

NanoLaminographie 3 et 4 D dans le MET

Lluís Yedra (MSSMat, UMR CNRS 8579; SPMS, UMR CNRS 8580, CentraleSupélec)

Mohamed Sennour (Centre des Matériaux, UMR CNRS 7633, Mines ParisTech)

Stéphane Roux (LMT, UMR CNRS 8535, ENS Paris-Saclay)

Contexte

La tomographie dans le microscope électronique à transmission (MET) est une technique qui permet de relever la nanostructure tridimensionnelle des matériaux avec une précision sub-nanométrique, même avec de l'information chimique^{1,2}. Malheureusement, à l'exception des échantillons pouvant être préparés en forme de pointe, l'angle de rotation dans le microscope est limité déjà à la base (Fig.1b) par l'espace très réduit entre les pièces polaires de la lentille objectif mais aussi par l'effet d'ombrage du porte-échantillons dans le cas des nanostructures déposées sur des grilles recouvertes d'un film de carbone (nanoparticules, nanofils, nanotubes...) et par l'incrément de l'épaisseur traversée par le faisceau d'électrons avec l'angle d'inclinaison pour les lames minces. La conséquence de cette limitation est une dégradation de la reconstruction dans la direction perpendiculaire au plan de l'échantillon.

Ce sont aussi les lames minces qui limitent le plus la tomographie chimique (4D), car les pertes d'énergies des électrons (EELS) sont très dépendantes de l'épaisseur³ et les détecteurs de fluorescence des rayons X (EDX) sont ombragés non uniformément au long des expériences (Fig.1a), ce qui rend leur signal impropre à la reconstruction⁴.

Parmi les exemples dans le domaine de la science et de la mécanique des matériaux où la résolution en 3D de la morphologie et de la chimie est un apport précieux dans la compréhension des phénomènes et des comportements, on peut citer la fissuration par corrosion sous contrainte (CSC) et la structure des interfaces dans les revêtements et les matériaux composites (nanoporosités, décohésion, etc...). Pour ces différents exemples, les échantillons doivent être préparés en forme de lame, soit par polissage (électrolytique, ionique) soit par usinage dans un MEB-FIB. Ces échantillons étant peu adaptés à la tomographie électronique traditionnelle au regard des artefacts cités plus haut, la structure 3D à l'échelle nano reste donc inaccessible. Nous proposons de développer un outil expérimental nouveau pour vaincre ces artefacts et ainsi atteindre microstructure (3D) et composition chimique (4D) aujourd'hui inaccessible par la tomographie traditionnelle.

Description du projet

Nous allons adopter une approche laminographique (Fig.1c) pour maximiser l'information structurale tridimensionnelle des lames minces à l'échelle nanométrique. La littérature en tomographie des rayons X montre comment cette approche permet d'échantillonner de façon homogène l'espace des projections en réduisant l'information manquante dans la direction perpendiculaire à la surface et se montre bien adaptée aux échantillons dont une des trois dimensions de l'espace est mince⁵. Cet avantage a déjà été testé dans des échantillons biologiques^{6,7}. Nous y voyons encore un autre avantage du point de vue des informations spectroscopiques : les détecteurs EDX restent exposés de la même façon tout au long de l'expérience et le signal EELS traverse toujours la même épaisseur d'échantillon.

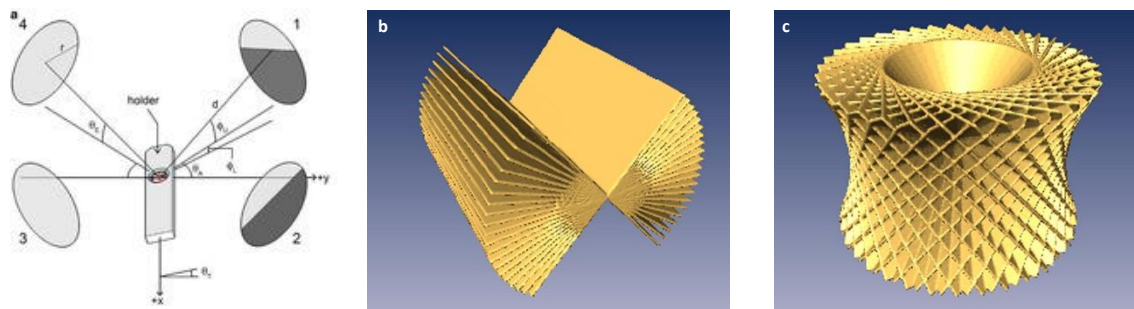


Fig. 1 : a) Effet d'ombrage du porte-échantillons sur les détecteurs EDX⁴, b) échantillonnage de l'espace avec géométrie de rotation simple et c) échantillonnage de l'espace avec géométrie laminographique⁷.

Ce projet cherche à mettre en place une procédure pour appliquer la laminographie dans un MET et l'établir comme outil d'exploration 3D à l'échelle nano pour les problèmes liés à la fissuration et la structure des interfaces. La méthode et les résultats visés sont les suivantes :

- Maîtrise de la reconstruction laminographique en adaptant un logiciel de reconstruction tomographique (par ex. logiciel ASTRA).
- Validation de l'approche (comparaison avec la tomographie classique) et optimisation des conditions expérimentales (nombre d'images, angles d'acquisition) idéales par voie de simulations dans le même logiciel, dans le but de procéder à des acquisitions expérimentales dans les meilleures conditions possibles.
- Validation expérimentale avec, par exemple, des échantillons à nanoprécipités (taille, distribution spatiale et distances inter-précipités).
- Optimisation de l'acquisition expérimentale par application des méthodes de reconstruction exploitant la parcimonie de l'information, ce qui permettra de réduire le nombre d'images nécessaires pour une même information 3D.
- Validation expérimentale de cette dernière méthode dans le cas de la tomographie chimique (EELS ou EDX), où le temps d'acquisition et la dose électronique reçue par l'échantillon sont beaucoup plus importants que dans le cas de l'imagerie. Une application potentielle est la distribution des oxydes dans une fissure de corrosion sous contrainte.

A cet effet, il est donc nécessaire de fédérer les compétences en tomographie MET de Lluís Yedra^{2,8} (MSSMAT, Centrale Supélec), l'expertise en MET des matériaux et des structures de Mohamed Sennour⁹ (Centre des Matériaux, MINES Paristech) et les connaissances théoriques et numériques de Stéphane Roux¹⁰ (LMT, ENS Paris-Saclay). Le « Coup de pouce » F2M nous permettra de financer un chercheur post-doctorant (12 mois) qui bénéficiera aussi bien des moyens expérimentaux déjà présents dans les laboratoires MSSMat et du Centre des Matériaux et des échanges avec des experts en laminographie des rayons X.

Retombées et perspectives

La première retombée est d'ordre scientifique. Au terme de l'étude exploratoire sur la laminographie structurale et chimique dans le MET, nous aurons établi le cadre théorique et expérimental pour récupérer la nanostructure tridimensionnelle des lames minces, ce qui est une avancée méthodologique importante permettant de surmonter les limitations imposées par la géométrie de ces échantillons.

Cette étude s'inscrit dans le contexte plus large du groupe de travail Tomo Elec, lié à l'EquipEX MatMéca, qui réunit les laboratoires LMT (ENS Paris-Saclay), le Centre des Matériaux (Mines ParisTech), le MSSMat (CentraleSupélec), le CEA Saclay et l'ONERA (Chatillon). Si les résultats de cette étude préliminaire s'avèrent positifs, il est envisageable d'utiliser cette technique dans des études plus vastes de comportement des matériaux, car ils peuvent fournir une information plus précise sur la microstructure à introduire lors des simulations et à l'approfondissement des connaissances dans des études post-mortem.

Du point de vue application, avec les exemples de la distribution spatiale des nanoprécipités, la nanoporosité intergranulaire et la distribution des oxydes en fond de fissure, nous nous attendons à ce que les concepts et les outils développés soient adoptés dans la communauté de la science des matériaux mais aussi dans les sciences du vivant.

Moyens demandés : 50 k€: Chercheur post-doctorant (12 mois)

1. Saghi, Z. & Midgley, P. A., *Annu. Rev. Mater. Res.* **42**, 59–79 (2012).
2. Yedra, L. *et al.*, *Analyst* **141**, 4968–4972 (2016).
3. Egerton, R. F., (Springer, 2011).
4. Yeoh, C. S. M. *et al.*, *Microsc. Microanal.* **21**, 759–764 (2015).
5. Helfen, L. *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 71915 (2005).
6. Radermacher, M. T., *J. Electron Microsc. Tech.* **9**, 359–394 (1988).
7. Lanzavecchia, S. *et al.*, *J. Struct. Biol.* **149**, 87–98 (2005).
8. Yedra, L. *et al.*, *Nanoscale* **6**, (2014).
9. Sennour, M. *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **442**, 262–269 (2013).
10. Roux, S., Leclerc, H. & Hild, F., *J. Math. Imaging Vis.* **49**, 335–351 (2014).