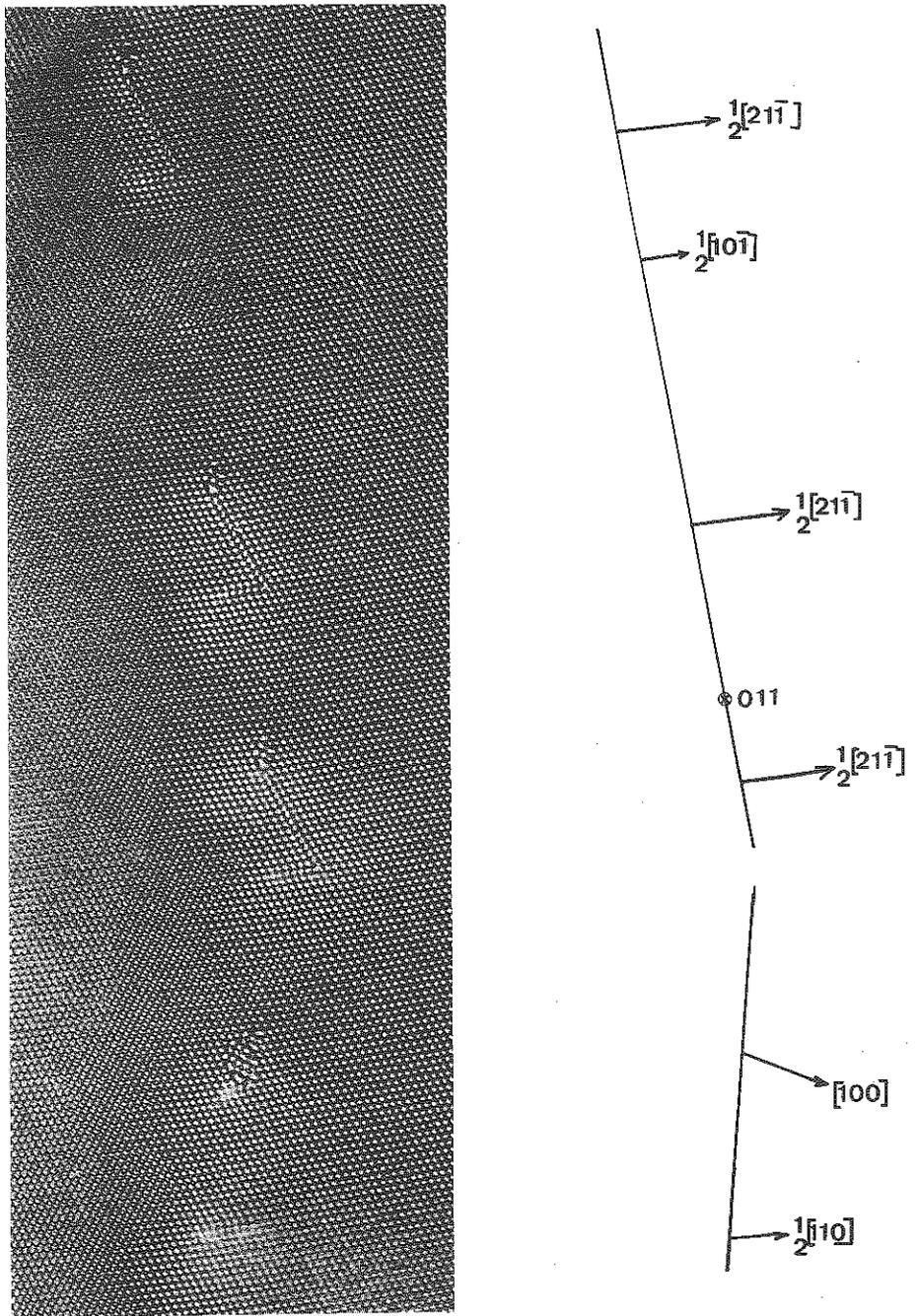


Fig. 13 : Sous-joint dans Si[011]. Différentes dislocations sont mises en évidence.

III.2.1. Joint de grains. Un cas simple $\Sigma=9$ dans Si

La figure 14 représente l'interface entre deux grains de silicium désorientés autour de l'axe [011] d'un angle de 38,94 deg. Ce joint de haute coïncidence est parfaitement périodique. La période peut être facilement mesurée ($d_p \sim 1,1$ nm) et sa structure a pu être déterminée.

D'autres joints simples ont pu ainsi être étudiés (10,11,12).

III.2.2. Faute d'empilement

Les fautes d'empilement sont des "défauts" importants à reconnaître car leur existence périodique dans une structure est à l'origine du polytypisme (13).

Des fautes d'empilement dans les structures sphalérites (cubiques c) (fig. 15) et wurtzite (hexagonale h) (fig. 16) sont facilement mises en évidence par MEHR.

Il a été mis en évidence le polymorphisme dans le composé CuAsSe synthétique (analogue au minéral CuAsS à empilement purement cubique). L'image 17 montre l'empilement (hchccc) avec des fautes d'empilements. On remarque sur ces images l'influence d'une légère inclinaison de l'échantillon qui fait apparaître un contraste qui ne dépend pas de la structure.

III.2.3 Interfaces dans un polymorphe

La figure 18 met encore en évidence le polymorphisme de CuAsSe. L'empilement (hchccc) clairement visible se transforme dans la couche de surface en empilement purement cubique.

III.2.4. Mise en évidence de précipité

Grâce à la MEHR des précipités de très petite taille peuvent être étudiés. C'est le cas par exemple de ceux trouvés au cœur de certaines dislocations dans les sous-joints (fig. 19) dans Si. Les différences de structure entre précipité et matrice sont bien visibles.

III.3 Exemple d'étude de mécanismes de déformation

On a pu "voir" grâce à la MEHR les mécanismes entrant en jeu lors de la déformation de matériau contenant un joint de grains, c'est à dire lors de l'interaction dislocations-interface. Dans le cas simple étudié ($\Sigma=9$ Si déformé en compression) (14), les dislocations créées (fig. 20) glissent sur les plans de glissement dits primaires et vont buter contre le joint où elles forment des empilements. Sous la contrainte, la dislocation entre dans le joint. Dans la figure 21a la dislocation reste dissociée. La partie de tête entrée dans le joint se dissocie dans le joint, la partie suivante est toujours dans la matrice (Fig 21b). La figure 22 montre la dislocation intégrée complètement au joint et dissociée en trois résidus dont un glisse dans le joint (vecteur de Burgers parallèle au joint). Le phénomène de dissociation explique le rôle durcissant des joints car les dislocations ne peuvent plus traverser le joint.

Il a été aussi mis en évidence que les résidus créés par l'arrivée des dislocations dans les grains voisins interagissent en eux.

Dans le cas particulier étudié (cas où la déformation était symétrique par rapport au deux grains) le joint se tapisse de résidus qui tendent à former un réseau de dislocations équivalent à un sous joint et compensant la variation d'angle créée par la déformation (fig. 23).

Ce dernier exemple (cas très favorable) montre le degré de précision que la MEHR peut atteindre dans la résolution de certains mécanismes.

CONCLUSION

La MEHR peut dans certains cas apporter des réponses impossibles à obtenir par d'autres méthodes en particulier élucider des structures, ou des phénomènes à l'échelle atomique. Cependant cette technique possède des limites qu'il faut bien avoir à l'esprit avant d'entreprendre une étude. Associée à d'autres techniques d'investigation : microscopie classique, analyse STEM, diffraction de RX, la MEHR est un instrument puissant d'investigation à l'échelle atomique de la matière et de ses défauts.

REMERCIEMENTS

L'auteur remercie Mme N. Doukhan qui lui a procuré les positions atomiques du pyroxène, H. Whitfield (CSIRO-Melbourne) qui a mis à sa disposition une magnifique réserve de micrographies dont sont extraites les figures 15, 16, 17, 18.

L'auteur tient à associer à ce travail C. Bouvier qui a eu la peine de faire tous les dessins.

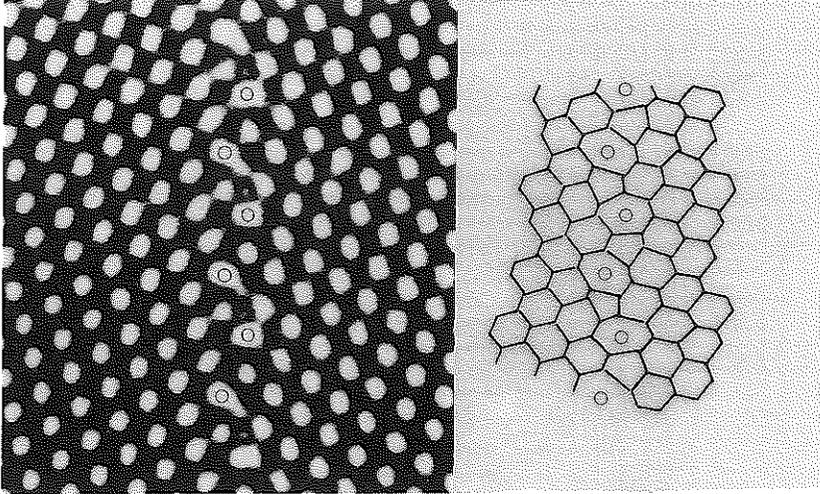


Fig. 14 : Joint de macle cohérent $\Sigma=9$ dans Si[011].

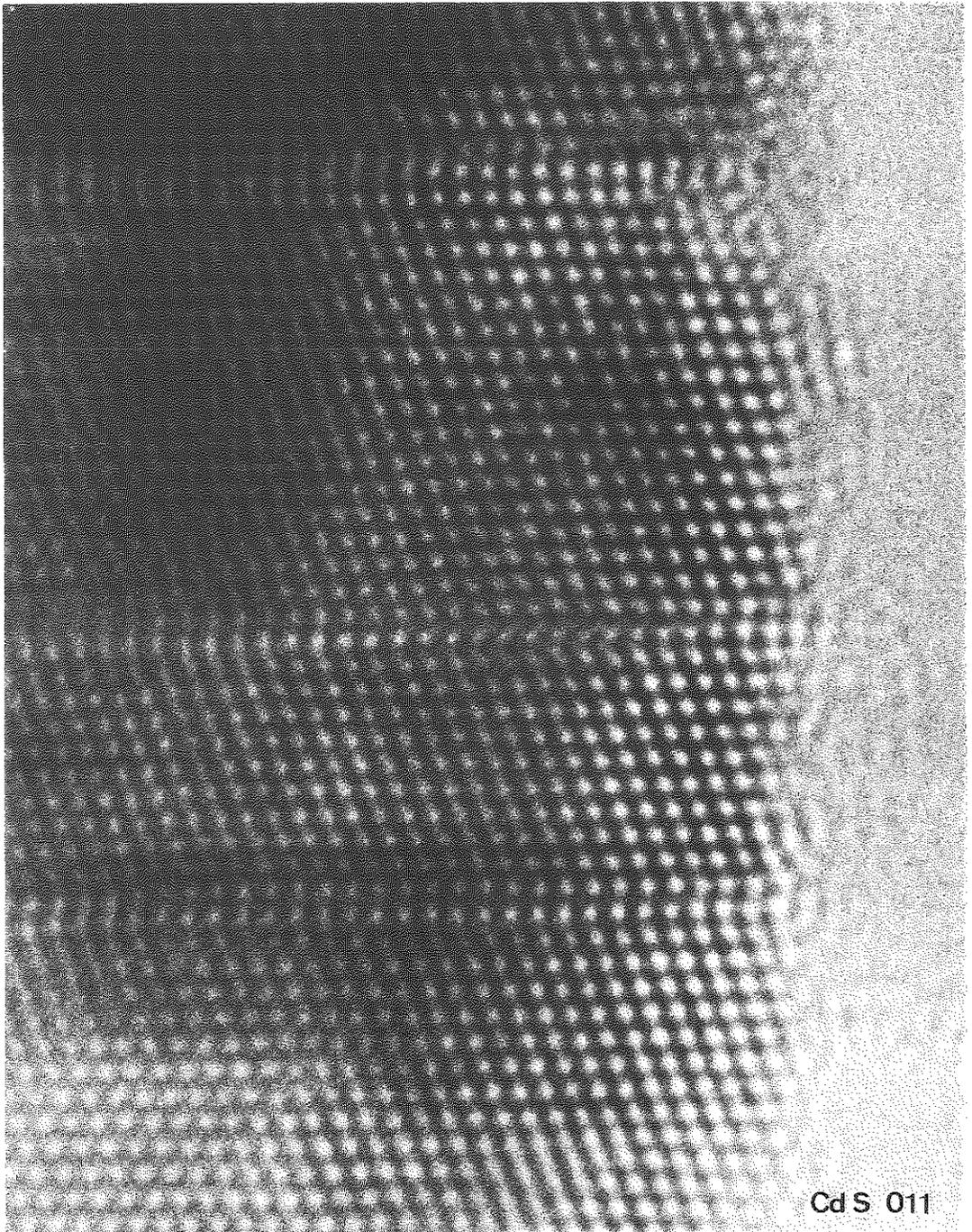


Fig. 15 : Fautes d'empilement dans la structure sphalérite vue selon [011].

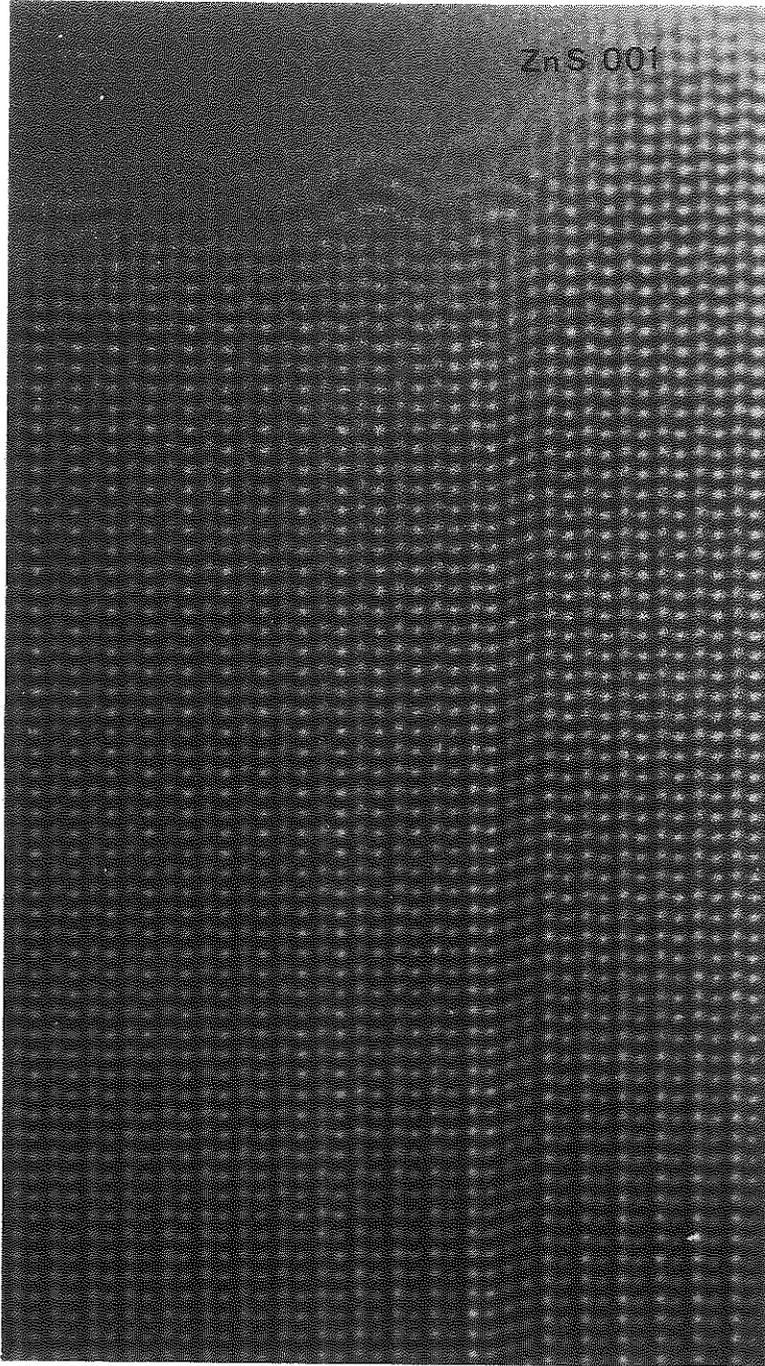
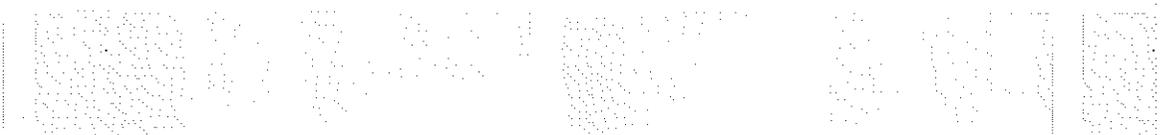


Fig. 16 : Faute d'empilement dans la structure wurtzite (hexagonale) vue selon [001].



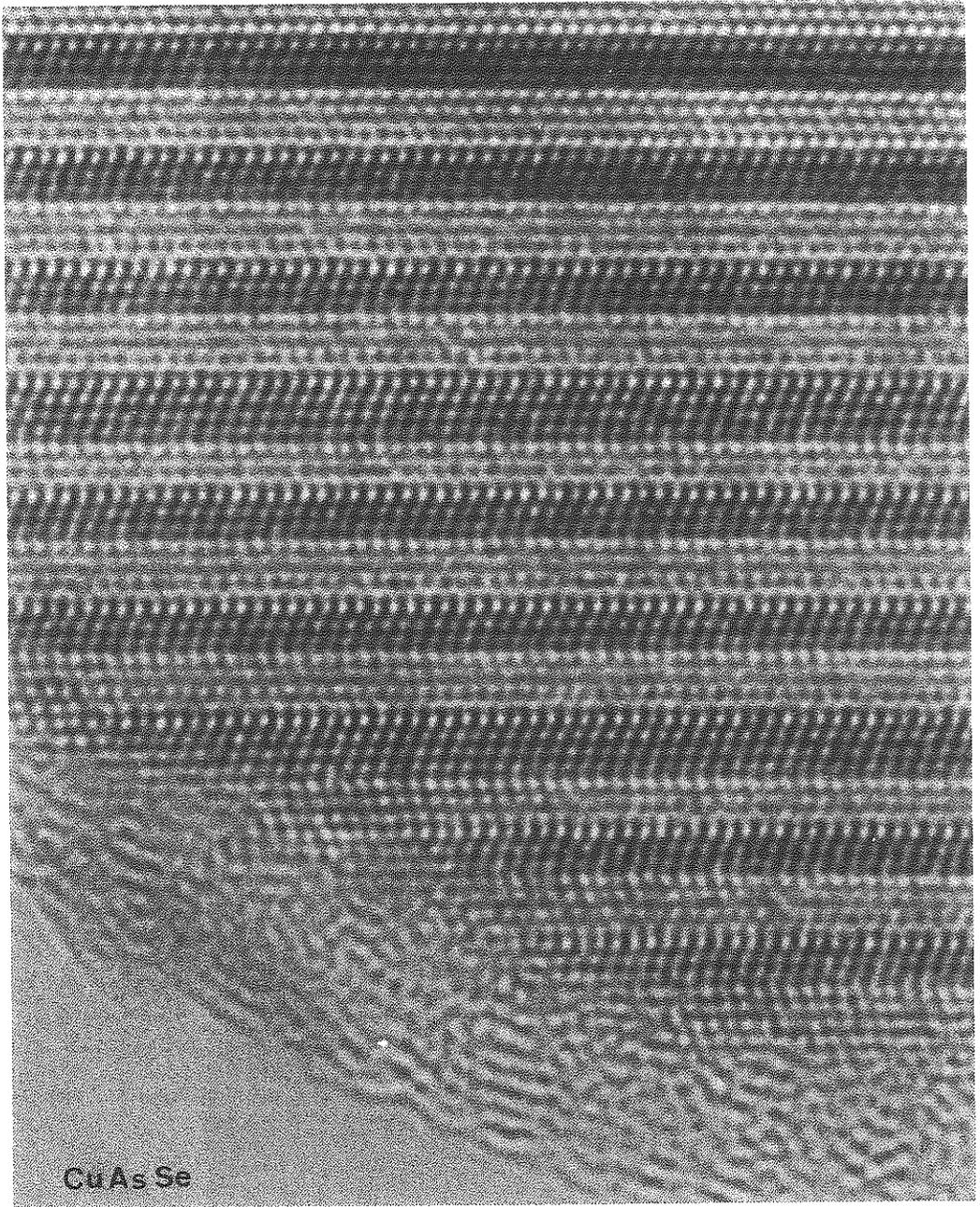


Fig. 17 : Empilement hexcc avec faute d'empilement dans le composé synthétique CuAsSe.

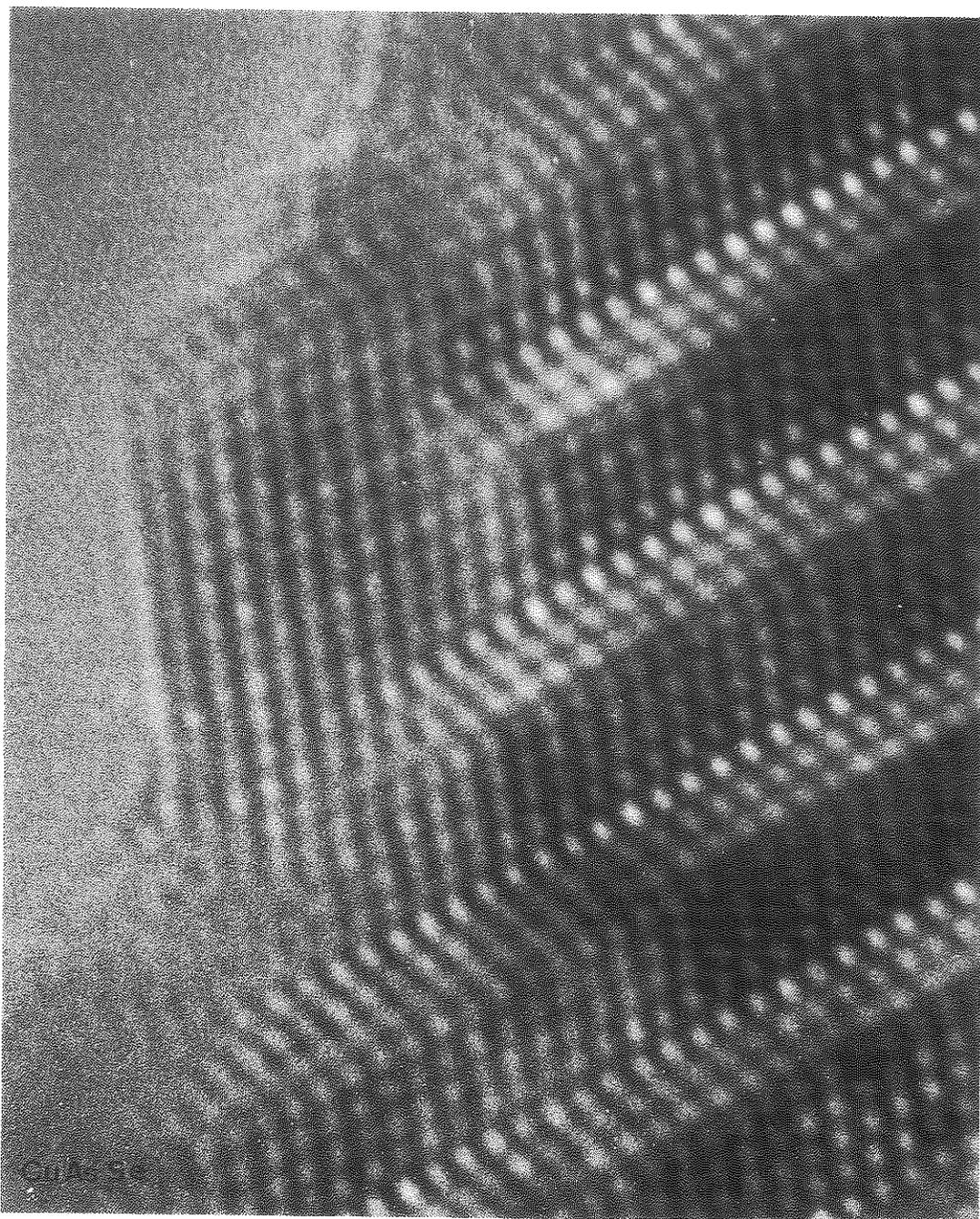
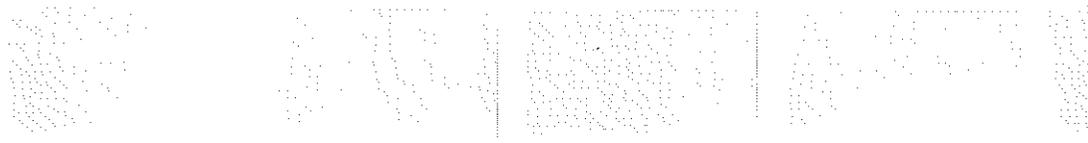


Fig. 18 : Interface dans le polymorphe Cu_3Sn entre un domaine d'empilement hchcc et un domaine d'empilement cubique.



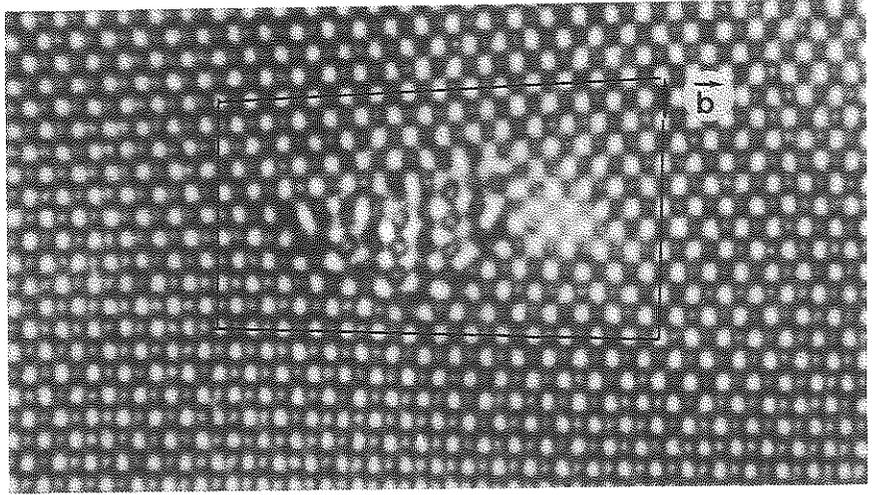


Fig. 19 : Précipité au coeur d'une dislocation de vecteur de Burgers $[001]_a$ dans Si.

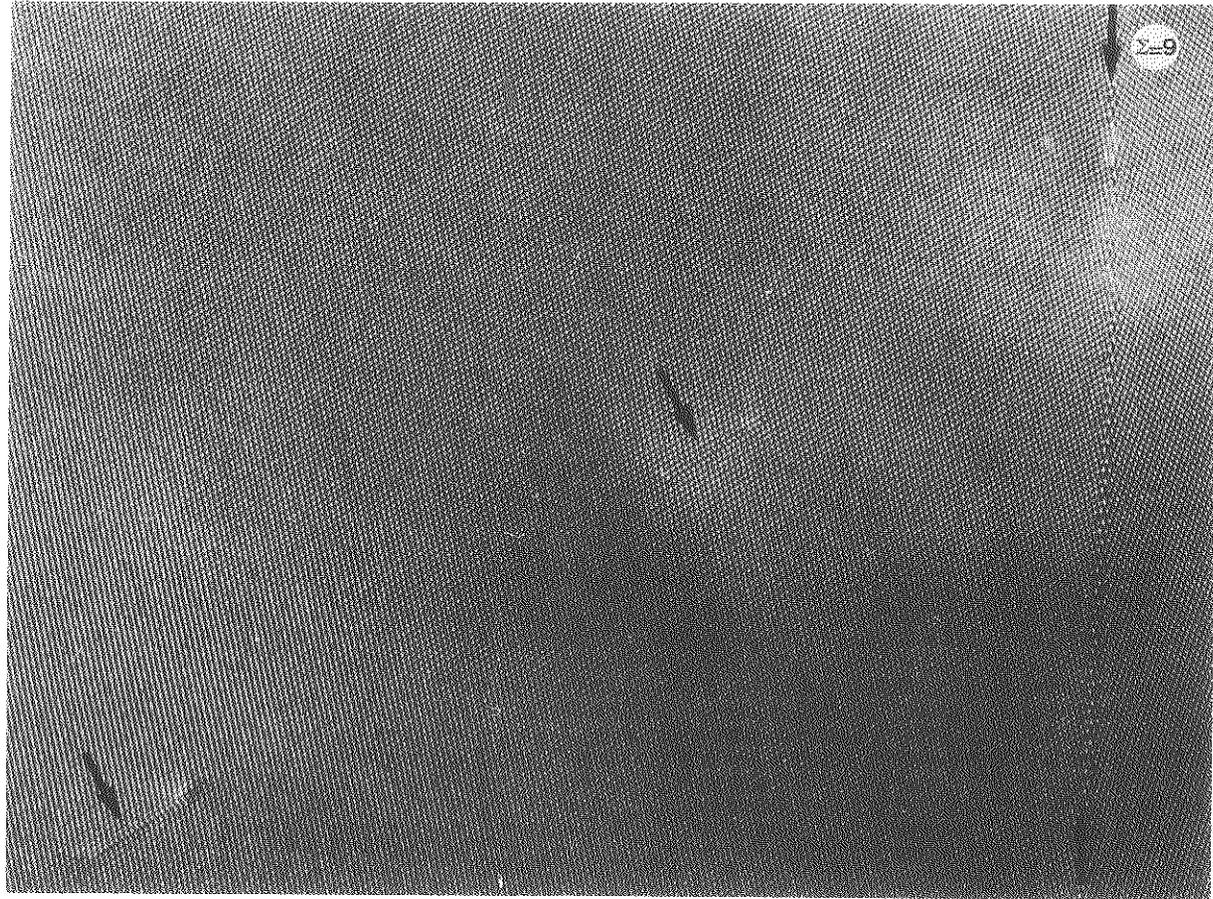


Fig. 20 : Empilement de dislocations à 60° (près d'un joint $\Sigma=9$ dans Si) créées lors d'une déformation (14).

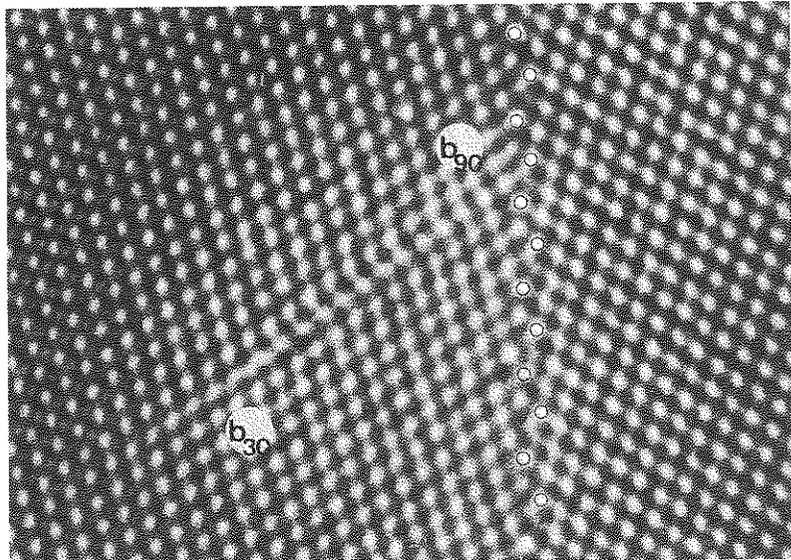


Fig. 21a : Dislocation à 60° dissociée. La partielle de tête n'est pas encore entrée dans le joint (14).

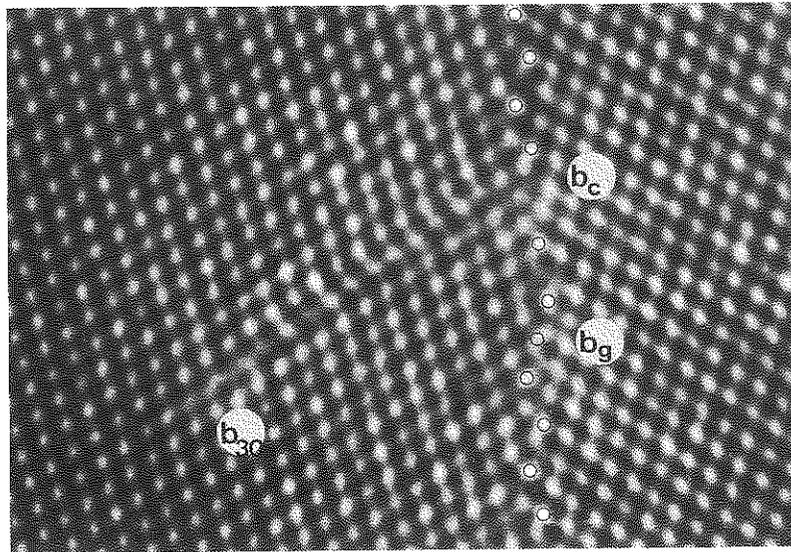


Fig. 21b : Dislocation à 60° dissociée. La partielle de tête s'est intégrée au joint et s'est dissociée dans le joint en deux résidus (14).

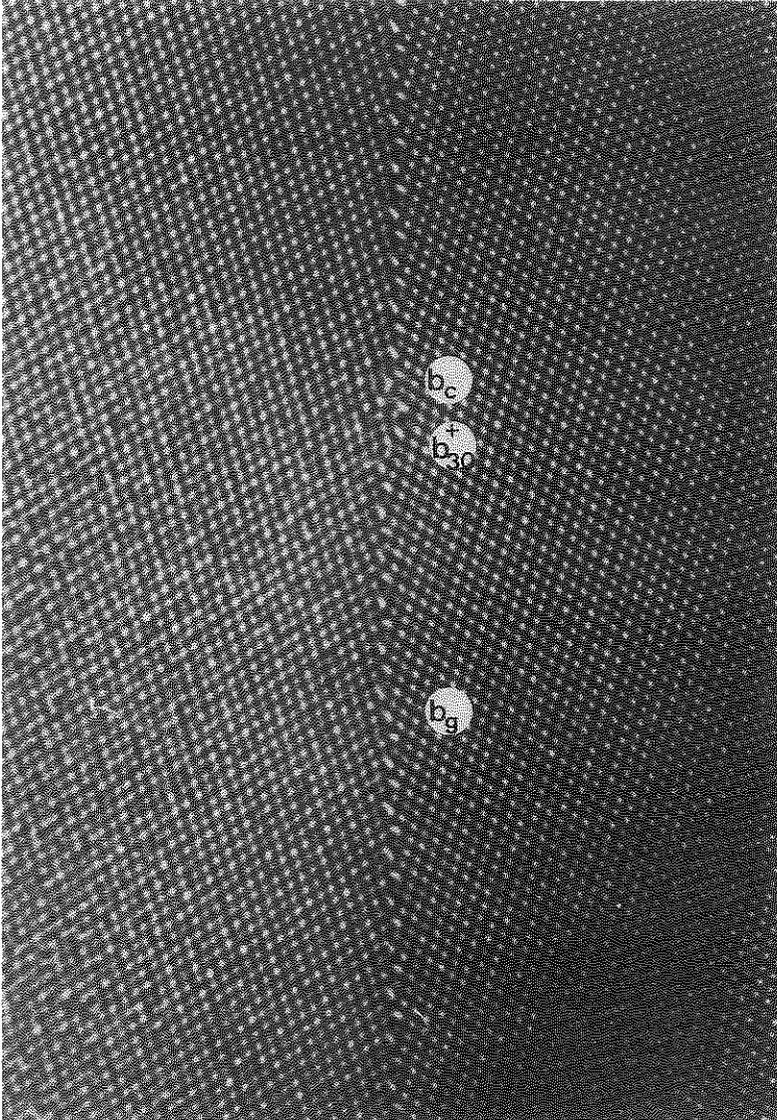


Fig. 22 : Dislocation à 60° complètement intégrée et dissociée dans le joint.

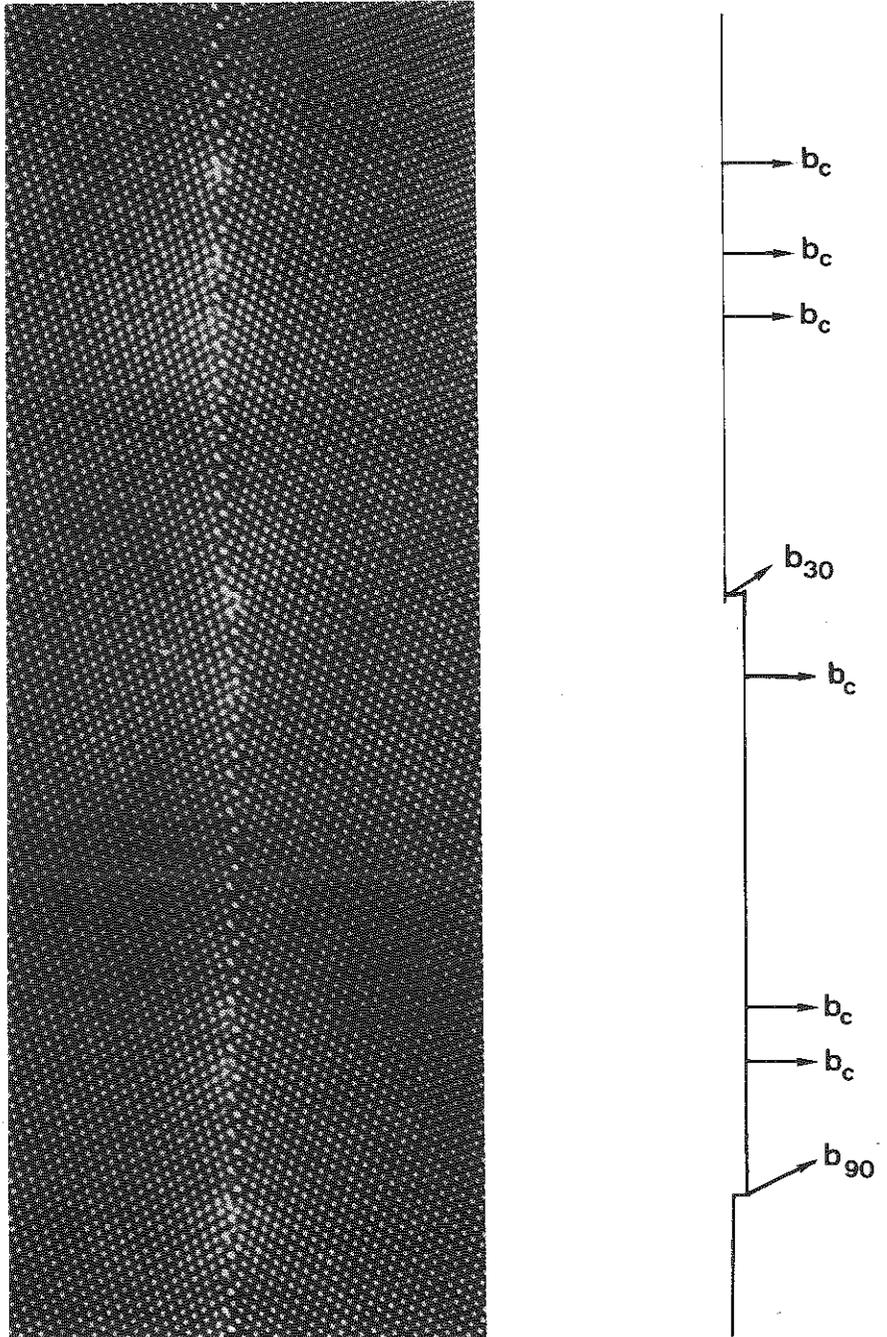


Fig. 23 : Etat du joint $\Sigma=9$ dans Si après déformation. Le joint s'est tapissé de dislocations résiduelles (14).

RAPPELSR1 Notion de fréquence spatiale f

$f = 1/d$ est l'inverse d'une distance, s'exprime en nm^{-1} .

ex. : à la distance de 0,3 nm entre plans atomiques correspond une fréquence spatiale $3,33 \text{ nm}^{-1}$. On dit qu'un objet cristallin s'analyse dans l'espace direct en distances caractéristiques et dans l'espace réciproque en fréquences spatiales caractéristiques correspondantes.

R2 Notion de transformée de Fourier : TF

Cette notion est très importante pour l'analyse en fréquences spatiales d'un cristal. C'est elle qui permet de passer de l'espace direct à l'espace réciproque. Par définition, si le cristal est représenté par la distribution de distances $C(\vec{r})$, il sera représenté dans l'espace réciproque par :

$$\begin{aligned} F(\vec{f}) &= \text{TF}C(\vec{r}) \\ &= \iiint C(\vec{r}) \exp(-2\pi i \vec{f} \cdot \vec{r}) \, d\vec{r} \end{aligned}$$

La transformée inverse sera donnée par :

$$\begin{aligned} C(\vec{r}) &= \text{TF}^{-1}F(\vec{f}) \\ &= \iiint F(\vec{f}) \exp(2\pi i \vec{f} \cdot \vec{r}) \, d\vec{f} \end{aligned}$$

R3 Notion de spectre en fréquences

L'analyse en fréquences d'un objet donne le spectre de l'objet. Il est donné par la transformée de Fourier de l'objet : $F(\vec{f})$.

En général les mesures enregistrent une intensité qui est dite spectre de puissance : $|F(\vec{f})|^2$.

Si le signal est périodique (cas du cristal parfait) le spectre de l'objet est discret et périodique. On n'enregistrera de l'intensité que pour les fréquences spatiales représentées dans l'objet.

Ce spectre en puissance est le signal que l'on enregistre lorsque l'on fait un diagramme de diffraction. Ceci est valable pour tous les rayonnements (e, n, RX). L'intensité de chaque "tache" dépend du cristal mais aussi du rayonnement utilisé.

R4 Application à la ME

Objet : signal $C(\vec{r})$ est périodique si le cristal est sans défaut.

Spectre : Transformée de Fourier de $C(\vec{r})$, c'est le diagramme de diffraction formé de points intenses sur l'écran.

La tache centrale correspond (pour des objets minces) aux électrons qui n'ont pas "vu" l'objet c'est à dire qui n'ont pas été diffusés par les plans atomiques. Les autres taches correspondent aux électrons qui ont été diffractés par des plans atomiques de distance d_{hkl} . Plus les électrons ont été diffusés par des plans (hkl) serrés, plus la tache correspondante est éloignée du centre (tache 000). C'est la loi de Bragg.

$$\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta_B$$

Pour les électrons θ_B est très petit alors $\lambda = d_{hkl}(2\theta_B)$ où $\theta = 2\theta_B$ est l'angle de diffusion : ce qui se traduit, en utilisant la notion de

fréquence spatiale, par

$$\theta = \lambda f_{hkl} = \frac{\lambda}{d_{hkl}}$$

Si le cristal a des défauts donc n'est plus périodique, les électrons seront diffusés par ce défaut dans des directions qui ne seront pas exactement les fréquences du cristal parfait. On a alors de la diffusion "diffuse".

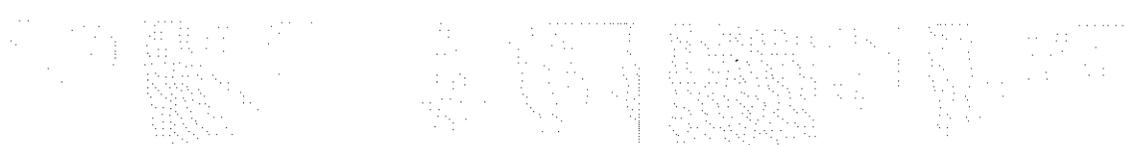
BIBLIOGRAPHIE

- [1] J. SPENCE, "Experimental High Resolution Electron Microscopy" (1980) Oxford Science Pub. - New York
- [2] Microscopie Electronique en Sciences des Matériaux - (1981) Bombannes, Edition du CNRS
- [3] R.H. WADE, J. FRANK, Optik 49 (1977) 81
- [4] F. ZEMLIN, K. WEISS, P. SCHISKE, W. KUNATH, K; HERMANN, Ultramicroscopy 3 (1978) 49
- [5] D. SMITH, W. SAXTON, M. O'KEEFE, G. WOODS, W. STOBBS, Ultramicroscopy 11 (1983) 263
- [6] GLAESER, Ultrastructure Research 36 (1971) 466
- [7] N. MORIMOTO, K. KOTO, Zeitschrift fur Kristallographie 129 (1969) 65
- [8] Direct Imaging of Atoms in Crystals and Molecules, Chem. Script 14 (1978)
- [9] A. BOURRET, J. DESSEAUX, Phil. Mag. A39 (1979) 419
- [10] A. BOURRET, C. d'ANTERROCHES, J.M. PENISSON, Jour. de Phys. C6 (1982) 83
- [11] Y. ISHIDA, H. ICHINOSE, First Chinese Japanese Electron Microscopy Seminar (1981) p. 36
- [12] RUHLE, J. de Phys. C6 (1982) 116
- [13] S.I. IJIMA, BUSEK, Acta Cryst. A34 (1978) 709
- [14] M. ELKAJBAJI, J. THIBAUT-DESSEAUX, A. BOURRET, 11ème Congrès Int. Microscopie Electronique - Kyoto Sept. 1986

CHAPITRE XI

EXEMPLES D'APPLICATIONS DE LA
MICROSCOPIE ELECTRONIQUE EN
HAUTE RESOLUTION

par Michel RAUTUREAU



Exemples d'applications de la microscopie électronique en haute résolution

Michel Rautureau

Le but de la microscopie électronique à haute résolution est de mettre en évidence des détails à l'échelle de la maille et du modèle cristallins. Deux niveaux sont à distinguer suivant que l'on désire obtenir des informations à l'intérieur de la maille (c'est-à-dire la disposition des atomes du motif cristallin) ou, sur l'assemblage des mailles entre elles et sur le cristal dans son ensemble lorsque le motif est complexe. Il est bien évident que toute étude en microscopie électronique ne fait intervenir que de très petits volumes et qu'une étude critique est toujours nécessaire avant d'extrapoler les résultats sur un volume macroscopique. Ainsi, la microscopie électronique en haute résolution doit être considérée comme une étape pour laquelle il faut posséder de nombreuses informations assurant une connaissance préalable du matériau étudié. Il faut de plus, se méfier des nombreux artefacts qui peuvent provenir aussi bien de l'appareil que de l'objet lui-même.

Nous allons reprendre ces différents points en les illustrant et en essayant de montrer quelles sont les difficultés à surmonter. Ceci ne devra pas faire oublier que, en microscopie électronique, la préparation des objets reste une des étapes décisives pour se trouver dans de bonnes conditions d'observations.

Haute-Résolution ou Recherche d'une Bonne Définition .

Nous ne ferons que rappeler ici quelques notions générales qui sont nécessaires pour éviter de rechercher des détails là où ils ne sont pas accessibles.

Objet. Les objets (très souvent cristallins pour les cas dont nous traiterons ici) sont constitués par une ossature de base, en quelque sorte un squelette bâti sur le réseau. Sur les mailles de ce réseau se placent les éléments de la structure constitués par le motif.

Ces deux notions ne sont pas séparables pour définir l'objet. Par ailleurs, une autre notion indispensable est celle de l'ordre à courte et à longue distance. Ainsi, les cristaux peuvent être bien ou mal cristallisés soit au sens de la maille, soit au sens du réseau ou des deux à la fois. Ils sont également limités dans l'espace.

Une autre donnée importante est celle de la tenue de l'objet soumis à un faisceau d'électrons. Pratiquement il y a toujours évolution sous le faisceau et plusieurs cas sont possibles.

- bonne tenue sous le faisceau,
- amorphisation du réseau cristallin,
- destruction du matériau par pulvérisation,
- restructuration et cristallisation partielle : c'est par exemple la graphitisation d'une membrane support de carbone lorsqu'elle est soumise à un faisceau d'électrons fortement accélérés. On peut suivre sur l'écran l'évolution du grain de la membrane.

En général, il y a intérêt à venir progressivement à la haute résolution en faisant connaissance avec l'objet de deux façons :

- sur le plan morphologique grâce à des images à faible grandissement.
- cristallographiquement en observant en particulier le diagramme de microdiffraction.

En effet, la théorie de la formation de l'image montre (cours de J. Thibault-Desseaux) que lors du transfert des ondes qui émergent du cristal, un des niveaux très important dans le système optique du microscope est le plan focal de l'objectif. On y trouve localisée dans l'espace la transformée de Fourier de la projection du potentiel électrique de l'objet sur un plan perpendiculaire au faisceau.

Ainsi nous observons dans le plan focal image de l'objectif de nombreuses informations qui font intervenir notamment (ainsi que cela a été montré dans le cours de M. Boudeulle) :

- la diffusion par chaque atome,
- une fonction de modulation due à la symétrie du réseau,
- une fonction de modulation due à l'organisation des atomes, répondant à la symétrie interne de la maille (facteur de structure),
- une fonction de forme du cristal provenant de sa limitation dans l'espace (facteur de forme),
- toutes sortes de défauts de l'objet (par rapport à son modèle idéal).

Il faut faire une place spéciale à l'influence de la dimension de l'objet parallèlement au faisceau. En effet, un objet épais autorise des interactions

électrons-matière plus nombreuses et impose progressivement le traitement de la formation de l'image dans le cadre d'une théorie dynamique (cours de A. Gervais). Nous resterons volontairement dans la limite de l'interprétation cinématique, ce qui impose le choix d'objets de faible épaisseur. Toutefois, il y a là une limitation des possibilités expérimentales puisque, en dehors d'objets naturellement peu épais tels que les poudres, le graphite ou les phyllites, il est nécessaire d'employer une mise en forme de l'objet, soit par amincissement électrolytique ou ionique, soit par coupes ultramicrotomiques. Ces techniques de préparation peuvent agir sur la définition de l'objet.

Le Microscope.

Il convient de rappeler ici que ce qui caractérise les limites du microscope est son pouvoir de résolution entre points. Ceci étant admis, grandir une image deux fois plus ne change rien au problème dès lors que la résolution limite est atteinte, dans les conditions d'observation. On peut même, par l'usage d'un grandissement trop fort, perdre des informations (cas des surstructures à longue période par exemple).

Le grandissement de travail doit être adapté au système de détection qui restitue l'image à l'opérateur. Ainsi, on définit un échantillonnage de l'image par une unité d'image ou "pixel" dont la définition est liée au système de restitution:

- grain de la pellicule,
- grain de l'écran fluorescent,
- bâtonnet de la rétine de l'oeil de l'observateur,
- trame du tube de la caméra de détection,
- trame de balayage de l'écran d'observation,
- etc...

Un autre problème important est celui de la sensibilité des détecteurs, il est intimement lié au bruit de fond des signaux. Nous décrirons plus loin une méthode développée à l'origine pour distinguer l'influence du bruit sur l'image par filtrage optique.

L'influence des aberrations de l'optique est exposée en détail par ailleurs. Nous n'apporterons ici que des précisions concernant le moyen le plus immédiat pour y remédier : la limitation du champ par un diaphragme de contraste.

Il est nécessaire de connaître avec précision l'angle de diffusion à partir duquel se fait la coupure imposée par le diaphragme. Pour étalonner cet angle de coupure, il suffit de superposer sur le même cliché le diagramme de diffraction d'un cristal bien connu et du diaphragme de contraste utilisé (ou éventuellement de plusieurs

diaphragmes). L'ombre du diaphragme de contraste est obtenue, en l'introduisant tout en restant en conditions de diffraction. La figure 1 présente le résultat obtenu avec des diaphragmes de 20 et 40 micromètres (repérés respectivement par les lettres A et B sur le cliché; ce dernier a été renforcé par un trait interrompu). Le cristal est du kaolin (1) pour lequel les six réflexions les plus proches du centre, du type 02 et 11 correspondent à des paramètres voisins de 4,47 Å et 4,35 Å. On constate que la réflexion 13 est juste tangente à l'image du diaphragme de 40 micromètres; qu'elle correspond à un espace réticulaire $d_{13} = 2,56$ Å. On ne pourra, en utilisant ce diaphragme de contraste voir des objets dont les distances sont plus petites que 2,56 Å car, l'essentiel de leurs contributions est stoppé par le diaphragme.

Ainsi, il est possible de choisir le diamètre du diaphragme de contraste pour ne laisser passer que des réflexions sélectionnées. Prenons l'exemple de la sépiolite qui est un phyllosilicate 2:1 magnésien dont les caractéristiques sont les suivantes:

$$a = 13,4 \text{ \AA} \quad b = 26,8 \text{ \AA} \quad c = 5,28 \text{ \AA} \text{ (axe de fibre)}$$

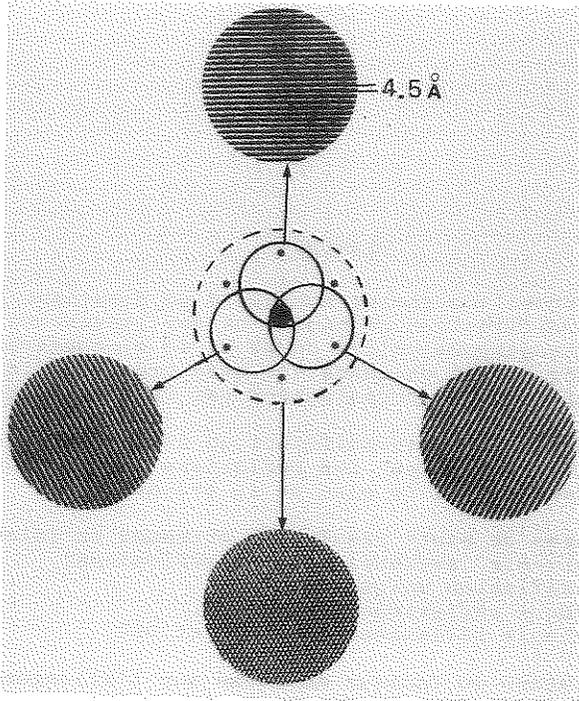
Groupe de symétrie D_{2h}^6, P_{ncc}

Le diagramme de diffraction est montré sur la figure 2.

Si on utilise successivement des diaphragmes laissant passer les réflexions 020,040 puis 060, on obtient les trois images de la figure 3 où l'on voit apparaître des franges parallèles à l'axe de fibre et dont la composition donne progressivement à l'image un rapport avec la structure du cristal.

Illustration de la formation de l'image dans plusieurs directions.

Nous illustrons ci-dessous le mécanisme de la formation de l'image par recombinaison d'interférences à trois directions. Les clichés ont été obtenus sur de la pyrophyllite qui est un mica à 10 Å (1,2) observée perpendiculairement aux plans des feuillets. Les trois systèmes de franges présentés correspondent aux interférences de la réflexion centrale 0,0 avec respectivement les réflexions 02, 11 et $\bar{1}\bar{1}$. Le regroupement de ces trois interférences amène à la figure dont la symétrie est hexagonale du fait du caractère pseudo-hexagonal ($b = a\sqrt{3}$) des cristallites. Dans le cas présent, le problème de l'épaisseur est résolu très simplement en choisissant un microcristal ne présentant que quelques feuillets, nous ne pouvons préciser ici le nombre exact de ces feuillets.



Influence des dimensions de l'objet.

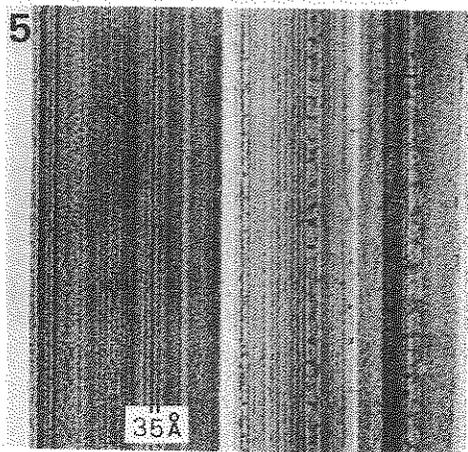
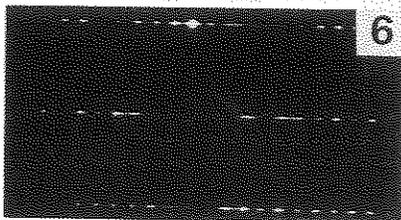
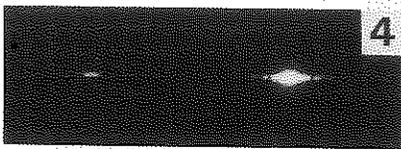
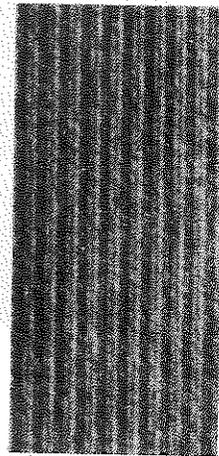
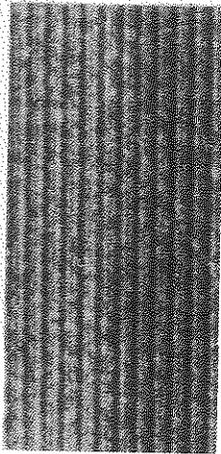
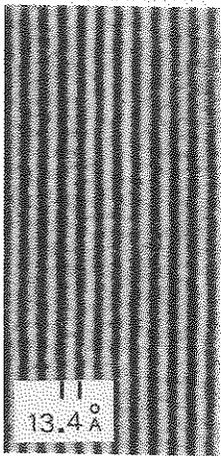
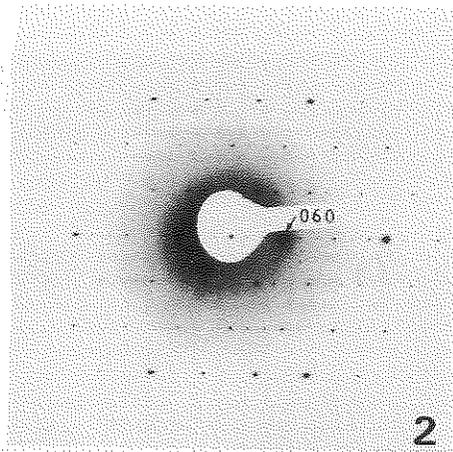
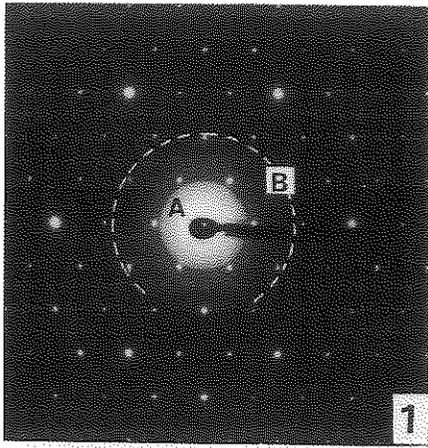
Il a été montré que la limitation des cristaux amène à introduire un facteur de forme (voir cours de M. Boudeulle). Ce facteur de forme se retrouve naturellement sur le diagramme de microdiffraction électronique et peut apporter au niveau de la haute-résolution des perturbations importantes. Prenons un exemple où ce facteur de forme est important : il s'agit encore de la sépiolite dont les fibres ont une longueur qui peut être considérée comme infinie devant les dimensions de leurs sections droites; ces sections droites peuvent par ailleurs être composées de nombreuses facettes. Dans ce cas les réflexions de Bragg s'accompagnent de satellites visibles sur la figure 4. Le résultat est présenté sur la figure 5. On remarque sur cette figure que les franges observées n'ont rien à voir avec les franges de haute résolution de réseau et qu'elles se situent très souvent à une distance supérieure à celle du paramètre de maille. Il ne faut pas non plus les confondre avec des figures de moirés dues à la superposition de deux structures périodiques et dont la périodicité de moiré est à une distance supérieure à la période des structures mises en jeu.

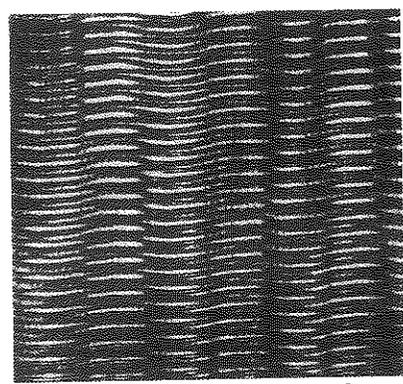
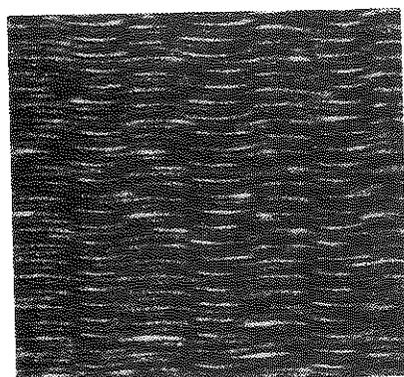
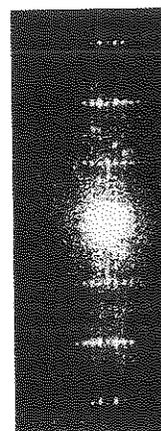
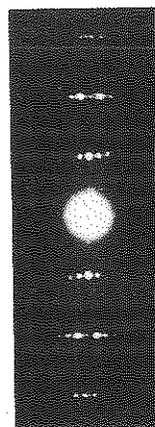
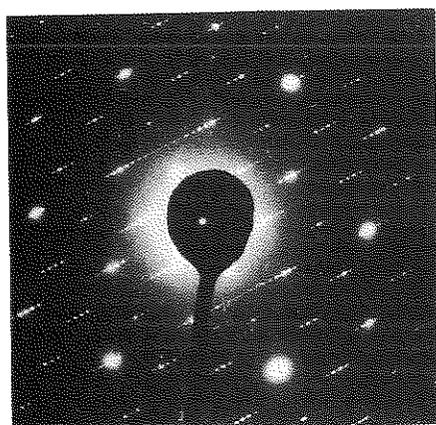
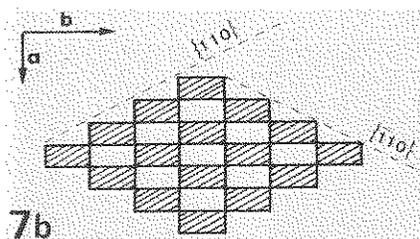
PLANCHE I

- Figure 1. Superposition photographique d'un diagramme de microdiffraction de kaolin et des images des diaphragmes objectifs de 20 et 40 micromètres. Ce cliché permet de connaître avec précision la coupure des fréquences occasionnées par le diaphragme.
- Figure 2. Diaphragme de microdiffraction d'une fibre de sépiolite montrant les réflexions $0kl$ (axe de fibre suivant C dans le plan de la préparation).
- Figure 3. Franges de haute résolution obtenues en faisant intervenir successivement 3 réflexions:
 a - Réflexion unique 020.
 b - Deux réflexions 020 et 040.
 c - Trois réflexions 020, 040 et 060.
- Figure 4. Influence du facteur de forme sur l'allongement des réflexions dans le cas de la sépiolite.
- Figure 5. Franges dues à l'existence de facettes. Ces franges, dont l'équidistance est supérieure à celles des différentes familles de plans réticulaires, ne doivent pas être confondues avec ceux-ci.
- Figure 6. Allongement allant presque jusqu'à la continuité dans le cas d'une microfibre de sépiolite.

PLANCHE II

- Figure 7. a, b. Section droite d'un nanocristal d'écume de mer (sépiolite).
- Figure 8. a - Microdiffraction de l'antigorite: réflexions $hk0$, le microcristal étant posé sur la membrane support.
 b, c - Antigorite: microdiffraction sur une section perpendiculaire aux plans des feuillets et diffractogramme optique correspondant.
- Figure 9. Haute résolution correspondant au diagramme 8b.
- Figure 10. Image filtrée en ne laissant passer que les réflexions de Bragg.



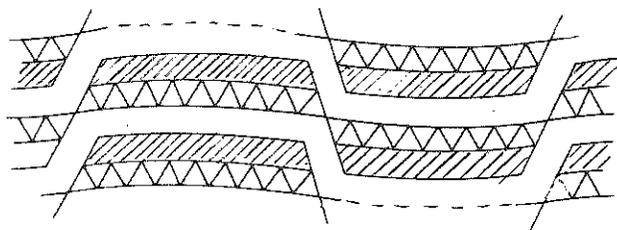


A la limite, pour des dimensions très réduites du domaine cristallin cohérent, on obtient un élargissement des réflexions qui peut aller jusqu'à la continuité sur les rangées du réseau réciproque perpendiculaires à la plus petite dimension du cristal. C'est le cas qui est montré sur la figure 6; il est alors délicat, voir impossible, de réaliser des clichés de haute ou de très haute résolution et seules des franges correspondant au réseau, c'est-à-dire à la distance paramétrique sont envisageables et avec un faible contraste. Le cristal montré sur la figure 7 est à placer dans ce cas. Il s'agit d'un nano-cristal de sépiolite d'Eskicheir (écume de mer), observé parallèlement à l'axe de fibre après une coupe ultramicrotomique (3). Dans ce cas le nombre des périodes dans chaque direction est réduit à l'extrême puisqu'il n'y a plus que deux mailles complètes alors que l'extension du cristal couvre au sens pondéral huit mailles ainsi que le montre le schéma 7b. Un tel exemple est un cas extrême d'application de la haute résolution de réseau.

Influence d'une modulation de la structure.

Ce cas est différent du précédent, cependant il donne sur le diagramme de microdiffraction un aspect qui peut parfois prêter à confusion avec le cas précédent.

Prenons le cas de l'antigorite (1, 2) qui est un minéral phylliteux de la famille $Te-Oc$ donc à 7 Å de distance interfoliaire. Ce minéral présente des oscillations des feuillettes (analogues au profil à une tôle ondulée) dues simultanément à une courbure et à un retournement de la structure autour d'un oxygène de base de tétraèdre suivant le schéma ci-dessous d'après KUNZE (4):



Le diagramme de diffraction sur une particule dont les plans sont perpendiculaires au faisceau d'électrons est donné sur la figure 8. Il présente des satellites autour des réflexions principales. La figure 9 correspond à l'image haute résolution des feuillettes de l'antigorite vus sur champ et observés parallèlement à la

direction des ondulations), elle met bien en évidence ces ondulations. Le cliché, filtré sur un banc optique suivant la technique exposée plus loin, peut être nettoyé du bruit de fond, on obtient alors la figure 10 sur laquelle nous reviendrons plus loin. Sur ce sujet on consultera de très belles images fournies par Yada (5.6)

Etude de minéraux à structure tubulaire ou sphérique.

La haute résolution permet de visualiser des structures très compliquées. Nous prendrons comme premier exemple le chrysotile qui est formé par un feuillet Te-Oc , donc à 7 \AA , présentant la particularité d'être enroulé de façon à former un tube (1.5). Une vue parallèle à l'axe de fibre met en évidence ces feuillets enroulés avec toutes les variantes possibles (6,7,8).

La figure 11 montre la section droite d'un de ces tubes.

Un autre minéral tubulaire est l'halloysite. Il présente, pour la haute résolution, la difficulté supplémentaire d'être formé de feuillets enroulés de façon très irrégulière. La figure 12 montre le résultat obtenu après avoir coupé ce minéral à l'aide d'un ultramicrotome (9).

Irrégularité de structure par substitutions d'ions.

L'introduction de substitutions dans la structure peut conduire à une organisation des sites concernés et en conséquence à celle des ions compensateurs. C'est le cas de différentes phyllites comme l'ont montré Gatineau (10) ou Besson (11).

L'étude du mécanisme n'est pas simple car il implique la nature et la position des substitutions dans l'espace interfoliaire, qui dépendent de la position et de la valeur de la charge des feuillets. En microscopie électronique l'effet est constaté sur les diagrammes de microdiffraction électronique réalisés avec un faisceau d'électrons perpendiculaire aux plans des feuillets.

La figure 13 (*) montre le diagramme de microdiffraction électronique de feuillets d'une Beidellite Ba (11), il n'y a pas d'ordre dans la disposition des cations compensateurs, seules des trainées de diffusion diffuse sont visibles entre les réflexions de Bragg.

La figure 14(*) illustre l'évolution des diffusions dans le cas d'une vermiculite baryum (11). On doit y remarquer le réseau en "nids d'abeilles" qui entoure les réflexions de Bragg

* Les figures 13 et 14 ont été obtenues par G. Besson, Université d'Orléans

Les figures 15 et 16 présentent la haute résolution obtenue dans des cas similaires sur un mica de faible charge et sur la margarite et l'influence de la diffusion en "nids d'abeilles" se répercute sur le contraste des interférences de la figure 16.

A titre de simulation d'image, nous avons utilisé lors des cours de cette école une visualisation des moirés résultants de la superposition de deux réseaux hexagonaux de points.

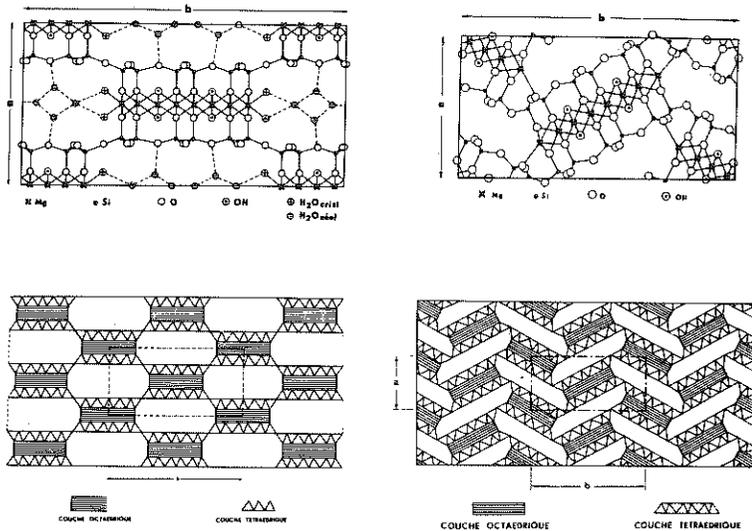
Evolution structurale.

La haute résolution peut être appliquée pour suivre une évolution de la structure d'un minéral.

a.- Transformation topotactique :

La sépiolite se transforme, aux environs de 450° C à la pression atmosphérique ou à 300° C sous vide, en sépiolite anhydre qui est un état intermédiaire instable (12).

Les schémas structuraux sont donnés ci-dessous.



L'emploi de la haute résolution permet de visualiser les deux types de structures. La figure 17 révèle en plus que ces deux phases peuvent momentanément cohabiter au sein d'un même cristallite prouvant ainsi qu'il y a évolution progressive.

PLANCHE III

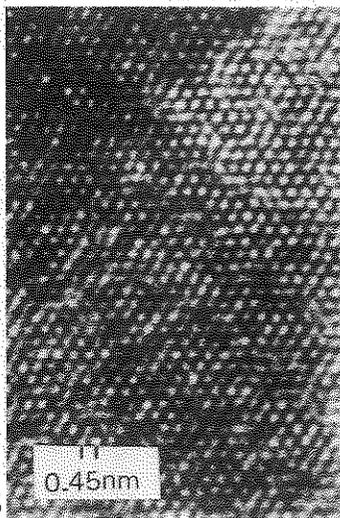
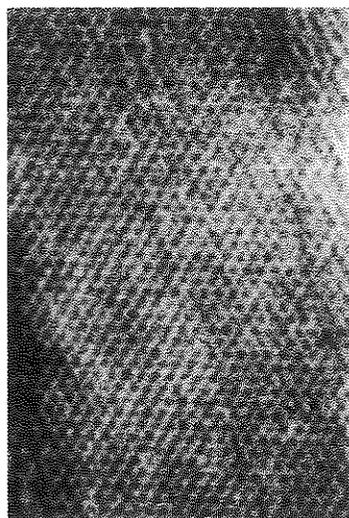
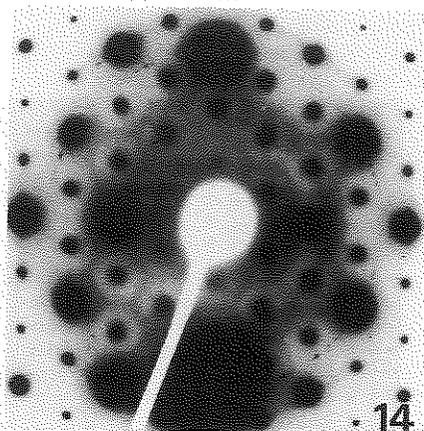
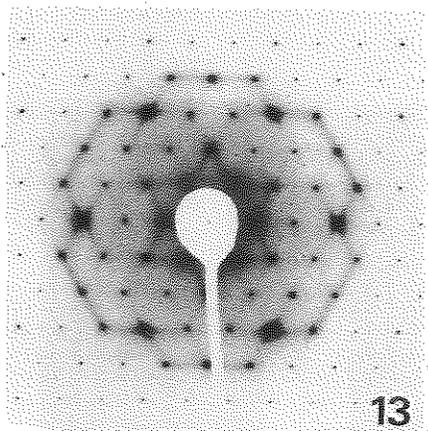
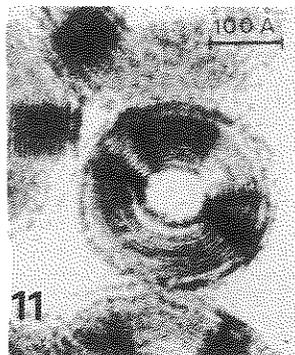
- Figure 11. Section droite d'une fibre de chrysotile.
- Figure 12. Section droite d'une particule d'halloysite.
- Figure 13. Microdiffraction obtenue sur une Beidellite-Ba (cliché G. Besson, Orléans).
- Figure 14. Microdiffraction dans le cas d'une Vermiculite-Ba (cliché G. Besson, Orléans).
- Figure 15. Haute résolution sur un mica de faible charge (les feuillets sont posés sur la membrane support).
- Figure 16. Haute résolution sur la margarite dans les mêmes conditions que la figure 15.

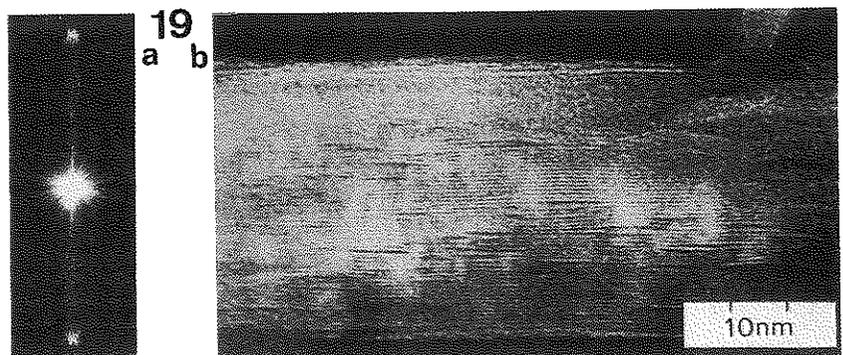
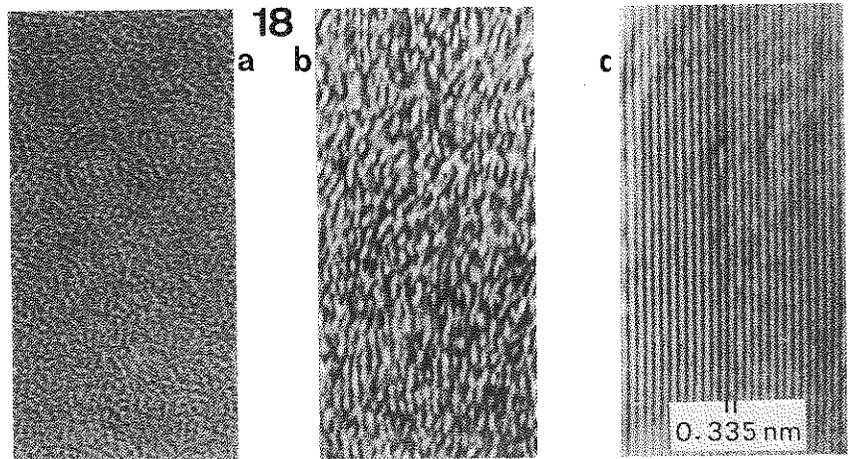
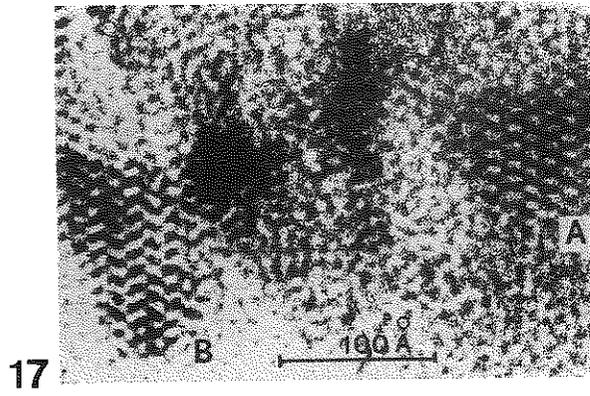
PLANCHES IV

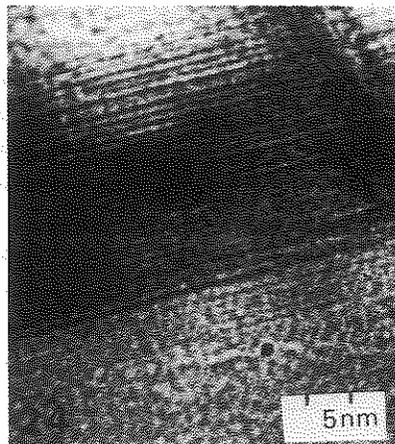
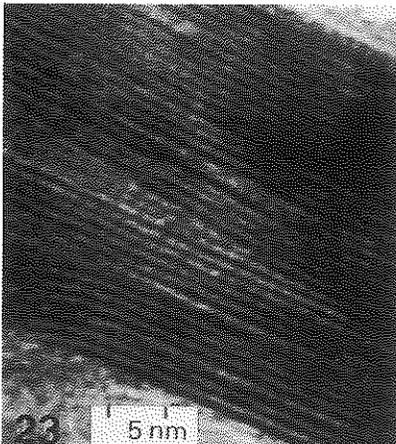
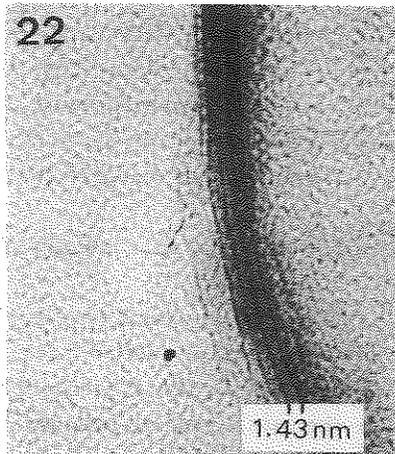
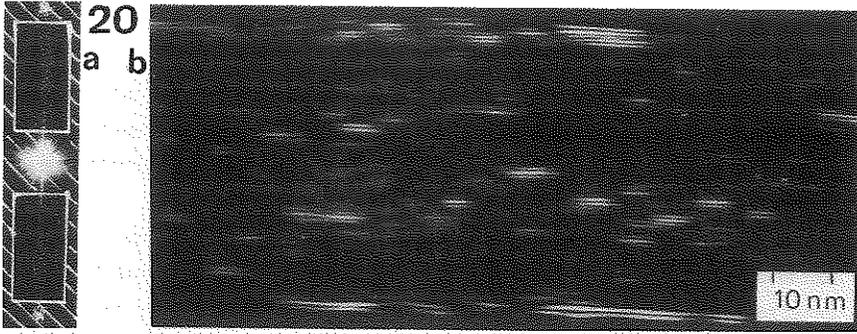
- Figure 17. Transformation topotactique de la sépiolite (vue en section droite) par chauffage à 450°C sous vide.
- Figure 18. a,b,c. Graphitisation progressive d'un carbone amorphe (cliché J.N Rouzeaux, Orléans).
- Figure 19. a - Microdiffraction obtenue sur une coupe d'un monocristal de kaolinite.
b - Haute résolution laissant entrevoir des zones de défauts lenticulaires.

PLANCHE V

- Figure 20. a, b. Filtrage optique correspondant aux figures 19 a et b.
- Figures 21 à 24. Haute résolution obtenue sur des minéraux phylliteux interstratifiés. Ces clichés ont été réalisés pendant la session de cette école sur un microscope Philips CE 10 équipé d'un système d'acquisition Quantel Crystal.







b. - Graphitisation du carbone.

Les membranes supports de carbone sont constituées de carbone amorphe dont l'aspect est bien connu en microscopie électronique puisque c'est le grain du carbone que l'on utilise le plus souvent pour corriger à fort grossissement l'astigmatisme de l'objectif.

Ces membranes évoluent avec le temps soit par vieillissement, soit par chauffage, soit encore encore sous le faisceau d'électrons. A 200 kV, l'énergie transférée à la membrane est déjà suffisante pour justifier une graphitisation partielle du carbone. Cette évolution se suit très bien sur un diffractogramme optique réalisé sur les images. Enfin à très haute température on passe à la phase totalement graphitée.

Le figure 18 illustre les trois cas:

- carbone amorphe d'une membrane support : figure 18a.
- graphitisation commençante : figure 18b, (13).
- graphitisation totale: figure 18c, (13).

Les clichés 18 a,b et c ont été obtenus par J.N. Rouzard à Orléans.

Exploitation des clichés haute résolution.

Nous avons vu, dans le cours de J. Thibault Dessaux, quelles sont les précautions à prendre lors de l'interprétation d'un cliché de haute résolution. Nous entendons par là une haute résolution à l'échelle intérieure à la maille qui est typiquement le cas de la résolution à l'échelle atomique. Il importe de savoir quel est le contraste du cliché, c'est-à-dire si les atomes seront représentés en noir ou en blanc. Pour cela il faut connaître le C_s , coefficient d'aberration de sphéricité de l'appareil et le niveau de focalisation précis lors de la prise de vue.

Lorsque la résolution est moins poussée, par exemple avec les silicates lamellaires, si on désire observer les plans des feuillets ou les couches octaédriques et tétraédriques, il reste néanmoins toujours utile de connaître ces paramètres. Dans les deux cas, il faut réaliser une étude du diffractogramme optique des clichés.

Lors de l'étude sur le banc optique, d'autres importantes interventions peuvent être réalisées, citons entre autres :

- 1.- Etude du groupe de symétrie plane de la composante périodique du cliché.
- 2.- Estimation du bruit de fond du cliché.
- 3.- Filtrage optique du bruit de fond.
- 4.- Etude des défauts sur le diffractogramme.
- 5.- Filtrage optique des défauts.

Nous donnerons un exemple des points 3 et 5.

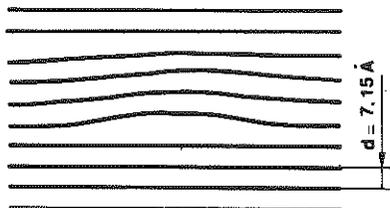
1.-Filtrage optique du bruit de fond.

Le travail a été réalisé sur un cliché en haute résolution d'antigorite observée parallèlement aux feuillets et à leur direction de déformation (figure 9), dont le diagramme de microdiffraction électronique est donné sur la figure 8 b et le diffractogramme optique correspondant sur la figure 8 c.

Le bruit de fond peut être pratiquement éliminé en fabriquant un masque qui ne laisse passer que les réflexions et arrête les rayons provenant essentiellement d'une diffusion incohérente due au bruit de l'appareil et au grain du négatif utilisé. Après reconstitution de l'image, il reste la partie périodique (figure 10) qui comporte une information très améliorée par rapport au modèle et que l'on comparera à la figure 9 sur laquelle l'image n'est pas traitée.

2.-Filtrage optique des défauts. (14).

Nous donnerons un premier exemple obtenu sur un kaolin, silicate d'aluminium phylliteux dont la distance interfoliaire est égale à $7,37 \text{ \AA}$. Les clichés de haute résolution (figure 19b) laissent entrevoir des anomalies lenticulaires (schématisées ci-dessous). Pour obtenir ce cliché nous avons utilisé les réflexions (000) , (001) et $(00\bar{1})$ présentées sur la figure 19.



Un filtrage utilisant uniquement les intensités diffusées entre les réflexions de Bragg (figure 20 a) met en évidence les zones des défauts (figure 20 b).

Ces méthodes de traitement d'image ne peuvent être abordées sans analyse critique du problème traité, en effet il est possible de créer des artefacts.

3 - Filtrage du bruit par traitement "en ligne" de l'image.

Il est possible de réaliser un traitement dès l'acquisition de l'image lorsque celle-ci est obtenue par un système de caméra donnant accès directement à un échantillonnage. De nombreuses méthodes de filtrage ont été utilisées, elles concernent :

- le filtrage temporel au cours duquel on réalise des accumulations d'images permettant d'apprécier les variations du bruit et d'en tenir compte dans la restitution de l'image.
- le filtrage spatial qui permet d'améliorer le contraste des contours.
- correction de contraste afin d'employer toute la gamme des gris.

En outre l'emploi d'une caméra à faible niveau de lumière permet l'utilisation de très faibles doses d'électrons et de diminuer ainsi les dommages d'irradiations subis par l'échantillon.

Nous donnons sur les figures 21 à 24 quatre exemples réalisés au cours de cette école sur un microscope Philips CE 10 équipé d'un système de filtrage Quantel type Crystal . Le niveau de lumière utilisé était tel qu'aucune image n'était exploitable directement sur l'écran du microscope ce qui nous a permis de très longues observations sur des phyllosilicates en coupes (relativement fragiles sous le faisceau d'électrons) . Il s'agit d'un interstratifié localement régulier (figure 21), d'une chlorite (figure 22) et d'un interstratifié irrégulier (figures 23 et 24) .

Signalons pour terminer que cette possibilité d'intervention sur l'image est accessible directement sur les Microscopes STEM puisque le système d'acquisition permet d'inclure tous les traitements et mixages de signaux utiles.

- (1) S.CAILLÈRE, S. HENIN et M. RAUTUREAU
Minéralogie des argiles, 1962, Edition Masson.
- (2) G.W. BRINDLEY and G. BROWN
Crystal Structures of Clay Minerals and their X-Ray Identification, 1980,
Mineralogical Society, 2nd, London.
- (4) G. KUNZE
"Die gewelte struktur des Antigorits",
I.Z. Krist. 108, p. 82-87, 1956

- (5) K. YADA, T. TANJI and H.U. NISSEN,
Direct Observation of Antigorite at Atomic Resolution,
Fourth Intern. Conference on Asbestos, Torino, p. 347-357, 1980.
- (6) K. YADA
Microstructure of Chrysotile and Antigorite by High Resolution Electron
Microscopy,
Canadian Mineralogist, 17, p. 679-691, 1979.
- (7) K. YADA,
Comparative Study of Microstructure of Chrysotile Asbestos by High
Resolution Electromicroscopy,
Bull. of the Research Institute for Scientific Measurements, Tohoku
University, 19, Vol.2-3, p. 149-165, 1971.
- (8) K. YADA and T. TANJI
Direct Observation of Chrysotile at Atomic Resolution,
Fourth Intern. Conference on Asbestos, Torino, p. 335-346, 1980.
- (9) C. TCHOUBAR, M. RAUTUREAU, C. CLINARD et J.P. RAGOT
Technique d'inclusion appliquée à l'étude des silicates lamellaires et
fibreux,
J. Microsc. Elect., 18, n° 2, p. 147-154, 1973.
- (10) L. GATINEAU,
Structure réelle de la Muscovite, répartition des substitutions isomorphes,
Thèse, Serie A, N° 4307, Paris, 1964.
- (11) G. BESSON, A. MIFSUD, C. TCHOUBAR and J. MERING,
Order and Disorder relations in the Distribution of the Substitution in
Smectites, Illites and Vermiculites,
Clay and Clay Minerals, 22, p. 379-384, 1974.
- (12) M. RAUTUREAU et A. MIFSUD,
Etude des différents états d'hydratation de la Sépiolite,
Clay Miner., 12, p. 309-318, 1977.
- (13) J.N. ROUZAUD
" Relation entre la microtexture et les propriétés des matériaux carbonés.
Application à la caractérisation des charbons".
Thèse, Université d'Orléans, 1984.
- (14) C. COLLIEUX, J.M. GAITE, C. MORY, M. RAUTUREAU et C. TCHOUBAR,
"Optical Filtering of Faulted Areas in Electron Micrographs of Layer
Silicates".
J. Microsc. et Spectroscopie Electroniques, 5, p. 33-40, 1980.

CHAPITRE XII

LE MICROSCOPE ELECTRONIQUE A
BALAYAGE EN TRANSMISSION.
PRINCIPE ET APPLICATIONS

par Jean Claude VAN DUYSSEN

LE MICROSCOPE ELECTRONIQUE A BALAYAGE EN TRANSMISSION

PRINCIPE ET APPLICATIONS

J.C. VAN DUYSSEN

1 - INTRODUCTION

Ce chapitre est destiné à présenter les principes généraux ainsi que les principales applications du microscope électronique en transmission à balayage communément appelé STEM*. L'aspect théorique du fonctionnement de cet appareil et de l'interprétation des contrastes observés sur les images pourra être trouvé dans de nombreux ouvrages de référence [1] [2].

Il existe actuellement des STEM purs ("dedicated STEM") qui sont en général des appareils très performants mais cependant encore très peu répandus. Par contre, de nombreux microscopes électroniques en transmission conventionnels (CTEM)* sont maintenant équipés d'un accessoire de balayage et peuvent être utilisés en mode STEM. Ce chapitre ne sera consacré qu'à ces derniers. Toutefois, les performances, pour une source électronique identique, ainsi que les principes généraux de ces deux types d'appareils sont tout à fait comparables.

Une première partie sera consacrée au principe de fonctionnement de l'appareil et à la formation de l'image à partir d'électrons transmis ou diffractés. Nous décrirons en particulier le système d'éclairage qui permet l'obtention de la sonde et nous préciserons le trajet des électrons dans la colonne du microscope. Cette description est relativement générale et ne peut évidemment rendre compte en détail de tous les systèmes proposés par les constructeurs.

* STEM : Scanning Transmission Electron Microscope.
CTEM : Conventional Transmission Electron Microscope.

Dans une seconde partie nous comparerons les images obtenues en modes TEM et STEM. Nous insisterons en particulier sur les avantages et les inconvénients de ce dernier mode.

Enfin, dans la dernière partie nous présenterons le STEM en tant qu'instrument d'analyse. Nous détaillerons la microanalyse X, l'obtention d'images à partir d'électrons rétrodiffusés (contraste de numéro atomique) et la microdiffraction.

2 - PRINCIPE DU STEM : FORMATION D'UNE IMAGE A PARTIR D'ELECTRONS TRANSMIS OU DIFFRACTES

Le principe de base est très simple. Il consiste à former au niveau de l'échantillon une image considérablement réduite, appelée sonde, d'une source électronique de haute brillance. Cette sonde est déplacée sur la surface de l'échantillon à l'aide de bobines défectrices. Simultanément, une partie des électrons transmis ou diffractés est récupérée par un détecteur d'électrons, placé sous l'échantillon, qui fournit un signal proportionnel à l'intensité électronique détectée. Ce signal est ensuite amplifié et utilisé pour former une image point par point sur l'écran cathodique d'un oscilloscope synchronisé avec le système de balayage de la sonde (figure 1).

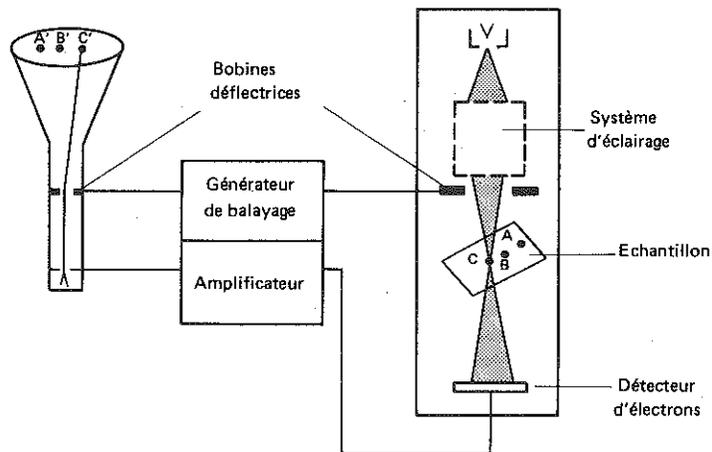


Figure 1 - Schéma de principe du STEM

2.1. - La source électronique

L'obtention en mode STEM d'images ayant une bonne résolution implique l'utilisation d'une sonde de faible diamètre (cf. § 3.3.). Cependant, la réduction de la taille de sonde s'accompagne d'une diminution importante de l'intensité du courant électronique au niveau de l'échantillon et donc au niveau du détecteur. Quand l'intensité détectée est peu importante, le rapport pic sur bruit de fond sur l'écran cathodique est faible ce qui se traduit par une perte d'information sur l'image.

Il est donc nécessaire d'utiliser une source électronique dont la brillance est suffisante pour obtenir simultanément une sonde de faible diamètre et un courant de sonde relativement important. C'est la raison pour laquelle les STEM purs sont systématiquement équipés d'un canon à effet de champ. La brillance de ce dernier, environ 1000 fois supérieure à celle d'un canon dont la cathode est un filament de tungstène, permet d'obtenir des images ayant une résolution de l'ordre de 0,4 nm. Sur les microscopes de type CTEM/STEM récents, on utilise en général un canon à cathode en hexaborure de lanthane (LaB_6) avec lequel on peut obtenir une résolution de l'ordre de 1,5 nm.

2.2. - Système d'éclairage

Sur la plupart des microscopes de type CTEM/STEM récents, l'obtention en mode STEM d'une sonde de faible diamètre sur la surface de l'échantillon est assurée à l'aide de deux lentilles condenseurs (C_1 et C_2) et d'une lentille condenseur objectif (0).

La lentille condenseur-objectif est une lentille dont le taux d'excitation est élevé et pour laquelle l'échantillon est placé au centre du champ magnétique. Dans cette configuration :

- la focalisation du faisceau d'électrons sur la surface de l'échantillon est assurée par le champ magnétique en amont de celui-ci. Ce champ agit comme une lentille condenseur C_3 ("objective lens pre-field") à courte focale qui permet l'obtention d'un faisceau électronique de faible diamètre et de grand angle d'ouverture (figure 2) ;

- le champ magnétique en aval de l'échantillon agit comme une lentille objectif classique O' ("objective lens post-field") (figure 2) ;

- l'échantillon est placé dans un plan qui est à la fois le plan focal image de la lentille C_3 et le plan focal objet de la lentille O' .

Dans le cas d'une lentille condenseur-objectif, tout faisceau d'électrons parallèle qui passe par le point focal objet F_1 de la lentille C_3 converge dans le

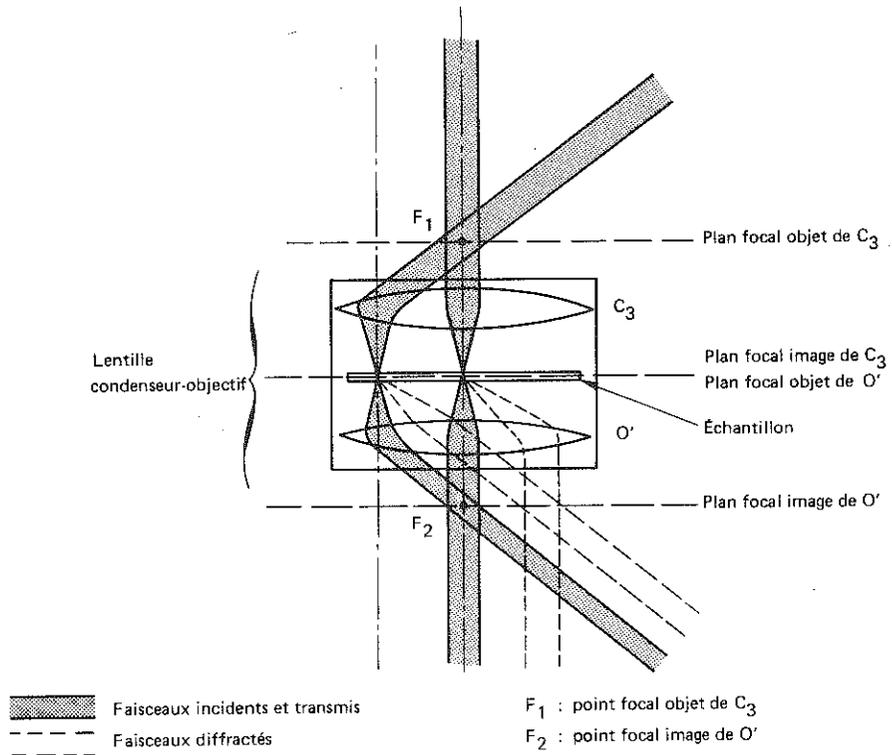


Figure 2 — Lentille condenseur-objectif

plan focal image de cette dernière (c'est-à-dire sur l'échantillon) suivant une direction parallèle à l'axe optique (figure 2). L'échantillon étant placé dans le plan focal objet de la lentille O', les faisceaux transmis et diffractés sont, sous la lentille condenseur-objectif, des faisceaux parallèles dont les intersections avec le plan focal image de la lentille O' sont des disques. La position de ces derniers est indépendante de l'inclinaison par rapport à l'axe optique du faisceau parallèle incident et donc de la position de la sonde sur l'échantillon. Le disque associé aux faisceaux transmis est centré sur le point focal image F₂ de O'.

2.3. - Trajet des électrons dans la colonne d'un STEM

Dans un microscope électronique conventionnel fonctionnant en mode STEM, les lentilles condenseurs C₁ et C₂ sont réglées de façon à obtenir un faisceau d'électrons presque parallèle à l'entrée de la lentille condenseur-objectif. Le diamètre de ce faisceau est déterminé par un diaphragme placé au niveau du condenseur C₂. Le faisceau électronique est ensuite déplacé à l'aide d'un système de bobines

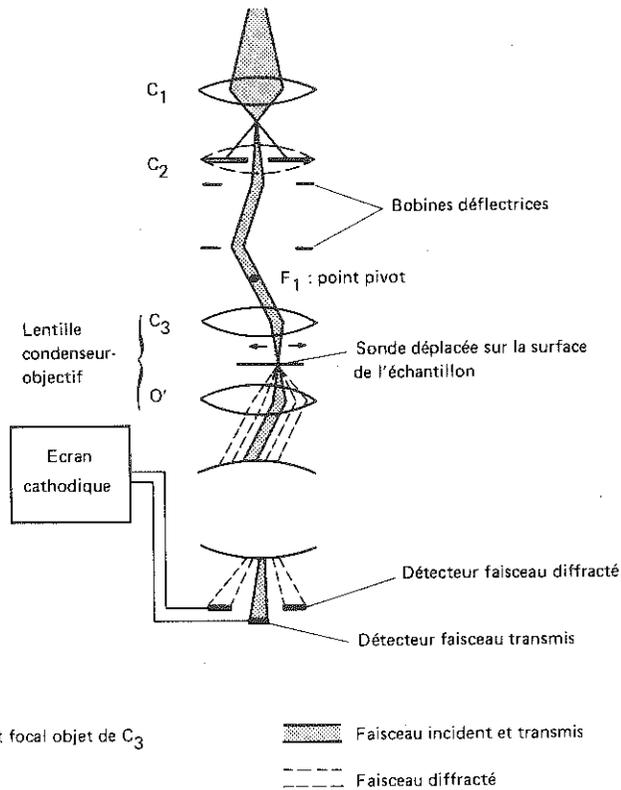


Figure 3 – Utilisation en mode STEM d'un microscope électronique en transmission conventionnel.

défectrices autour d'un point pivot situé en F_1 (point focal objet de la lentille C_3). Il en résulte un balayage d'une zone de l'échantillon par la sonde. Les faisceaux transmis et diffractés constituent alors un diagramme de diffraction stationnaire (constitué de disques) dans le plan focal image de la lentille O' . Ce diagramme est projeté sur l'écran fluorescent à l'aide des lentilles situées sous l'objectif qui sont réglées en mode diffraction (figure 3).

Pour obtenir une image à partir du faisceau transmis (champ clair) ou d'un faisceau diffracté (champ sombre) il suffit de placer un détecteur d'électrons respectivement au niveau de la projection du disque central ou de l'un des disques de diffraction. Alors que le détecteur pour champ clair a la forme d'un disque, le détecteur pour champ sombre est en général de forme annulaire et permet de former une image à partir de plusieurs faisceaux diffractés.

Le grandissement de l'image obtenue en champ clair ou en champ sombre est déterminé par les dimensions de la zone balayée par la sonde sur l'échantillon.

2.4. - Paramètres expérimentaux

De façon à pouvoir comparer des clichés de diffraction ou des images obtenus à l'aide d'un STEM, il est nécessaire de connaître en particulier la valeur de l'angle de convergence du faisceau (α_s) et de l'angle de collection du détecteur (β_s).

a - Angle de convergence (α_s) : cet angle est défini sur la figure 4, sa valeur est en général fonction du diamètre du diaphragme condenseur C_2 . Comme pour le mode TEM, c'est la valeur de cet angle qui détermine la nature des diagrammes de diffraction obtenus en mode STEM (diagramme à faisceau parallèle ou à faisceau convergent).

b - Angle de collection du détecteur (β_s) : cet angle est défini sur la figure 4, sa valeur est fonction de la longueur de chambre du microscope. Plus cette dernière est importante plus l'angle de collection est faible*. La valeur de β_s doit être optimisée de façon à obtenir en mode STEM des images ayant une bonne résolution et dont les contrastes soient aisément interprétables (cf. § 3.1.).

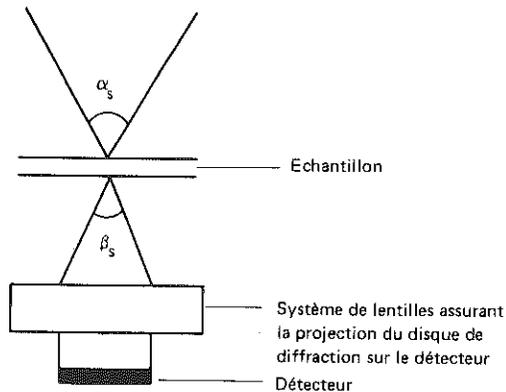


Figure 4 -- Définition des angles α_s et β_s .

* Les lentilles situées sous la lentille condenseur-objectif sont réglées en mode diffraction. Augmenter la longueur de chambre du microscope équivaut à éloigner l'échantillon du détecteur et donc à diminuer la valeur de β_s .

3 - COMPARAISON ENTRE LES IMAGES OBTENUES EN MODE TEM ET STEM3.1. - Contrastes des défauts cristallinsa - Champ clair

D'après le principe de réciprocité* appliqué par Cowley à la microscopie électronique [3], les images obtenues en mode STEM et TEM sont tout à fait identiques à condition que l'échantillon et le microscope vérifient un certain nombre de conditions. En toute rigueur, ces dernières, qui ont déjà été abondamment présentées et discutées [1] [2], sont extrêmement restrictives, en particulier pour la source électronique, le détecteur d'électrons, les lentilles et les angles d'ouverture et de convergence du faisceau électronique. Cependant, pour obtenir des images très peu différentes dans les deux modes, il suffit en général à l'opérateur de s'assurer que :

- l'épaisseur de l'échantillon n'est pas trop importante, de façon à ce qu'il y ait peu de diffusion inélastique ;
- les angles de convergence et de collection définis pour les deux modes sur la figure 5 vérifient les deux relations :

$$\beta_T = \alpha_S$$

$$\alpha_T = \beta_S$$

les lettres T et S font référence respectivement aux modes TEM et STEM;

Parmi ces conditions, la plus difficile à satisfaire est $\alpha_T = \beta_S$. En effet, en mode TEM l'échantillon est en général éclairé avec un faisceau d'électrons presque parallèle pour lequel l'angle d'ouverture est très faible (de l'ordre de 10^{-4} rad). Pour obtenir des angles de collection en mode STEM du même ordre de grandeur, il est nécessaire d'augmenter considérablement la longueur de chambre du microscope (cf § 2.4.). Dans ces conditions, le rayon du disque de diffraction associé au faisceau transmis est largement supérieur à celui du détecteur (figure 6a, b). Il en résulte une réduction considérable du nombre d'électrons collectés par ce dernier et, par conséquent, une diminution importante du rapport pic sur bruit de fond au niveau de l'image. Celle-ci présente alors une très mauvaise résolution.

Pratiquement pour obtenir une image de qualité en mode STEM, il est nécessaire que la longueur de chambre du microscope ne soit pas trop importante, ce qui implique : β_S supérieur à α_T . Dans ces conditions, l'image STEM n'est

* Selon ce principe, dans certaines conditions, un STEM peut être considéré comme un TEM fonctionnant à l'envers. Les images obtenues dans les deux modes sont alors identiques.

jamais tout à fait identique à l'image TEM. En particulier, on constate en mode STEM une perte de contraste dynamique qui se traduit entre autre par l'absence de contours d'extinction (figure 7a, b). Cependant si l'écart entre β_s et α_T n'est pas trop important, les contrastes des défauts cristallins (dislocation, faute d'empilement...) sont identiques dans les deux modes (figure 8a). Ce qui implique en particulier que les méthodes d'identification de ces défauts applicables en mode TEM ($\vec{g} \cdot \vec{b} = 0, \dots$) le sont également en mode STEM*.

La perte de contraste dynamique en mode STEM peut présenter un intérêt. En effet, l'absence de contours d'extinction rend souvent plus agréable l'observation d'échantillons déformés élastiquement.

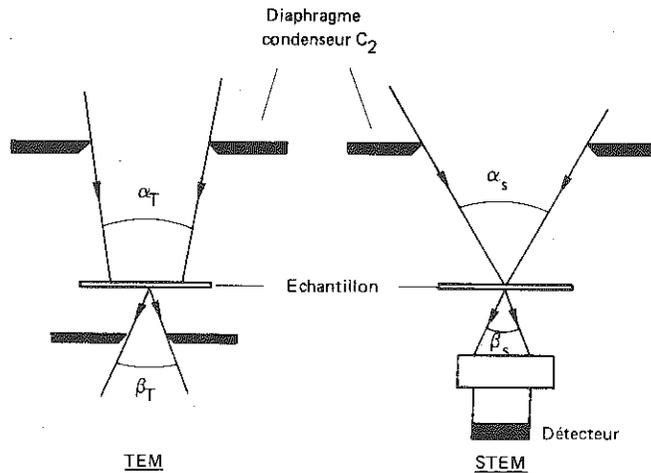
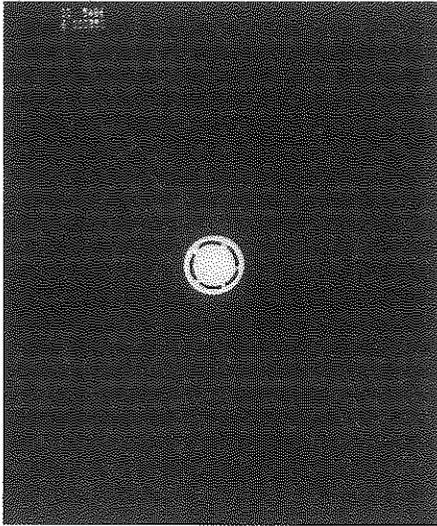


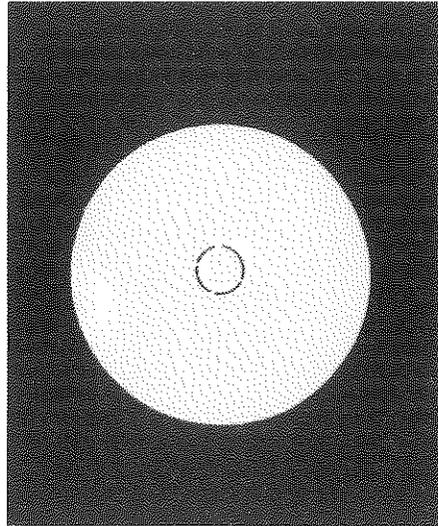
Figure 5 — Définition des angles : $\alpha_T, \beta_T, \alpha_s, \beta_s$.

b - Champ sombre

Le problème de l'obtention en champ sombre d'une image peu différente en mode STEM et TEM est tout à fait analogue à celui traité pour le champ clair. Comme pour ce dernier, il est nécessaire de déterminer des conditions expérimentales (en particulier la longueur de chambre) qui permettent d'optimiser le rapport pic sur bruit de fond au niveau de l'image sans trop s'écarter des conditions de réciprocité. Quand ce compromis est trouvé, la théorie du contraste en champ sombre et même

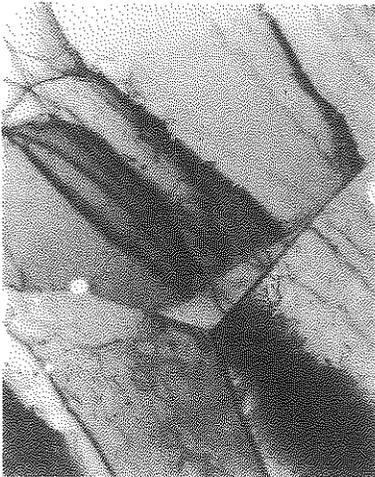


a - Longueur de chambre faible

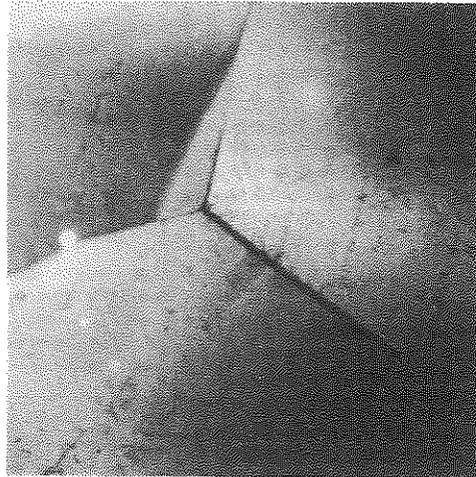


b - Longueur de chambre élevée

Figure 6 — Disque de diffraction associé au faisceau transmis en mode STEM. Le détecteur d'électrons est représenté par le cercle en pointillé.

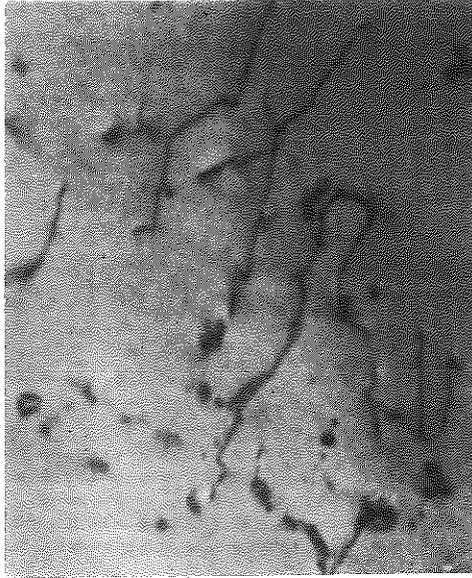


a - TEM

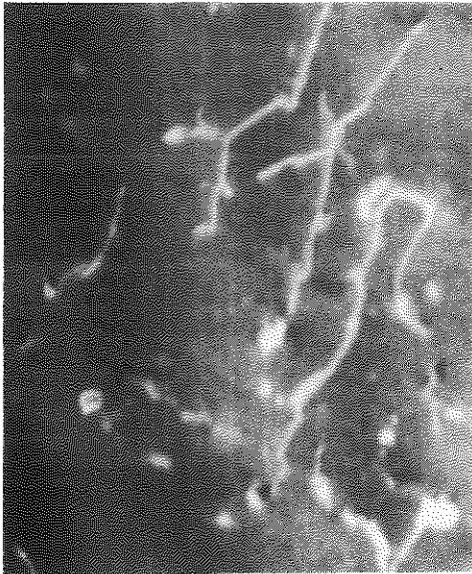


b - STEM

Figure 7 - x6100 - Comparaison d'images obtenues en mode TEM et STEM sur des zones identiques. On constate que l'image STEM ne présente aucun contour d'extinction.



a - Champ clair



b -- Champ sombre

Figure 8 - x100000 – Dislocations observées en mode STEM.

en faisceau faible qui est applicable aux défauts cristallins en mode TEM l'est également en mode STEM* (figure 8b).

3.2. - Principaux avantages du STEM

Le signal disponible à la sortie de la chaîne de détection peut être facilement amplifié : il est ainsi toujours possible d'obtenir une image ayant un niveau de brillance élevé même aux grossissements les plus importants. Ce signal peut être également modifié de façon à renforcer des contrastes et à faire apparaître des détails difficiles à observer en conditions normales. Ce renforcement de contraste peut être effectué en particulier par une différentiation ou une amplification non linéaire du signal vidéo.

Contraste différentiel : cette fonction permet de former une image à partir de la dérivée du signal vidéo et ainsi de mettre en évidence les zones de l'image non traitée où le contraste varie rapidement (figure 9). L'image dérivée peut ensuite être mixée à l'image normale de façon à révéler sur cette dernière de très petits détails.

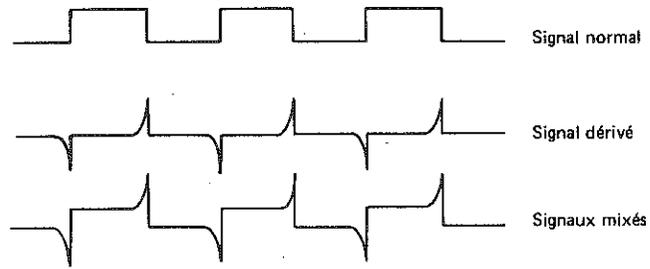
Amplification non linéaire : cette fonction permet d'amplifier suivant une relation du type $V = V_0^{1/\gamma}$ le signal vidéo normal V_0 . Cette amplification, qui est d'autant plus importante que l'intensité du signal V_0 est faible (figure 10) renforce le contraste dans les zones sombres sans pour autant modifier considérablement le contraste général.

3.3. - Principal inconvénient du STEM

La résolution d'un microscope électronique utilisé en mode STEM est essentiellement limitée par le diamètre réel de la sonde.

Sur des échantillons extrêmement minces, la résolution est peu différente du diamètre de la sonde sur la surface supérieure de l'échantillon. Ce diamètre (d) peut être calculé à l'aide de l'expression $d = \sqrt{d_t^2 + d_s^2}$ où d_t est le diamètre théorique de la sonde et d_s un terme qui traduit les aberrations de sphéricité de la lentille C_3 . La valeur de d_s s'élève très rapidement lorsque l'angle de convergence du faisceau électronique s'accroît et donc quand le diamètre du diaphragme condenseur C_2 augmente. Avec un canon à cathode en LaB_6 , la résolution maximale d'un

* Il faut cependant noter que l'identification des défauts cristallins est beaucoup plus fastidieuse en mode STEM. En effet, avec celui-ci, il est en particulier difficile de trouver les conditions de diffraction recherchées sans perdre la zone d'intérêt.



a - Principe

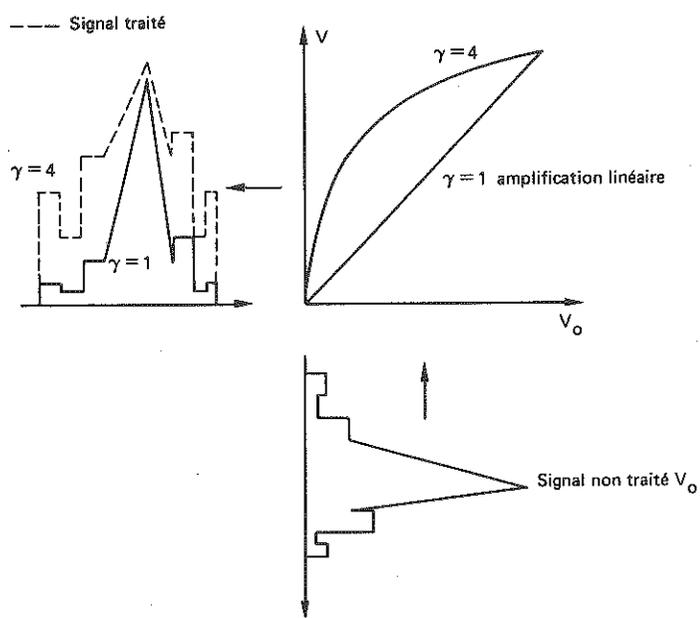


b - x25000 - Image non traitée.
Les précipités sont peu visibles.

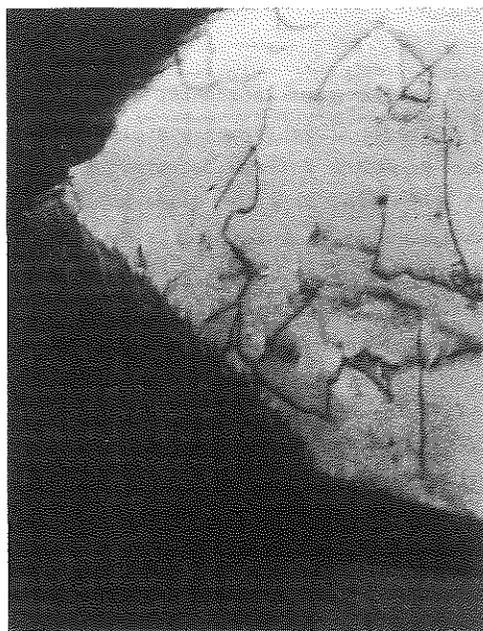


c - x 25000 - Image traitée.
Les précipités sont visibles.

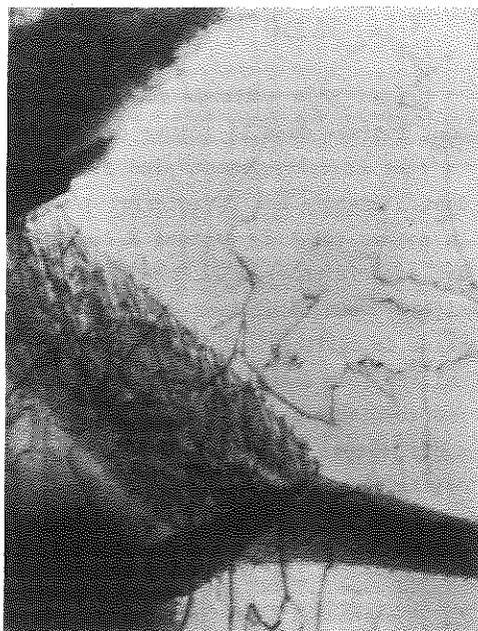
Figure 9 - Renforcement du contraste en mode STEM.
Différentiation du signal.



a - Principe



b - x50000 – Image non traitée.



c - x50000 – Image traitée.

Figure 10 – Renforcement du contraste en mode STEM.
 Amplification non linéaire : $V = V_o^{1/\gamma}$

STEM est de l'ordre de 1,5 nm pour des échantillons très minces (elle est voisine de 0,3 nm en TEM).

Sur des échantillons plus épais, il est nécessaire pour déterminer le diamètre réel de la sonde de tenir compte de l'élargissement du faisceau d'électrons (b) entre la surface supérieure et inférieure de l'échantillon (figure 11). Cet accroissement peut être évalué à l'aide de l'expression : $b(\text{cm}) = 625 \frac{\rho}{A}^{1/2} \cdot \frac{Z}{E} \cdot t^{3/2*}$ [4]. Le diamètre réel de la sonde est alors $d + b$. On note que, pour des échantillons relativement épais, la résolution peut être considérablement améliorée en augmentant la tension d'accélération des électrons.

4 - STEM : INSTRUMENT D'ANALYSE

En plus des électrons transmis et diffractés, un certain nombre d'autres signaux peuvent fournir de nombreuses informations (topographie, composition chimique...) sur un échantillon bombardé par un faisceau d'électrons. Parmi ces signaux, les plus utilisés actuellement en microscopie électronique à balayage en transmission sont l'émission X et les électrons rétrodiffusés.

4.1. - La microanalyse X

A la suite de chocs inélastiques avec des électrons incidents, des atomes sont ionisés dans le volume de matière bombardé. Chaque atome ionisé peut retrouver un état énergétiquement plus stable en émettant un photon X (raie caractéristique) dont l'énergie est caractéristique de l'élément considéré. Dans le volume bombardé, le nombre total de photons X émis par unité de temps par tous les atomes de type A est proportionnel à la concentration moyenne C_A de cet élément dans le volume considéré. Pour déterminer la composition chimique moyenne de ce dernier il est nécessaire de collecter, à l'aide d'une diode Si-Li, les photons X émis, de les discriminer suivant leur énergie (on peut alors visualiser un spectre en mode multicanaux) et de les comptabiliser pour le fond continu et les raies caractéristiques de chaque élément (figure 12). Les résultats sont ensuite traités et les concentrations sont déterminées en tenant compte d'un certain nombre de corrections précisées dans de nombreux ouvrages [5]. Cette méthode d'analyse dite "par dispersion d'énergie" ne peut être utilisée que pour des éléments dont le numéro atomique est supérieur à 10.

* E = tension d'accélération en kV
 ρ = densité de l'échantillon
 A = masse atomique de l'élément
 Z = numéro atomique de l'élément
 t = épaisseur de la zone analysée en cm

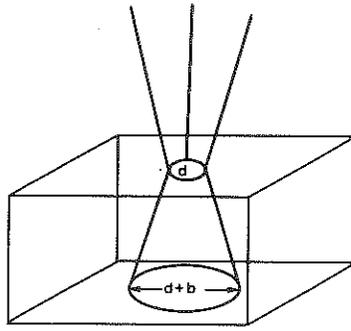


Figure 11 — Diamètre de la sonde en mode STEM.

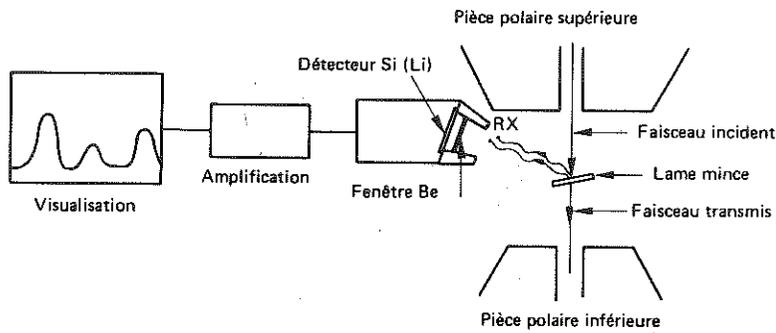
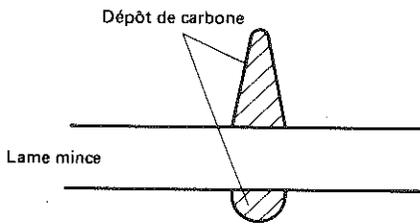
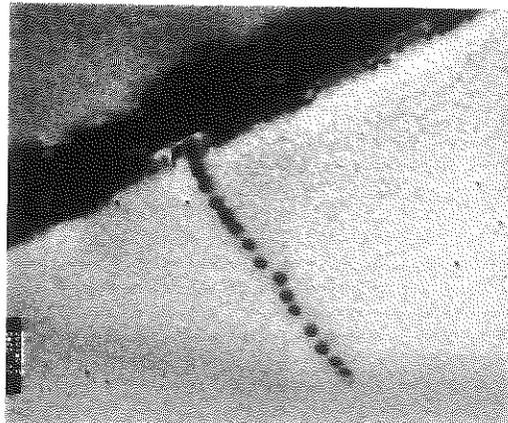


Figure 12 — Principe de la microanalyse X.

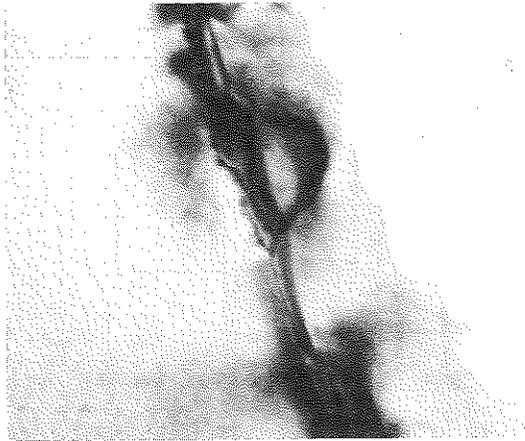


a - Coupe schématique d'une zone contaminée

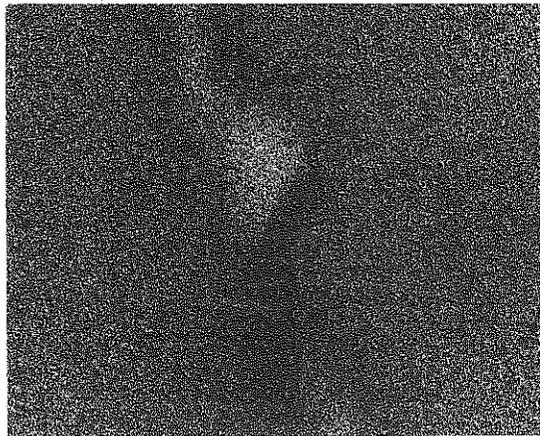


b - x51 000 — Visualisation de zones analysées au voisinage d'un joint de grains.

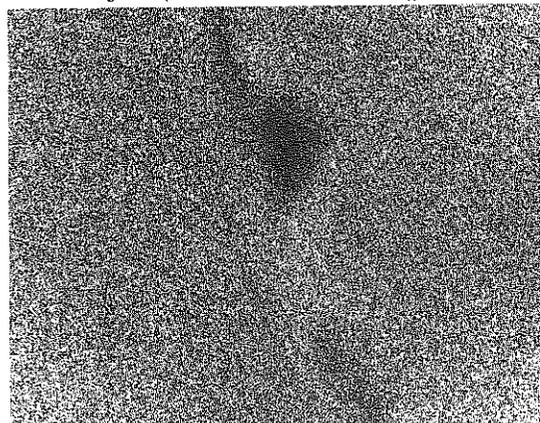
Figure 13 — Microanalyse avec sonde fixe : contamination de l'échantillon.



a - Précipités riches en chrome et pauvres en nickel. Champ clair



b - Appauvrissement en chrome au voisinage des précipités.
La zone déchromée a environ 100 nm de large.
Image de répartition effectuée avec la raie K_{Cr} du chrome.



c - Enrichissement en nickel au voisinage des précipités.
Image de répartition effectuée avec la raie K_{Ni} du nickel.

Figure 14 - x100000 --- Image de répartition du chrome et du nickel au voisinage de précipités intergranulaires dans un alliage Fe Cr Ni.

4.1.1. - Microanalyse X en sonde fixe

La microanalyse X en mode STEM peut s'effectuer en sonde fixe, il suffit d'arrêter la sonde sur la zone d'intérêt. Cette opération peut être effectuée avec une très bonne précision.

Quand une bonne résolution spatiale est exigée, l'utilisation d'une petite sonde nécessite l'emploi d'une densité de courant élevée et de temps de comptage importants, ce qui favorise la contamination de la zone analysée. Cette couche de contamination, composée essentiellement de carbone (figure 13a), résulte de la décomposition sous l'impact du faisceau d'électrons des molécules organiques initialement présentes sur l'échantillon et des molécules d'hydrocarbures issues de la pompe à diffusion d'huile, qui s'y déposent en cours d'analyse.

La couche de contamination présente de nombreux inconvénients (détérioration de la résolution spatiale, absorption des raies des éléments légers...). Cependant, elle permet de visualiser les zones analysées (figure 13b).

Pour les microscopes électroniques récents, dans lesquels le vide est assuré en partie par un pompage ionique, le niveau de contamination des zones analysées reste faible. De plus, on peut minimiser la contamination intrinsèque de l'échantillon en évitant de le toucher avec les doigts. Il est également conseillé, avant l'analyse, de "nettoyer" la zone d'intérêt en la bombardant avec un faisceau intense d'électrons.

4.1.2. - Microanalyse X avec sonde mobile : image de répartition

L'utilisation d'un détecteur de rayons X avec une sonde mobile permet d'obtenir des images de répartition des éléments présents dans l'échantillon. En effet, il suffit de collecter les photons X émis en chaque point de l'échantillon sous l'impact du faisceau électronique et de reporter sur l'écran cathodique un point brillant dès qu'un photon X caractéristique d'un élément déterminé est détecté. Sur l'image obtenue, la densité de points est d'autant plus élevée que la concentration de l'élément considéré est importante (figure 14).

4.1.3. - Choix des paramètres expérimentaux pour la microanalyse X

a - Tension d'accélération des électrons

Il y a en général intérêt à utiliser la tension d'accélération maximale de l'appareil. En effet quand celle-ci augmente la résolution spatiale (cf. § 4.1.3.) et les limites de détection s'améliorent [5].

b - Diamètre du diaphragme condenseur C₂

L'exactitude des résultats exige que l'émission X détectée par la diode ne provienne que de la zone analysée. En pratique, des électrons non focalisés, qui sont d'autant plus nombreux que le diamètre du diaphragme condenseur C₂ est important, génèrent une émission X supplémentaire à partir du volume entier de l'échantillon* (figure 15). Pour visualiser cette émission parasite il suffit de faire une acquisition de spectre quand la sonde est placée dans le trou de la lame mince.

Un diaphragme condenseur C₂ dont le diamètre est trop important ne peut donc être utilisé pour l'analyse X quantitative. De plus, le diamètre de ce diaphragme est également limité par la résolution spatiale exigée. En effet, compte tenu des aberrations de sphéricité de la lentille C₃, le diamètre réel de la sonde augmente très rapidement avec le diamètre du diaphragme condenseur C₂ (cf. § 3.3.).

Cependant, l'utilisation de diaphragmes trop petits conduit à des intensités de courant de sonde peu importantes (surtout quand le diamètre de la sonde est faible) ce qui se traduit par un taux d'émission X très faible et donc par une mauvaise statistique de comptage.

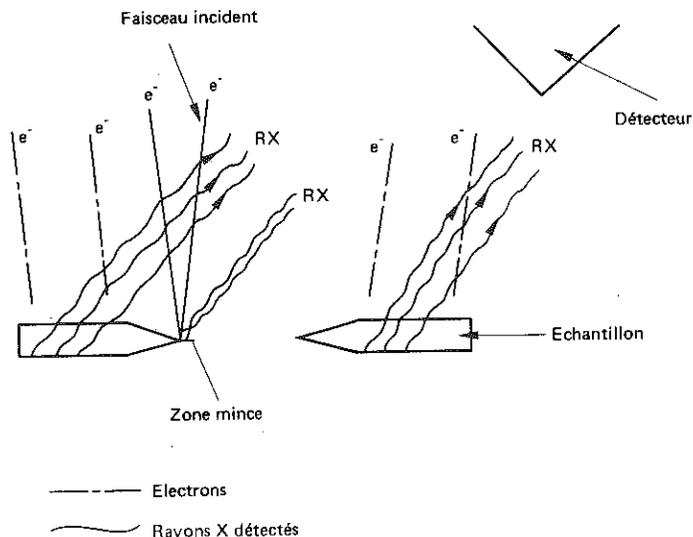


Figure 15 - Bombardement parasite de l'échantillon par des électrons non focalisés.

* Si l'épaisseur du diaphragme condenseur C₂ est insuffisante, des photons X de haute énergie, produits dans ce diaphragme sous l'impact des électrons incidents, peuvent également générer par fluorescence une émission X parasite à partir du volume entier de l'échantillon.

Il est donc en général nécessaire de trouver un compromis et de choisir le diamètre du diaphragme condenseur C_2 en fonction de la nature de l'analyse à effectuer et de la précision des résultats attendus.

c - Résolution spatiale

Comme pour les images obtenues en mode STEM à partir des électrons transmis ou diffractés, la résolution spatiale en microanalyse X sur échantillon mince est fonction du diamètre de la sonde sur la surface supérieure de l'échantillon ($d = \sqrt{d_c^2 + d_s^2}$) et de l'élargissement (b) du faisceau d'électrons au travers de celui-ci. Cet élargissement du faisceau électronique décroît rapidement quand la tension d'accélération augmente (cf. § 3.3.). Avec un canon à cathode en LaB_6 , des analyses quantitatives peuvent être effectuées avec une résolution spatiale maximale d'environ 10 nm. Pour des diamètres de sonde inférieurs à cette valeur, le taux d'émission X est très faible, ce qui se traduit par une mauvaise statistique de comptage et donc par des résultats imprécis.

4.2. - Le contraste de numéro atomique

A la suite d'un certain nombre de chocs élastiques avec les atomes du matériau étudié, une partie des électrons incidents peut ressortir de l'échantillon au travers de sa surface supérieure. Ces électrons, appelés électrons rétrodiffusés, ont une énergie peu différente de l'énergie incidente. Le nombre d'électrons rétrodiffusés par unité de temps est une fonction croissante du numéro atomique moyen dans la zone de l'échantillon bombardée par le faisceau électronique.

Des images présentant un contraste de numéro atomique sont obtenues en mode STEM à l'aide d'un détecteur d'électrons de forme annulaire placé au-dessus de l'échantillon (figure 16). Le champ magnétique intense qui règne autour de ce dernier rabat les électrons rétrodiffusés vers le détecteur qui fournit un signal proportionnel à l'intensité détectée. Ce signal est ensuite amplifié et utilisé pour former une image point par point sur un écran cathodique (figure 17).

La résolution d'une image formée à partir d'électrons rétrodiffusés est évidemment fonction du AZ mais aussi de l'épaisseur de la zone étudiée. En effet, quand cette dernière est importante, des électrons peuvent subir de nombreux chocs élastiques et sortir de l'échantillon à un endroit qui est relativement éloigné de la sonde. Dans de bonnes conditions la résolution de l'image est peu différente de la taille de sonde.

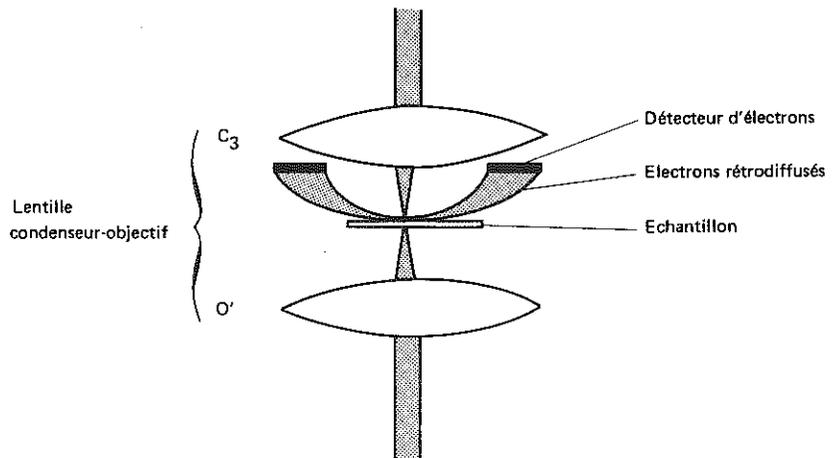
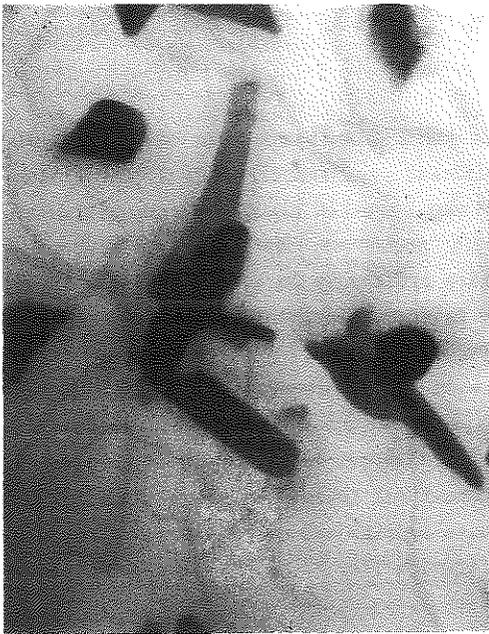


Figure 16 – Détection des électrons rétrodiffusés.



a - Champ clair (STEM)



b - Image formée à partir d'électrons rétrodiffusés.

Figure 17 - x50000 – Contraste de numéro atomique. Le ΔZ entre les précipités et la matrice est de l'ordre de 10. On note également que le nombre d'électrons rétrodiffusés est d'autant plus élevé que l'épaisseur de l'échantillon est importante.

4.3. - La microdiffraction

La configuration du système d'éclairage (cf. § 2.2.) dans les microscopes électroniques de type CTEM/STEM permet l'obtention, au niveau de l'échantillon d'un faisceau électronique de faible diamètre (d) dont l'angle de convergence (α_s) peut être important ou très faible. Les valeurs de d et de α_s sont en général fonction du diamètre du diaphragme condenseur C_2 et du degré de focalisation de la lentille condenseur C_2 (figure 18).

En sonde fixe, un choix approprié des conditions expérimentales permet d'obtenir dans le plan focal image de la lentille condenseur-objectif (et donc sur l'écran fluorescent) un diagramme de diffraction :

- à faisceau convergent (composé de disques). Dans ce cas le diamètre de la zone étudiée est celui de la sonde ;

- à faisceau parallèle (composé de points). Dans ce cas le diamètre de la zone étudiée est fonction de celui du diaphragme condenseur C_2 . Avec les microscopes récents des clichés de diffraction à faisceau parallèle peuvent être obtenus à partir des zones dont le diamètre est voisin d'un micron.

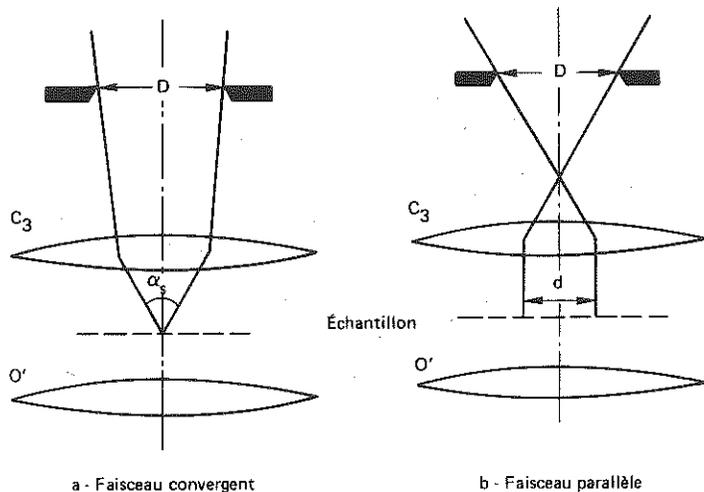


Figure 18 - Éclairage de l'objet avec un faisceau convergent ou parallèle.

5 - CONCLUSION

Bien que les défauts cristallins aient en général des contrastes presque identiques en mode TEM et STEM, ce dernier mode présente peu d'avantages pour leur identification. Par contre, en tant qu'instrument d'analyse le mode STEM est extrêmement pratique et performant. Il permet notamment de déterminer des concentrations avec une résolution spatiale de l'ordre de 10 nm, d'obtenir des images de répartition des éléments ainsi que des images présentant des contrastes de numéro atomique.

Le mode STEM a également d'autres applications qui n'ont pas été présentées dans ce chapitre. Il peut en particulier être utilisé :

- pour obtenir un contraste topographique à l'aide d'un détecteur d'électrons secondaires.

- pour faire de la microanalyse par spectrométrie de pertes d'énergie. Cette technique, qui est actuellement en plein développement, promet d'être très fructueuse en particulier avec les microscopes électroniques de type CTEM/STEM.

REFERENCES

- [1] P.W. HAWKES - Microscopie électronique en Science des matériaux ; Ecole d'été du CNRS, Bombanes, 1981 ; Editions du CNRS (1983), p. 47.
- [2] C.J. HUMPHREYS - Introduction to analytical electron microscopy ; Plenum Press, New York (1979), p. 305.
- [3] J.M. COWLEY - Appl. Phys. Letters, 15, 58, (1969).
- [4] J.I. GOLDSTEIN, J.L. COSTLEY, G.W. LORIMER et S.J.B. REED - Scanning electron microscopy ; édité par O. Johari ; IITRI, Chicago (1977), Vol. 1, p. 315.
- [5] N.J. ZALUSEC - Introduction to analytical electron microscopy ; Plenum Press, New York (1979), p. 121.

CHAPITRE XIII

ANALYSE X PAR SPECTROMETRIE
EN DISPERSION D'ENERGIE

par Pierre ROLLAND et
Christian WILLAIME

ANALYSE X PAR SPECTROMETRIE EN DISPERSION D'ENERGIE

par P. ROLLAND et C. WILLAIME.

Lors de l'impact du faisceau d'électrons, plusieurs types de signaux émis, peuvent être utilisés pour caractériser la composition chimique de l'échantillon. La spectrométrie du rayonnement X émis est une méthode de plus en plus utilisée pour obtenir une analyse qualitative, voire quantitative de l'échantillon au cours de son étude au microscope électronique par transmission.

I - EMISSION DE RAYONS X

Deux types d'interaction inélastique entre le faisceau d'électrons primaires et l'échantillon, donnent lieu à la production de rayons X.

- Le rayonnement continu est la conséquence du ralentissement des électrons par le champ électromagnétique au voisinage du noyau atomique; le spectre correspondant est continu avec un maximum d'énergie (ou minimum de longueur d'onde) égal à l'énergie des électrons primaires.

- Les raies caractéristiques résultent de l'interaction inélastique des électrons primaires avec les électrons liés au noyau. En effet, si l'énergie d'un électron incident est suffisante, il y a une certaine probabilité pour qu'il interagisse avec un électron lié, en l'éjectant de son niveau d'énergie habituel. Le "trou" ainsi créé est immédiatement comblé par un électron d'une couche supérieure, avec émission d'un photon d'énergie égale à la différence d'énergie des niveaux de départ et d'arrivée de l'électron venant combler le "trou". Cette émission de photon X a une énergie et une longueur d'onde parfaitement bien

définies pour un élément donné, et est donc caractéristique de cet élément. Les raies caractéristiques ainsi produites se superposent au spectre du rayonnement continu. La désignation des photons émis se fait au moyen d'une lettre romaine: K, L, M représentant la couche sur laquelle le "trou" a été produit, et d'une lettre grecque: α , β , γ indiquant l'origine de l'électron bouchant ce "trou" (α couche immédiatement supérieure, β couche suivante etc...) (figure 1).

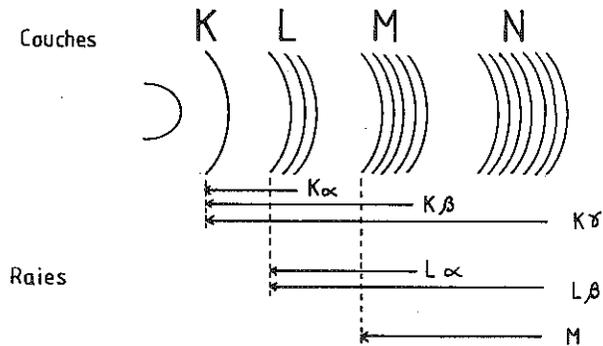


Fig.1 Désignation des raies X caractéristiques.

L'intensité des raies caractéristiques est fonction:

- de la tension d'accélération
- du courant de faisceau
- de la matière excitée
- de l'interaction du rayonnement X émis avec la matière
- de l'efficacité du détecteur (paramètres connus ou à déterminer)
- de la concentration de l'élément (inconnue à déterminer)

II - DETECTION DES RAYONS X PAR DIODE Si (Li)

Le rôle d'un système de détection de rayons X est d'enregistrer le spectre émis par le point d'impact des électrons primaires, et de déterminer pour chaque élément présent dans l'échantillon, les intensités des raies caractéristiques.

Deux techniques de détection sont possibles :

la spectrométrie en dispersion de longueur d'onde (WDS: wavelength dispersive spectrometry) et la spectrométrie en dispersion d'énergie (EDS: energy dispersive spectrometry).

La spectrométrie en dispersion de longueur d'onde consiste à déduire la longueur d'onde d'un rayonnement X de la mesure de l'angle de réflexion de Bragg sur une famille de plans connue d'un cristal analyseur; cette méthode couramment utilisée sur les microsondes électroniques et parfois sur les microscopes à balayage est très précise, mais nécessite des comptages consécutifs pour les différentes raies émises. De ce fait cette méthode est abandonnée pour la microscopie électronique par transmission à cause des trop longs temps d'irradiation nécessaires du fait des taux de comptages très faibles lors de l'irradiation d'une couche mince (problèmes liés à la stabilité mécanique des échantillons et aux dégats d'irradiation).

La spectrométrie en dispersion d'énergie présente deux avantages: une efficacité de comptage bien supérieure, et une analyse simultanée de toutes les raies du spectre. Ces avantages compensent la différence de résolution entre les deux systèmes.

Un spectromètre d'analyse de rayons X en dispersion d'énergie est constitué de différents éléments:

- * un détecteur Si(Li), placé près de l'échantillon.
- * un système électronique d'acquisition comprenant un préamplificateur, un amplificateur, un convertisseur, une mémoire.
- * un système informatique qui assure le contrôle, la visualisation et le traitement des données.

Le détecteur diode Si(Li) (figure 2) est placé dans la chambre objet du microscope, aussi près que possible de l'échantillon.

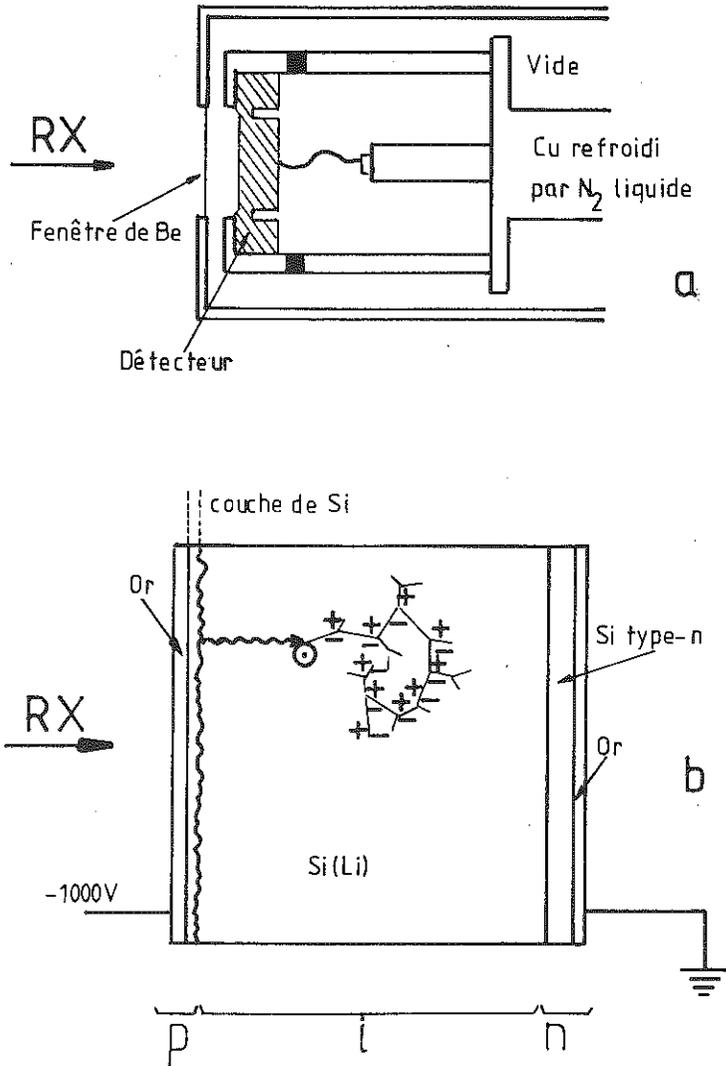


Fig.2 a) Diagramme schématique de l'ensemble détecteur-cryostat.
 b) Schéma d'un détecteur à diode Si(Li). Transformation d'un photon X en paires électrons-trous.

Lorsqu'un photon X interagit avec le détecteur, il produit un nuage d'ionisation par création de paires électrons-trous dont le nombre est proportionnel à l'énergie. La charge ainsi créée est écoulee par l'application d'une haute tension, collectée par le préamplificateur qui donne un signal équivalent à l'énergie du photon incident. Un nouveau signal est produit pour chaque photon incident.

A la sortie du préamplificateur, le signal est mis en forme dans un amplificateur dont les rôles sont:

- de fournir un signal proportionnel à l'impulsion d'origine.

- de s'assurer que chaque impulsion mesurée est causée par un seul et unique photon et non pas par deux photons successifs pendant un intervalle de temps plus bref que la mise en forme de l'impulsion: dans le cas où deux photons sont détectés, l'information est rejetée (rejet d'empilement).

- de s'assurer que la ligne de base reste stable en cas de changement de taux de comptage pour éviter des dérives de pic.

Le temps de mise en forme de l'impulsion est décompté du temps d'acquisition, et contribue au temps mort.

L'amplificateur est suivi d'un convertisseur analogique digital qui numérise l'information et la classe dans une mémoire. Celle-ci est divisée en canaux réguliers, et directement graduée en énergie. Chaque photon détecté incrémente donc le canal correspondant à son énergie, et le spectre obtenu représente le rayonnement émis par l'échantillon.

Certains artéfacts liés au système de détection peuvent se produire:

- Pic d'échappement: Dans la partie antérieure du détecteur, un photon incident peut réagir avec le silicium et générer par fluorescence un photon $X \text{ SiK}_\alpha$.

L'énergie effectivement mesurée est alors égale à l'énergie du photon incident diminuée de celle du photon de fluorescence, soit 1,74 keV. Le pic parasite obtenu, ou pic d'échappement, a une intensité de 0,3 à 0,5 % du pic source, et ne sera visible que pour l'élément majoritaire du spectre.

- Pic d'empilement: Un tel pic est généré lorsque l'intervalle de temps entre deux photons est trop faible pour qu'ils soient détectés comme deux photons individuels. Le pic apparaît pour l'énergie correspondant à la somme des énergies des deux photons. Des pics d'empilement apparaissent lorsque le taux de comptage est élevé.

- Elargissement des pics: Les différentes opérations successives entraînent une certaine erreur dans la mesure de l'énergie d'un photon, et l'accumulation des signaux relatifs à des photons de même énergie donne naissance à un pic relativement large. Cet élargissement, mesuré par la largeur à mi-hauteur du pic, définit la résolution du détecteur, et qualifie sa faculté à séparer des pics proches.

- Dérive des pics: Lorsque le taux de comptage devient très important, les impulsions ne sont plus bien traitées, les pics s'élargissent et n'apparaissent plus à l'endroit prévu. Dans un microscope à transmission, lorsque le faisceau est déplacé d'une partie mince (taux de comptage faible) à une partie épaisse (taux de comptage important), cela peut aller jusqu'au blocage complet du préamplificateur. Il faut alors revenir sur une zone mince ou diminuer le courant de faisceau.

De bonnes conditions d'analyse sont obtenues avec un temps mort de 60 %, ajusté par modification de l'intensité du faisceau.

Un détecteur à diode Si(Li) impose une contrainte technique: le détecteur et son électronique doivent être gardés à la température de l'azote liquide pour, d'une part réduire le bruit électronique qui serait plus élevé que le

signal à température ambiante, et d'autre part, pour éviter une diffusion non contrôlée du lithium à l'intérieur de la diode.

III - ANALYSE DE L'ECHANTILLON

Résolution spatiale

Du fait des diffusions multiples qu'un électron peut subir à l'intérieur d'un échantillon, le volume de matière susceptible d'être excité et de produire des rayons X est important lorsque l'échantillon est massif; la zone analysée a une largeur nettement supérieure au diamètre du faisceau incident (appelé sonde). C'est ce qui se produit en particulier pour les analyses avec la microsonde électronique et le microscope à balayage (figure 3). Dans le cas de l'analyse d'un échantillon mince dans un microscope électronique par transmission, la résolution spatiale est définie par le diamètre initial de la sonde auquel se superpose un léger élargissement du faisceau qui augmente avec le numéro atomique et l'épaisseur traversée. La résolution spatiale peut atteindre quelques dizaines de nm (le volume analysé peut être inférieur à $10^{-3} \mu\text{m}^3$).

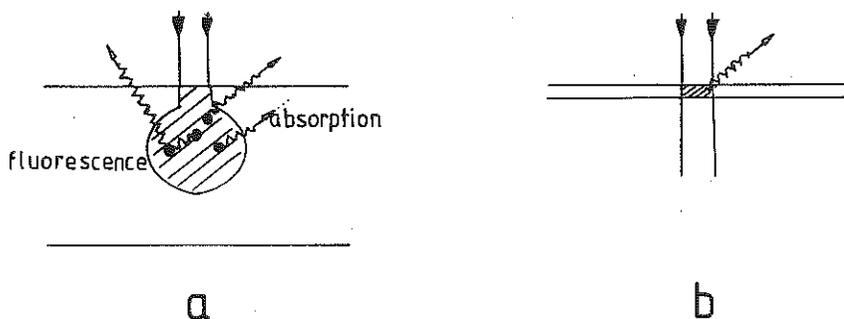


Fig.3 Interaction des électrons avec l'échantillon.

- a) Cas d'un échantillon massif: la zone émettrice de rayons X est plus large que le faisceau; les phénomènes d'absorption et de fluorescence sont importants.
- b) Cas d'un échantillon mince: la zone émettrice a à peu près la largeur du faisceau; les phénomènes d'absorption et de fluorescence sont en général négligeables.

Analyse qualitative

Selon les conditions d'utilisation du microscope, l'analyse peut être ponctuelle, ou permettre une cartographie de répartition de certains éléments.

Pour l'analyse ponctuelle, le faisceau d'électrons est focalisé sur un point précis de l'échantillon. Le comptage des photons émis est alors effectué pendant un temps suffisant pour obtenir un spectre défini. Pour qu'un pic soit détectable, on doit avoir

$$I > 3\sqrt{I_0}$$

I étant l'intensité du pic (nombre de photons enregistrés) et I_0 l'intensité du fond continu à proximité de ce pic.

Selon les éléments et les conditions de mesure, la limite de détection correspond à une concentration de l'ordre de 1 % en poids. Plus on cherche une bonne résolution spatiale (faible diamètre de sonde) plus le temps de comptage doit être long. Il faut donc veiller à ce que le faisceau ne dérive pas par rapport à l'échantillon pendant l'acquisition.

Dans un microscope équipé d'un système de balayage, une analyse "ponctuelle" peut être réalisée en balayant une zone réduite d'une plage homogène. Ceci présente l'avantage de limiter la modification de l'échantillon par le faisceau d'électrons.

La répartition des différents éléments dans l'échantillon peut être obtenue par cartographie si le microscope est équipé d'un système de balayage. Un pic d'un élément est sélectionné et un signal est envoyé sur l'écran-balayage du microscope chaque fois qu'un photon correspondant à ce pic est détecté. L'image de répartition peut être enregistrée sur l'écran photographique du microscope.

Il est possible de procéder différemment si un couplage de l'analyseur et du microscope permet au premier de contrôler le balayage du second. L'écran (et donc la

surface à analyser) est alors divisé en une matrice de points. Le faisceau est focalisé sur chaque point pendant un temps prédéfini et les intensités des différents éléments sélectionnés sont stockées en mémoire. L'image peut être visualisée sur l'écran de l'analyseur et est disponible pour différents traitements. Il est également possible de tracer le profil de répartition des éléments le long d'un segment de l'échantillon.

Analyse quantitative

Les systèmes de microanalyse sont équipés de logiciels qui permettent d'identifier les pics enregistrés: des marqueurs K L M se positionnent aux niveaux d'énergie correspondants, pour chaque élément (figure 4). Les pics étant identifiés, il est possible en principe, à partir de leur intensité, de déterminer la composition de l'échantillon.

Le nombre de photons enregistrés dans chaque pic n'est pas directement proportionnel au nombre d'atomes de chaque élément dans l'échantillon. En effet, comme pour les analyses à la microsonde électronique des corrections (ZAF) doivent être effectuées:

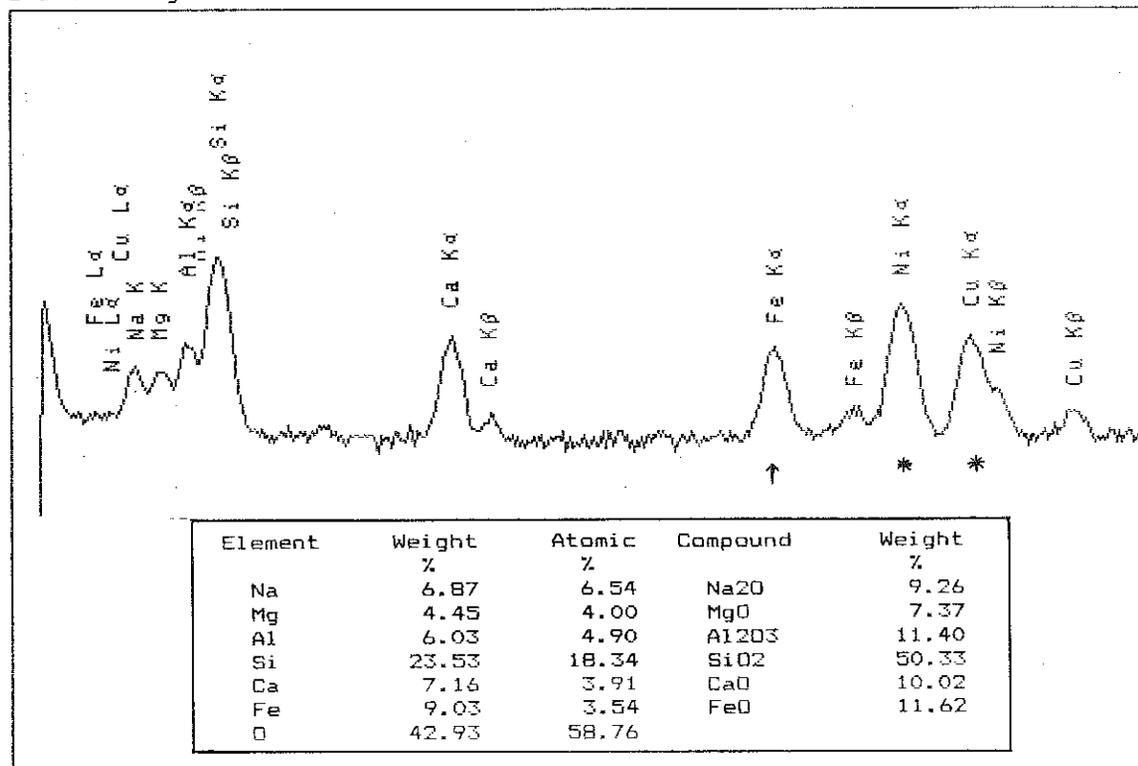
- Z : correction de numéro atomique: la section efficace d'ionisation (ou rendement de production de photons X) est différente d'un élément à l'autre.

- A : correction d'absorption: les photons X émis peuvent être absorbés au cours de leur traversée de l'échantillon; cette absorption dépend de la densité moyenne du matériau et de l'énergie du photon.

- F : correction de fluorescence: certains des photons X émis peuvent être le résultat de l'excitation d'un atome par un photon X de plus grande énergie produit par un atome d'un autre élément (fluorescence X).

Pour les analyses d'échantillons minces, les deux derniers effets sont négligeables, et seule la correction de numéro atomique est à effectuer. Cependant, si l'échantillon

Cfs 100K Log



< 0.000 keV Cursor = 73 (0.730 keV) = 198 9.600 keV >

Fig. 4: Exemple de spectre X obtenu sur un pyroxène et analyse quantitative correspondante.

- : Le pic du Fe est produit à la fois par l'échantillon et le microscope, dans l'analyse cet élément est surestimé.
- *: Les pics de Ni et Cu proviennent du porte-objet et de la grille, ces éléments ne sont pas pris en compte dans l'analyse.

n'est pas mince, cette correction sera effectuée en fonction de l'épaisseur de l'échantillon qui sera précisée dans le programme.

La détermination quantitative de la composition est réalisée au moyen d'un logiciel qui effectue successivement les opérations suivantes :

- Mesures des intensités nettes des pics par soustraction du bruit de fond et déconvolution des raies des éléments qui interfèrent.
- Conversion des intensités en concentrations.

Deux approches peuvent être utilisées : l'analyse avec témoins et l'analyse sans témoin.

Dans le premier cas on utilise soit des témoins massifs avec des programmes classiques de corrections pour échantillons massifs (ZAF), soit des témoins minces. Avec ces derniers, on obtient, sans correction, le rapport des concentrations de deux éléments dans l'échantillon à étudier, par simple comparaison avec le rapport des concentrations des mêmes éléments dans le témoin, quelle que soit la valeur exacte de l'épaisseur des échantillons (à condition qu'ils soient minces).

L'analyse sans témoin est plus facile à mettre en oeuvre. Il suffit d'indiquer à l'analyseur la liste des éléments identifiés dans le spectre, et éventuellement leur stoechiométrie (par exemple FeO ou Fe₂O₃). Le programme détermine alors :

- . L'efficacité d'émission des raies des éléments
- . L'efficacité de détection du système
- . Les intensités nettes des pics
- . La concentration en chaque élément

Il vérifie également que le critère de couche mince est bien justifié.

Cette méthode pratique et rapide est cependant affectée par certaines imprécisions dans la connaissance des sections efficaces d'ionisation.

IV - ARTEFACTS

Des erreurs analytiques peuvent se produire, liées soit au microscope, soit à l'échantillon.

Les électrons se propageant dans la colonne du microscope peuvent subir des diffusions inélastiques à la suite de chocs contre différentes pièces: diaphragmes, pièces polaires, porte-objet etc... Il y a alors production de rayons X. Leurs raies caractéristiques se superposent au spectre de l'échantillon, faisant apparaître des éléments tels que Mo, Fe, Ni, Cu. Ce rayonnement peut également induire un bruit de fond important rendant les analyses difficiles. Ces émissions parasites peuvent être limitées par l'emploi de collimateur en graphite.

Pour éviter des émissions parasites au niveau de l'échantillon lui-même, il faut des supports de graphite ou de béryllium.

La composition de l'échantillon peut être modifiée par les perturbations que l'échantillon lui-même a subies, soit au cours de sa préparation, soit au cours de l'analyse. Par exemple, des atomes d'Ar peuvent être implantés en surface lorsque la préparation a été effectuée par bombardement ionique. L'échauffement de l'échantillon sous le faisceau peut favoriser la migration d'éléments mobiles: par exemple la concentration en Na dans un feldspath diminue en fonction de la durée d'analyse.

CONCLUSION

L'analyse chimique possible d'un échantillon pendant son observation au microscope électronique par transmission au moyen de la spectrométrie en dispersion d'énergie est un avantage considérable pour le microscopiste. Cette facilité peut être utilisée à plusieurs niveaux.

L'analyse qualitative, extrêmement rapide, permet par exemple à l'opérateur qui étudie un granite de se rendre

compte immédiatement qu'il observe un feldspath alcalin, un plagioclase, ou un quartz, sans avoir à effectuer le dépouillement fastidieux de plusieurs clichés de diffraction.

La méthode est très attrayante pour la possibilité qu'elle offre d'effectuer des analyses sur des volumes très réduits. Il devient alors possible de mettre en évidence des hétérogénéités ou de caractériser des microinclusions dans des zones paraissant homogènes à l'échelle de la microsonde électronique. Cependant, le faible volume implique un petit nombre d'atomes, et une production de photons X limitée. Pour des temps d'irradiations raisonnables, avec une intensité de faisceau électronique supportable par l'échantillon, les incertitudes liées aux statistiques de comptage ne permettent pas d'obtenir des analyses quantitatives avec des précisions approchant celles qu'offre la microsonde électronique. Malgré la mise au point de logiciels très performants, l'opérateur devra donc rester très critique lors de l'interprétation des spectres.

Avec ses limites, cette méthode est cependant promise à un développement important pour l'étude des minéraux.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Lorimer, G.W. (1984)- Quantitative X-ray microanalysis of thin specimens, in "Quantitative electron microscopy", Chapman, J.N. et Craven, A.J. Ed., SUSSP Publications Department of Physics, University of Edinburgh, p305-339.
- Tixier, R. (1983)- Microanalyse en microscopie électronique en transmission, dans "Microscopie électronique en science des matériaux", Jouffrey, B. et al. Ed., Edition du C.N.R.S., p513-538.
- Microanalyse et microscopie à balayage. Ecole d'été de St Martin d'Hères, Septembre 1978. Maurice, F.; Meny, L. et Tixier, R. Ed., Les éditions de Physique, 1984.

CHAPITRE XIV
PREPARATION DES ECHANTILLONS
MINERALOGIQUES

par Michel RAUTUREAU, Monique FAGOT
et Christian WILLAIME

PREPARATION DES ECHANTILLONS MINERALOGIQUES

Michel Rautureau, Monique Fagot et Christian Willaime

L'observation de matériaux en microscopie électronique par transmission nécessite l'utilisation d'échantillons qui puissent être traversés par des électrons. Pour des tensions moyennes (100 à 200 kV), leur épaisseur doit être au maximum de l'ordre d'une dizaine de nm pour la très haute résolution et d'une centaine de nm pour la résolution moyenne.

La préparation des échantillons est donc une première étape décisive dans une étude de microscopie électronique par transmission.

Les caractéristiques souhaitées pour un échantillon peuvent varier selon le type d'étude entreprise. Dans l'idéal, un échantillon doit être:

- mince
- représentatif du minéral étudié (en particulier, la méthode de préparation ne doit pas modifier sa composition chimique ou minéralogique, ni introduire de défauts dans sa structure)
- orienté par rapport au matériel massif initial
- conducteur (pour ne pas se charger sous l'impact du faisceau d'électrons).

Il existe plusieurs types de méthodes, mais aucune méthode n'est parfaite; aucune méthode n'est universelle. Un nouveau type d'échantillon nécessite souvent la mise au point de nouvelles conditions de préparation. Les principales méthodes de préparation appliquées aux minéraux sont brièvement exposées dans les paragraphes suivants.

Pour certaines méthodes, le produit de départ est l'échantillon massif dont il faut tirer au préalable un disque de 3 mm de diamètre et de quelques dizaines de nm

d'épaisseur. Pour d'autres, le produit de départ est un échantillon microdivisé ou un échantillon broyé que l'on dépose sur une membrane support.

I. Fabrication de la membrane support.

Lorsqu'on dispose d'échantillons microdivisés, la méthode la plus simple pour les observer consiste à les déposer sur une membrane mince de carbone. Les caractéristiques de cette membrane sont très importantes car elle ne doit pas perturber l'observation. Dans certains cas limites, on doit même éliminer l'action perturbatrice de la membrane en réalisant des membranes à trous permettant de réaliser des images d'objets posés sur les bords des trous.

Les critères de qualité des membranes de carbone sont les suivants :

- Finesse
- Homogénéité
- Propreté
- Fixation homogène sur la grille support
- Isotropie des contraintes pour les grilles à trous.

Nous ne traiterons pas ici des méthodes d'évaporation qui font l'objet d'appareillages plus ou moins complexes. Les techniques principales étant l'évaporation thermique et la pulvérisation par impact d'ions ou d'électrons.

La fabrication des membranes de carbone consiste à déposer un film mince de carbone sur un support qui peut être de nature très variée suivant la qualité recherchée, le délai de fabrication et la nature du travail entrepris.

1. Support de formvar et de collodion

Ce sont les supports les plus courants :

a.-Formvar

Le Formvar est surtout utilisé par les biologistes qui l'emploient directement car il a une bonne tenue et permet,

même sans être carboné, de réaliser des membranes permettant le "tri" des coupes ultramicrotomiques. Pour l'emploi en minéralogie ou en physique, il a l'inconvénient de présenter une texture assez importante qui se répercute sur la membrane de carbone lors de l'évaporation. Pour cette raison, il est moins employé.

Ce produit est livré sec ou en solution à 5 et 10 % dans le dioxanne. Toutefois, c'est une solution à 0,15 ou 0,25 % (pondéral) qui est employée lors de la fabrication des membranes.

Si on désire dissoudre le formvar, on peut employer le dichloroéthane ou le dichloroéthylène par exemple.

b.- Collodion (monotricellulose)

Le collodion est typiquement un support permettant le dépôt de carbone. Après l'évaporation du carbone, il est généralement dissout avec de l'acétate d'isoamyle.

Le collodion ne peut être aisément employé seul car sa faible conductivité électrique en fait un support fragile.

Il présente néanmoins l'avantage d'être très homogène après séchage et de posséder une texture très faible.

2. Confection de la membrane (formvar et collodion)

a.- Utilisation d'une lame de verre

Le principe consiste à déposer un film de la solution sur une lame de verre. Après séchage, on obtient un film mince utilisable directement (formvar) ou destiné à être carboné (formvar et collodion). Ce film peut être obtenu en déposant une goutte de solution sur la lame et en l'incluant pour avoir un recouvrement de toute la surface ou en plongeant la lame dans le liquide. La qualité de la surface de ce film dépend beaucoup de celle de la lame de verre. Pour cela, on choisit une lame de "verre poli-optique".

Il faut ensuite décoller le film. Préalablement, on gratte avec un scalpel les quatre cotés de la lame de verre afin de supprimer l'adhérence sur les bords. Le décollement

s'effectue sur de l'eau en faisant pénétrer dans l'eau la lame de verre suivant une inclinaison adaptée.

b.- Dépôt d'une goutte de solution directement sur l'eau

On peut obtenir le film mince directement en laissant tomber une goutte de solution (à l'aide d'une pipette ou d'un agitateur) sur l'eau contenue dans un cristalliseur. Une première opération permet de "nettoyer" la surface de toutes les poussières. On élimine le premier film. Le second film, propre, est utilisable.

3. Confection de la membrane de carbone

a.- A partir de la membrane intermédiaire de formvar ou de collodion, on procède à l'opération classique de dépôt de celle-ci sur des grilles support. Les grilles doivent être de préférence dégraissées par passage dans l'alcool ou l'acétone afin de permettre une meilleure adhérence entre la membrane et le métal.

Le choix des caractéristiques de la grille dépend du type d'observations. Pour la haute résolution, c'est surtout un critère de stabilité de l'échantillon qui est important. En conséquence, on choisira une grille fine (400 mesh au moins).

Après évaporation de carbone, le support intermédiaire est dissout: le collodion avec de l'acétate d'isoamyle et le formvar avec du dichloroéthylène (ce qui peut laisser un peu de chlore sur la membrane de carbone).

b.- Dépôt sur une surface cristalline. Il est possible de réaliser directement des évaporations de carbone sur des supports cristallins.

. **Mica.** Un moyen efficace pour obtenir une surface propre est d'utiliser le clivage du mica. C'est sur une face fraîchement clivée que l'on évapore directement le carbone. Toutefois, il faut se méfier, pour des applications minéralogiques ou pour des méthodes analytiques, que de petits éclats de mica peuvent se détacher du support et que, lors du décollement, la membrane peut emporter des ions présents sur l'espace interfoliaire externe du mica.

. Chlorure de sodium. Une face de clivage fraîche d'un monocrystal de chlorure de sodium convient parfaitement pour évaporer le carbone. Le sel est ensuite dissout dans l'eau et le carbone récupéré par flottation.

c.- Evaporation directe sur une lame de verre

Une couche mince de carbone déposée par évaporation sur une lamelle de verre peut être récupérée par flottation à la surface de l'eau selon la méthode décrite pour les membranes de formvar et de collodion. La réussite de l'opération dépend de la facilité de séparation de la couche de carbone de son support. Cette séparation semble plus aisée lorsque la lame de verre n'est ni parfaitement propre, ni parfaitement polie. Cette membrane de carbone, de préparation rapide, est de moins bonne qualité (régularité et pureté) que les membranes préparées par les méthodes décrites ci-dessus.

4. Confection de grilles à trous

De nombreuses méthodes ont été proposées. La quasi-totalité d'entre elles conduisent à la fabrication d'une membrane très irrégulière et dont la stabilité sous le faisceau n'est pas satisfaisante.

Nous proposons ici une méthode permettant d'obtenir des trous parfaitement ronds et régulièrement répartis.

- Faire un mélange de (collodion à 1 %) et de glycérine: il faut en volume 0,5 % de glycérine par rapport au volume total de mélange.
- Agiter ce mélange pendant 12 heures.
- Laisser reposer pendant 48 heures.
- Préparer les grilles classiquement.
- Faire passer les grilles sous le faisceau du microscope pour percer les trous. Plus l'intensité du faisceau est importante, plus les trous sont gros.
- Carboner les membranes percées.
- Dissoudre le collodion.

Cette première méthode donne de très bons résultats mais elle est un peu longue à mettre en œuvre.

Une autre méthode due à Harris (1962) consiste à faire une émulsion de glycérol dans une solution à 0,25 % de formvar. On plonge une lame de verre froide (0°C) dans cette émulsion pour obtenir une membrane sur laquelle chaque goutte de glycérol fait un trou. On carbone ensuite ce support percé et, enfin, on dissout le formvar (chloroforme par exemple).

II. Fabrication d'un disque.

Elle nécessite la préparation préalable d'une lame mince (épaisseur 20 à 50 μm) qui est obtenue suivant des techniques adaptées de celles du litholameleur :

- La lame mince (non couverte) doit pouvoir être séparée de son support de verre : le collage doit donc être effectué avec du baume du Canada ou du "lakeside" (solubles dans le chloroforme ou l'alcool) et non avec de l'araldite insoluble.

- Certains préconisent un polissage très fin (pâte diamantée 1/10 μm) des deux faces de la lame (l'un des polissages étant effectué sur le bloc de départ, avant collage sur le verre) pour obtenir un bon amincissement ionique ultérieur; d'autres préfèrent un polissage grossier.

La lame ainsi fabriquée peut être observée au microscope pétrographique, de façon à repérer les zones à étudier par microscopie électronique. Il s'agit ensuite de découper des disques de 3mm de diamètre (dimension admise par le porte-objet du microscope) autour des zones sélectionnées. Plusieurs méthodes sont utilisées :

- Carottage de la lame mince avec des forets métalliques tubulaires trempant dans une goutte d'eau contenant de l'abrasif; le perçage doit être effectué jusqu'à entamer la lame de verre. Les disques sont décollés

par dissolution du baume du Canada dans l'alcool. Pour les échantillons fragiles (cas presque général pour les minéraux), il est bon, pour certaines méthodes de préparation, de renforcer la rigidité du disque par une rondelle métallique évidée ou une grille de microscopie électronique (50 meshes).

- Des grilles ou rondelles sont collées sur les zones sélectionnées (araldite, seccotine, cyanolite), puis l'ensemble de la lame mince est décollée de son support de verre. Des pastilles de 3mm de diamètre composées de grille + lame mince sont obtenues en coupant la lame mince à la lame de rasoir; cette méthode n'est pas recommandée si l'échantillon est un monocristal d'un minéral à clivage facile.

Un repérage (photographique par exemple) des zones intéressantes après collage de la grille, et avant séparation de la lamelle de verre, permet de déterminer précisément l'orientation et la position des minéraux à étudier par rapport à l'échantillon original.

Quel que soit le processus d'amincissement utilisé ultérieurement, il peut être intéressant de diminuer localement l'épaisseur de l'échantillon, soit pour favoriser l'amincissement à l'endroit précis que l'on souhaite observer, soit pour diminuer la durée de l'amincissement. Ceci peut être réalisé en créant une cuvette à la surface du disque par l'une des méthodes suivantes:

- par l'envoi d'un micro-jet de sable; la taille des grains abrasifs et la finesse du jet doivent être à la mesure de l'objectif.

- par usure réalisée par la rotation contre l'échantillon d'une bille d'acier mouillée par de l'eau contenant des grains abrasifs en suspension.

III. Broyage.

C'est la méthode la plus simple, la plus rapide à mettre en oeuvre, et qui, malgré ses défauts évidents, permet souvent de faire rapidement des observations préliminaires avant de commencer une étude précise en microscopie électronique. La méthode consiste à broyer un échantillon de petite taille ($\sim 0,1 \text{ mm}^3$) en minuscules grains dont les cassures présentent souvent des formes en coin, l'extrémité du coin ayant une épaisseur faible.

L'échantillon est broyé dans un mortier en agate. Les très fines particules ainsi obtenues sont mises en suspension dans un mélange eau + alcool versé dans le mortier. Une micro-goutte de cette suspension est pipetée et déposée sur une grille avec membrane de carbone; la goutte ne doit pas s'étaler en dehors de la grille. Par évaporation du liquide, les particules en suspension se déposent sur la membrane de carbone. La technique de mise en suspension dans un liquide peut être utilisée pour les minéraux finement divisés tels que les argiles. Les particules se déposent sur la feuille parallèlement à la surface des feuillets.

Une variante de la méthode de broyage consiste à écraser l'échantillon entre deux lames de verre, puis à évaporer une couche mince de carbone sur la lame portant les particules. Selon la méthode décrite ci-dessus, la membrane de carbone et les particules qui y adhèrent sont récupérées par flottation à la surface de l'eau. Les grains les plus gros (et donc non transparents) tombent au fond du récipient. Il est ensuite aisé de "repêcher" avec des grilles porte-objet la membrane et les petites particules qui y adhèrent.

Cette méthode est efficace pour les minéraux n'ayant pas de bon clivage (formation d'esquilles; exemple: quartz), ou pour ceux ayant une direction de clivage dominant (formation de plaquettes parallèles au clivage; exemple: feldspath).

La conductivité est assurée par la membrane de carbone. Cette méthode ne permet, ni de conserver une orientation, ni

de s'intéresser à une zone précise choisie au cours d'une observation optique.

IV. Clivage.

Les minéraux lamellaires tels que phyllosilicates, graphite, molybdénite, peuvent être clivés en tirant sur un ruban adhésif collé sur la surface du minéral. La répétition de cette opération permet d'obtenir des lames d'épaisseur convenable, parallèles au plan de clivage.

V. Bombardement ionique.

L'amincissement d'objet pour microscopie électronique par bombardement ionique a été mis au point par Paulus et Reverchon (1961), et popularisé dans son application aux minéraux par Barber (1970).

Dans une enceinte sous vide secondaire, un flux d'argon est ionisé sous l'effet d'une tension de 2 à 10 kV établie entre une anode et une cathode. Le canon ainsi constitué bombarde la surface d'un disque de l'échantillon avec un faisceau d'ions Ar^+ qui arrachent les atomes superficiels.

Le meilleur rendement du bombardement, de l'ordre de 1 μm par heure, s'obtient pour des incidences de 15 à 20°; un polissage final peut être effectué sous un angle d'incidence plus faible (7 à 10°). Un système de double canon, attaquant l'échantillon sur les deux faces, et la rotation de celui-ci dans son plan améliorent la régularité de l'amincissement. En général, on poursuit le bombardement jusqu'à former un trou dans l'échantillon; les bords du trou constituant des zones minces. L'arrêt du bombardement peut être commandé par un système de détection automatique du trou, mais découle plus généralement d'un contrôle régulier de la transparence à la lumière de l'échantillon grâce à un système lampe-microscope (figure 1).

Cette méthode de préparation, qui nécessite un matériel lourd, et qui est très lente (10 à 50 h par échantillon) a permis l'étude par microscopie électronique de nombreux minéraux: silicates, oxydes, sulfures etc...Cependant, un faisceau ionique trop intense peut détériorer l'échantillon (vitrification); la tension d'accélération et l'intensité du faisceau doivent être déterminées pour chaque type de minéraux; certains minéraux sont détruits par le faisceau (ex: chalcoppyrite). De plus, les ions Ar^+ provoquent des dégâts d'irradiation qui peuvent créer une couche quasi-vitreuse de quelques nm d'épaisseur à la surface de l'échantillon.

La vitesse d'amincissement varie avec la nature du minéral. Lors de l'amincissement d'une roche polyminérale à grains fins, il peut s'avérer difficile d'amincir convenablement les grains de minéraux les plus résistants s'ils sont entourés de grains à amincissement rapide. Les roches à grains fins peuvent se désagréger du fait d'une attaque privilégiée aux joints de grains. Dans le cas d'une roche poreuse, il peut être utile d'imprégner la roche d'une résine qui la consolide, en particulier pour l'étape de l'amincissement par bombardement ionique.

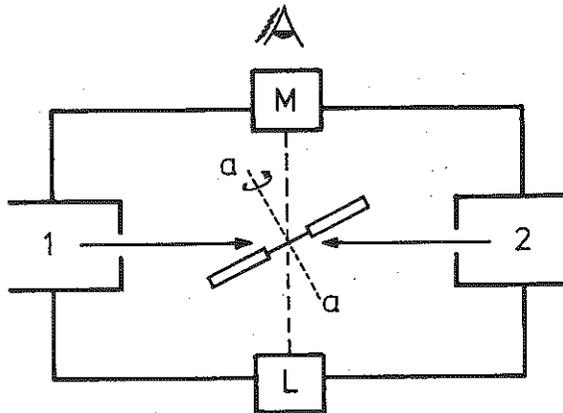


Fig.1 Amincisseur par bombardement ionique.

1 et 2: Faisceaux d'ions Ar^+

M: Microscope

L: Lampe

a-a: Axe de rotation de l'échantillon

VI. Polissage chimique.

Certains minéraux sont solubles dans un solvant (halogénure soluble dans l'eau), ou peuvent être attaqués chimiquement avec dissolution des produits de la réaction (carbonates en solution acide). Le solvant ou le réactif convenablement dilué peut alors être utilisé pour amincir un échantillon, à partir d'un disque de 3mm. La nature et la dilution du réactif doivent être choisies de manière à éviter des attaques préférentielles rapides aux points d'émergence des défauts à la surface de l'échantillon (Brailion et al., 1974).

VII. Amincissement électrolytique.

L'amincissement électrolytique d'échantillons minéralogiques en vue de l'observation par MET est possible dans quelques cas particuliers lorsque l'échantillon est suffisamment conducteur. Le principe de la méthode est celui de l'anode soluble: l'échantillon à polir est porté à un potentiel positif dans une cellule électrolytique où la cathode est souvent en acier inoxydable. On utilise un montage classique à double jet. Les électrolytes utilisés sont généralement à base d'acide perchlorique mélangé à un liquide de haute viscosité. La valeur optimale de la tension se situe au niveau du palier de la courbe intensité-tension caractéristique de l'élément à polir. La température de l'électrolyte est très importante; les meilleurs résultats sont obtenus entre -5 et -15°C . Enfin, le diaphragme de platine qui limite l'aire polie doit avoir un diamètre d'autant plus réduit que la conductibilité électrique du matériau est plus faible.

Cette méthode d'amincissement a donné de très bons résultats dans les cas de la pyrite, de la marcassite et de la chalcoppyrite. L'électrolyte est une solution à 5 % d'acide perchlorique dans le butoxyéthanol-2; la tension est

comprise entre 15 et 60 V selon le matériau, et le diamètre du diaphragme de platine est d'environ 1,5 mm.

VIII. Ultramicrotomie.

L'emploi des ultramicrotomes est une solution qui donne souvent d'excellents résultats sans toutefois prétendre à l'obtention d'objets d'une finesse extrême. Nous pouvons par cette technique approcher en routine une épaisseur de 50 nm qui est bien souvent suffisante.

Le principal intérêt est toutefois de pouvoir réaliser des coupes dans un minéral inclus dans une résine selon des directions connues et inaccessibles par des méthodes plus simples (par exemple perpendiculairement aux feuillets de graphite ou de phyllosilicates).

Toutes les méthodes sont inspirées de celles employées par les biologistes. Cependant, du fait de la dureté des minéraux, les coupes sont effectuées à l'aide d'un couteau de diamant à une vitesse d'environ 1 mm par seconde. Il ne faut pas non plus négliger une autre différence essentielle des objets: un objet minéral est impénétrable par la résine d'inclusion avec laquelle il ne peut avoir qu'une interface de contact. C'est donc la qualité de cette liaison entre les deux matériaux qui est à considérer pour obtenir de bonnes inclusions.

Deux cas sont à distinguer:

1. Le minéral est indépendant de toute autre matière. Cela signifie que l'on peut accéder à sa surface, le seul obstacle étant éventuellement une couche de gaz ou d'eau. Dans ce cas, nous réalisons d'abord un dégazage de la surface (sous vide), puis un mouillage en phase vapeur (de la résine, si cela est possible, ou, à la rigueur, d'un solvant de celle-ci). Lorsque cette opération est réalisée, on procède à l'imprégnation proprement dite (Tchoubar et al., 1973).

Description de l'appareillage. La figure 2 donne le schéma de principe du montage utilisé. L'échantillon est placé dans l'enceinte E sur un plateau tournant P, commandé de l'extérieur, qui permet d'amener successivement différents porte-échantillons R sous le tube O d'introduction de la solution enrobante. Celle-ci est placée dans l'ampoule A. Le système de pompage sert, soit à réaliser, dans l'enceinte E, un vide de 10^{-2} torr environ (ce qui permet, en particulier d'éliminer l'eau adsorbée par l'échantillon), soit à dégazer le liquide contenu dans l'ampoule A, afin d'éviter la formation de microbulles lors de la polymérisation.

Saturation en phase vapeur. Après séchage de l'échantillon et dégazage de la solution enrobante, on introduit goutte à goutte, par l'orifice B, du MAM (métacrylate de méthyle) monomère dans l'enceinte E, préalablement mise sous vide et isolée du système de pompage. A ce stade de la manipulation, aucun des objets à inclure ne doit se trouver sous l'orifice B, il suffit pour cela de faire tourner convenablement le porte-échantillon R. Cette opération est effectuée le plus lentement possible jusqu'à ce que la pression dans l'enceinte soit égale à la tension de vapeur saturante du méthacrylate de méthyle. L'adsorption de la vapeur de MAM par l'échantillon est ainsi réalisée jusqu'à la saturation de celui-ci.

Inclusion en phase liquide. Chaque porte-échantillon R est amené, à l'aide du plateau tournant P, sous le tube O et rempli de la solution d'enrobage, après équilibrage des pressions dans l'ampoule A et l'enceinte E. La solution d'enrobage est un mélange en poids de 99,75 % de méthacrylate de méthyle monomère et de 0,25 % de 2,2' asobis (2,4 diméthylvaléronitrile) ou Noury-AVN. (D'autres catalyseurs peuvent être employés, avec essais préalables).

Polymérisation. Celle-ci se fait en deux étapes:

- Les porte-échantillons sont placés pendant 24 heures à 60°C , à la pression atmosphérique, dans un dessiccateur, en présence d'une capsule contenant du MAM liquide pour éviter

l'évaporation de la solution enrobante avant le début de sa polymérisation.

- La polymérisation est ensuite poursuivie, en l'absence de MAM liquide, durant 48 heures environ, à 40°C.

2. L'objet microdivisé est associé à un matériau de remplissage de la porosité. C'est par exemple le cas d'une argile hydratée formant une pâte. En général, il est possible d'inclure un tel système en procédant à des échanges successifs entre la résine et un solvant. Cette méthode a été employée par Tessier (1984).

Enfin, dans quelques cas privilégiés, il est possible de couper sans inclusion mais ces cas restent exceptionnels (par exemple, certains métaux).

Matériel nécessaire:

- a) couteau de diamant
- b) appareil pour tailler les pyramides
- c) ultramicrotome
- d) résines: de nombreuses résines sont commercialisées. Le choix sera souvent guidé par des critères de fluidité. En général, le méthacrylate de méthyle, le SPUR ou certaines araldites conviennent.
- e) étuve: il est important d'employer une étuve bien régulée. La polymérisation doit se faire très lentement aux environs de 40°C. Un minimum d'une semaine doit être envisagé.
- f) appareil d'inclusion: nous proposons une solution qui a été utilisée pour l'inclusion de poudres et de fibres. Il est possible de diversifier l'appareillage suivant les besoins. On retiendra les fonctions importantes:
 - Mise sous vide séparément de l'échantillon et du liquide d'inclusion (pour le dégazage).
 - Possibilité d'introduire le monomère pour obtenir la phase vapeur.
 - Mesure de la pression de vapeur.
 - Piège à azote liquide pour protéger la pompe à vide.

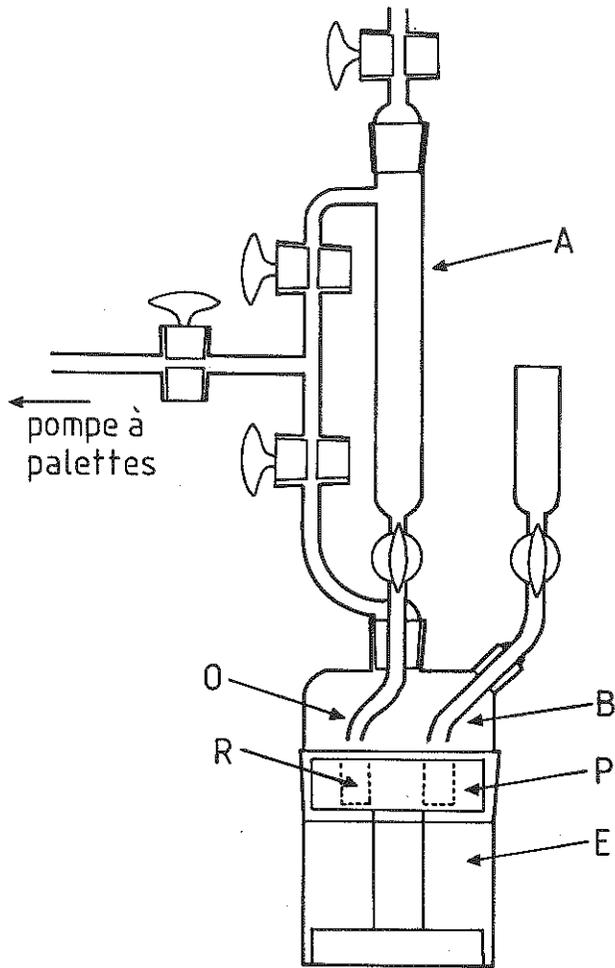


Fig.2 Schéma de montage pour l'inclusion d'échantillons.
(explication des lettres dans le texte)

g) Dissolution du matériel d'inclusion après la coupe. Cette dissolution n'est pas toujours nécessaire; il faut faire un essai. Si on désire éliminer la résine qui peut apporter une diffusion trop importante, on peut, à l'aide d'une pipette, laisser tomber sur la membrane de l'ordre de cinq gouttes de solvant (chloroforme par exemple) depuis une hauteur voisine d'un centimètre.

IX. Carbonation des échantillons non conducteurs.

Les objets non conducteurs ne peuvent pas se débarrasser facilement ni des charges électriques, ni de la chaleur induites par le faisceau incident. L'échantillon ainsi chargé risque de dévier le faisceau électronique et rendre l'observation impossible; l'élévation de température peut conduire à la destruction de l'objet. Il est donc souvent nécessaire de rendre conductrices les préparations d'objets isolants.

Ceci est obtenu par évaporation de carbone sur l'échantillon, sous vide secondaire. La couche déposée a une épaisseur de l'ordre de 5 nm. Certains préconisent le dépôt d'une telle couche sur les deux faces de l'échantillon.

X. Fabrication des objets-test.

Pour étalonner ou tester les caractéristiques d'un microscope électronique, certains types d'objets sont particulièrement recommandés. Ces objets sont aisés à fabriquer mais nécessitent toutefois une certaine pratique des techniques d'évaporation, ce qui peut justifier l'achat d'objets tout préparés.

1) Test de résolution - Echantillon de graphite.

Le graphite naturel, de Madagascar ou de Ceylan, est un excellent objet test. On le prépare en suivant la méthode ci-dessous:

- Broyer un petit fragment de graphite dans un mortier en agate. Ce premier broyage demande une dizaine de minutes.

- A l'aide d'un scalpel, gratter ce qui peut se détacher du mortier et du pilon, et éliminer ces fragments grossiers.

- Conserver le graphite très fin qui a collé au mortier et le broyer à nouveau longuement.

- Reprendre les opérations précédentes une ou deux fois.

- Lorsque le broyage est terminé, faire passer le graphite dans de l'eau distillée. Agiter fortement.

- Utiliser des ultrasons pour séparer les particules; on doit obtenir très nettement une suspension.

- Laisser décanter les plus grosses particules.

- A l'aide d'une micropipette, préparer la grille.

Le graphite est hexagonal, groupe de symétrie $C 6/mmc$, avec les paramètres $a = 2,461 \text{ \AA}$ et $c = 6,708 \text{ \AA}$.

On peut également utiliser des échantillons standard de carbone black ou de noir d'acétylène. En général, ce sont les franges à $3,35 \text{ \AA}$ entre plans de graphite qui sont recherchées pour le test de haute résolution.

2) Test de résolution - Couche d'or

L'or est cubique, groupe de symétrie $Fm\bar{3}m$, avec $a = 4,078 \text{ \AA}$. L'or est utilisé pour évaluer une résolution voisine de 2 \AA (d_{200}) ou $1,44 \text{ \AA}$ (d_{220}). La fabrication des monocristaux ultra-fins (30 \AA à 40 \AA) nécessaires à ces observations est très délicate; deux méthodes sont possibles:

- Evaporation d'or sur un substrat monocristallin de NaCl fraîchement clivé et chauffé à 460°C sous vide pendant l'évaporation d'or. On obtient souvent des cristaux un peu trop épais.

- Une autre technique consiste à évaporer d'abord un film d'aluminium d'épaisseur voisine de 100 nm avec la méthode ci-dessus. Sur ce film d'aluminium, on évapore de l'or (épaisseur voisine de 4 nm). L'aluminium est ensuite attaqué par de l'acide nitrique dilué à 50% .

Le film restant est lavé à l'eau distillée puis déposé sur un support classique à trous.

3) Test de rotation de l'image - Echantillon de MoO_3

On utilise le trioxyde de molybdène, orthorhombique. Ce cristal se présente sous forme de plaquettes parallèles à (010) et allongées selon $[001]$. Les paramètres dans ce plan sont :

$$a = 3,962 \text{ \AA}; c = 3,697 \text{ \AA} \quad (b = 13,858 \text{ \AA})$$

Le groupe de symétrie Pbnm autorise les réflexions h0l pour $h + l = 2n$.

On superpose l'image de la particule et le diagramme de diffraction, ce qui permet une mesure très précise de la rotation.

La préparation de l'objet est très simple:

- Par oxydation: on chauffe un fil de molybdène (diamètre de l'ordre de 2 mm) par effet joule, à l'air ou dans un flux d'oxygène. Il se forme une fumée de MoO_3 . On évitera toute turbulence résultant de courant d'air. Le dépôt se fait en passant une membrane de carbone dans cette fumée (dont on ajuste l'importance pour contrôler la concentration en microcristaux).

- Emploi d'une solution de MoO_3 . On dépose une goutte de la solution sur une membrane de carbone; la concentration de la solution et la vitesse d'évaporation de la goutte sont à contrôler.

4) Test de longueur de camera (ou de constante de diffraction) - Echantillon d'or ou d'aluminium polycristallins

Il s'agit d'étalonner le microscope afin de pouvoir déduire de la distance R entre deux taches du diagramme de diffraction, la distance interréticulaire d correspondante, par la relation: $d.R = L\lambda$.

Cette constante de diffraction dépend de l'ouverture du diaphragme condenseur, de la position de l'objet et du réglage de la mise au point. Ces paramètres doivent donc

être vérifiés, avant l'étalonnage et avant de prendre un cliché de diffraction.

On obtient les objets test (or ou aluminium) par évaporation sur une surface fraîchement clivée de NaCl ou sur une lamelle de verre dont il faut les séparer en les plongeant dans une solution de HF à 1%. Un diagramme de diffraction obtenu avec un échantillon d'or est présenté figure 4 du chapitre II "Diffraction" de ce volume. Il faut éviter la formation de microcristaux en forme de plaquettes car ils confèrent à la préparation une orientation préférentielle qui entraîne la disparition de certains anneaux de diffraction attendus.

L'étalonnage peut également être effectué avec des monocristaux de bonne qualité (or ou silicium).

La précision que l'on peut attendre sur les d à partir des mesures sur diagramme de diffraction est faible:

1%. De plus, les anneaux de diffraction sont rarement circulaires; la mesure de leur ellipticité peut être utile pour obtenir des résultats plus précis.

REFERENCES

Barber, D.J. (1970)- Thin foils of non-metals made for electron microscopy by sputter etching. J. of Mat. Sc. , 5, 1-8.

Brailon, P.; Mugnier, J.; Serughetti, J. (1974)- Transmission electron microscope observations of dislocations in calcite single crystals. Cryst. Lattice Defects, 5, 73-78.

Harris, W.J. (1962)- Holey films for electron microscopy. Nature, 196, 499-500.

Paulus, M. et Reverchon, F. (1961)- Dispositif de bombardement ionique pour préparations micrographiques. J. Phys. et Rad., Suppl. 6, 22, 103A-107A.

Tchoubar, C.; Rautureau, M.; Clinard, C.; Ragot, J.P.
(1973)- Technique d'inclusion appliquée à l'étude des
silicates lamellaires et fibreux. J. Microsc., 18, 147-154.

Tessier, D. (1984)- Etude expérimentale de l'organisation
des minéraux argileux. Thèse I.N.R.A. 1984.

OUVRAGES A CONSULTER

Goodhew, P.J. (1985)- Thin foil preparation for electron
microscopy; dans la série des volumes "Practical methods in
electron microscopy" Ed. A.M. Glauert. Elsevier. 206p.

et du même auteur, un fascicule condensé très bien conçu:
Goodhew, P.J. (1984)- Specimen preparation for transmission
electron microscopy of materials; dans la série "Microscopy
handbooks" Oxford University Press. Royal Microscopical
Society. 41p.

TRAVAUX DIRIGES

CHAPITRE XV

LA PROJECTION STEREOGRAPHIQUE

par Nicole DOUKHAN

LA PROJECTION STEREOGRAPHIQUE

Nicole DOUKHAN

Dès que l'on cherche, par microscopie électronique, non seulement à visualiser des défauts, mais à les caractériser (trouver les vecteurs de Burgers des dislocations, l'orientation des lignes, le plan des fautes, l'orientation d'un sous-joint, etc...), on est amené à se servir d'un outil très commode, qui évite de faire de la géométrie dans l'espace. Cet outil, c'est la projection stéréographique, qui permet de représenter sur une figure plane, une configuration spatiale de droites et de plans, de telle façon que l'on puisse faire des mesures angulaires.

1) Méthode de projection

Elle est indiquée sur la figure 1. Une direction OP de l'espace est représentée par un point p dans le plan de projection. Il faut noter que les points contenus dans le cercle de centre O correspondent aux directions OP du demi-espace supérieur. La méthode de projection, qui est une inversion, conserve les angles.

2) Réseau de Wulf

C'est la projection d'une sphère graduée (tous les deux degrés par exemple) par des méridiens et des parallèles, dans le cas où le plan de projection est parallèle à l'axe Nord-Sud du globe. Méridiens et parallèles se projettent suivant des cercles appelés respectivement grands cercles et petits cercles (figure 2).

3) Exercices

a) soient deux directions OP et OQ, dont les points représentatifs sont p et q sur la projection stéréographique. Faire tourner OQ autour de OP d'un angle donné θ . On considèrera d'abord le cas où OP est horizontale (p sur la circonférence de la projection stéréographique).

Méthode : On fait coïncider la direction OP avec l'axe Nord-Sud du réseau de Wulf (par exemple on amène p au pôle Sud) (figure 3). OQ, en tournant autour de OP, se déplace sur un cône de révolution d'axe OP, donc q viendra en q' en se déplaçant de θ sur un petit cercle.

Dans le cas où p ne se trouve pas sur le grand cercle extérieur (figure 4), on commence par l'y amener (par exemple par une rotation de α autour de T, p vient en p_1). Par la même rotation, q vient en q_1 . On est alors ramené au cas précédent : on fait tourner q_1 autour de p_1 de l'angle θ , ce qui donne q'_1 . Et on obtient q' en faisant subir à q'_1 une rotation opposée à la

première, c'est-à-dire une rotation autour de T de $-\alpha$.

b) On connaît les projections stéréographiques de deux directions A et B repérées dans deux grains d'un même matériau : ce sont A_1 et B_1 dans le grain 1 et A_2 et B_2 dans le grain 2. Déterminer l'axe de rotation \vec{n} et l'angle Θ qui font passer d'un grain à l'autre.

Méthode: Dans l'espace, $\vec{A}_1, \vec{A}_2, \vec{B}_1, \vec{B}_2$ sont des génératrices de cônes de révolution de même axe \vec{n} . Si on coupe ces cônes par un plan perpendiculaire à \vec{n} , ce plan contient les directions $\vec{A}_1 - \vec{A}_2$ et $\vec{B}_1 - \vec{B}_2$. D'où la méthode, en projection stéréographique (figure 5) : on trace le grand cercle passant par A_1 et A_2 , on place la direction $(A_1 - A_2)$, à 90° de la bissectrice $(A_1 + A_2)$. On place de même $(B_1 - B_2)$. Le grand cercle passant par $(A_1 - A_2)$ et $(B_1 - B_2)$ a comme pôle la direction \vec{n} cherchée. (Dans le cas particulier où $(A_1 - A_2)$ et $(B_1 - B_2)$ sont confondus, \vec{n} se trouve alors à l'intersection des plans (A_1, B_1) et (A_2, B_2)).

Pour connaître Θ , on amène \vec{n} sur le grand cercle par une rotation (T, α) . La même opération transforme A_1 en A'_1 et A_2 en A'_2 . L'angle Θ est mesuré entre A'_1 et A'_2 sur un petit cercle.

4) Projections de référence

Il est indispensable d'avoir pour chaque matériau étudié une (ou plusieurs) projection de référence ou figure de pôles. C'est la projection stéréographique des normales aux plans denses de la structure sur un plan de projection donné, généralement un plan d'indices simples, (001) ou (110), etc...

Exercice : Construire la projection de référence du diopside sur le plan (001). Le diopside $MgCaSi_2O_6$ est monoclinique (C2/c). $a = 0,9746\text{nm}$; $b = 0,8899\text{nm}$; $c = 0,5251\text{nm}$; $\beta = 105,63^\circ$. Les angles entre plans simples - ou entre leurs normales - sont donnés dans l'annexe 1. Ils ont été calculés à l'aide des formules données dans l'annexe 2. La figure 6 représente la projection sur (001) du diopside. On peut l'utiliser par exemple pour trouver l'angle entre les plans (101) et (011). La mesure donne 38° (l'angle calculé vaut $37,64^\circ$).

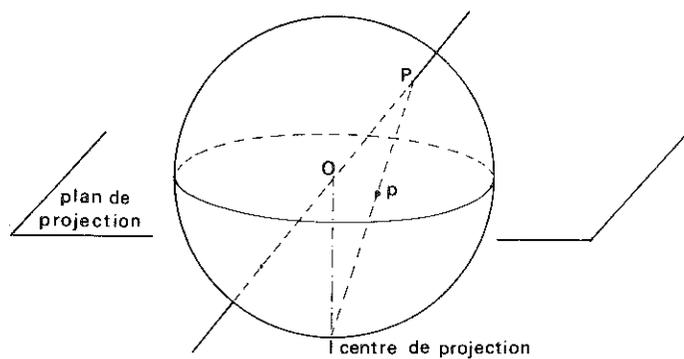


Figure 1 . Projection stéréographique : une direction OP passant par le centre de la sphère, est représentée par un point p du plan de projection

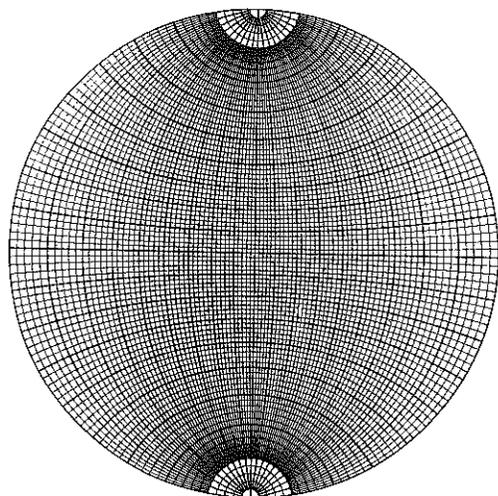


Figure 2 . Réseau de Wulf

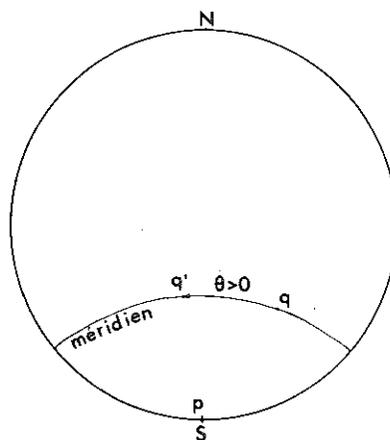


Figure 3 . Rotation autour d'une direction appartenant au plan de projection.

Annexe 1

Table des angles entre quelques plans cristallographiques dans le diopside ($\text{MgCaSi}_2\text{O}_6$) (les angles sont les mêmes pour (hkl) et $(h\bar{k}l)$).

(hkl)	angle avec (001)	angle avec (010)	angle avec (100)
100	74,37	90	0
010	90	0	90
001	0	90	74,37
110	79,32	43,48	46,52
$\bar{1}01$	31,26	90	105,63
101	24,37	90	50
011	29,61	60,39	76,45
$\bar{1}11$	41,99	60,39	103,54
111	33,90	65,68	54,14
210	76,21	62,20	27,80
$\bar{2}01$	55,63	90	130
201	38,81	90	35,56
120	83,37	25,36	64,64
021	48,66	41,34	79,75
012	15,86	74,14	74,98
102	13,60	90	60,78
$\bar{1}02$	15,63	90	90
$\bar{2}11$	59,04	65,68	125,86
211	42,52	71,06	39,70
$\bar{1}21$	55,66	41,34	100,25
121	47,49	47,89	61,52

Annexe 2 : Formules utiles pour le calcul des distances interréticulaires et des angles entre plans et entre directions dans des cristaux de diverses symétries.

Ces formules sont extraites du livre Interpretation of electron diffraction patterns, de ANDREWS et al. , Adam Hilger Ltd. , Londres (1967). De nombreuses projections de références et des tables d'angles entre plans y sont donnés pour diverses structures cristallines.

Crystal system		Interplanar spacing of the (hkl) plane
Cubic	$a = b = c$ $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	$\frac{1}{d^2} = \frac{1}{a^2}(h^2 + k^2 + l^2)$
Tetragonal	$a = b \neq c$ $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	$\frac{1}{d^2} = \frac{1}{a^2}(h^2 + k^2) + \frac{1}{c^2}(l^2)$
Orthorhombic	$a \neq b \neq c$ $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	$\frac{1}{d^2} = \frac{1}{a^2}(h^2) + \frac{1}{b^2}(k^2) + \frac{1}{c^2}(l^2)$
Hexagonal	$a = b \neq c$ $\alpha = \beta = 90^\circ; \gamma = 120^\circ$	$\frac{1}{d^2} = \frac{4}{3a^2}(h^2 + hk + k^2) + \frac{1}{c^2}(l^2)$
Rhombohedral	$a = b = c$ $\alpha = \beta = \gamma < 120^\circ \neq 90^\circ$	$\frac{1}{d^2} = \frac{1}{a^2} \left\{ \frac{(1 + \cos \alpha)[(h^2 + k^2 + l^2) - (1 - \tan^2 \frac{1}{2}\alpha)(hk + kl + lh)]}{(1 + \cos \alpha - 2 \cos^2 \alpha)} \right\}$
Monoclinic	$a \neq b \neq c$ $\alpha = \gamma = 90^\circ \neq \beta$	$\frac{1}{d^2} = \frac{1}{a^2} \left(\frac{h^2}{\sin^2 \beta} \right) + \frac{1}{b^2}(k^2) + \frac{1}{c^2} \left(\frac{l^2}{\sin^2 \beta} \right) - \frac{2hl \cos \beta}{ac \sin^2 \beta}$
Triclinic	$a \neq b \neq c$ $\alpha \neq \beta \neq \gamma$	$\frac{1}{d^2} = \frac{1}{V^2}(s_{11}h^2 + s_{22}k^2 + s_{33}l^2 + 2s_{12}hk + 2s_{23}kl + 2s_{31}lh)$

where
 $V^2 = a^2b^2c^2(1 - \cos^2 \alpha - \cos^2 \beta - \cos^2 \gamma + 2 \cos \alpha \cos \beta \cos \gamma)$
 and
 $s_{11} = b^2c^2 \sin^2 \alpha$
 $s_{22} = a^2c^2 \sin^2 \beta$
 $s_{33} = a^2b^2 \sin^2 \gamma$
 $s_{12} = abc^2(\cos \alpha \cos \beta - \cos \gamma)$
 $s_{23} = a^2bc(\cos \beta \cos \gamma - \cos \alpha)$
 $s_{31} = ab^2c(\cos \gamma \cos \alpha - \cos \beta)$

Annexe 2 (Suite)

Crystal system	Angle ϕ between $(h_1k_1l_1)$ and $(h_2k_2l_2)$	Angle ρ between $[u_1v_1w_1]$ and $[u_2v_2w_2]$
Cubic $a = b = c$ $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	$\cos \phi = \frac{h_1h_2 + k_1k_2 + l_1l_2}{\sqrt{[(h_1^2 + k_1^2 + l_1^2)(h_2^2 + k_2^2 + l_2^2)']}}$	$\cos \rho = \frac{u_1u_2 + v_1v_2 + w_1w_2}{\sqrt{[(u_1^2 + v_1^2 + w_1^2)(u_2^2 + v_2^2 + w_2^2)']}}$
Tetragonal $a = b \neq c$ $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	$\cos \phi = \frac{\frac{1}{a^2}(h_1h_2 + k_1k_2) + \frac{1}{c^2}l_1l_2}{\sqrt{\left\{ \left[\frac{1}{a^2}(h_1^2 + k_1^2) + \frac{1}{c^2}l_1^2 \right] \left[\frac{1}{a^2}(h_2^2 + k_2^2) + \frac{1}{c^2}l_2^2 \right] \right\}}}$	$\cos \rho = \frac{a^2(u_1u_2 + v_1v_2) + c^2w_1w_2}{\sqrt{[a^2(u_1^2 + v_1^2) + c^2w_1^2][a^2(u_2^2 + v_2^2) + c^2w_2^2]}}$
Orthorhombic $a \neq b \neq c$ $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$	$\cos \phi = \frac{\frac{1}{a^2}h_1h_2 + \frac{1}{b^2}k_1k_2 + \frac{1}{c^2}l_1l_2}{\sqrt{\left[\left(\frac{1}{a^2}h_1^2 + \frac{1}{b^2}k_1^2 + \frac{1}{c^2}l_1^2 \right) \left(\frac{1}{a^2}h_2^2 + \frac{1}{b^2}k_2^2 + \frac{1}{c^2}l_2^2 \right) \right]}}$	$\cos \rho = \frac{a^2u_1u_2 + b^2v_1v_2 + c^2w_1w_2}{\sqrt{[(a^2u_1^2 + b^2v_1^2 + c^2w_1^2)(a^2u_2^2 + b^2v_2^2 + c^2w_2^2)']}}$
Hexagonal $a = b \neq c$ $\alpha = \beta = 90^\circ; \gamma = 120^\circ$	$\cos \phi = \frac{h_1h_2 + k_1k_2 + \frac{1}{2}(h_1k_2 + k_1h_2) + \frac{3}{2}\frac{a^2}{c^2}l_1l_2}{\sqrt{\left[\left(h_1^2 + k_1^2 + h_1k_1 + \frac{3}{2}\frac{a^2}{c^2}l_1^2 \right) \left(h_2^2 + k_2^2 + h_2k_2 + \frac{3}{2}\frac{a^2}{c^2}l_2^2 \right) \right]}}$	$\cos \rho = \frac{u_1u_2 + v_1v_2 - \frac{1}{2}(u_1v_2 + v_1u_2) + \frac{c^2}{a^2}w_1w_2}{\sqrt{\left[\left(u_1^2 + v_1^2 - u_1v_1 + \frac{c^2}{a^2}w_1^2 \right) \left(u_2^2 + v_2^2 - u_2v_2 + \frac{c^2}{a^2}w_2^2 \right) \right]}}$
Rhombohedral $a = b = c$ $\alpha = \beta = \gamma < 120^\circ \neq 90^\circ$	Convert to corresponding hexagonal indices (see p. 78) and use the above two formulae.	
Monoclinic $a \neq b \neq c$ $\alpha = \gamma = 90^\circ \neq \beta$	$\cos \phi = \frac{\frac{1}{a^2}h_1h_2 + \frac{1}{b^2}k_1k_2 \sin^2 \beta + \frac{1}{c^2}l_1l_2 - \frac{1}{ac}(l_1h_2 + l_2h_1) \cos \beta}{\sqrt{\left[\left(\frac{1}{a^2}h_1^2 + \frac{1}{b^2}k_1^2 \sin^2 \beta + \frac{1}{c^2}l_1^2 - \frac{2h_1l_1}{ac} \cos \beta \right) \times \left(\frac{1}{a^2}h_2^2 + \frac{1}{b^2}k_2^2 \sin^2 \beta + \frac{1}{c^2}l_2^2 - \frac{2h_2l_2}{ac} \cos \beta \right) \right]}}$	$\cos \rho = \frac{a^2u_1u_2 + b^2v_1v_2 + c^2w_1w_2 + ac(w_1u_2 + u_1w_2) \cos \beta}{\sqrt{\left[(a^2u_1^2 + b^2v_1^2 + c^2w_1^2 + 2acu_1w_1 \cos \beta) \times (a^2u_2^2 + b^2v_2^2 + c^2w_2^2 + 2acau_2w_2 \cos \beta) \right]}}$
Triclinic $a \neq b \neq c$ $\alpha \neq \beta \neq \gamma$	$\cos \phi = \frac{F}{A_{h_1k_1l_1} \cdot A_{h_2k_2l_2}}$ where $F = h_1h_2b^2c^2 \sin^2 \alpha + k_1k_2a^2c^2 \sin^2 \beta + l_1l_2a^2b^2 \sin^2 \gamma + abc^2(\cos \alpha \cos \beta - \cos \gamma)(k_1h_2 + h_1k_2) + ab^2c(\cos \gamma \cos \alpha - \cos \beta)(h_1l_2 + l_1h_2) + a^2bc(\cos \beta \cos \gamma - \cos \alpha)(h_1l_2 + l_1h_2)$ and $A_{hki} = \sqrt{\left[\begin{aligned} &h^2b^2c^2 \sin^2 \alpha + k^2a^2c^2 \sin^2 \beta + l^2a^2b^2 \sin^2 \gamma \\ &+ 2hkabc^2(\cos \alpha \cos \beta - \cos \gamma) \\ &+ 2hlab^2c(\cos \gamma \cos \alpha - \cos \beta) \\ &+ 2kila^2bc(\cos \beta \cos \gamma - \cos \alpha) \end{aligned} \right]}$	$\cos \rho = \frac{L}{I_{u_1v_1w_1} \cdot I_{u_2v_2w_2}}$ where $L = a^2u_1u_2 + b^2v_1v_2 + c^2w_1w_2 + bc(v_1w_2 + w_1v_2) \cos \alpha + ac(v_1u_2 + u_1w_2) \cos \beta + ab(u_1v_2 + v_1u_2) \cos \gamma$ and $I_{uvw} = \sqrt{\left[\begin{aligned} &a^2u^2 + b^2v^2 + c^2w^2 \\ &+ 2bcvw \cos \alpha \\ &+ 2acuw \cos \beta \\ &+ 2abuv \cos \gamma \end{aligned} \right]}$

TRAVAUX DIRIGES

CHAPITRE XVI

UTILISATION DE LA PLATINE
GONIOMETRIQUE

par Nicole DOUKHAN

UTILISATION D'UNE PLATINE GONIOMETRIQUE

Nicole DOUKHAN

Pour les étages goniométriques de type "side-entry", il y a deux sortes de porte-objets courants : le porte-objet "tilt-rotation" et le porte-objet "double tilt".

Suivant l'expérience envisagée, l'un ou l'autre peut être le plus pratique. On étudie donc successivement les opérations à effectuer dans les deux cas.

I - Porte-objet "tilt-rotation"

Deux rotations du support de l'échantillon sont possibles (figure 1)

- α , rotation autour de Oz, normale au plan du support.
- τ , rotation autour de OX, axe du porte-objet, solidaire du microscope.

cope.

Convention

On construit la projection stéréographique de l'échantillon en prenant comme plan de projection le plan "moyen" de la lame mince, c'est-à-dire le plan crystallographique qui est horizontal lorsque l'angle de tilt τ est nul.

L'axe Oz, normal au plan de projection, est parallèle à OZ-direction et sens de propagation des électrons - lorsque le tilt est nul; l'axe OX est confondu avec OX - axe du porte-objet dirigé vers l'extérieur du microscope - lorsque $\alpha = 0$; l'axe Oy complète le trièdre direct. (figure 2).

Le repère Oxyz est donc lié à la lame mince, ou à son support, tandis que OXYZ est lié au microscope.

Méthode

On a mis un plan réflecteur en conditions de Bragg en réalisant, par exemple, la rotation α ($=50^\circ$) et le tilt τ ($=-20^\circ$). La normale à ce plan est repérée sur le cliché de diffraction* par le vecteur \vec{g} qui fait avec OX (ou plus exactement avec la projection de OX sur le cliché) l'angle β ($=+80^\circ$) (figure 3).

Après rotation α et le tilt τ , toutes les normales qui sont maintenant horizontales se trouvaient sur le grand cercle de normale Z; parmi elles, \vec{g} est la direction qui fait l'angle β avec OX (figure 4).

Après avoir ainsi placé plusieurs directions \vec{g} connues, on peut construire la projection stéréographique complète. On peut ensuite chercher les conditions α, τ qui amèneront une réflexion désirée etc...

* On travaille sur des tirages photographiques, de sorte que l'on regarde l'image du côté des z positifs, et la demi-sphère de projection est alors la demi-sphère supérieure.

Exemple : On a obtenu 3 vecteurs de diffraction, dans le diopside, pour les conditions suivantes :

\vec{g}_1 (type 020) pour $\alpha = 50^\circ$, $\tau = -20^\circ$, $\beta = +80^\circ$

\vec{g}_2 (type 021) pour $\alpha = 50^\circ$, $\tau = +22^\circ$, $\beta = +80^\circ$

\vec{g}_3 (type 220) pour $\alpha = 120^\circ$, $\tau = -25^\circ$, $\beta = +100^\circ$

Les reporter sur une projection stéréographique, les indexer de façon cohérente. Reconstruire la projection complète du diopside, ou au moins placer les pôles 001 et 100. Comment orienter la lame mince pour obtenir la réflexion 100 ? Il y a bien sûr plusieurs choix possibles (α, τ, β), parmi lesquels on choisira celui qui correspond à un tilt le plus petit possible et qui n'amène pas de réflexions parasites (conditions dites de 2 ondes). La solution est donnée sur la figure 5.

II - Porte-objet "double tilt"

Deux rotations du support de l'échantillon sont possibles (figure 6).

- τ_x , autour de OX, solidaire du microscope

- τ_y , autour de Oy, solidaire du support de l'échantillon.

Convention

C'est la même que dans le cas précédent: le plan de projection est le plan cristallographique horizontal à tilts nuls ($\tau_x=0$, $\tau_y=0$)

Méthode

On a mis un plan réflecteur en conditions de Bragg par les tilts $\tau_x (= -20^\circ)$ et $\tau_y (= +10^\circ)$. La normale à ce plan est encore repérée sur le cliché de diffraction par le vecteur \vec{g} qui fait avec OX l'angle $\beta (= +80^\circ)$ (figure 3).

Comme précédemment, on cherche le cercle contenant toutes les normales qui sont devenues horizontales après les tilts τ_x et τ_y . Ce grand cercle a pour pôle Z, et il contient les directions X et \vec{g} (figure 7). La suite est identique au cas du porte-objet tilt-rotation.

Remarque

On ne peut reporter sur une projection stéréographique que le demi-espace supérieur. Il peut donc arriver que l'on ne puisse pas placer un vecteur \vec{g} sur la projection. On place alors $-\vec{g}$, avec les conventions résumées sur la figure 8.

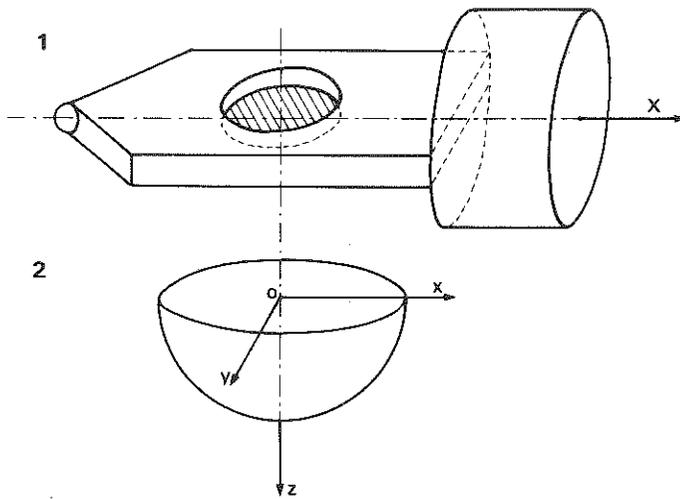


Figure 1 et 2. 1 - Géométrie du porte-objet "tilt-rotation"
2 - Conventions pour la projection stéréographique.

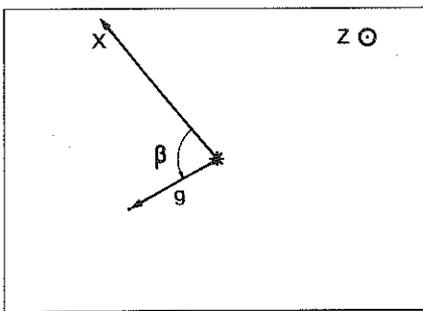


Figure 3. Exemple de cliché de diffraction en 2 ondes (* onde transmise, • : onde diffractée).

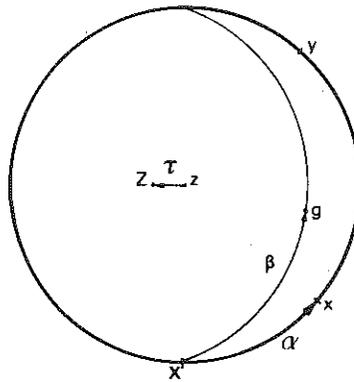


Figure 4. Report sur la projection stéréographique du vecteur \vec{g} de la figure 3, obtenu pour $\alpha=+50^\circ$ et $\tau=-20^\circ$

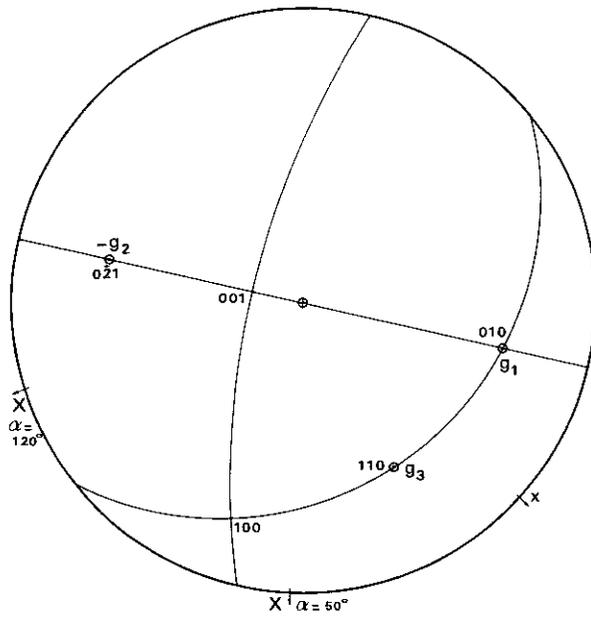


Figure 5. Solution de l'exemple proposé dans le diopside

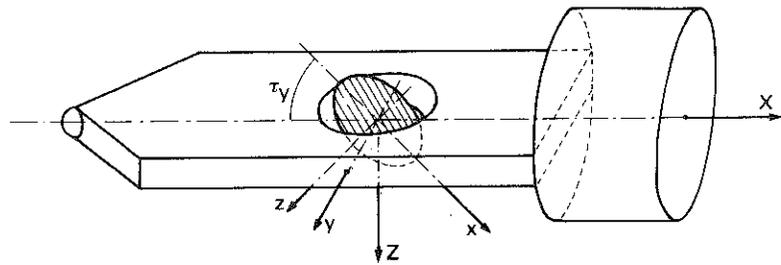


Figure 6. Géométrie du porte-objet "double tilt"

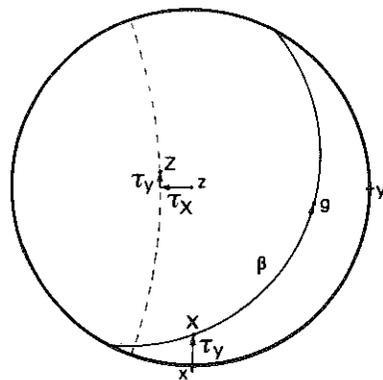


Figure 7. Report sur la projection stéréographique du vecteur \vec{g} de la figure 3, obtenu pour $\tau_x = -20^\circ$ et $\tau_y = +10^\circ$

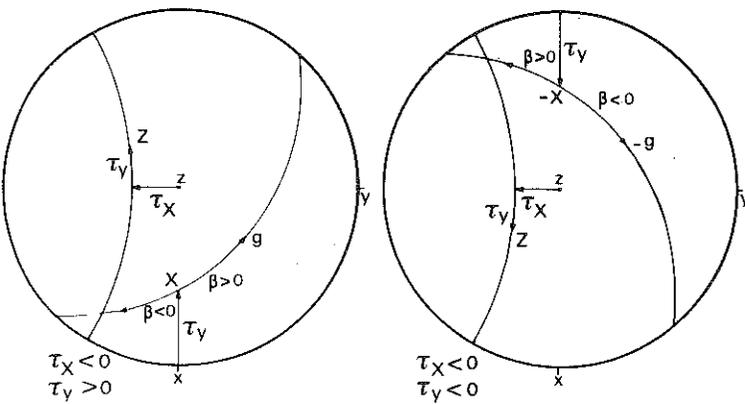
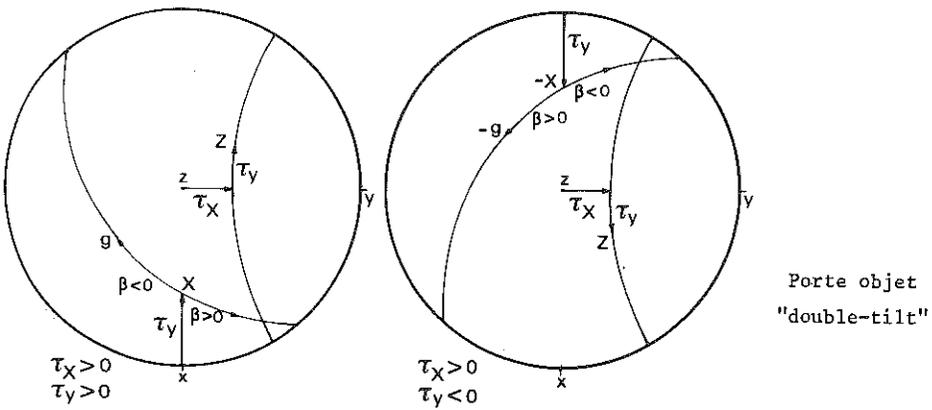
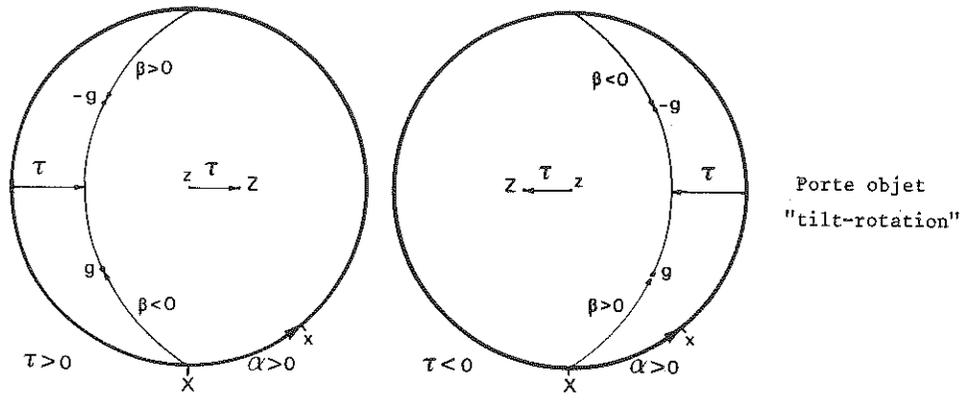


Figure 8. Aide mémoire des conventions pour tirages photographiques

TRAVAUX DIRIGES

CHAPITRE XVII

INDEXATION DE DIAGRAMMES
DE DIFFRACTION

par Madeleine GANDAIS

INDEXATION DE DIAGRAMMES DE DIFFRACTION

Madeleine GANDAIS

Documents

1- Diagrammes de diffraction d'un monocristal de sanidine suivant différentes orientations:

	a	b	c	d
τ_x	-2°	+30°	-16°	+14°
τ_y	+6°	+2°	-18°	+31°

- τ_x et τ_y sont les angles d'inclinaison autour des axes x'x et y'y respectivement.

- Entre a et b, la rangée notée hkl a été conservée.

- Entre a, c et d la rangée notée h'k'l' a été conservée.

- Les quatre clichés ont été pris avec la même longueur de caméra; l'échelle est indiquée sur le cliché d, avec une précision de 2 à 3%.

2- Fiche JPCDS pour la sanidine.

3- Projection stéréographique des axes de zone correspondant à des plans denses du réseau réciproque.

Principe

Un diagramme de diffraction de monocristal est complètement défini par deux vecteurs de base non colinéaires \vec{g}_1 et \vec{g}_2 de coordonnées respectives $h_1 k_1 l_1$ et $h_2 k_2 l_2$, indices de Miller des familles de plans diffractant. Pour un tel diagramme, l'axe de zone $A = [uvw]$ est parallèle au produit vectoriel $\vec{g}_1 \wedge \vec{g}_2$, c'est-à-dire que $u = k_1 l_2 - k_2 l_1$, $v = l_1 h_2 - l_2 h_1$, $w = h_1 k_2 - h_2 k_1$. Il suffit d'indexer deux vecteurs du diagramme pour indexer tout le diagramme. Tout autre vecteur $\vec{g}_3 = a\vec{g}_1 + b\vec{g}_2$ a pour indices $h_3 k_3 l_3$ avec:

$$(1) \quad h_3 = ah_1 + bh_2, \quad k_3 = ak_1 + bk_2, \quad l_3 = al_1 + bl_2$$

Méthode:

(a) Soient \vec{g}_1 et \vec{g}_2 deux vecteurs de base d'un diagramme de diffraction. On mesure leur module et on détermine la distance interréticulaire d des familles de plans correspondant ($d_i = 1 / g_i$).

(b) La fiche JCPDS permet de trouver les indices de Miller des familles de plans correspondant aux distances interréticulaires trouvées, soit $h_1 k_1 l_1$ et $h_2 k_2 l_2$.

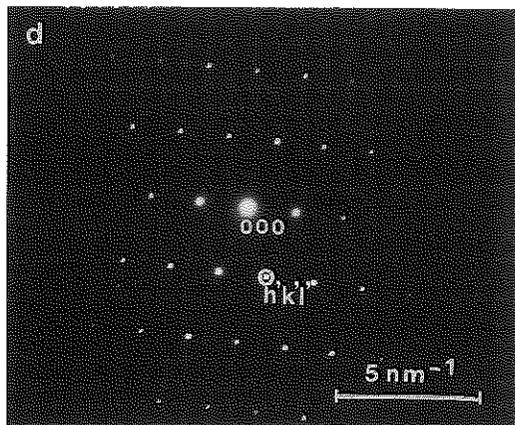
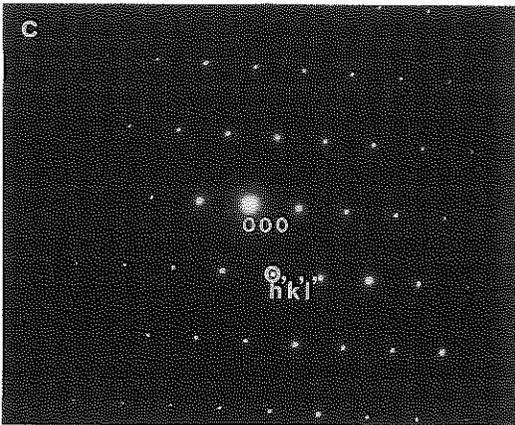
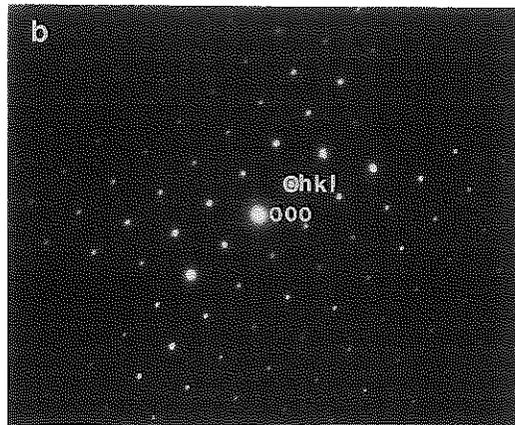
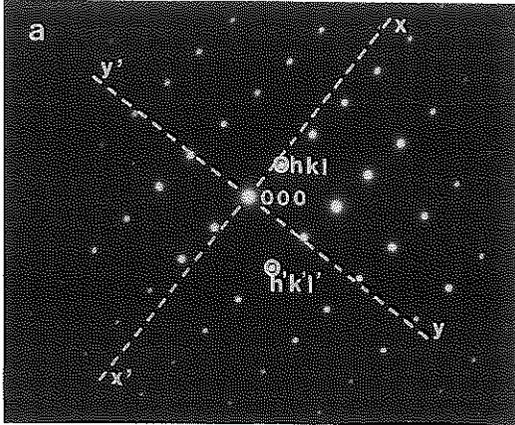
(c) Pour des raisons de symétrie, à une distance d correspondent généralement plusieurs indexations équivalentes. Par exemple dans un cristal cubique, $d_{110} = d_{\bar{1}\bar{1}0} = d_{101} = d_{10\bar{1}} = d_{011} = d_{01\bar{1}}$. L'indexation est cohérente si la relation (1) est satisfaite. En particulier pour les vecteurs:

$$\begin{aligned} \vec{g}_3 &= \vec{g}_1 + \vec{g}_2, & h_3 &= h_1 + h_2, & k_3 &= k_1 + k_2, & l_3 &= l_1 + l_2. \\ \text{ou } \vec{g}_3 &= \vec{g}_1 - \vec{g}_2, & h_3 &= h_1 - h_2, & k_3 &= k_1 - k_2, & l_3 &= l_1 - l_2. \end{aligned}$$

On mesure g_3 et on vérifie sur la fiche JCPDS que $d_{h_3 k_3 l_3} = 1 / g_3$.

(d) Toujours pour des raisons de symétrie, à un diagramme de diffraction donné peuvent correspondre plusieurs ensembles de vecteurs \vec{g} , donc plusieurs axes de zone équivalents. Pour le premier diagramme d'une série, on choisit arbitrairement l'un des ensembles, ce qui revient à fixer un trièdre de référence. Ce choix étant fait, à chacun des autres diagrammes correspond un seul ensemble de vecteurs \vec{g} . Cet ensemble dépend de l'orientation du cristal relativement au trièdre de référence. On le détermine en utilisant la projection stéréographique et en tenant compte des rotations τ_x et τ_y qui ont amené le cristal en position de diffraction.

N.B.: A cause de l'incertitude sur la mesure de g_1 , une valeur d_i peut correspondre à différentes familles de plans dans les cristaux complexes (dans la sanidine par exemple, $d = 0,65\text{nm}$ peut correspondre à d_{110} , d_{020} ou d_{001}). L'ambiguïté est généralement levée après l'opération (c). Sinon, on utilise un second diagramme de diffraction déduit du précédent par rotation du cristal autour d'un des vecteurs \vec{g} .



© Joint Committee on Powder Diffraction Standards 1975

25-618

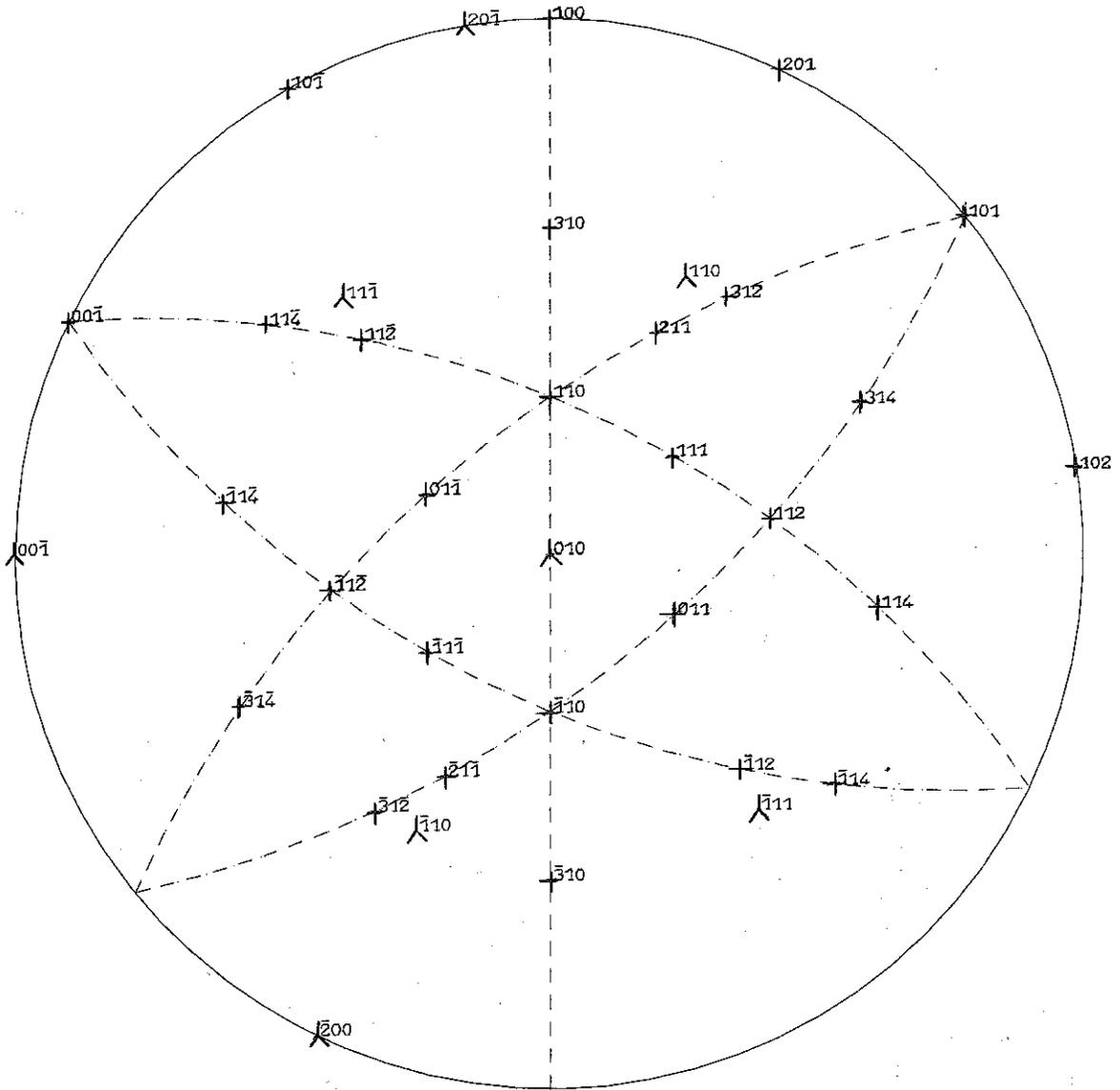
25-618A

d	3.33	3.28	4.24	6.65	KAlSi ₃ O ₈	★
1/1 ₁	100	60	55	6		
Rad. CuKα	λ 1.5405	Filter		Dia.		
Cut off	1/1 ₁	Diffractometer		1/1 cor.		
Ref.	Gubser and Laves, Sch. Min. Petr. Mitt., 47 177-88 (1967); Scheel, Z. Krist., 133 264-72 (1971)					
Sys.	Monoclinic		S.G. C2/m (12)			
a ₀	8.604	b ₀ 13.035	c ₀ 7.175	Δ 0.6601	ε 0.5504	
α	β 116°		γ	Z 4	Dx 2.56	
Ref.	Ibid.		V 723.3Å ³			
εα		nωβ	εγ	Sign		
2V	D	mp	Color			
Ref.						
To replace 10-353. No locality given.						
See following card						
d Å	1/1 ₁	hkl	d Å	1/1 ₁	hkl	
6.65	6	110	2.816	<1	201	
6.52	4	020	2.799	2	311	
6.45	1	001	2.766	14	132	
5.87	1	111	2.608	17	312	
4.58	1	021	2.585		221	
4.24	55	201	2.583	35	241	
3.95	10	111	2.549	6	112	
3.87	6	200	2.529	8	310	
3.79	55	130	2.492	3	240	
3.62	11	131	2.471	<1	150	
3.55	12	221	2.423	7	151	
3.46	30	112	2.392	11	331	
3.33	100	220	2.372	<1	203	
3.28	60	202	2.317	5	113	
3.26	18	040	2.313		242	
3.23	50	002	2.270	8	332	
2.997	30	131	2.230	<1	132	
2.933	7	222	2.229		223	
2.909	14	041	2.217	2	330	
2.890	6	022	2.206	2	151	

FORM M-2

3

PROJECTION STEREOGRAPHIQUE
SANIDINE



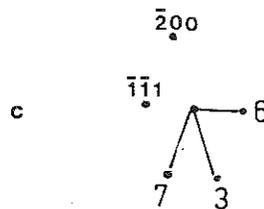
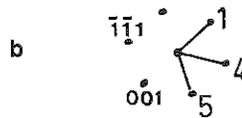
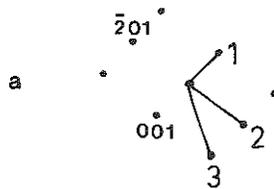
+ Directions directes
λ Directions réciproques

Application à la sanidine.

Dans le système monoclinique on a: $d(hkl) = d(h\bar{k}l)$.

Les mesures de g_i et les valeurs de d_i sont reportées dans le tableau suivant. Le diagramme de diffraction est schématisé à côté, avec l'indice i (de 1 à 7) pour le vecteur \vec{g} et l'indexation cristallographique pour le vecteur $-\vec{g}$.

	g (nm^{-1})	d (nm)	hkl (possibles)	
<u>cliché a</u>	1	1,54	0,65	110 (ou $1\bar{1}0$) 020 001
	2	2,34	0,43	$20\bar{1}$
	3	2,57	0,39	111 (ou $1\bar{1}1$) 200 130 (ou $1\bar{3}0$)
<u>cliché b</u>	4	1,69	0,59	$1\bar{1}\bar{1}$ (ou $1\bar{1}\bar{1}$)
	5	1,54	0,65	110 (ou $1\bar{1}0$) 020 001
<u>cliché c</u>	6	1,69	0,59	$1\bar{1}\bar{1}$ (ou $1\bar{1}\bar{1}$)
	7	2,45	0,41	111 (ou $1\bar{1}1$) $20\bar{1}$



cliché a: Deux ensembles cohérents:

$$(1): \vec{g}_1 = 00\bar{1}, \vec{g}_2 = 20\bar{1}, \vec{g}_3 = 200 \text{ et l'ensemble des vecteurs opposés, } A = [010]$$

Choisissons l'ensemble (1) ce qui définit le trièdre de référence pour le réseau réciproque.

cliché b: Deux ensembles cohérents, équivalents par symétrie:

$$(2): \vec{g}_1 = 00\bar{1}, \vec{g}_4 = 1\bar{1}\bar{1}, \vec{g}_5 = 110, A = [\bar{1}10]$$

$$(2'): \vec{g}_1 = 00\bar{1}, \vec{g}_4 = 1\bar{1}\bar{1}, \vec{g}_5 = 1\bar{1}0, A = [110]$$

L'ensemble (2) correspond à l'orientation du cristal pour le cliché b ($\tau_x = +30^\circ, \tau_y = +2^\circ$)

clichés c et d: deux ensembles cohérents, équivalents par symétrie:

$$(3): \vec{g}_3 = 200, \vec{g}_6 = 1\bar{1}\bar{1}, \vec{g}_7 = 111, A = [01\bar{1}]$$

$$(3'): \vec{g}_3 = 200, \vec{g}_6 = 11\bar{1}, \vec{g}_7 = 1\bar{1}1, A = [011]$$

La solution (3) correspond à l'orientation du cristal pour le cliché c ($\tau_x = -16^\circ, \tau_y = -18^\circ$) et la solution (3') correspond à celle du cliché d ($\tau_x = +14^\circ, \tau_y = +31^\circ$).

TRAVAUX DIRIGES

CHAPITRE XVIII

DETERMINATION DE L'ORIENTATION
D'UNE DIRECTION

par Annick GERVAIS

DETERMINATION DE L' ORIENTATION D'UNE DIRECTION

Annick Gervais

○ Notions utilisées:

(a)-Théoriques: Projection stéréographique; représentation d'une direction.

(b)-Expérimentales: Rotation entre une image et le diagramme de diffraction associé; indexation d'un diagramme de diffraction.

○ "Matériel fourni":

(1) Quatre micrographies présentant des dislocations dans du silicium (39095, 39099, 39105, 39106). Les photographies 39105 et 39106 sont respectivement un fond clair (G) et un fond noir (-G) associés à $G=220$ (Pl. 1).

(2) Deux clichés de diffraction (30305 et 30303) ainsi que deux images associées à des défauts plans dans l'olivine (Pl. 2).

(3) Une feuille sur laquelle sont rassemblés les renseignements nécessaires à l'exploitation des clichés. L'orientation A de l'axe d'inclinaison du porte échantillon; le vecteur diffraction g (images prises en condition à 2 ondes); l'orientation du faisceau F. L'angle entre le vecteur diffraction \vec{g} et l'axe A est mesuré sur des clichés de diffraction non fournis; l'angle entre la ligne horizontale des images et l'axe A dépend du grandissement des images; les images de défauts dans le silicium sont prises au même grandissement; les images de défauts dans l'olivine sont effectuées à des grandissements différents.

(4) Une projection standard de pôle [011] d'un cristal cubique. L'échantillon de silicium possède une surface voisine de (011); l'orientation de l'axe d'inclinaison est indiqué sur cette projection.

○ Principe de la détermination :

I. La méthode graphique consiste en une première étape à mesurer les angles entre la trace u_1 d'un défaut sur une image avec l'axe d'inclinaison et le vecteur \vec{g} .

II. Il s'agit ensuite de porter l'ensemble de ces mesures sur la projection stéréographique, c'est à dire:

-la direction du faisceau F

-les directions u_1 et u_2 des traces des dislocations; ces traces u_1 sont repérées soit à partir de l'axe d'inclinaison, soit à partir de la

réflexion G utilisée pour prendre l'image.

III. Dans une troisième étape on dessine le plan de projection d'un défaut sur l'image de pôle F. (ce plan passe par le pôle F et la trace u_i du défaut). Cette étape est renouvelée pour chacune des micrographies et chacun des défauts.

IV. Résultat:

La direction D_i de chaque défaut se trouve à l'intersection des différents plans de projection d'un même défaut; deux projections suffisent pour trouver D_i , la troisième possibilité est utilisée pour confirmer la précédente détermination.

○ Questions:

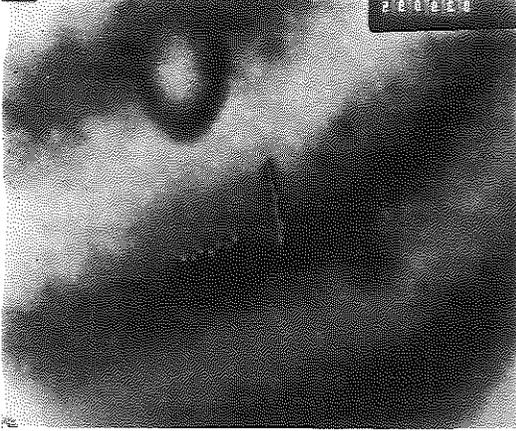
I. Echantillon cubique (silicium). Déterminer l'orientation des deux dislocations.

II. A partir des images en fond clair et fond sombre effectuées dans les mêmes conditions, déterminez l'intersection des dislocations avec la face d'entrée du faisceau d'électrons dans la lame.

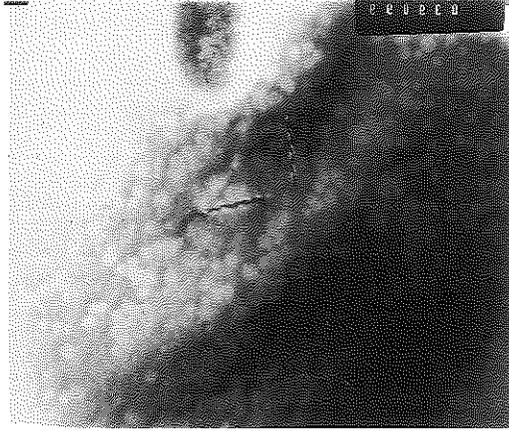
G=220 Fond clair n°39105, Fond sombre n°39106.

III. Olivine. Les images sont prises en conditions à n faisceaux; représentez sur ces micrographies les directions associées du diagramme de diffraction; vous pourrez constater que certains plans de fautes sont normaux à la direction $[001]^*$ du réseau réciproque et d'autres à $[111]^*$.

39095



39099



39105



39106

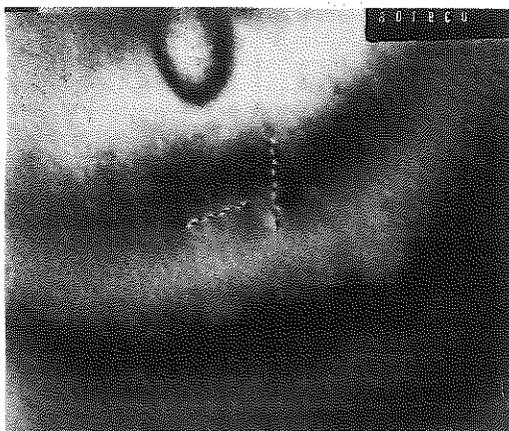


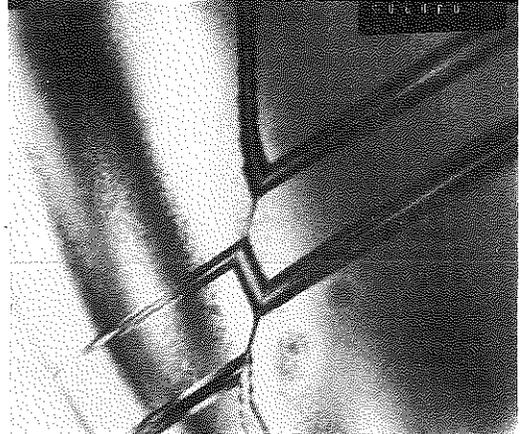
Planche 1. Dislocations dans du silicium.

39095 g = 022
 39099 g = 202
 39105 g = 220 fond clair
 39106 g = 220 fond noir

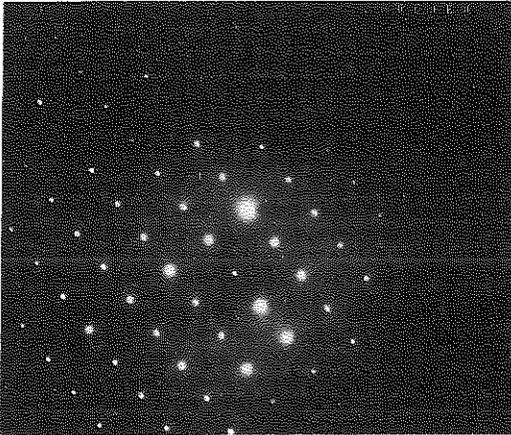
30306



30302



30305



30303

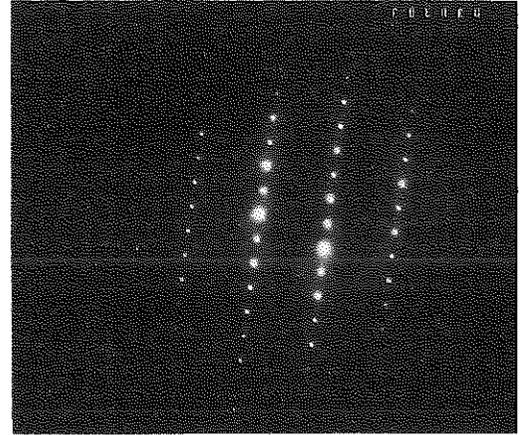
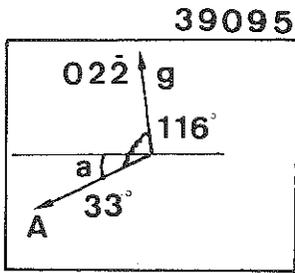
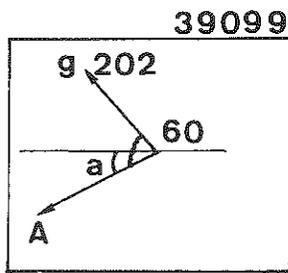


Planche 2. Défauts plans dans l'olivine.
Images de défauts et clichés de
diffraction associés.

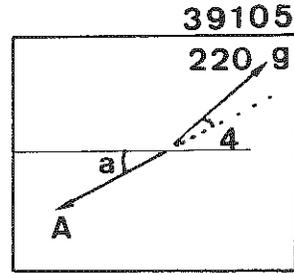
Silicium



$F // [011]$

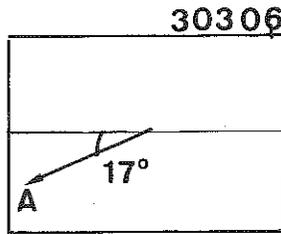
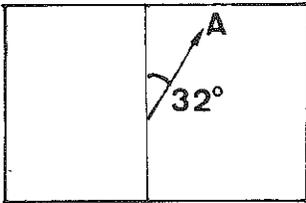


$F // [\bar{1}21]$

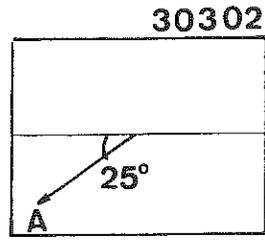


$F // [\bar{1}12]$

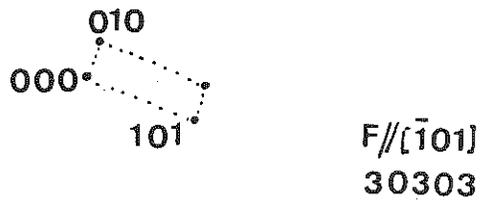
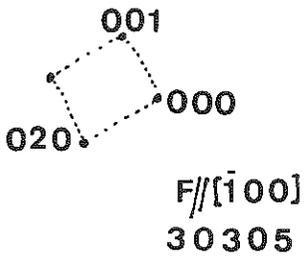
Olivine

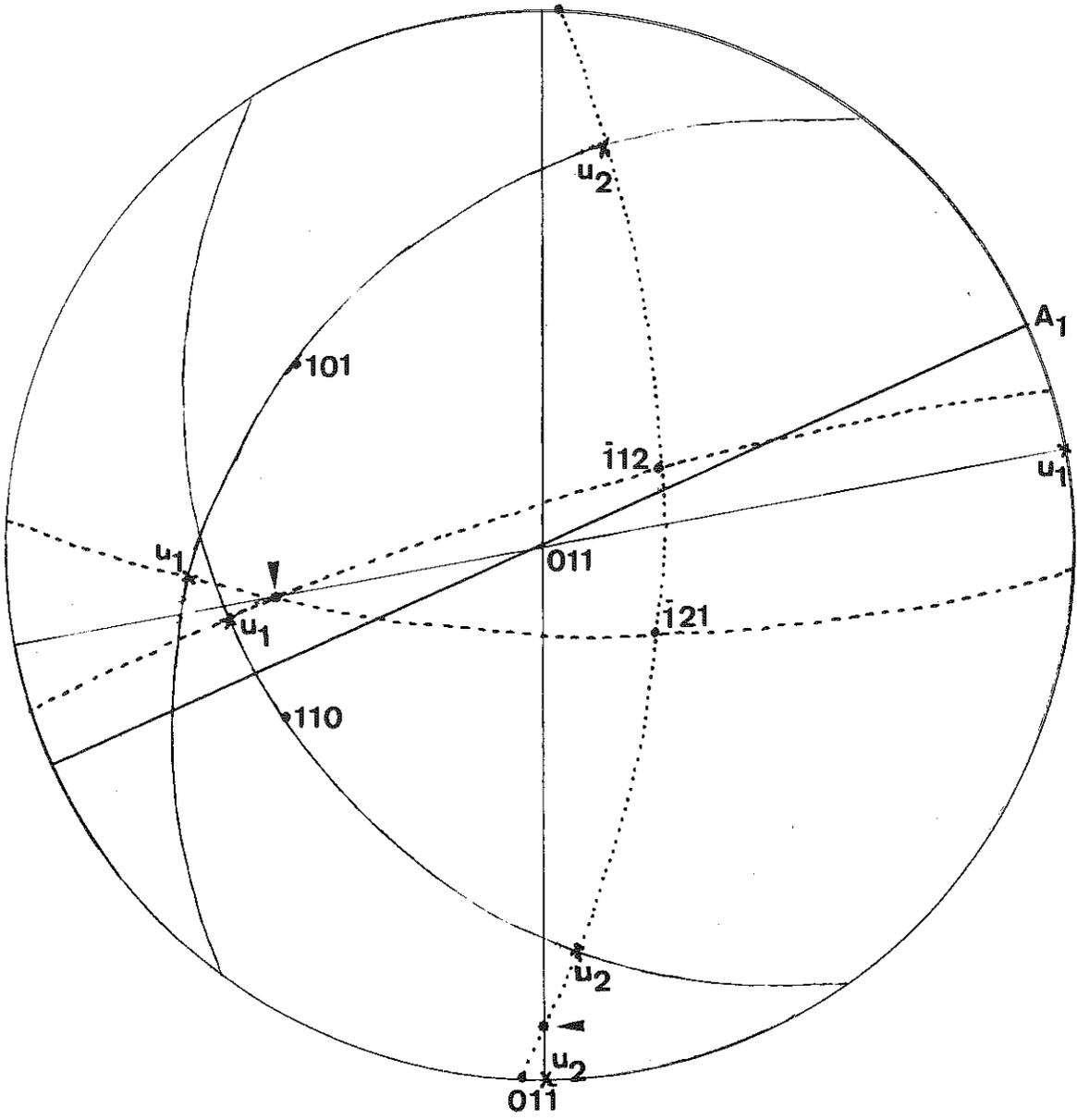


$F // [\bar{1}00]$



$F // [\bar{1}01]$





CORRIGE : DETERMINATION DE L'ORIENTATION D'UNE DIRECTION.

I. La dislocation presque parallèle à la ligne horizontale des images est numérotée 1; les angles entre le vecteur \vec{g} et les projections des dislocations 1 et 2 sont consignés dans le tableau suivant:

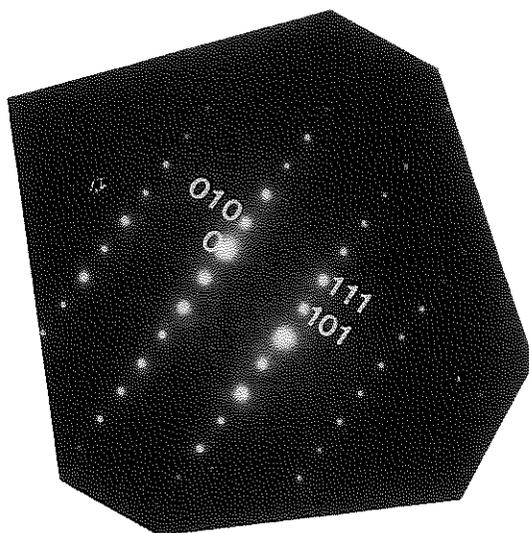
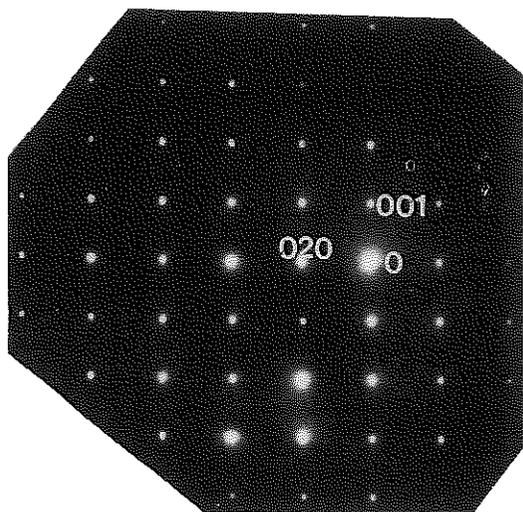
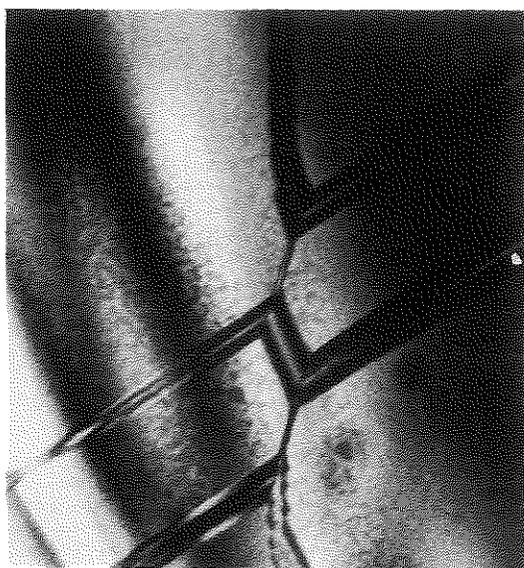
F	$[011]$	$[\bar{1}12]$	$[\bar{1}21]$
angle(g, u_1)	102°	-18°	+38°
angle(g, u_2)	2°	+58°	-58°

Ces mesures ont été reportées sur la projection standard $[011]$; la direction u_1 se situe au voisinage de la direction $[321]$ et u_2 à proximité de $[0\bar{1}\bar{1}]$. Deux des trois plans de projection utilisés pour u_2 se trouvent, par hasard, être confondus.

II. La face d'entrée des électrons dans la lame se situe du côté où les contrastes en fond clair et en fond sombre (-G) sont complémentaires de part et d'autre de la ligne de dislocations.

III. La planche relative à l'échantillon d'olivine indique la disposition des clichés de diffraction vis à vis des micrographies (Pl. 3).

Planche 3. Défauts plans dans l'olivine.
Orientation des clichés de diffraction
par rapport aux images des défauts.



TRAVAUX DIRIGES

CHAPITRE XIX

MACLES DANS LA BLENDE ZNS
(MACLES PAR MERIEDRIE RETICULAIRE)

par Jean Jacques COUDERC,
Monique FAGOT et Colette LEVADE

Macles dans la blende ZnS

(Macles par mériédrie réticulaire)

par J.J. COUDERC - M. FAGOT - C. LEVADE

RAPPELS.

1 - Eléments de maillage dans la blende.

La blende ZnS (groupe spatial $F\bar{4}3m$) est formée de deux sous réseaux CFC décalés de \vec{a} ($1/4, 1/4, 1/4$), l'un occupé par des atomes Zn, l'autre par des atomes S. Ce sulfure possède les mêmes éléments de maillage que les métaux CFC. Les éléments sont (Fig. 1) :

K_1 (plan de macle) = (111)

K_2 (plan conjugué) = (1 $\bar{1}\bar{1}$)

η_1 (direction de cisaillement) = $-\cdot[11\bar{2}]$

$\eta_2 = [112]$

$2\varphi = 70^\circ,53$; $s = \cotg \varphi = 0,707$

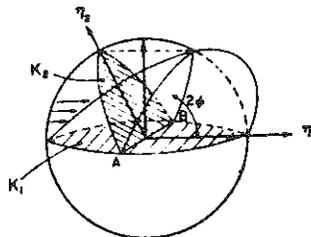


Fig. 1

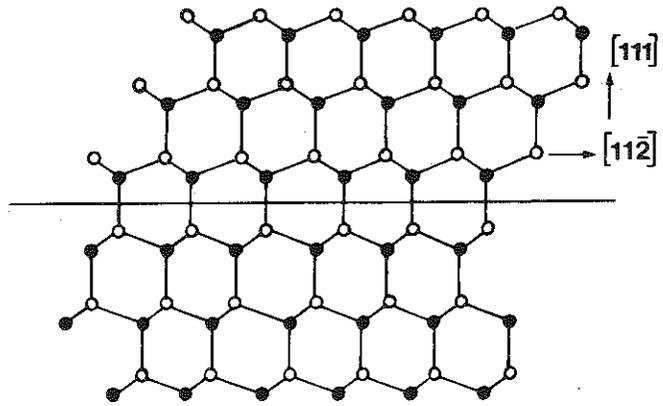


Fig. 2

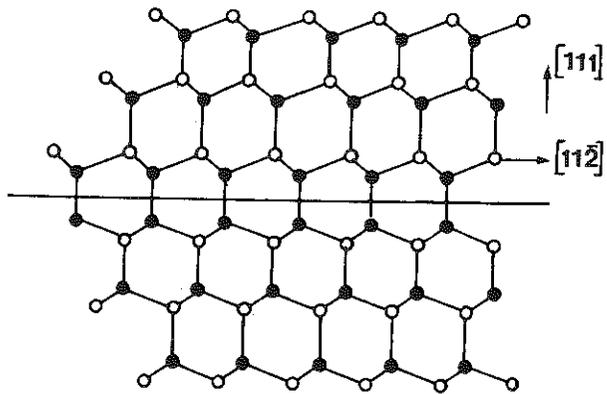


Fig. 3

Cependant, la structure de la blende étant non centrosymétrique, deux types de macle structurellement différents sont possibles :

i - Macle "par rotation" (Fig. 2) : la macle est obtenue par une rotation de 180° par rapport à la normale à K_1 .

ii - Macle "miroir" (Fig. 3) : la macle est obtenue par une rotation de 180° autour de η_1 ; c'est une image miroir de la matrice par rapport au plan de macle.

Ces deux opérations de symétrie sont parfaitement équivalentes dans la structure cubique diamant mais non dans la structure blende (cf Fig. 2 et 3) : la macle miroir contient des "mauvaises" liaisons (S-S ou Zn-Zn) à l'interface ; de plus elle ne peut être réalisée par une succession de défauts d'empilement par suite de l'inversion des tétraèdres Zn S_4 . Cette macle ne peut donc être obtenue par déformation, mais seulement par croissance : si par exemple deux individus croissent dans deux directions opposées $[111]_1$ parallèle à $[\bar{1}\bar{1}\bar{1}]_2$.

La macle par rotation par contre peut être réalisée par une succession de défauts d'empilement et par conséquent peut se développer aussi bien au cours de la croissance que par déformation.

2 - Réseau réciproque de l'ensemble matrice-macle.

On peut montrer que les indices de Miller $(h_1 k_1 l_1)$ du 1^e individu (matrice) et ceux $(h_2 k_2 l_2)$ du 2^e individu (macle) se référant aux mêmes axes cubiques de la maille originale sont reliés par :

$$(h_2 k_2 l_2) = M (h_1 k_1 l_1)$$

avec, dans le cas de la macle par rotation :

$$M = \begin{vmatrix} \bar{1}/3 & 2/3 & 2/3 \\ 2/3 & \bar{1}/3 & 2/3 \\ 2/3 & 2/3 & \bar{1}/3 \end{vmatrix}$$

et dans le cas de la macle miroir :

$$M = \begin{vmatrix} \bar{2}/3 & 1/3 & \bar{2}/3 \\ 1/3 & \bar{2}/3 & \bar{2}/3 \\ \bar{2}/3 & \bar{2}/3 & 1/3 \end{vmatrix}$$

ENONCE.

1^e question : Construire le diagramme de diffraction électronique théorique d'un ensemble matrice-macle, avec plan de macle (111), à partir du diagramme de la matrice :

- a) sous l'azimut $[\bar{1}10]_{\text{matrice}}$ (Fig. 4)
- b) sous l'azimut $[\bar{1}1\bar{2}]_{\text{matrice}}$ (Fig. 5)

On utilisera :

- soit une construction géométrique déduite directement de la définition du maillage,
- soit les matrices de transformation précédentes.

Les deux types de macle donnent-ils des diagrammes de diffraction différents ?

La macle est-elle "visible" sous les azimuts ?

2^e question : A partir du diagramme de diffraction de la Fig. 6b, déterminer le plan de la macle dans le cristal représenté Fig. 6a :

- a) Indexer le diagramme de diffraction.

Noter sur ce diagramme les réflexions

- . provenant de la matrice
- . provenant de la macle
- . les réflexions supplémentaires - origine ?

Trouver le plan de macle.

- b) En utilisant l'image correspondante (cf Fig.6a), déduire la rotation de celle-ci par rapport au diagramme de diffraction.

3^e question : Quelles informations quantitatives apporte le diagramme de diffraction de la Fig. 7 pris sur une zone maclée ? Quelle est l'origine des trainées de diffusion parallèles à une direction $\langle 111 \rangle$?

4^e question : Interactions entre dislocations et joints de macle dans un échantillon de blende déformée.

La Fig. 8 représente une micromacle $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$ et ses deux joints cohérents qui la séparent de la matrice. Quelle est l'origine des dislocations rectilignes parallèles à $\langle 110 \rangle$ situées aux interfaces ? (Une étude de contraste montre que ce sont des dislocations parfaites $\frac{1}{2} \langle 110 \rangle$, donc qu'il ne s'agit pas de dislocations de macle $\frac{1}{6} \langle 112 \rangle$).

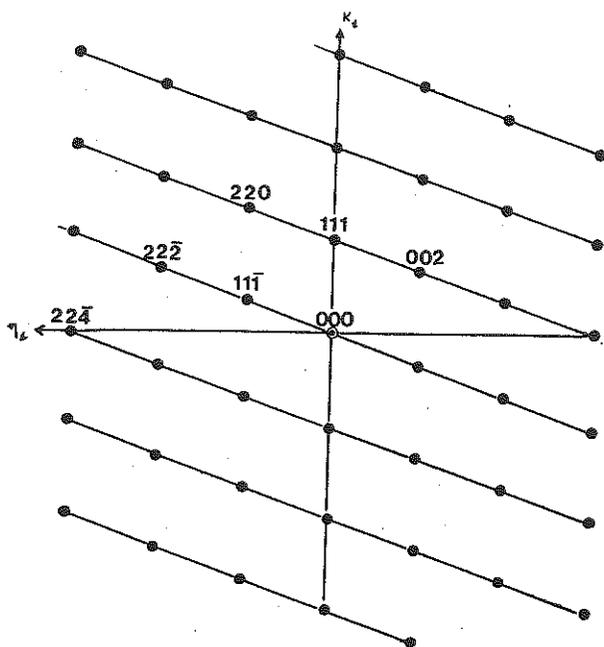


Fig. 4

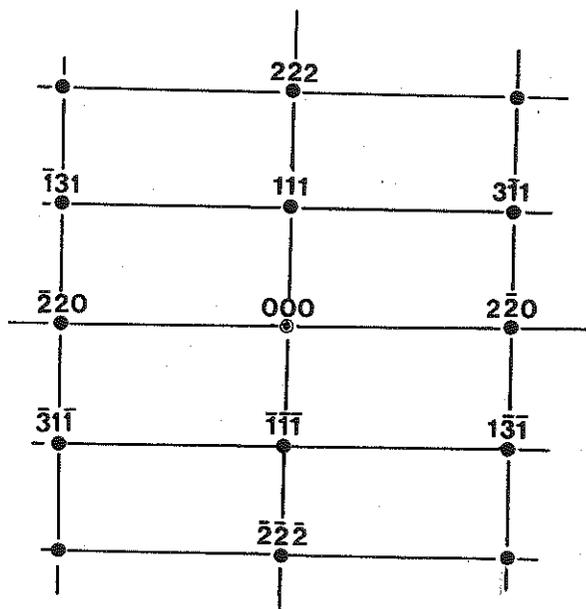
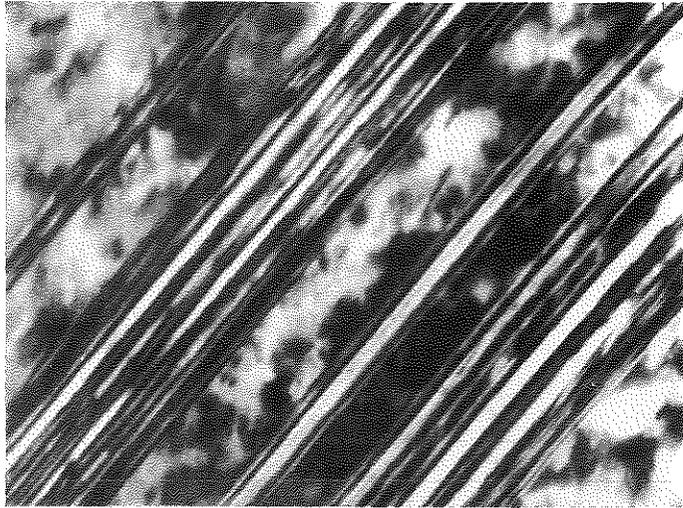
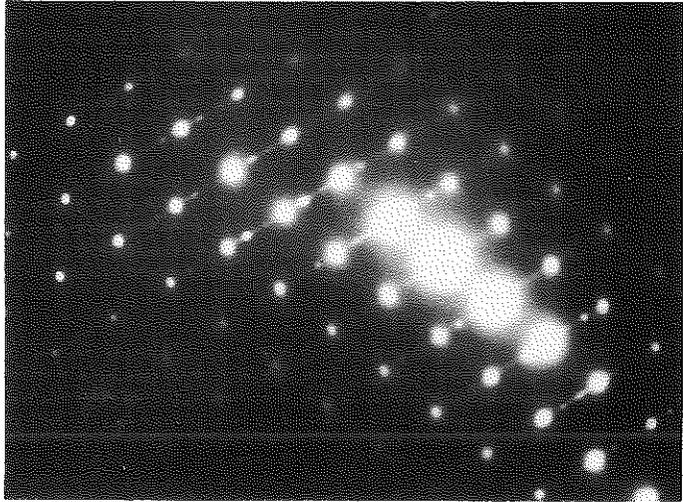


Fig. 5



a



b

Fig.6

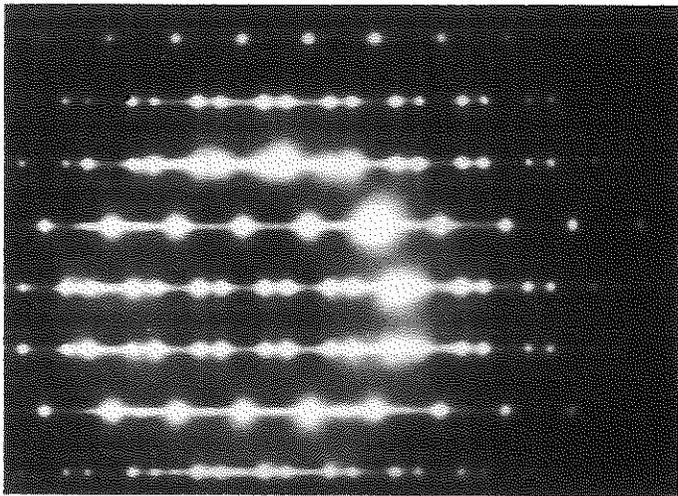
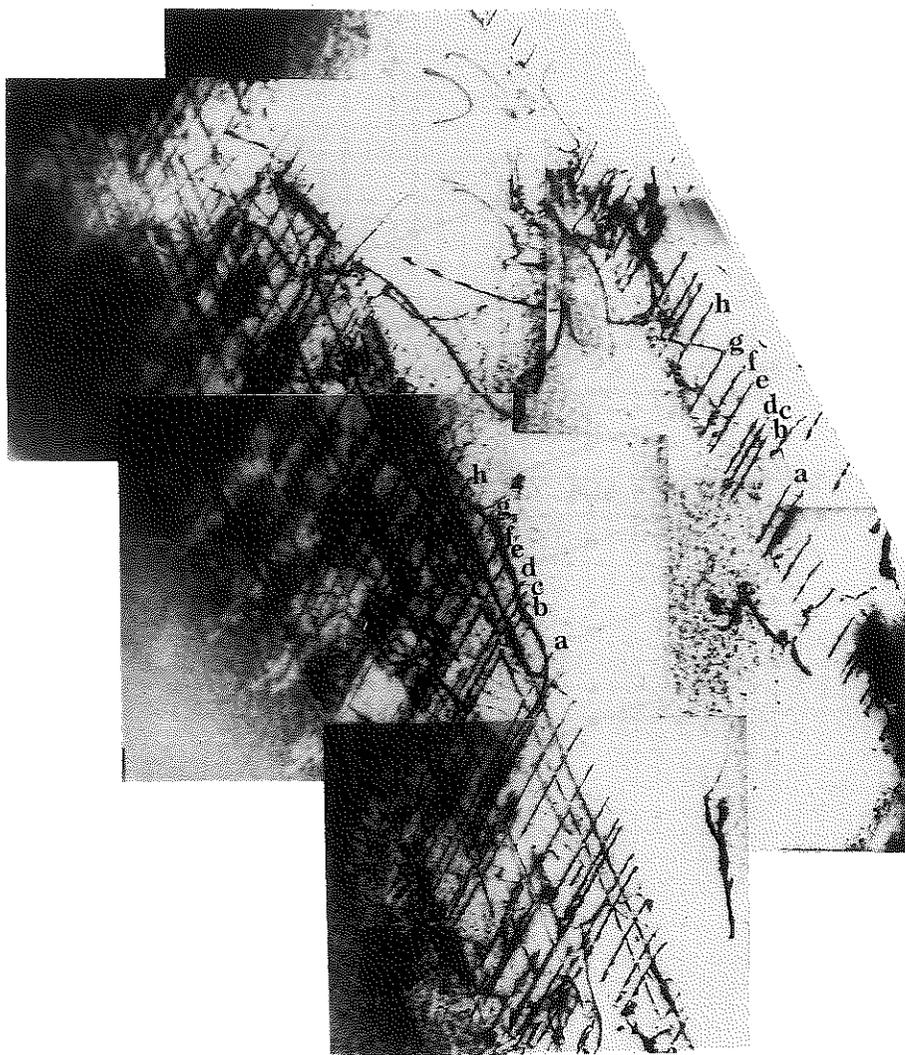


Fig.7



CORRIGE

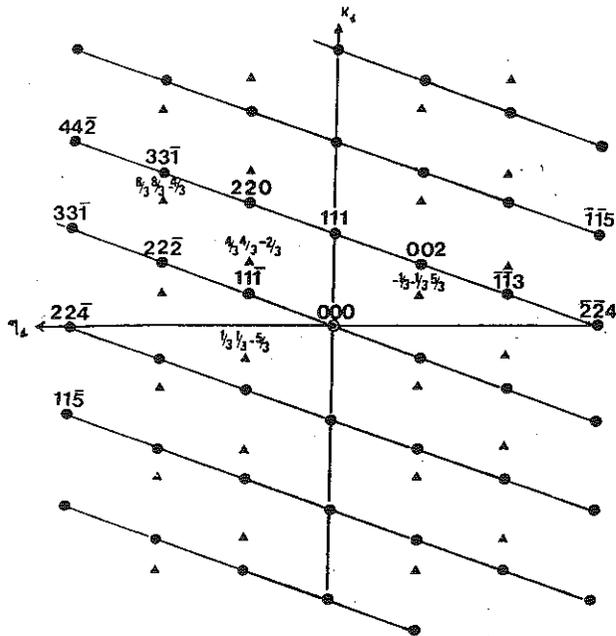
1^e question :a) Az $[\bar{1}10]$ matrice (Fig. 9)

Fig. 9 - Diagramme de diffraction matrice-macle

Az $[\bar{1}10]$ ●: réflexions matrice

▲: réflexions macle

1^e méthode : le diagramme de la macle (▲) se déduit de celui de la matrice (●)

- soit par rotation de 180° autour de $[111]$ = perpendiculaire au plan K_1
- soit par rotation de 180° autour de $[11\bar{2}] = \eta_1$

On constate que les deux opérations de symétrie donnent le même diagramme de diffraction. Les deux types de macle ne sont donc pas différenciables par diffraction électronique.

Si l'on numérote les rangées parallèles à $[111]$ de 0 à n en partant de l'origine du réseau réciproque, on peut noter que si n est un multiple de 3, les réflexions de la macle sont confondues avec celles de la matrice. Si n n'est pas un multiple de 3, les réflexions de la macle se placent au tiers de la distance qui sépare deux réflexions de la matrice.

2^e méthode : utilisation des matrices de transformation

i - macle par rotation

Exemple $(002)_1 \longrightarrow (4/3, 4/3, \bar{2}/3)_2$, spot situé au $1/3$ de la distance séparant le noeud (442) du R.R. de 000.

De même $(220)_1 \longrightarrow (2/3, 2/3, 8/3)_2$

$(11\bar{1})_1 \longrightarrow (\bar{1}/3, \bar{1}/3, 5/3)_2$

$(22\bar{4})_1 \longrightarrow (\bar{2}\bar{2}4)_2$ etc....

et bien entendu $(hhh)_1 \longrightarrow (hhh)_2$

On peut ainsi construire le diagramme matrice-macle joint par joint.

ii - macle miroir : même procédé

$(11\bar{1})_1 \longrightarrow (1/3, 1/3, \bar{5}/3)_2$

$(\bar{1}\bar{1}1)_1 \longrightarrow (\bar{1}/3, \bar{1}/3, 5/3)_2$

$(\bar{1}\bar{1}5)_1 \longrightarrow (\bar{3}\bar{3}3)_2$ etc....

$(hhh)_1 \longrightarrow (\bar{h}\bar{h}\bar{h})_2$

b) Az $[11\bar{2}]$ matrice

On constate -par exemple en utilisant la méthode graphique- qu'aucune réflexion supplémentaire n'apparaît. La macle n'est donc pas "visible" sous cet azimut.

2^e question :

a) Le diagramme est pris sous un azimut du type $\langle 110 \rangle$ que nous prendrons arbitrairement parallèle à $[\bar{1}10]$ matrice (cf Fig. 9). Les réflexions de la

matrice ont des intensités plus importantes que celle de la macle. Les réflexions supplémentaires sur les rangées parallèles à $[111]$ sont dues à des phénomènes de double ou multiple diffraction.

Ce plan de macle est, dans l'indexation choisie, (111) .

b) Sachant que la direction $[111]$ doit être perpendiculaire à la trace des joints de micromacle visibles sur la micrographie (Fig. 6a), on peut en déduire que l'image a tourné de 73° positivement par rapport au diagramme de diffraction.

3^e question :

Le diagramme est pris sous un azimut $\langle 110 \rangle$.

Les réflexions de macle et de la matrice ont des intensités comparables ce qui indique que la densité de micromacles est très importante.

Origine des trainées de diffusion :

Ce joint de macle peut être assimilé à une couche plane perturbée dont l'épaisseur est de l'ordre des distances interatomiques, et située entre deux portions de cristal parfait. L'effet de diffraction de ce défaut est identique à l'effet de forme donné par une lamelle cristalline bidimensionnelle, c'est-à-dire que les domaines de diffraction sont allongés suivant la normale à la lamelle, ici $[111]$ du R.R. Si la densité de micromacles est élevée, nous aurons des lignes de diffusion continues dans la direction $[111]$.

4^e question :

Lorsqu'une dislocation $b = \frac{1}{2} \langle 1\bar{1}0 \rangle$ glissant dans $\{111\}$ rencontre un joint de macle, plusieurs situations peuvent se présenter. Dans le cas le plus simple si (111) est le plan de glissement et $(11\bar{1})$ le plan de macle :

- a) si $b = \frac{1}{2} [1\bar{1}0]$, la dislocation peut prendre une direction vis et opérer un glissement dévié soit dans le plan de macle, soit dans le plan compact symétrique de (111) par rapport au plan de macle.

- b) si $b = \frac{1}{2} [10\bar{1}]$ OU $\frac{1}{2} [0\bar{1}1]$ et pour une contrainte appliquée modérée, les dislocations restent, par contre, bloquées dans le joint de macle ; elles prennent une direction rectiligne parallèle à l'intersection du plan de glissement et du plan de macle, c'est-à-dire une direction $\langle 110 \rangle$.

Ainsi les dislocations numérotées de a à h et parallèles à $[101]$ proviennent de boucles de dislocations glissant dans (111) , les deux segments

opposés de chaque boucle se sont bloqués sur chaque interface : on retrouve exactement la même configuration sur le joint de gauche et sur celui de droite.

Les dislocations parallèles à $[\bar{1}10]$ proviennent du plan de glissement (111) , et celles, plus rares, parallèles à $[011]$ proviennent du plan $(\bar{1}\bar{1}1)$.

Note : Lorsque la contrainte appliquée est suffisante, des réactions de décomposition permettent une traversée "complète" ou "incomplète" du joint de macule.

TRAVAUX DIRIGES

CHAPITRE XX

MACLES DANS LE MICROCLINE

par Christian WILLAIME

MACLES DANS LE MICROCLINE

par C. Willaime

Le microcline, $KAlSi_3O_8$, est un feldspath de symétrie triclinique (groupe $C\bar{1}$) dont les paramètres sont :

$$\begin{array}{lll} a = 0,859 \text{ nm} & b = 1,299 \text{ nm} & c = 0,722 \text{ nm} \\ \alpha = 90,6^\circ & \beta = 115,9^\circ & \gamma = 87,7^\circ \end{array}$$

Ce minéral triclinique est donc pseudo-monoclinique.

1) Quels seraient les éléments de symétrie du réseau monoclinique correspondant ?

2) Deux types de macle par pseudo-symétrie peuvent apparaître dans le microcline (macle de l'Albite et macle du Péricline). Quels sont les éléments de macle correspondants ?

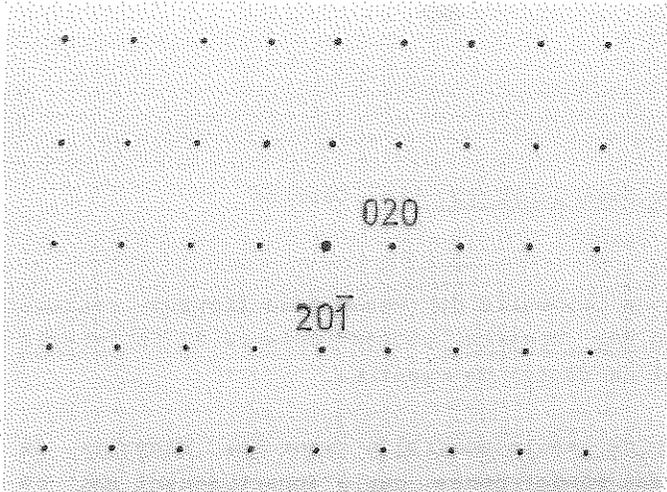
La figure 1 représente le schéma d'un diagramme de diffraction électronique obtenu avec un monocristal de microcline, le faisceau d'électrons étant parallèle à $[102]$. L'indexation du cliché de diffraction tient compte du fait que le mode de réseau C ne permet que les réflexions telles que $h + k = 2n$.

3) Du fait de la valeur des paramètres réticulaires, la direction $[102]$ est presque parallèle à la direction réciproque c^* . Représenter, sur le cliché de diffraction, la direction des vecteurs du réseau a et b , et la trace des éléments de symétrie du réseau pseudo-monoclinique.

4) Construire les diagrammes de diffraction (plan $(102)^*$) que donnerait un cristal maclé suivant l'une (Albite) ou l'autre (Péricline) des lois de macles.

Le microcline peut se former à basse température, directement avec la symétrie triclinique. Il peut aussi se former par transformation de phase au cours d'un refroidissement lent à partir d'un cristal de sanidine de symétrie monoclinique. L'un et l'autre des modes de formation du microcline permettent d'envisager son maclage selon la loi de l'Albite et selon la loi du Péricline.

5) La figure 2 représente un microcline maclé Albite et Péricline et le diagramme de diffraction correspondant (plan (102)*). La position relative des taches de diffraction correspondant aux différents individus maclés permet de déterminer le mode de formation du microcline. Quel est-il ?



Macles dans le
Microcline

Fig. 1

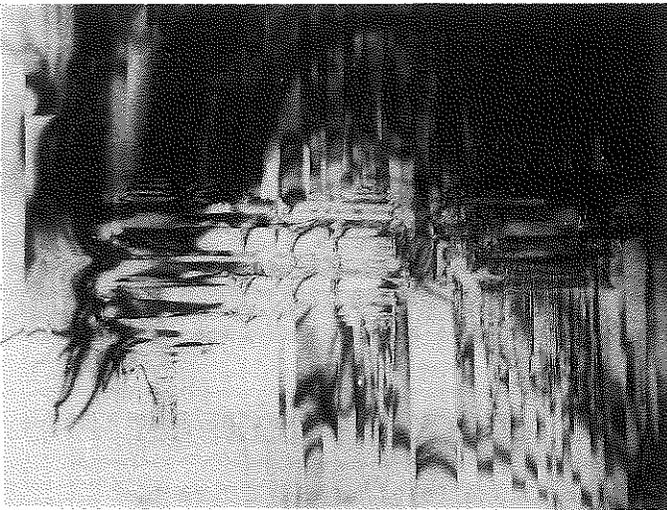


Fig. 2a

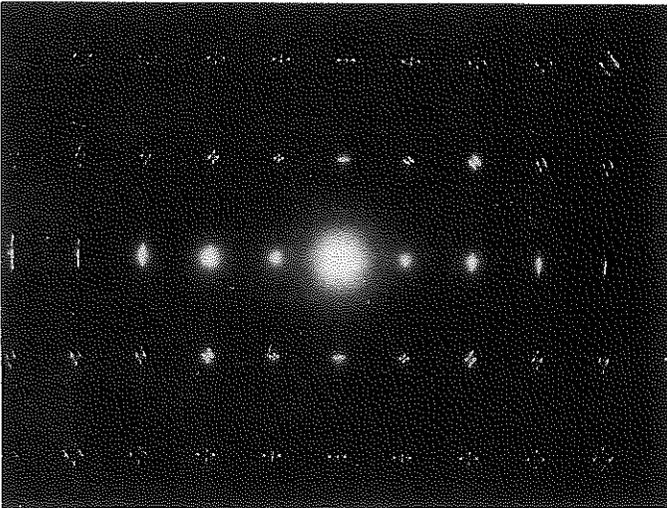


Fig. 2b



Macles dans le microcline. Corrigé

1) Les éléments de symétrie du réseau monoclinique correspondant sont un axe binaire perpendiculaire à un miroir (plan (010)), et un centre de symétrie.

2) Les éléments de macle possibles sont les éléments de symétrie du réseau monoclinique qui n'appartiennent pas au réseau triclinique du cristal de microcline : un miroir (010) : macle de l'Albite, et un axe binaire [010] : macle du Péricline.

3) (Figures 1 et 3). c^* est pratiquement parallèle à [102], c'est à dire perpendiculaire au plan du cliché de diffraction; a et b sont donc presque dans ce plan; a est perpendiculaire à b^* repéré par la réflexion 020. b est perpendiculaire au vecteur réciproque $[20\bar{1}]^*$.

Remarque: l'angle γ (entre a et b) est inférieur à 90° .

Les éléments de macle sont:

-macle de l'Albite: le plan (010) qui est perpendiculaire au vecteur réciproque b^* .

-macle du Péricline: l'axe [010], c'est à dire b.

4) Dans un cristal maclé Albite, les deux réseaux ont en commun le plan (010) et sont symétriques l'un de l'autre par rapport à ce plan. Dans l'espace réciproque, les deux réseaux ont en commun la direction b^* ($b^*_1 = b^*_2$). (Figure 4, R^* représente la rangée réciproque $[20\bar{1}]^*$).

Dans un cristal maclé Péricline, les deux réseaux ont en commun l'axe b et sont symétriques l'un de l'autre par rapport à cet axe. Dans l'espace réciproque, les deux réseaux ont en commun le plan (010)*, qui contient les noeuds du type h0l ($R^*_1 = R^*_2$). (Figure 5).

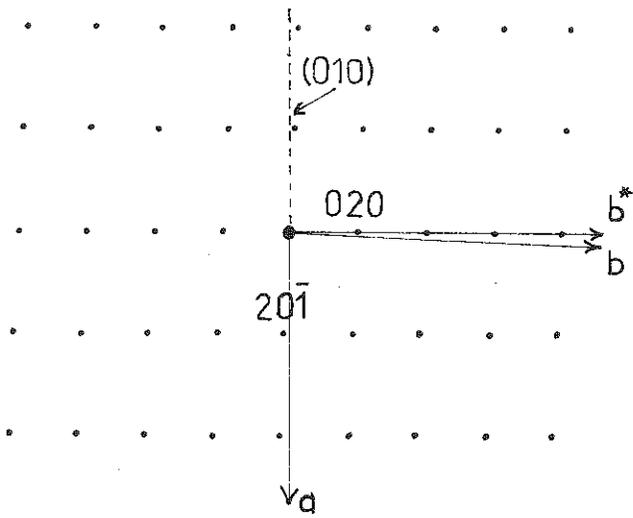


Fig. 3

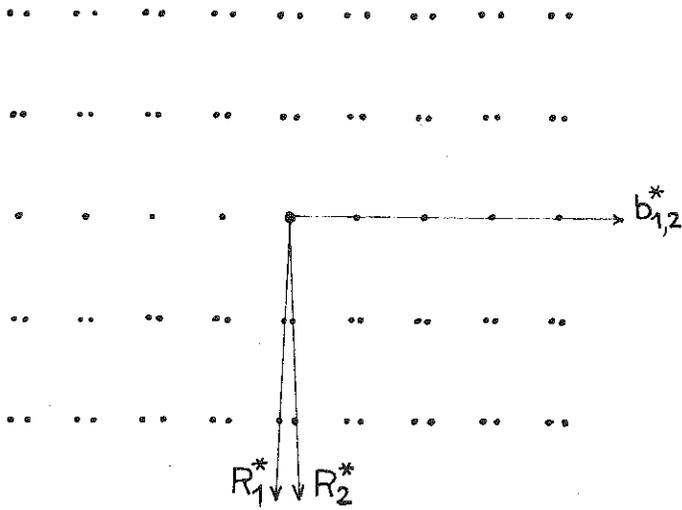


Fig. 4

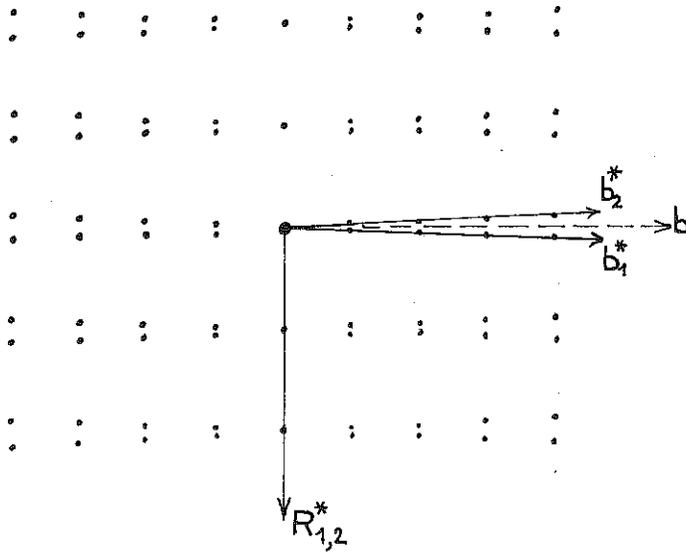


Fig. 5

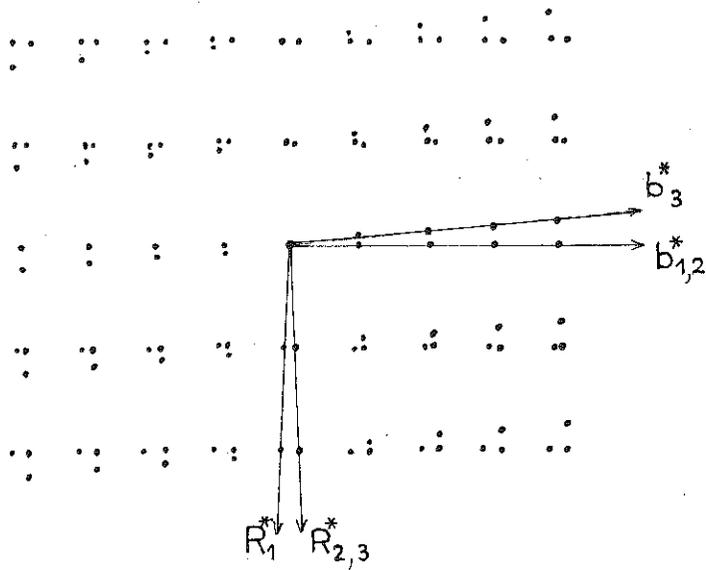


Fig. 6

5) Sur la figure 2b, on remarque que les taches de diffraction de type hkl sont quadruples: il y a donc 4 réseaux en présence. Ce diagramme s'obtient en superposant le diagramme de diffraction d'une macle de l'Albite à celui d'une macle de Péricline, en plaçant l'axe b^* , commun aux deux individus de l'Albite, perpendiculaire au plan $(010)^*$ commun aux deux individus du Péricline. Cette situation (b^* perpendiculaire à $(010)^*$) est caractéristique d'un réseau monoclinique. Le maillage Albite et Péricline s'est donc produit au moment de la transformation de phase monoclinique triclinique du microcline.

Si le maillage Albite et Péricline s'était produit dans la phase triclinique, le réseau de la matrice aurait eu le plan (010) en commun avec le réseau de l'individu maillé Albite ($b^*_1 \equiv b^*_2$), et l'axe b en commun avec le réseau de l'individu maillé Péricline ($R^*_2 \equiv R^*_3$). Il n'y aurait dans ce cas aucun axe b^* perpendiculaire à un plan $(010)^*$. Les taches de diffraction de type hkl seraient triples. (Figure 6).

TRAVAUX DIRIGES

CHAPITRE XXI

CARACTERISATION DES VECTEURS DE
BURGERS DE DISLOCATIONS DANS
UN MATERIAU DE STRUCTURE SPINELLE

par Nicole DOUKHAN

CARACTERISATION DES VECTEURS DE BURGERS DE DISLOCATIONS
DANS UN MATERIAU DE STRUCTURE SPINELLE

Nicole DOUKHAN

Exemple 1

Dans un échantillon de spinelle $Mg_{0.1,8}Al_2O_3$, flué de 30% à 1550°C, on observe une faible densité de dislocations, essentiellement sous forme de jonctions. On se propose dans cet exercice de déterminer les vecteurs de Burgers des dislocations formant une de ces jonctions.

La lame mince a été placée dans un porte-objet tilt-rotation et observée à 100 kV dans un microscope Philips EM 300. La planche 1 regroupe la série d'images en champ clair a, b...e et la planche 2 la série de diffractions correspondantes a,b,...e, plus la coupe (f). L'orientation de la lame dans le microscope, pour chaque cliché, est repérée par 2 angles α et τ , reportés dans le tableau I (α , angle de rotation autour de Oz, normale à la platine porte échantillon; τ , angle de basculement autour de OX, axe du porte-objet, suivant les conventions adoptées lors du T.D. "Utilisation d'une platine goniométrique"). La projection de l'axe OX est indiquée sur les planches de micrographies.

TABLEAU I

micrographie	1a et 2a	1b et 2b	1c et 2c	1d et 2d	1e et 2e	2f
α	209	209	209	209	279	214
τ	- 3	- 5	+ 19	- 21	+ 18	- 4

Le groupe spatial du spinelle est Fd3m (maille cubique de paramètre $a = 0,8085\text{nm}$). Les réflexions interdites sont :

- hkl, pour h,k,l, de parités différentes
- hk0, pour $h+k = 4n+2$

On a reporté dans le tableau II les distances interréticulaires des plans les plus denses et de facteur de structure pas trop faible.

TABLEAU II

hkl	111	220	311	400	511	440
d(nm)	0,4668	0,2858	0,2438	0,2021	0,1556	0,1429

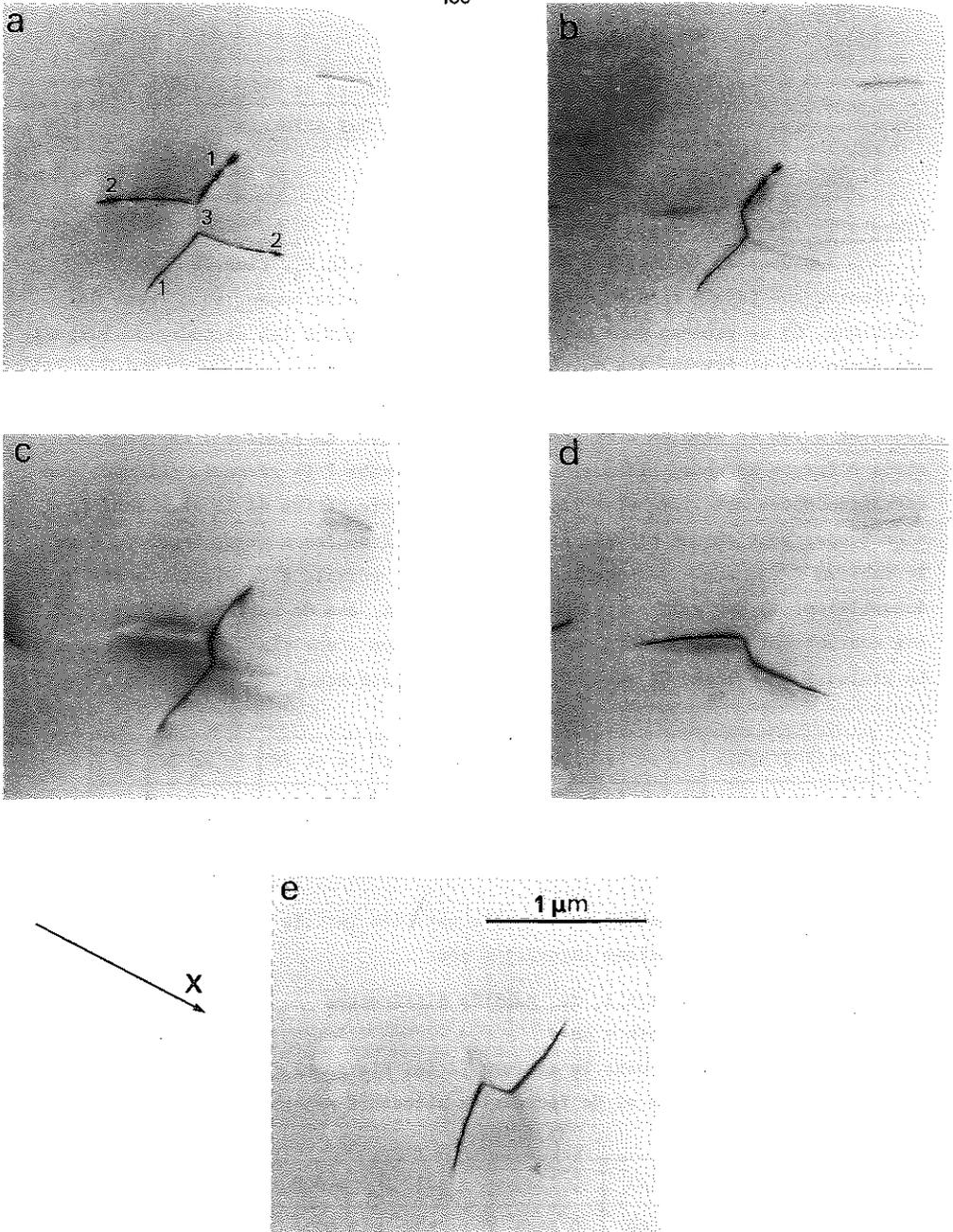


Planche 1. Série de micrographies prises avec différentes conditions de réflexion, permettant de caractériser les vecteurs de Burgers des dislocations du noeud. (Lame mince de spinelle $Mg_{0.1,8}Al_2O_3$).

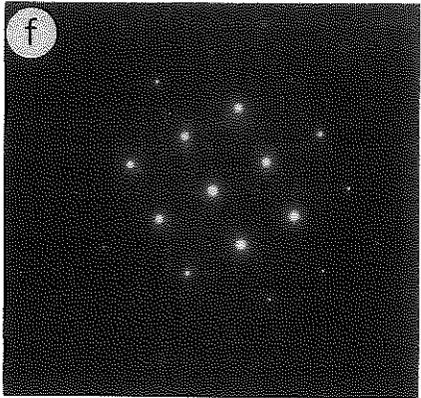
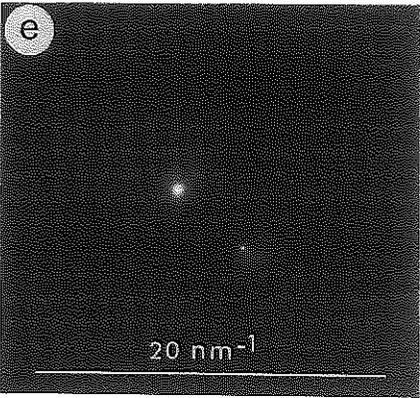
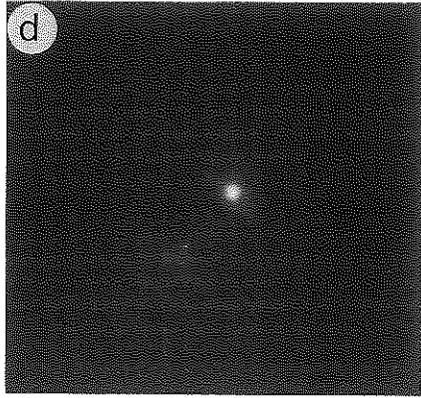
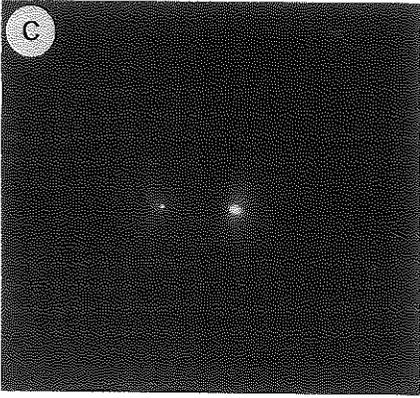
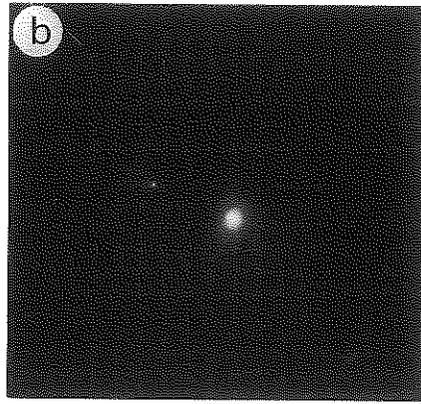
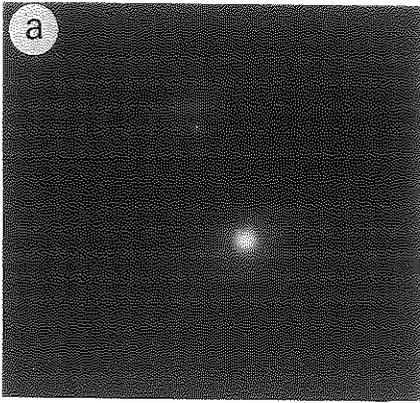


Planche 2. Clichés de diffraction correspondant aux micrographies de la planche 1.

- Le cliché 2f permet de déterminer de façon précise l'orientation cristallographique de la lame mince : on commencera par indexer ce diagramme de diffraction, puis on reportera, sur une projection stéréographique rapportée au plan "moyen" de la lame, les principaux plans réflecteurs (plans en zone). On complètera ensuite cette projection en reportant les pôles de tous les plans simples du cube $\{100\}$, $\{110\}$, $\{111\}$.

- L'étape suivante consiste à indexer les vecteurs \vec{g} des clichés de diffraction 2a, b, ...e. En les reportant sur la projection faite précédemment, on pourra leur donner des indices spécifiques et cohérents. Sachant que le critère d'extinction d'une dislocation $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$ est bien vérifié dans le spinelle, on pourra alors en déduire les vecteurs de Burgers des différents brins de la jonction.

Solution

- Le cliché 2f, qui présente une symétrie d'ordre 4, est une coupe $(001)^*$ du réseau réciproque et la figure 1 en représente une indexation possible. Tous les vecteurs \vec{g} du réseau réciproque, correspondant aux tâches de ce cliché, sont contenus dans le même plan, qui, sur la projection stéréographique, est représenté par le grand cercle incliné de $+4^\circ$ autour de X, et dont le pôle est 001 (figure 2). Sur le cliché on mesure l'angle β que fait \vec{g}_{400} avec OX : il vaut $+35^\circ$. On reporte cet angle à partir de X, on a ainsi le pôle 100. On place de la même façon les pôles 110, 010, $\bar{1}10$. Il est ensuite facile, en se rapportant à une projection standard (001) d'un cristal cubique, de compléter cette projection. Par exemple, on placera les pôles (101) et ($\bar{1}01$) sur le grand cercle de pôle (010), à 45° de part et d'autre de (001) etc... Les pôles $\{111\}$ s'obtiennent à l'intersection des grands cercles de pôles $\{110\}$.

- On a reporté dans le tableau III, tous les renseignements disponibles concernant chaque cliché :

- . α et τ , repérés lors de la manipulation
- . β , angle (OX, \vec{g}) , mesuré sur les clichés de diffraction.
- . le type de plan réflecteur, obtenu en mesurant la longueur du vecteur \vec{g} sur les clichés de diffraction, et en la comparant avec les données du tableau III.
- . le vecteur \vec{g} , indexé correctement à l'aide de la projection stéréographique.
- . le numéro de la dislocation hors contraste (planche 1).

TABLEAU III

Cliché	a	b	c	d	e
α	209	209	209	209	279
τ	- 3	- 5	+19	-21	+18
$\beta = (OX, \vec{g})$	-15	+30	+50	101	-169
type de plan réflecteur	{440}	{400}	{311}	{311}	{400}
\vec{g}	$4\bar{4}0$	400	$31\bar{1}$	131	040
dislocation hors contraste	3	2	2	1	1

On applique le critère $\vec{g} \cdot \vec{b} = 0$, bien vérifié dans le spinelle. La dislocation 1, hors contraste pour $g = 131$ et pour $g = 040$, a donc un vecteur de Burgers parallèle à $[10\bar{1}]$. De la même façon, on trouve $\vec{b}_2 // [011]$. Comme on sait, d'autre part, que les dislocations parfaites les plus stables sont celles qui ont comme vecteur de Burgers la plus petite translation du réseau, (énergie $\propto b^2$), on s'attend, dans la structure spinelle, à des $\vec{b} = \frac{a}{2} \langle 110 \rangle$.

On a donc déterminé \vec{b} , au signe près, pour les brins 1 et 2.

$$\vec{b}_1 = \pm \frac{a}{2} [10\bar{1}] ; \vec{b}_2 = \pm \frac{a}{2} [011]$$

Une seule extinction par $\vec{g} = 4\bar{4}0$ suffit à déterminer $\vec{b}_3 = \pm \frac{a}{2} [110]$. On peut alors vérifier la loi des noeuds de Kirchhoff : $\sum_i \vec{b}_i = 0$, lorsqu'on oriente toutes les lignes allant vers le noeud ou s'en éloignant (figure 3). On a la solution suivante :

$$\vec{b}_1 = + \frac{a}{2} [10\bar{1}]$$

$$\vec{b}_2 = + \frac{a}{2} [011]$$

$$\vec{b}_3 = + \frac{a}{2} [\bar{1}\bar{1}0]$$

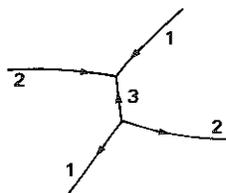


Figure 3

Exemple 2 : Analyse d'un sous-joint.

Lorsque deux grains adjacents d'un même matériau sont légèrement désorientés l'un par rapport à l'autre, leur surface d'accrolement est appelée sous-joint. Cette surface contient une distribution de dislocations telle qu'il n'y a pas de contrainte à longue distance. Les divers types de sous-joints possibles dans une structure cristalline donnée peuvent être prédits par le calcul^{*}. Ce calcul montre que lorsque la surface d'accrolement change d'orientation, la distribution de dislocations doit également changer. Ceci est bien illustré par la planche 3 qui montre un sous-joint de croissance dans du spinelle $MgAl_2O_4$. Dans la région A, le sous-joint est constitué de trois familles de lignes de dislocations sécantes, tandis que dans la région B, il n'y a que deux familles.

1) Caractérisations des trois vecteurs de Burgers de la région A.

Les micrographies a à e de la planche 4 correspondent à la même région. Elles ont été réalisées avec un porte-objet "tilt-rotation" dans les conditions résumées dans le tableau IV.

TABLEAU IV

micrographie	a	b	c	d	e
α	175	175	175	85	85
τ	+ 1	-11	+ 6	-14	+20
β	-75	-165	-30	-94	-93

. En déduire l'orientation de la lame mince et les trois vecteurs de Burgers des trois familles.

. Une analyse de l'orientation des lignes de dislocations a montré que les trois familles sont des dislocations vis. En déduire le plan du sous-joint. On reportera toutes ces directions sur une projection stéréographique.

2) Caractérisation du sous-joint

Le calcul théorique des sous-joints dans une structure CFC indique qu'un sous-joint parfaitement organisé, constitué de 3 familles de dislocations vis est un sous-joint de torsion pure, autour d'un axe \vec{u} parallèle à la normale \vec{v} au sous-joint. Les densités des trois familles sont égales entre elles et valent $\rho = \theta/b$.

Mesurer la densité ρ (nombre de dislocations par unité de longueur) et en déduire la désorientation θ .

* Ce type de calcul est développé dans AMELINCKX S. "Dislocations in solids" Vol. II édité par F.R.N. Nabarro, North Holland Publishing Company.

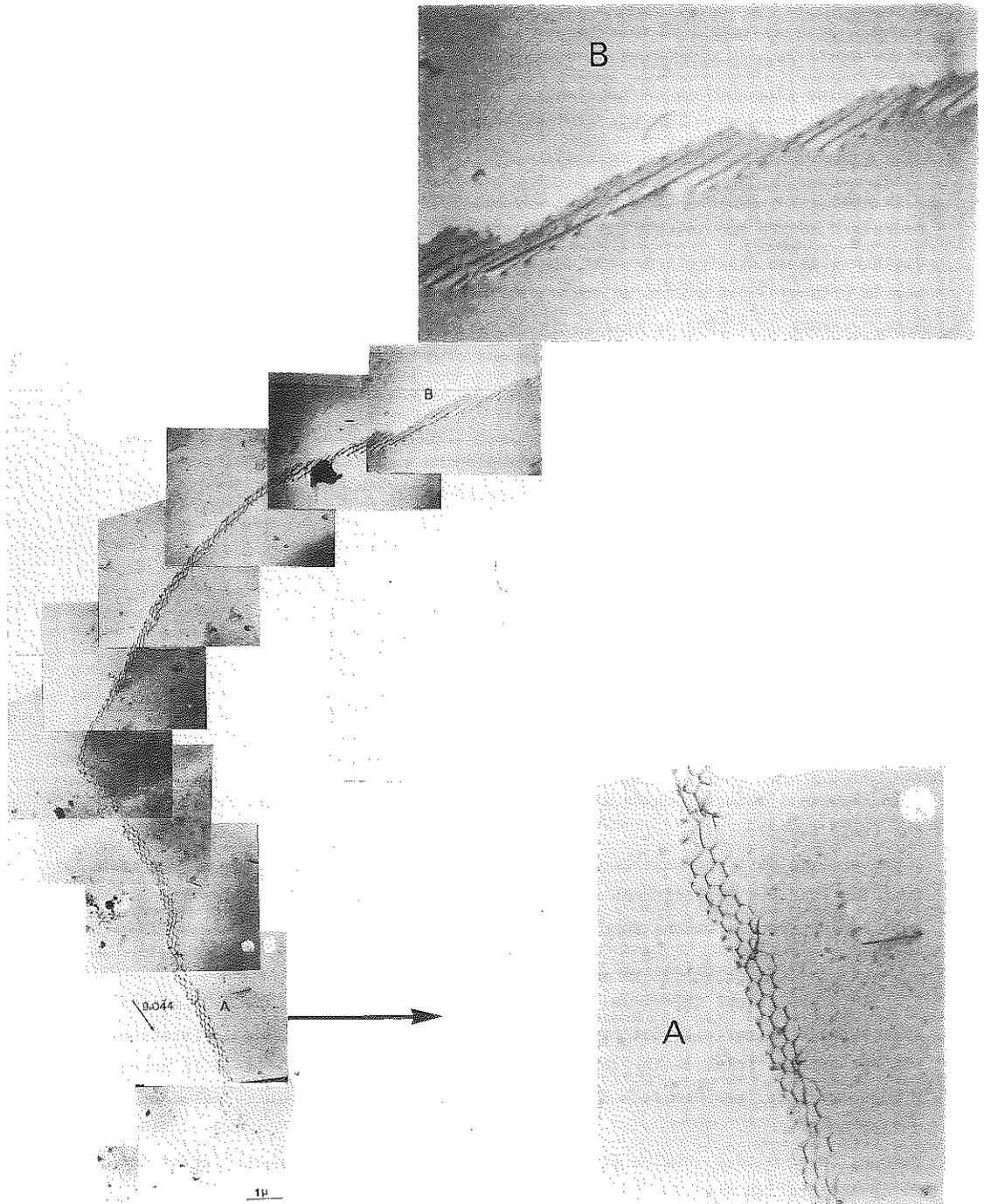


Planche 3. Sous-joint flexible, vraisemblablement de croissance, dans une lame mince de spinelle $Mg_{0.1,8}Al_2O_3$. Le sous-joint tourne de 90° tout en restant en équilibre. Ce sous-joint est formé de deux familles de dislocations. Dans la région A, une troisième famille est formée par jonction des deux précédentes. Dans la région B, par contre, l'orientation des lignes est telle que les jonctions ne sont plus énergétiquement favorables.

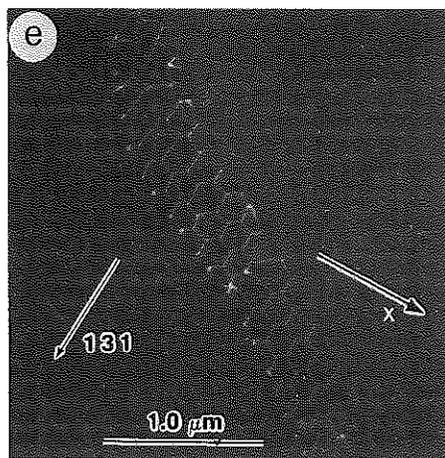
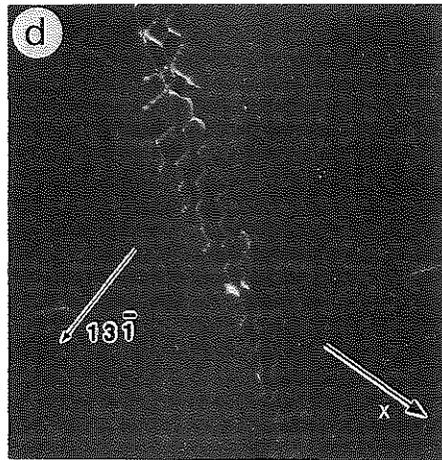
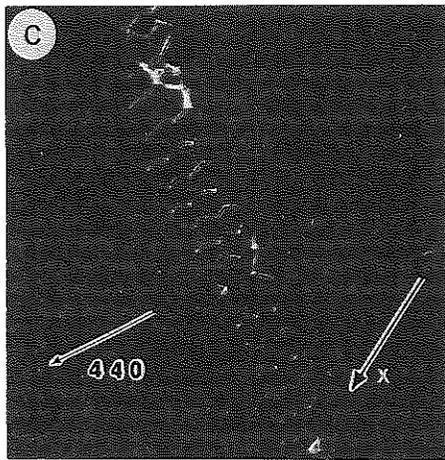
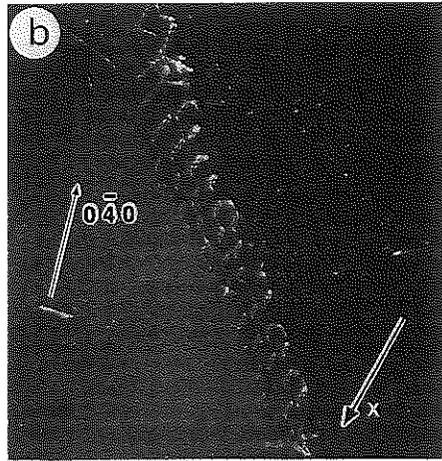
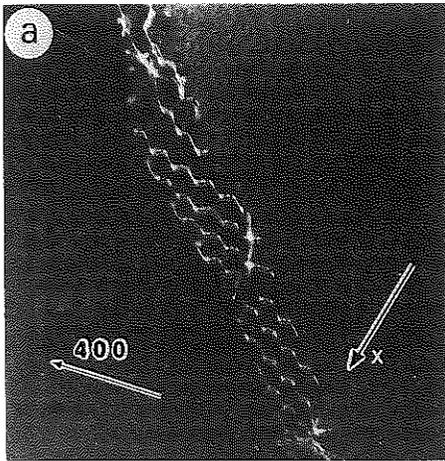


Planche 4. Etude détaillée de la partie A du sous-joint de la planche 3. Images en champ noir faiblement excité. La projection de l'axe de tilt (X) et les vecteurs de diffraction sont indiqués sur chaque cliché.

3) Solution

La figure 4 représente la projection stéréographique du cristal pour la région A. On voit que le plan de la lame est très proche de (001). Les vecteurs de Burgers des trois familles sont :

$$\vec{b}_1 = \pm \frac{a}{2} [101]$$

$$\vec{b}_2 = \pm \frac{a}{2} [0\bar{1}\bar{1}]$$

$$\vec{b}_3 = \pm \frac{a}{2} [\bar{1}10]$$

La normale \vec{v} au sous-joint est $[\bar{1}\bar{1}1]$.

Pour évaluer ρ , le plus simple est de choisir de mesurer une distance entre dislocations dans une direction proche de l'axe de tilt, ce qui évite de faire des corrections de projection. Sur le cliché e, on mesure de cette façon une densité de l'ordre de $6 (\mu\text{m})^{-1}$, ce qui conduit à une désorientation $\Theta \approx 34.10^{-4}$ radians soit 0,2 degrés.

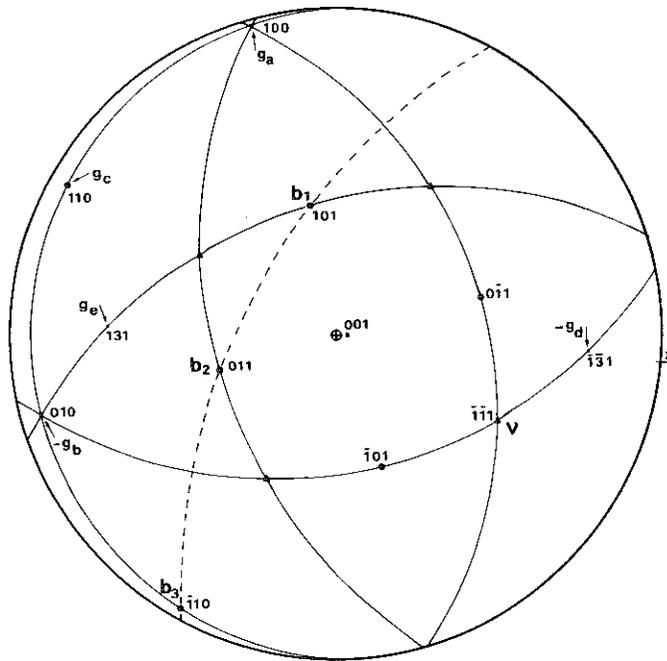


Figure 4. Projection stéréographique du cristal de la région A du sous-joint.

TRAVAUX DIRIGES

CHAPITRE XXII

DEFAUTS D'EMPILEMENT

par Monique FAGOT, Colette LEVADE
et Jean Jacques COUDERC

DEFAUTS D'EMPILEMENT

par M. FAGOT - C. LEVADE - J.J. COUDERC

RAPPELS

Le défaut d'empilement - Vecteur de déplacement \vec{R}

1) Généralités

Le défaut d'empilement est le plus simple des défauts bidimensionnels. Il est caractérisé par le vecteur déplacement \vec{R} .

En prenant comme référence, partie fixe du cristal, la face d'entrée des électrons dans l'échantillon (partie 1), le vecteur de déplacement \vec{R} est alors défini comme le déplacement de la partie du cristal située après le défaut et du côté de la face de sortie (partie 2) -Fig. 3-

- Le défaut, incliné par rapport au plan de lame, présente un contraste de franges parallèles à l'intersection du défaut et de la lame. Leur périodicité peut varier avec l'épaisseur de la lame : elle est voisine de la demi distance d'extinction ($\frac{\xi}{2}g$) dans l'approximation à deux ondes de la théorie dynamique.

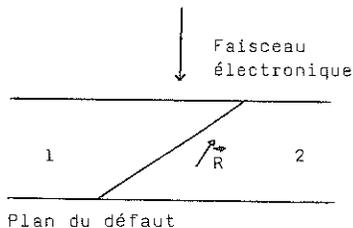


Fig. 3

- Le contraste de ces franges dépend de la valeur du déphasage

$$\alpha = 2\pi \vec{g} \cdot \vec{R}$$

introduit par la traversée du défaut entre l'onde directe et l'onde diffractée suivant \vec{g} .

1.1 Le défaut mis hors contraste est invisible lorsque $\alpha = n.2\pi$ ou $\vec{g} \cdot \vec{R} = n$ ($n = 0$ ou un entier).

Ce critère d'extinction permet la détermination du vecteur de déplacement \vec{R} :

. Si trois vecteurs diffraction \vec{g}_i , linéairement indépendants, rendent le défaut invisible, on obtient un système de trois équations à trois inconnues :

$$\vec{g}_i \cdot \vec{R} = n_i \quad (i = 1, 2, 3 ; n_i = 0 \text{ ou entiers arbitraires})$$

dont la résolution donne les trois composantes u, v, w du vecteur de déplacement \vec{R} , à un vecteur du réseau près.

Remarque : a) Un vecteur du réseau peut être solution de ces équations mais n'est évidemment pas vecteur de déplacement d'un défaut d'empilement.

b) Si \vec{R} est solution, $-\vec{R}$ l'est aussi, mais ces deux solutions ne sont équivalentes que si la différence entre les deux vecteurs (soit $2R$) est aussi un vecteur du réseau.

1.2 Le signe du déphasage α est caractéristique de la nature du défaut :

- . intrinsèque : absence d'un plan atomique dans l'empilement compact.
- . extrinsèque : adjonction d'un plan supplémentaire.

Pour une lame épaisse ($> 5\xi_G$), la nature des franges en fond clair à la surface de la lame est déterminée par le signe de l'angle α :

- $\sin \alpha > 0$ les franges bordant le défaut sont claires.
- $\sin \alpha < 0$ les franges sont sombres.

En champ sombre, les franges sont asymétriques par rapport au centre du défaut : elles ont le même contraste qu'en champ clair à la surface d'entrée de l'échantillon et un contraste inversé à la surface de sortie. Ceci permet de connaître l'inclinaison du plan du défaut dans la lame. On détermine alors la nature intrinsèque ou extrinsèque du défaut en déduisant du signe du déphasage α , le signe du vecteur de déplacement \vec{R} (déplacement de la partie 2 par rapport à la partie 1 du cristal parfait).

La valeur algébrique de \vec{R} donne, en s'appuyant sur des considérations cristallographiques, la nature du défaut observé.

2) Défauts d'empilement dans la structure CFC

On rappelle que les défauts d'empilement dans une structure CFC peuvent se définir à partir du réseau du cristal parfait considéré comme un empilement compact de plans d'atomes d'arrangement également compact.

Ces plans sont des plans $\{111\}$ d'espacement respectif égal à $\frac{a}{3} \langle 111 \rangle$.

2.1 Pour un défaut intrinsèque, le vecteur de déplacement peut être :

. du type $\frac{1}{3} \langle 111 \rangle$, perpendiculaire au défaut.

. du type $\frac{1}{6} \langle 112 \rangle$, vecteur contenu dans le plan du défaut, si ce défaut s'est produit par glissement d'une dislocation imparfaite ($b = \frac{1}{6} \langle 112 \rangle$) dans ce plan.

Ces deux vecteurs ne diffèrent entre eux que d'un vecteur du réseau CFC.

Pour un défaut extrinsèque, les vecteurs de déplacement seront du même type mais antiparallèles aux vecteurs de même nature définissant le défaut intrinsèque.

2.2 Tétraèdre de Thompson

Pour représenter géométriquement les vecteurs de déplacement caractéristiques des défauts et les différents vecteurs du Burgers des dislocations existant dans la structure CFC, on utilise le tétraèdre de Thompson (ABCD) construit à partir des sites du réseau CFC -Fig.4.

. On place l'origine des axes de référence au sommet D du tétraèdre.

. Ses arêtes sont : $AB = \frac{1}{2} [\bar{1}10]$; $BC = \frac{1}{2} [10\bar{1}]$; $CA = \frac{1}{2} [0\bar{1}1]$

. Les sommets A, B, C et D se projettent en α , β , γ et δ sur les faces opposées correspondant respectivement aux plans $(\bar{1}\bar{1}\bar{1})$, $(1\bar{1}\bar{1})$, $(\bar{1}\bar{1}1)$ et (111) .

. Ainsi, les vecteurs $\pm A\delta$, $\pm B\delta$, $\pm C\delta$, du type $\frac{1}{6} \langle 112 \rangle$ sont les vecteurs de Burgers des dislocations imparfaites (dites de Shockley) pouvant glisser dans le plan (111) .

Le vecteur $\pm D\delta$ du type $\frac{1}{3} \langle 111 \rangle$ est le vecteur de Burgers d'une dislocation de Frank, perpendiculaire au plan (111) .

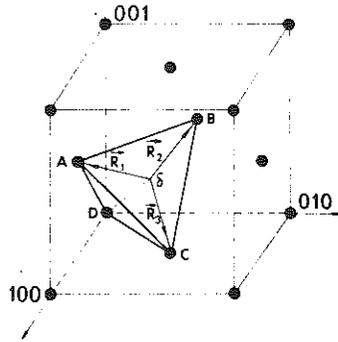


Fig. 4 :
Tétraèdre de Thompson

2.3 Détermination de la nature du défaut

i) Critère de Hirth et Lothe

. Si on a caractérisé les vecteurs de Burgers des dislocations imparfaites bordant l'image d'un défaut d'empilement, on peut déterminer la dislocation parfaite dont elles sont issues :

Ex : $A\delta + \delta B = \delta B + A\delta = AB$ - dislocations contenues dans le plan (111)

Pour caractériser la nature du défaut, on regarde, de l'extérieur du tétraèdre de Thompson, cette dislocation parfaite (AB par ex), le long de sa ligne, dans le sens positif.

On a un défaut intrinsèque en plaçant la dislocation imparfaite "Grecque-Romaine" ($\delta B = \frac{1}{6} [\bar{2}11]$ par exemple) à la gauche de l'observateur et la "Romaine-Grecque" ($A\delta = \frac{1}{6} [1\bar{2}\bar{1}]$) à sa droite.

Les deux configurations possibles sont données -Fig. 5- pour la dislocation parfaite AB.

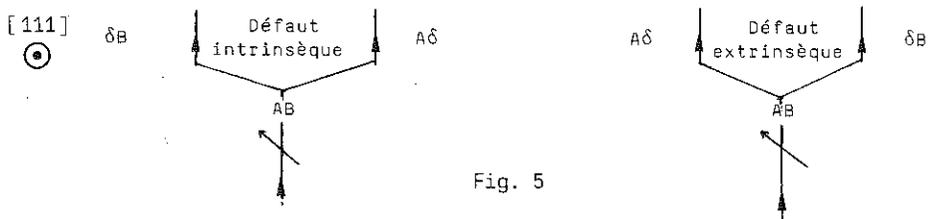


Fig. 5

ii) Règles de Gevers et Coll

On peut, pour la structure CFC, déterminer la nature du défaut à partir d'une image prise en champ sombre seule. Pour cela, on place l'origine du vecteur diffraction \vec{g} au centre de l'image du défaut et l'on examine la direction de ce vecteur par rapport aux franges qui bordent le défaut.

On détermine alors la nature de ce défaut en utilisant le tableau suivant :

\vec{g}	g pointe vers la frange noire	g pointe vers la frange claire
Classe A <200> <222> <440>	Défaut Extrinsèque	Défaut Intrinsèque
Classe B <111> <220> <400>	Défaut Intrinsèque	Défaut Extrinsèque

Cette règle est une application pour la structure CFC de la règle générale faisant intervenir l'inclinaison du défaut sur la lame.

ENONCE : Caractérisation de vecteurs déplacement \vec{R} de défauts d'empilement :

I - dans une structure CFC : Fe_3Ga ($L1_2$)

II - dans la Pyrite

I - Les micrographies de la Fig. 1 prises en champ sombre avec différents vecteurs \vec{g} représentent des défauts d'empilement dans une lame mince d'un alliage Fe_3Ga de structure CFC (ordonné $L1_2$)

Les différents azimuts sous lesquels ont été prises ces micrographies sont indiqués sur la projection stéréographique (Fig. 6). Les directions des pôles de ces azimuts sont parallèles à la trajectoire du faisceau électronique.

- 1) En utilisant cette projection stéréographique, déterminer les directions
 - a) de l'intersection du défaut A avec la lame [plan (120)]
 - b) de la ligne de la dislocation b qui borde le défaut

Ces deux directions sont dans le plan du défaut A : déterminer ce plan.

- 2) Caractériser la nature intrinsèque ou extrinsèque de ce défaut.

- 3) A partir des micrographies Fig. 1-3 : $\vec{g} = \bar{2}20$ et Fig. 1-4 : $\vec{g} = 1\bar{1}\bar{3}$ et sachant que le défaut est aussi hors contraste pour le vecteur diffraction $\vec{g} = 022$ (micrographie non reproduite ici), utiliser la méthode générale de détermination du vecteur \vec{R} , en résolvant le système :

$$\alpha = 2\pi \vec{g} \cdot \vec{R} = n \cdot 2\pi \quad \text{de 3 équations à 3 inconnues } u, v, w.$$

$$\vec{g} = [hkl] ; \quad \vec{R} = [u,v,w] \quad \text{avec } n = 0 \text{ ou un entier}$$

Cette méthode donne-t-elle une seule solution ?

- 4) A partir des règles de contraste ou d'extinction des dislocations, déterminer les vecteurs de Burgers des dislocations a et b qui bordent le défaut A. En déduire le vecteur de déplacement \vec{R} .

II - La figure 2 présente des boucles fautées observées dans un échantillon de pyrite (FeS_2) déformé à haute température. Ces images ont été prises dans des conditions de diffraction en faisceau faible ; cependant, les conditions d'extinction données pour des images obtenues en deux ondes restent valables.

Le plan des boucles est le plan de la lame = (001).

Les conditions d'extinction du groupe d'espace $\text{Pa } 3$ auquel appartient la pyrite sont telles qu'on ne peut obtenir une troisième extinction du défaut avec un vecteur \vec{g} linéairement indépendant des deux autres.

Figure 1

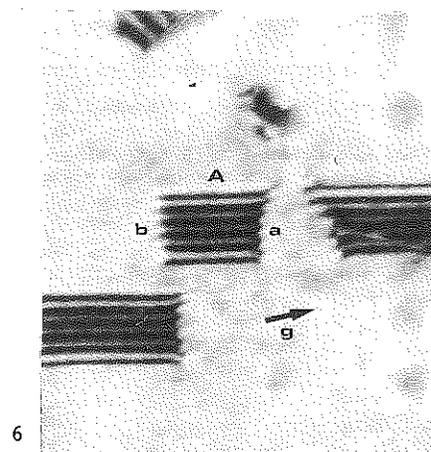
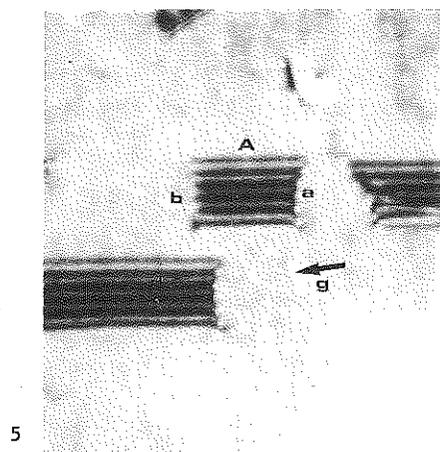
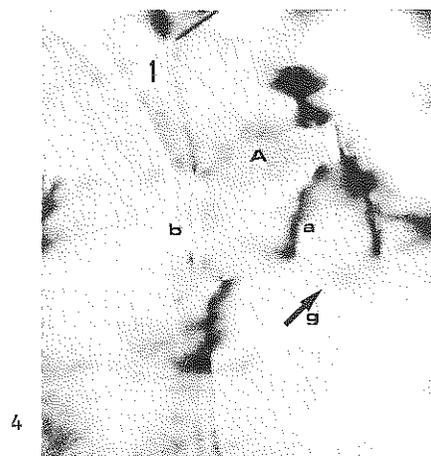
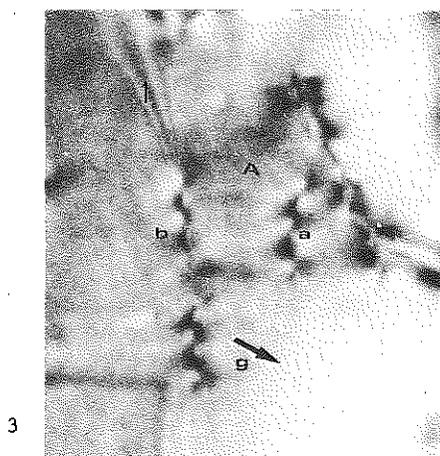
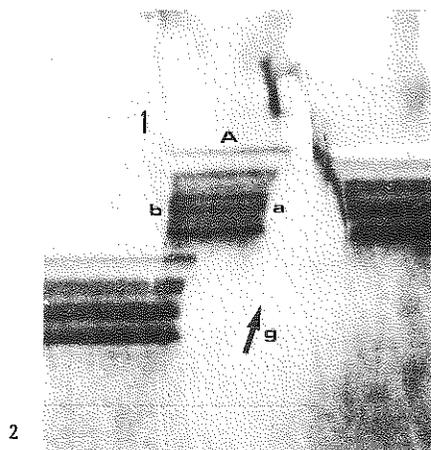
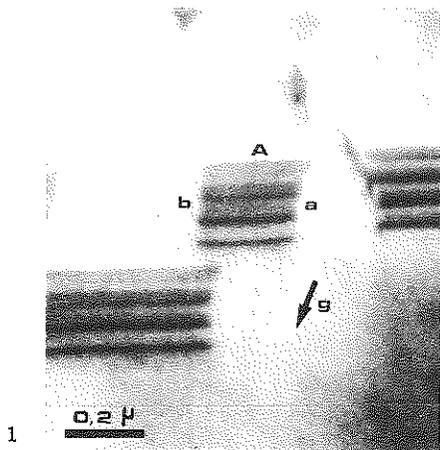


Figure 2 : Boucles fautées dans un échantillon de pyrite (FeS_2) déformé à haute température.

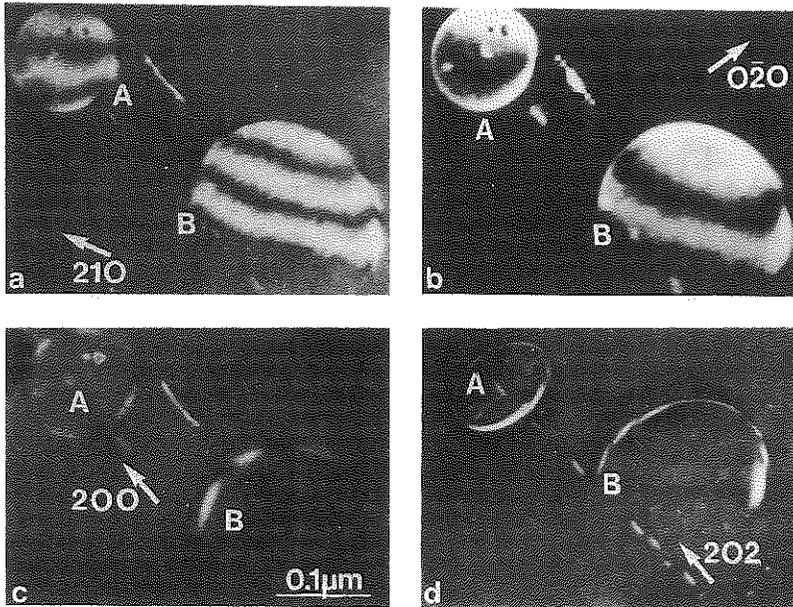


Figure 1 : Défaut d'empilement dans un échantillon de structure C.F.C.

Grain d'orientation (120)

1. Champ sombre $g = 002$
2. Champ sombre $g = 00\bar{2}$
3. Champ sombre $g = 2\bar{2}0$
4. Champ sombre $g = 1\bar{1}\bar{3}$
5. Champ sombre $g = \bar{1}11$
6. Champ sombre $g = 1\bar{1}\bar{1}$

CORRIGE

I -

1) Pour l'azimut $[120]$ pris avec un angle d'inclinaison nul, l'intersection du défaut A avec le plan de la lame, fait un angle de 65° avec la direction $[002]$. Cette intersection est parallèle à la direction $[\bar{2}11]$ du cristal. Ce résultat est confirmé par la micrographie -Fig. 1-5- où la projection de cette intersection se trouve à 7° de la direction $[111]$. Si l'on met en zone cette projection et l'azimut de la Fig. 1-5, le grand cercle ainsi défini coupe bien la lame suivant la direction $[\bar{2}11]$ -Fig. 7-

Les mêmes constructions sont effectuées pour déterminer la direction \vec{U} de la dislocation **b**. Les deux grands cercles passant par les deux azimuts Fig. 1-1 (soit $[120]$), Fig. 1-5, et les traces de la dislocation **b** sur les deux micrographies correspondantes se coupent en un point proche de $[011]$; ce point est la direction \vec{U} de la dislocation.

Les deux directions A et \vec{U} sont l'une et l'autre dans le plan du défaut. En les mettant en zone, on trouve le plan (111) qui est donc le plan du défaut d'empilement A.

2) Pour caractériser la nature du défaut A on emploie la règle de Gevers : à partir de la seule micrographie -Fig. 1-6-, champ sombre pris avec $\vec{g} = \bar{1}\bar{1}\bar{1}$ (classe B), où le vecteur diffraction pointe vers une frange extrême claire, on peut définir le caractère extrinsèque du défaut d'empilement.

3) On pose les trois équations : $\vec{g}_i \cdot \vec{R} = n_i$

$$\begin{aligned} g = \bar{2}20 & \longrightarrow 2u - 2v = p \\ g = \bar{1}\bar{1}\bar{3} & \longrightarrow u - v - 3w = q \\ g = 0\bar{2}\bar{2} & \longrightarrow -2v + 2w = r \end{aligned}$$

La résolution du système donne :

$$u = \frac{1}{6} [-4p + 2q + 3r] ; v = \frac{1}{6} [-p + 2q + 3r] ; w = \frac{1}{6} [-p + 2q]$$

Prenons quelques valeurs entières arbitraires pour p, q et r.

$$* p = q = 1 \quad r = 0 \quad u = \frac{2}{6} ; v = \frac{1}{6} ; w = \frac{1}{6}$$

$$\text{on trouve } \vec{R}_1 = \frac{1}{6} [\bar{2}11] = \delta B$$

$$* p = r = 1 \quad q = 0 \quad u = \frac{1}{6} ; v = \frac{2}{6} ; w = \frac{1}{6}$$

$$\text{qui donne } \vec{R}_2 = \frac{1}{6} [\bar{1}\bar{2}\bar{1}] = A\delta \neq \vec{R}_1$$

$$* q = r = 1 \quad p = 0 \quad u = \frac{5}{6} ; v = \frac{5}{6} ; w = \frac{2}{6}$$

$$\vec{R}_3 = \frac{1}{6} [552] = \frac{1}{6} [\bar{1}\bar{1}2] + [110] \equiv C\delta \neq \vec{R}_1 \neq \vec{R}_2$$

$$\text{ou} = \frac{1}{3} [111] + \frac{1}{2} [110] = D\delta + \frac{1}{2} [110]$$

enfin

$$* p = q = r = 1 \quad u = \frac{1}{6} ; v = \frac{4}{6} ; w = \frac{1}{6}$$

$$\vec{R}_4 = \frac{1}{6} [141] \equiv \frac{1}{6} [1\bar{2}1] + [010]$$

On voit que la résolution du système nous donne pour vecteur de déplacement \vec{R} les valeurs $A\delta$, δB , $C\delta$ et $D\delta$ à un vecteur du réseau près. Les trois premières valeurs sont dans le plan (111). La troisième lui est perpendiculaire.

Comment lever l'ambiguïté ?

4) C'est en caractérisant les dislocations bordant le défaut que l'on pourra déterminer \vec{R} sans ambiguïté.

La dislocation **a** qui borde à droite le défaut est invisible pour les réflexions $\vec{g} = 002$ (micrographies Fig. 1-1), peu visible pour $\vec{g} = 111$ (micrographies Fig. 1-5), nettement visible pour $\vec{g} = 2\bar{2}0$ et $\bar{1}\bar{1}3$.

Si l'on admet comme critère d'extinction des dislocations parfaites et imparfaites

$$|\vec{g} \cdot \vec{b}| < \frac{2}{3} \quad \text{et} \quad \frac{1}{8} |\vec{g} \cdot \vec{b} \wedge \vec{u}| < 0,08$$

on peut conclure (cf Tableau I) que le vecteur de Burgers de la dislocation **a** est $\pm\delta B$.

b \ g	002		$2\bar{2}0$		$\bar{1}\bar{1}3$		$\bar{1}\bar{1}1$	
	$ \vec{g} \cdot \vec{b} $	m_{\max}						
δC	$\frac{2}{3}$	0,059	0	0	1	0,088	$\frac{1}{3}$	0,029
δA	$\frac{1}{3}$	0,059	1	0	0	0,088	$\frac{1}{3}$	0,029
δB	$\frac{1}{3}$	0,059	1	0	1	0,088	$\frac{2}{3}$	0,029
δD	$\frac{2}{3}$	0,118	0	0,204	1	0,204	$\frac{1}{3}$	0,118

Tableau I

* La dislocation **b** est invisible pour les réflexions $g = \bar{1}\bar{1}3$, 002 et $\bar{1}\bar{1}1$; elle est par contre visible pour la réflexion $g = 220$.

Son vecteur de Burgers est alors égal à $\pm\delta A$.

En adoptant les conventions de Hirth et Lothe (cf § 2.3 i) et sachant que le défaut est extrinsèque, on peut écrire que le vecteur de Burgers de la dislocation **a** est δB , et celui de la dislocation **b** est $A\delta$ (noter que la normale [111] fait un angle aigu avec les azimuts des micrographies).

En considérant que le défaut a été créé par le glissement de la dislocation a vers la droite, on a

$$\vec{R} = -b_a = B\delta$$

Après le passage de la deuxième dislocation b , le déplacement total R_T

$$\vec{R}_T = B\delta + \delta A = BA$$

Dans ce cas étudié (alliage ordonné de structure $L1_2$), ce vecteur n'est pas un vecteur du réseau mais crée une paroi d'antiphase ($\frac{1}{2} \langle 110 \rangle$) dont on voit le contraste résiduel (1), à gauche de la dislocation b sur certaines micrographies (Fig. 1-3 et 1-4).

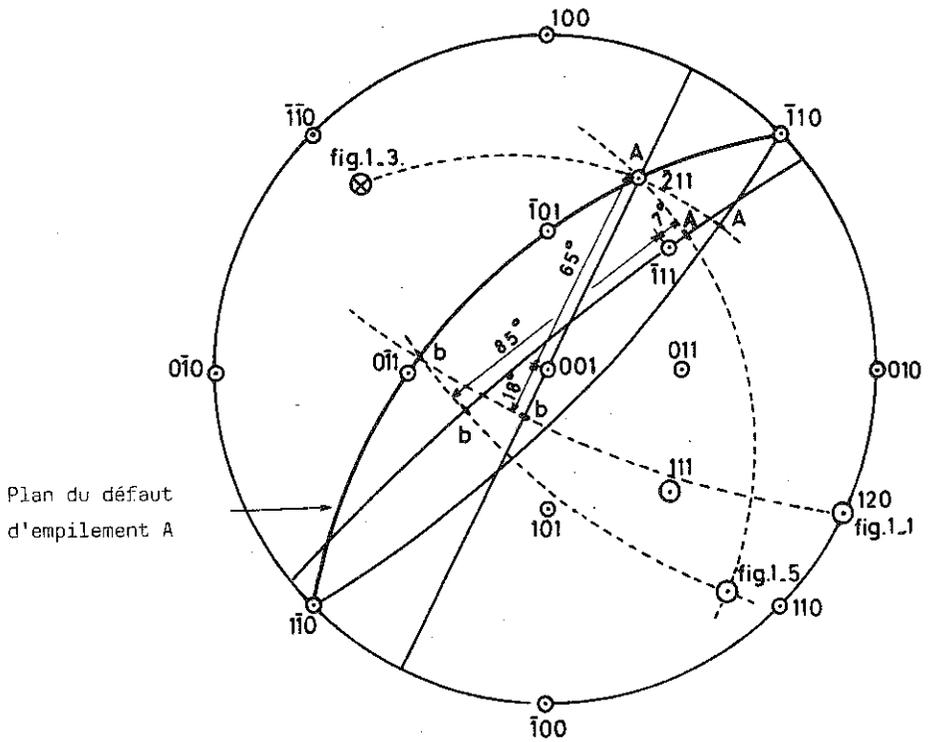


Fig. 7

II -

1) En écrivant la condition $\vec{g}_1 \cdot \vec{R} = \text{entier}$ pour les vecteurs de diffraction 200 et 202, on trouve :

$$u = p/2, \quad v = x \text{ quelconque}, \quad w = (q - p)/2 \quad (p, q \text{ entiers})$$

Selon que p et q sont pairs ou impairs, on trouve quatre "familles" de vecteurs \vec{R} (Tableau II) ; chaque famille comporte une infinité de solutions en fonction des valeurs de x .

$p \backslash q$	pair	impair
pair	[0x0]	[0x ¹ / ₂]
impair	[¹ / ₂ x ¹ / ₂]	[¹ / ₂ x0]

Tableau II

2) On constate sur les micrographies c et d de la figure 2 que la dislocation qui borde le défaut présente un fort contraste pour $\vec{g} = 202$ et un contraste très faible pour $\vec{g} = 200$. Ce contraste étant déterminé par la valeur du produit scalaire $\vec{g} \cdot \vec{b}$, nous allons pour chaque valeur de $\vec{b} = -\vec{R}$ calculer ce produit. Les résultats sont rassemblés dans le tableau III.

$\vec{g} \backslash \vec{b}$	[¹ / ₂ x ¹ / ₂]	[¹ / ₂ x0]	[0x0]	[0x ¹ / ₂]
200	gb = 1 visible	gb = 1 visible	gb = 0 invisible	gb = 0 invisible
202	gb = 2 visible	gb = 1 visible	gb = 0 invisible	gb = 1 visible

Tableau III

L'analyse de ce tableau montre que la "famille" de vecteurs [0x¹/₂] est le plus probable * ; le contraste résiduel de la boucle avec $\vec{g} = 200$ est dû à la composante coin du vecteur de Burgers.

* Ces vecteurs ne sont pas contenus dans le plan du défaut (001).

3) Il reste à déterminer le module de la composante de \vec{R} contenue dans le plan du défaut. Ceci ne peut pas être résolu par une étude de contraste.

Il faut faire appel à des considérations sur la structure de la pyrite.

La structure de la pyrite est constituée de deux sous-réseaux CFC : un sous-réseau d'atomes de fer et un sous-réseau de paires d'atomes de soufre qui forment une structure NaCl. La maille élémentaire présentée sur la figure 8 comprend :

- quatre atomes de fer aux positions $000, \frac{1}{2} \frac{1}{2} 0, 0 \frac{1}{2} \frac{1}{2}, \frac{1}{2} 0 \frac{1}{2}$;
- quatre paires d'atomes de soufre disposées en "haltères" ; chaque haltère est alignée suivant un des axes $\langle 111 \rangle$. Les atomes de soufre occupent les positions : $u, u, u ; \frac{1}{2} + u, \frac{1}{2} - u, \bar{u} ; \bar{u}, \frac{1}{2} + u, \frac{1}{2} - u ; \frac{1}{2} - u, \bar{u}, \frac{1}{2} + u ; \bar{u}, \bar{u}, \bar{u} ; \frac{1}{2} - u, \frac{1}{2} + u, u ; u, \frac{1}{2} - u, \frac{1}{2} + u ; \frac{1}{2} + u, u, \frac{1}{2} - u$; avec $u = 0,386$.

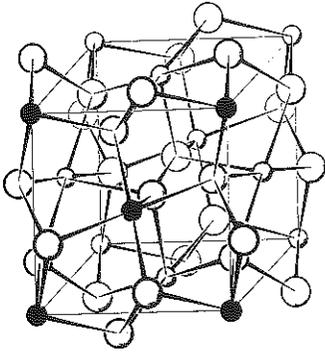
Une étude faisant appel à la théorie des groupes permet de trouver la translation \vec{R} qui conserve, à travers une interface les sous-réseaux de coïncidence de la pyrite. On trouve ainsi que :

$$\vec{R} = a \left(2u - \frac{1}{2}\right) [010] + \frac{a}{2} [001] = \vec{R}_{//} + \vec{R}_{\perp}$$

pour un défaut situé dans un plan (001).

Pour un plan $\{100\}$ donné, la direction de $\vec{R}_{//}$ est unique : elle est [001] pour un plan (100), [010] pour un plan (001) et [100] pour un plan (010). Ceci est dû à l'orientation des haltères pour chaque direction $\langle 100 \rangle$ d'un plan $\{100\}$.

La figure 9 montre le vecteur \vec{R} d'un défaut situé dans un plan (010) sur une projection du réseau dans un plan (100).



Maille conventionnelle de la pyrite.

Fig. 8

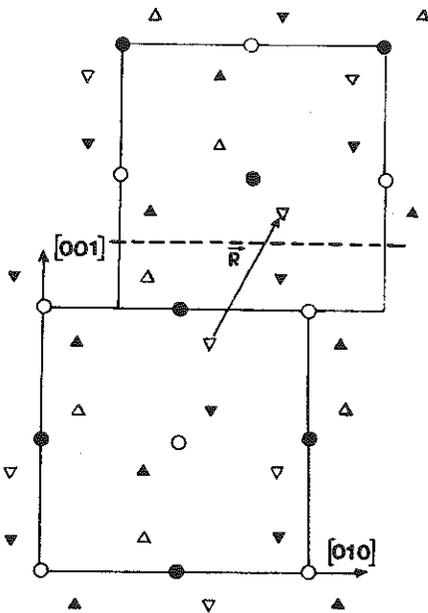


Fig. 9

Défaut situé dans un plan (001) de vecteur de déplacement $\vec{R} = a \left[0 ; 0,27 ; \frac{1}{2} \right]$.

Convention : Les côtes sont données suivant la direction [100]

Atomes de fer : ○, côte 0 ; ●, côte $\frac{a}{2}$.

Atomes de soufre : △, côte -0,115a ; ▽, côte 0,115a
 ▲, côte 0,385a ; ▼, côte 0,615a.

TRAVAUX DIRIGES

CHAPITRE XXIII

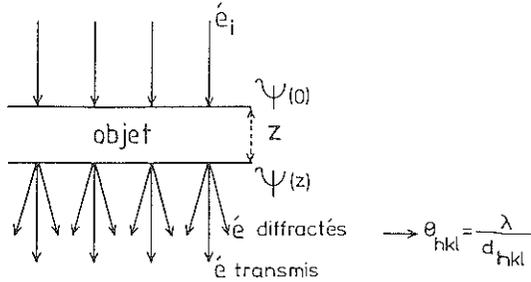
HAUTE RESOLUTION. MESURE DE LA
FOCALISATION D'UNE IMAGE

par Jany THIBAUT-DESSEAUX et
Michel RAUTUREAU

HAUTE RESOLUTION - MESURE DE LA FOCALISATION D'UNE IMAGE

Jany Thibault Desseaux et Michel Rautureau

I. Objet de phase faible



L'amplitude de l'onde électronique à la sortie du cristal

$$\psi(z) = f(z, \text{cristal}) \psi(0).$$

L'objet est de phase si $f = \exp i \Phi(z)$

Il n'y a pas d'atténuation du faisceau d'électrons.

L'objet est de phase faible si $\Phi(z) \ll 1$.

Alors
$$\psi(z) = (1 + i \Phi(z)) \psi(0)$$

II. Influence du microscope: fonction de transfert

Dans le cas de l'objet de phase faible, le contraste dans l'image est:

$$C(\vec{r}) = \int -2 \sin \delta(f) \tilde{\Phi}(f) \exp 2\pi i f \cdot \vec{r} \, dr$$

où $\delta(f)$ est le déphasage introduit par le microscope.

$T = -2 \sin \delta(f)$ est dite la fonction de transfert de fréquences pour un objet de phase faible.

III. Diffraction optique

Si on fait la transformée de Fourier optique (diffraction sur banc optique) de $C(r)$, on obtient

$$e(f) = -2 \sin \gamma(f) \tilde{\Phi}(f)$$

Si on enregistre ce signal, on aura un diffractogramme où la répartition d'intensité sera

$$e^2(f) = 4 \sin^2 \gamma(f) \tilde{\Phi}^2(f)$$

dans lequel le terme important est $\sin^2 \gamma(f)$

Le diffractogramme d'une image d'un objet amorphe permet donc de mesurer la fonction de transfert du microscope et donc de déterminer la défocalisation.

IV. Fonction de transfert

$$T(f) = -2 \sin \gamma(f)$$

$$\gamma(f) = -2 \pi (C_s \lambda^3 f^4 / 4 + \Delta z \lambda f^2 / 2)$$

On utilise souvent des coordonnées généralisées qui permettent d'utiliser les courbes de fonction de transfert pour n'importe quel microscope.

$$F = f \sqrt{C_s \lambda^3} \quad \Delta = -\Delta z / \sqrt{C_s \lambda}$$

$$\text{Alors } T(F) = -2 \sin \gamma(F)$$

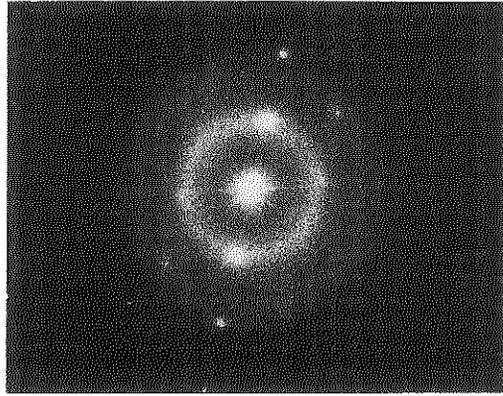
$$\text{avec } \gamma = -2 \pi (F^4 / 4 - \Delta F^2 / 2)$$

Exercice : Déterminer, pour certaines valeurs de coordonnées généralisées, les valeurs de d et de Δz correspondant aux caractéristiques de différents microscopes. Pour cela, remplir le tableau 1.

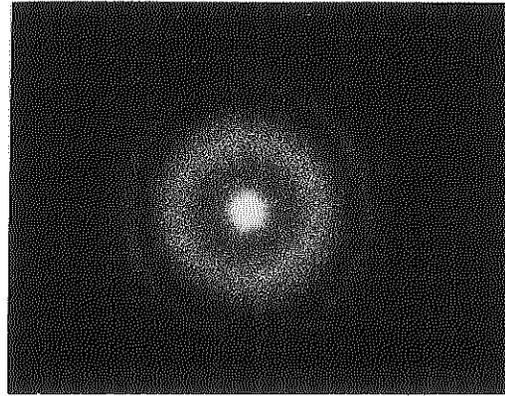
Les courbes de transfert sont donc connues analytiquement.

Si ces courbes sont tracées pour les points où $T = +1$ ou -1 , on obtient des abaques. (Voir corrigé).

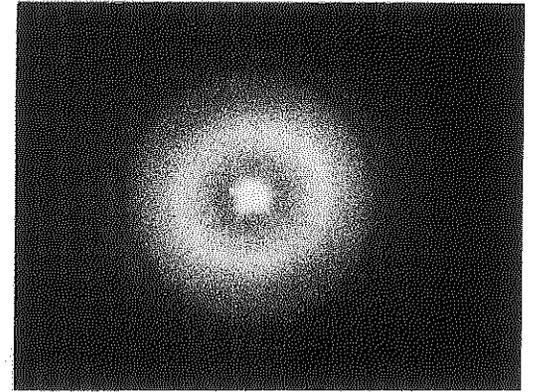
SERIE FOCALE
- germanium amorphe - 400kv



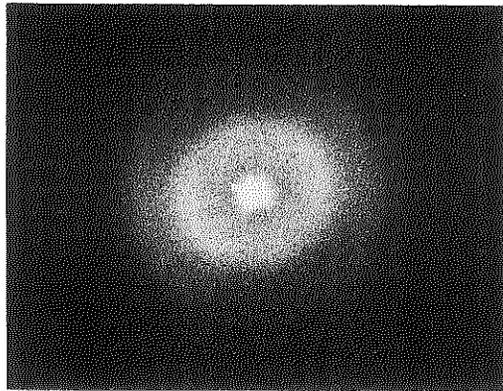
a



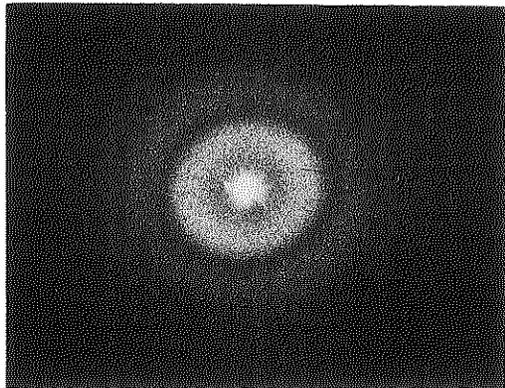
b



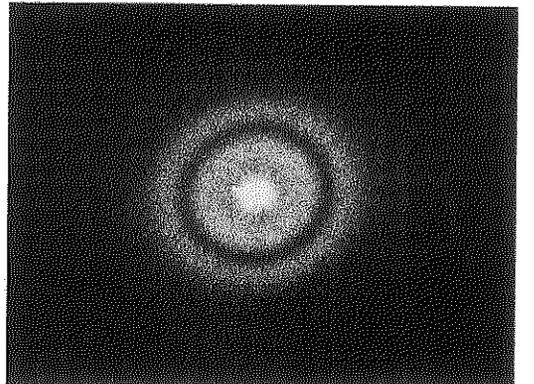
c



d



e



f

MICROSCOPE	λ Å	C_s mm	F=1	$\Delta = 1$	F=1,4	$\Delta = 1,25$
			$d = \sqrt[4]{C_s \lambda^3}$ Å	$\Delta z = \sqrt{C_s \lambda}$ Å	$d = \frac{\sqrt[4]{C_s \lambda^3}}{1,4}$ Å	$\Delta z = \sqrt{1,25 C_s \lambda}$ Å
100 kV Philips CM10	0,037	3,6				
2000 EX Jeol	0,025	5,6				
200 CX Jeol	0,025	1				
4000 EX Jeol	0,016	1				

TABLEAU 1

Pour une focalisation Δ_1 , le diffractogramme donnera une coupe en F de ces courbes.

Inversement, si on mesure sur un diffractogramme la répartition des zéros, ce qui est plus précis, on pourra déterminer la focalisation Δ de cette image.

V. Mesure de la focalisation

Le but de ce TD est de faire cette expérience, c'est-à-dire de replacer pour chaque diffractogramme d'une série focale (obtenue sur du germanium amorphe) la répartition des zéros et donc de déterminer la focalisation de chaque image.

On suppose C_s connu.

Dans le TD $C_s = 1$ mm

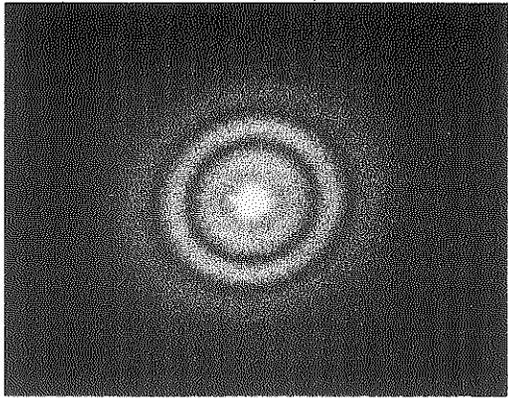
$E = 400$ kV

$\lambda = 0,016$ Å

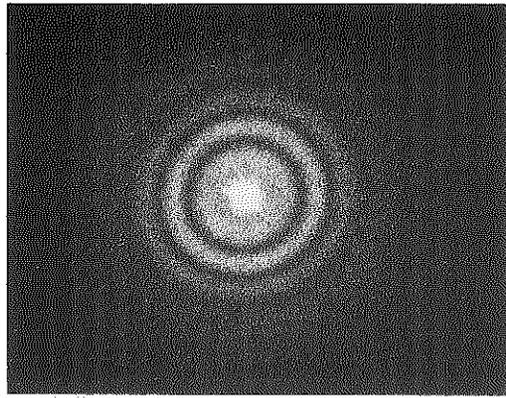
1) Etalonnage des diffractogrammes.

Le diffractogramme représente la distribution des fréquences spatiales (spectre) passant dans le microscope pour une défocalisation Δz .

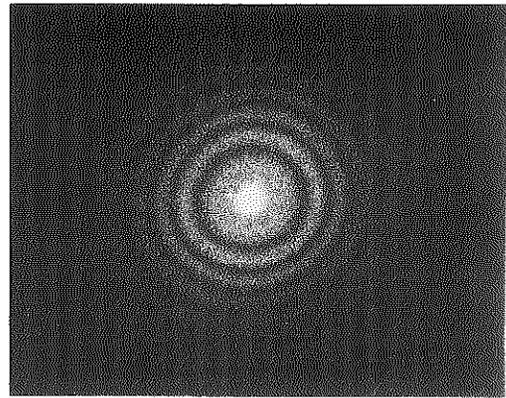
Il doit être étalonné avec une fréquence connue. On utilise pour cela un cliché qui a été pris dans un endroit



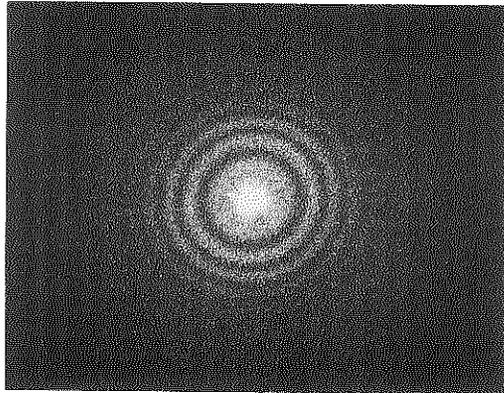
g



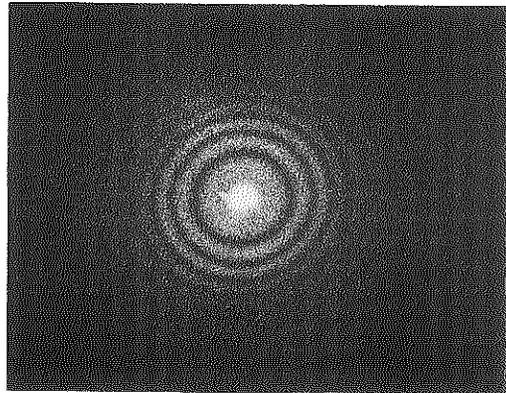
h



i



j



k

du spécimen où le germanium est un peu cristallin, ce qui a permis d'enregistrer des taches de diffraction données par les plans (111).

Cette réflexion permet d'étalonner les autres diffractogrammes pris tous au même grandissement que le cliché effectué avec Ge cristallin.

Exercice: Etalonnage des diffractogrammes

On donne $d_{111} = 3,26 \text{ \AA}$

* Calculer F_0

$$F_0 = f \sqrt[4]{C_s \lambda^3} = 1/d_{111} \sqrt[4]{C_s \lambda^3} = 0,77$$

* Replacer F_0 sur les abaques

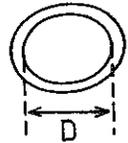
* Mesurer D_0 sur le cliché (a)

$$D_0 = 18,25 \text{ mm}$$

2) Détermination de la focalisation

Exercice

* Relever les zéros de la fonction de transfert pour chaque diffractogramme. Pour cela, mesurer D (toujours selon le même axe car les images présentent de l'astigmatisme).



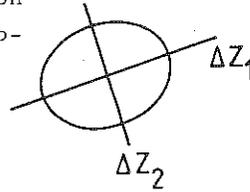
F_0 correspond à $D_0/2$, donc, à partir de la valeur de D on calcule:

$$F = F_0 \times D / D_0$$

- * Remplir le tableau 2 pour les différents diffractogrammes
- * En reportant sur un calque les points F pour $P = 1, 2, 3, \dots$ à l'échelle des abaques trouver la défocalisation correspondant à l'image.
- * Faire ce travail pour la photo h.
- * Trouver la différence de défocalisation entre les photos g et h.

* Déterminer l'astigmatisme résiduel de la photo h.

Pour cela, mesurer les zéros de la fonction de transfert suivant deux directions orthogonales, et calculer les focalisations correspondantes Δz_1 et Δz_2 .



L'astigmatisme résiduel est donné par:

$$\Delta a = (\Delta z_2 - \Delta z_1)/2$$

la focalisation moyenne étant $\Delta z = (\Delta z_1 + \Delta z_2)/2$

photo	P=1 (1 ^{er} zéro)			P=2			P=3			P=4			P=5			Δ	Δz (Å)
	D (mm)	D/D ₀	F	D (mm)	D/D ₀	F	D (mm)	D/D ₀	F	D (mm)	D/D ₀	F	D (mm)	D/D ₀	F		
b																	
c																	
d																	
e																	
f																	
g																	
h																	
h'																	
i																	
j																	

TABLEAU 2

CORRIGE

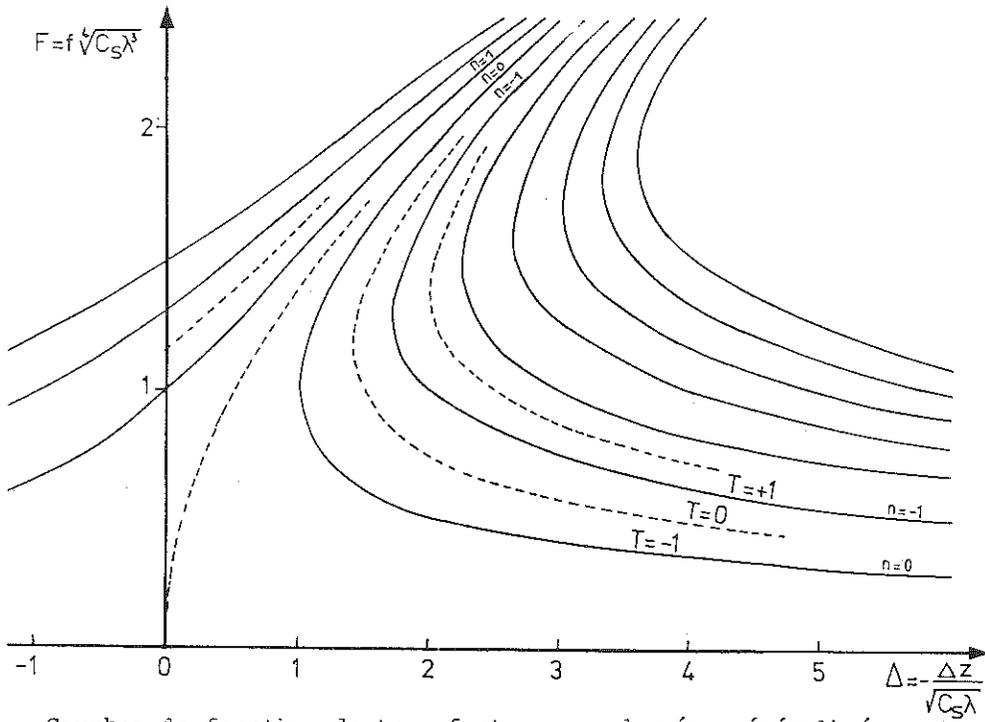
MICROSCOPE	λ Å	C_s mm	F=1	$\Delta = 1$	F=1,4	$\Delta = 1,25$
			$d = \sqrt[4]{C_s \lambda^3}$ Å	$\Delta z = -\sqrt{C_s \lambda}$ Å	$d = \frac{\sqrt[4]{C_s \lambda^3}}{1,4}$ Å	$\Delta z = -1,25 \sqrt{C_s \lambda}$ Å
100 kV Philips CM10	0,037	3,6	6,5	-1150	4,7	-1440
2000 EX Jeol	0,025	5,6	5,4	-1180	3,8	-1480
200 CX Jeol	0,025	1	3,5	-500	2,5	-625
4000 EX Jeol	0,016	1	2,5	-400	1,8	-500

TABLEAU 1: Valeurs de d et Δz correspondant aux caractéristiques de différents microscopes pour certaines valeurs de coordonnées généralisées F, Δ .

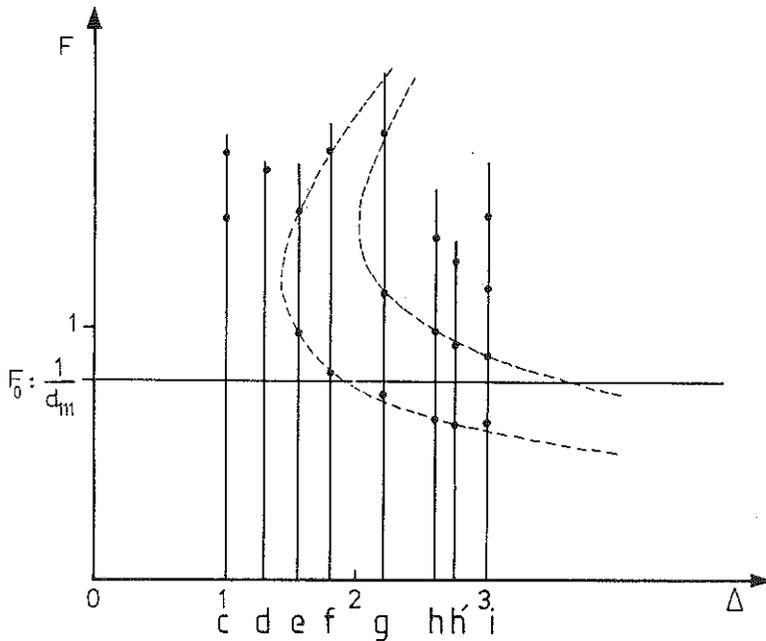
photo	P=1 (1 ^{er} zéro)			P=2			P=3			P=4			P=5			Δ	Δz (Å)
	D (mm)	D/D ₀	F	D (mm)	D/D ₀	F	D (mm)	D/D ₀	F	D (mm)	D/D ₀	F	D (mm)	D/D ₀	F		
b																	
c	335	1,83	1,41	40	2,19	1,67										1	-400
d	38	2,19	1,67													1,3	-520
e	225	1,23	0,95	34	1,86	1,43										1,54	-616
f	19	1,04	0,80	40	2,19	1,67										1,8	-720
g	17	0,95	0,73	26,5	1,45	1,12	41	2,25	1,73							2,2	-880
h	15	0,82	0,63	23	1,26	0,97	31,5	1,73	1,33							2,6	-1040
h'	14,5	0,79	0,61	22	1,2	0,92	29,5	1,62	1,25							2,75	-1096
i	14,5	0,79	0,61	21	1,15	0,88	27	1,48	1,14	33,5	1,83	1,41				3	-1200
j																	

TABLEAU 2: Pour chaque diffractogramme (c → i), mesures des zéros de la fonction de transfert et valeurs de F correspondantes. Δ : Focalisation obtenue à partir des abaques.

Δz : Défocalisation correspondante (calculée).



Courbes de fonction de transfert en coordonnées généralisées



La focalisation Δ de chaque diffractogramme est obtenue en faisant coïncider la série des zéros (F) correspondants avec les courbes ci-dessus (valeurs Δ reportées dans le tableau 2).

Achévé d'imprimer sur les presses

des Ets Fricotel - Epinal, Paris

Dépôt légal n° 2376 - 2^e trim. 1987

I S B N 2-903589-05-4