



HAL
open science

Etude et réalisation de fenêtres innovantes en diamant : application aux tubes à rayons X

Colin Delfaure

► **To cite this version:**

Colin Delfaure. Etude et réalisation de fenêtres innovantes en diamant : application aux tubes à rayons X. Physique [physics]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2016. Français. NNT : 2016PA066153 . tel-01401272

HAL Id: tel-01401272

<https://theses.hal.science/tel-01401272>

Submitted on 23 Nov 2016

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.

THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Spécialité : Chimie - Physique des matériaux

présentée par

Colin DELFAURE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ PIERRE ET MARIE CURIE

Sujet de la thèse :

**Étude et réalisation de fenêtres innovantes
en diamant : application aux
tubes à rayons X**

Thèse présentée et soutenue à Saclay, le 20 janvier 2016 devant le jury composé de :

KLEIDER, Jean-Paul	Directeur de Recherche, CNRS-LGEP	Président du jury
BARRAT, Silvère	Professeur, Ecole des mines de Nancy	Rapporteur
ACHARD Jocelyn	Professeur, CNRS-LSPM	Rapporteur
BABOT, Daniel	Professeur Émérite, INSA de Lyon	Examineur
BERGONZO, Philippe	Directeur de Recherche, CEA-LIST	Invité
TRANCHANT, Nicolas	Ingénieur de recherche, CEA-LIST	Encadrant
MAZELLIER, Jean-Paul	Ingénieur de recherche, Thales TRT	Encadrant
PONARD, Pascal	Ingénieur de recherche, Thales TED	Encadrant
SAADA, Samuel	Ingénieur de recherche, CEA-LIST	Directeur de thèse

Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives

CEA TECH - Laboratoire d'Intégration des Systèmes et des Technologies

Laboratoire Capteurs Diamant

“Shine bright like a diamond”

R.

Remerciements

Les quelques mots qui ouvrent ce manuscrit sont à la fois le début d'une histoire mais aussi pour moi la conclusion d'une belle expérience. Ils me donnent surtout l'occasion de remercier toutes les personnes qui m'ont accompagné durant ces trois années, exigeantes mais riches.

Je tiens à remercier tous les membres du jury pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce manuscrit. Tout d'abord, merci à Monsieur Jean-Paul Kleider de m'avoir fait l'honneur de présider ce jury. Je remercie ensuite Messieurs Silvère Barrat et Jocelyn Achard pour leur lecture attentive de ces travaux en tant que rapporteurs. Je remercie également Monsieur Daniel Babot d'avoir accepté de juger mon travail.

Cette thèse s'est déroulé au Laboratoire Capteur Diamant (LCD) du CEA Saclay et je tiens à remercier Philippe Bergonzo de m'avoir accueilli dans le laboratoire au début de ma thèse. Je le remercie pour ses explications passionnées, ses relectures toujours très efficaces, son soutien sans faille au laboratoire et aux doctorants et ses généreuses tournées de bière. Je suis extrêmement reconnaissant au laboratoire de m'avoir permis de participer à de nombreuses conférences à l'étranger et de m'avoir permis de travailler dans des conditions exceptionnelles.

Ce travail de thèse a été dirigé par Samuel Saada et encadré par Nicolas Tranchant, Jean-Paul Mazellier et Pascal Ponard. Je les remercie de la confiance qu'ils m'ont accordé il y a maintenant trois ans, de leur grande disponibilité, de leurs conseils avisés et de leurs encouragements qui ont grandement contribué à améliorer la qualité de ce travail. Un merci particulier à Sam et Nico pour les footing au milieu des cerfs et des biches, les (semi-)marathons, les théories sur le glycogène, les interprétations de manips et les discussions quotidiennes autour d'un café. Un merci à Pascal pour le temps qu'il a toujours su trouver dans son emploi du temps pour répondre à mes questions. Merci à Jean-Paul pour son aide précieuse, son efficacité hors du commun, pour les trajets de 6h en voiture et les conversation sur le brassage de la bière, la bonne bouffe et la physique...

Mes remerciements vont également à tous mes collègues du LCD pour leur soutien sans faille. À Bertrand, en souvenir de mes débuts, pour sa bonne humeur quotidienne (dites-le avec des fleurs...) et sa disponibilité ; à Dominique pour son aide hebdomadaire, pour les nombreuses discussions et les conseils toujours excellents ; à Christine pour son optimisme à tout épreuve ; à Michal “grand doctor” Pomorski pour ses conseils en polonais (pokaz cycki ?) mais surtout son aide et ses compétences en détection ; à monseigneur Jacques pour ses anecdotes toujours de bon goût et sa vocation d’historien (Quel est le dernier roi de France ? Hein ?) ; à Jean-Charles pour les manips XPS ; à Hugues pour sa culture musicale et ses compétences en ouverture de porte de salle de bain.

Parmi les membres du labo, un merci particulier aux doctorants qui m’ont montré la voie : Tristant, Benoit², Fanny, Nicolas (DIADEME power), Candice et à ceux qui suivront le même chemin. En particulier à Kee Han (DIADEME power) et Dounia (Madame PhD Talent !) : rendez-vous à votre soutenance. Merci à tous pour votre amitié, vos discussions débiles et vos craquages.

Je n’oublie évidemment pas Thomas pour son aide dans les multiples (re)re-montages de DIADEME et le célèbre Guillaume P. pour ses programmes et son goût subversif pour les boutons ronds. Un merci sincère à mes co-bureaux successifs Clément, Souad et Cyrille qui m’ont supporté avec le sourire et m’ont aidé à prendre le recul nécessaire tout au long de ces trois années. La moquette murale me manquerait presque...

Je remercie également mes collègues de TRT. Ceux de la première heure : Florian (qui pense encore qu’il était mon maître de stage), Paolo, Pierre et Laurent. Et ceux de la dernière : Sylvain, Lucie (pour les manips EDX et sa gentillesse !), Alberto, Saana et tous les autres. Merci également à Bernard Servet pour les manips Raman et Paolo Martins pour les manips de profilométrie optique.

Je voudrais remercier chaleureusement les savoyards de Thonon-Les-Bains qui m’ont accueilli à bras ouverts lors de mes missions “au lac” même lorsque j’arrive avec quatre heures de retard et une voiture à la fourrière. Merci à Nicolas le roi du brasage et Gregory l’as de la carte électronique pour leur aide précieuse. Un grand merci à Christophe, Guillaume, Yannick, Bernard et à toute l’équipe. Vous m’avez laissé un souvenir impérissable des Cornettes, de son berthoud et de son babyfoot. Un merci particulier à Guillaume Regnard pour son expérience partagée et ses conseils avisés.

Merci à Dominique Chambellan pour ses précieuses explications et aux membres du LCAE pour leurs nombreux conseils. Merci à Marc Denozière pour la chambre à ionisation. Merci à Sylvain Foucquart et Bruno Delomez pour leur talent et leur efficacité

dans un atelier. Je tiens également à remercier Yves Menesguen pour les expériences sur SOLEX. Enfin, un clin d’œil à Mathieu Agelou et aux membres du C.U. qui veillent sur le département et le CEA avec bienveillance et attention.

Merci aux amis qui m’ont soutenu et encouragé dans les moments difficiles. Un grand merci à mes incroyables colocataires : Sexile, Cromain et Ben&Jasmin. Du love pour les Lyonnais qui n’ont pas eu peur de venir tâter la campagne parisienne : Antonin, Jane et Francis. Et d’ailleurs, merci à Radio Baccalhão. Big up à Flognon pour son soutien constant, ses conseils, sa burcite et ses goût musicaux discutables (William Sheller si tu nous lis). Merci à Lilo&Bitch, la meilleure des partenaires de belote et la plus acharné des runneuses.

Merci à Zoé pour son enthousiasme infallible, ses dimanches sushi avec Phoebe et sa présence qui me redonne le sourire dans les moments difficiles. Ce manuscrit n’aurait pas de si belles phrases sans elle.

Mes derniers remerciements vont à ma famille pour m’avoir toujours encouragé lors de mes choix, pour les relectures attentives de ce travail et pour son soutien inconditionnel d’une si grande valeur.

Glossaire

Acronymes et définitions

AEE : Absorption Énergétique Effective

AFM : Atomic Force Microscopy (microscopie à force atomique)

BAOBAB : Nom du réacteur de synthèse de diamant dopé développé par le LCD

BEN : Bias Enhanced Nucleation

BGA : Ball Grid Array (connectique utilisé dans les circuits intégrés)

CCE : Collection Charge Efficiency (efficacité de collecte de charge)

CEA : Commissariat à l'Énergie Atomique et aux énergies alternatives

CFC : Cubique Face Centré

CMP : Chemical Mechanical Polishing (polissage mécano-chimique)

CND : Contrôle Non Destructif

CNT : Carbon NanoTube (nanotube de carbone)

CVD : Chemical Vapor Deposition (dépôt chimique en phase vapeur)

DM : Diamond Material

DLC : Diamond Like Carbon

DPE : Deposition Planarization Etching (type de lissage)

DR : Diffuse Reflectivity (Réflectance diffusée)

DIADEME : DIAMOND DEVELOPMENT for Micro-Electronics (réacteur CVD pour la synthèse du diamant)

EBIC : Electron Beam Induced Current (courant induit par faisceau d'électrons)

EDX : Energy Dispersive X-Ray

FDM : Facteur De Mérite

FEM : Finite Element Method (méthode par éléments finis)

GE : General Electric

GEANT4 : GEometry ANd Tracking (code de simulation Monte-Carlo)

HFCVD : Hot Filament Chemical Vapor Deposition (dépôt chimique en phase vapeur assisté par filament chaud)

HPHT : Haute Pression Haute Température (procédé de synthèse du diamant monocristallin)

HT : Haute Tension

ICP : Inductive Coupled Plasma (plasma couplé par induction)

IEF : Institut d'Électronique Fondamentale

InLens : Nom du détecteur d'électrons secondaires du MEB placé dans la colonne

IR : InfraRouge

LCD : Laboratoire Capteurs Diamant

LED : Light emitting Diode (diode à émission de lumière)

LNHB : Laboratoire National Henri Becquerel

LPSC : Laboratoire de Physique Subatomique et de Cosmologie

LRI : Laser Reflectance Interferometry (interférométrie laser en réflexion)

MEB : Microscopie Électronique à Balayage

MEB-FEG : MEB équipé d'une pointe FEG (Field Emitting Gate). Utilisé pour l'imagerie très haute résolution

MPECVD : Microwave Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition (dépôt chimique en phase vapeur assisté par plasma micro-onde)

MC : Monte-Carlo

MCNPX : Monte Carlo N-particles eXtended (code de simulation Monte-Carlo)

NABOO : Nom du dernier réacteur de synthèse développé au LCD

ND : Nanodiamant

NIST : National Institute for Standards and Technology

NND : Nearest Neighbor Distance (distance au plus proche voisin)

PDDAC : Chlorure de poly(diméthyl diallyl ammonium)

PID : Proportional Integral Derivative (type de régulateur)

PDMS : Polydiméthylsiloxane

PMMA : Polyméthacrylate de méthyle

PTW : Fabricant de détecteurs de rayonnement

PVA : Alcool polyvinylique

PVD : Physical Vapor Deposition (dépôt physique en phase vapeur)

RF : Radio Fréquence

RIE : Reactive Ion Etching (gravure ionique réactive)

RMS : Root Mean Square (racine carré de la moyenne des carrés)

SE2 : Nom du détecteur d'électrons secondaires du MEB placé loin de l'échantillon

SiC : Silicon Carbide (carbure de silicium)

SOD : Silicon On Diamond

SMA : SubMiniature version A (type de connecteur coaxial)

TED : Thales Electron Devices

TMB : Borate de triméthyle

TSC : Thermally Stimulated Current (courant stimulé thermiquement)

TRT : Thales Research & Technology

UHV : Ultra High Vacuum (ultra-vide, gamme comprise entre 10^{-9} mbar et 10^{-11} mbar)

VXI : Virtual X-ray Imaging

WC : Carbure de tungstène

XED : X-ray Emitting Diode



Table des matières

Introduction générale	1
I Des fenêtres innovantes en diamant pour les tubes à rayons X	5
I.1 Introduction	7
I.2 Les tubes à rayons X	7
I.2.1 Production des rayons X	8
I.2.2 Design et évolution des tubes	10
I.2.3 Les tubes microfoyers : vers la très haute résolution	13
I.3 Le diamant, un candidat idéal pour les fenêtres en transmission	16
I.3.1 Les deux formes cristallines du diamant	17
I.3.2 État de l'art des propriétés physiques du diamant	18
I.4 La synthèse du diamant	23
I.4.1 La synthèse à basse pression : le procédé MPECVD	23
I.4.2 Croissance monocristalline par MPECVD	24
I.4.3 La synthèse de films polycristallins	25
I.5 De la fenêtre en diamant à la smart-window	28
I.5.1 Contexte industriel du projet et problématique	28
I.5.2 Objectifs de la thèse	29
I.6 Conclusion	30
II Modélisation d'une smart-window	33
II.1 Introduction	35
II.2 Modélisation du comportement mécanique d'une smart-window	36
II.2.1 Formulation du problème	36
II.2.2 Déformation d'une smart-window soumise à une pression différentielle	36
II.2.3 Influence de l'état de contrainte initial : les contraintes internes	42
II.2.4 Modélisation d'un système réel	46
II.3 Évaluation de l'efficacité thermique d'une smart-window	51
II.3.1 Nouveau modèle analytique pour le calcul de la température	53

II.3.2	Évaluation du modèle analytique	65
II.3.3	Modélisation de systèmes thermiques plus complexes	70
II.4	Modélisation de la réponse électronique d’une smart-window	72
II.4.1	Du faisceau électronique au photocourant	73
II.4.2	Modélisation analytique	75
II.4.3	Simulation Monte-Carlo pour le transport des particules	80
II.5	Dimensionnement du système et limite de la modélisation	87
II.5.1	Dimensionnement mécanique des smart-windows	87
II.5.2	Le diamant polycristallin et ses limites	88
II.5.3	Limites énergétiques à la réponse des smart-windows	89
II.6	Conclusion du chapitre	90
 III Réalisation et optimisation d’un prototype		 93
III.1	Introduction	95
III.2	Fabrication des smart-windows	95
III.2.1	Design et processus de fabrication	96
III.2.2	Intégration de la fonction détection	103
III.2.3	Dépôt d’une cible en transmission	106
III.2.4	Fabrication d’une fenêtre de type “monopoly”	111
III.3	Optimisation des smart-windows	113
III.3.1	Objectifs et moyens	113
III.3.2	Méthodologie de l’optimisation	114
III.3.3	Analyse des résultats	116
III.4	Suivi <i>in situ</i> de la synthèse des smart-windows	123
III.4.1	Croissance séquentielle	124
III.4.2	Développement d’un modèle pour le suivi de la texturation	131
III.5	Brasage des smart-windows	140
III.5.1	Brasage du diamant, brasage actif	140
III.5.2	Géométrie de l’assemblage	141
III.5.3	Brasage d’un prototype	141
III.6	Vers des procédés de dépôt grande surface	143
III.6.1	Problématique	143
III.6.2	État de l’art	143
III.6.3	Premières croissances par plasma matriciel à 352 MHz	144
III.7	Conclusion du chapitre	148

IV Caractérisations expérimentales des smart-windows	151
IV.1 Introduction	153
IV.2 Évaluation des performances standard d'une fenêtre polycristalline	153
IV.2.1 Tenue mécanique des smart-windows	153
IV.2.2 Résistance à la fatigue	158
IV.2.3 Mesure de la déflexion	159
IV.2.4 Transparence des fenêtres fabriquées	160
IV.3 Caractérisations électriques sous flux de rayonnement X	163
IV.3.1 Dispositif expérimental	163
IV.3.2 Étude des caractéristiques I(V)	164
IV.3.3 Réponse temporelle	169
IV.3.4 Linéarité de la réponse	172
IV.3.5 Discussion	173
IV.4 Caractérisation sous flux électronique à basse énergie	175
IV.4.1 Développement d'un EBIC expérimental	175
IV.4.2 Analyse des résultats	178
IV.4.3 Cartographie 2D en courant	181
IV.5 Caractérisation des smart-windows dans un tube X expérimental	183
IV.5.1 Fonctionnement en environnement représentatif	183
IV.5.2 Analyse des résultats	185
IV.5.3 Mise en place d'une régulation du débit de dose délivré	190
IV.6 Conclusion du chapitre	195
Conclusion générale	197

Introduction générale

Paris, janvier 2066.

Les progrès faits par l'imagerie médicale permettent aujourd'hui d'obtenir instantanément une représentation 3D de notre organisme à l'échelle nanométrique. Le plus petit défaut de notre structure vitale peut être révélé grâce aux progrès faits par cette technique. Une des avancées majeures liée à la structure des appareils est sans doute le remplacement des fenêtres en béryllium qui équipaient les tubes du début du siècle. Le diamant s'est imposé grâce à ses propriétés extrêmes. Les fenêtres en diamant des scanners combinent aujourd'hui plusieurs fonctions : dissipation thermique, comptage du flux, positionnement du faisceau, etc. L'imagerie du XX^{ème} siècle et sa résolution micrométrique semble loin derrière nous...

...Bien que vraisemblable, la description précédente n'est pas encore d'actualité. Elle décrit les avancées technologiques et sociétales qui sont à espérer en utilisant du diamant, pour réaliser des fenêtres innovantes de tubes à rayons X.

Depuis près d'un demi-siècle, l'évolution des tubes à rayons X classiques a donné naissance aux tubes micro/nanofoyers permettant l'amélioration de la résolution des images. Aujourd'hui, les nanotechnologies peuvent apporter une vraie révolution dans ce domaine. Le futur de l'imagerie X dépend de plusieurs facteurs : l'amélioration de la résolution, la miniaturisation et le contrôle de la dose délivrée. Dans ce contexte, Thales Electron Devices développe de nouvelles technologies pour les tubes à rayons X. Ces innovations visent à créer des dispositifs capables d'imager à grande vitesse le cœur de la matière, avec une haute résolution et un faible encombrement. Les efforts de recherche sont portés sur tous les composants : cathode (ou canon à électrons), électronique, régulation du vide et fenêtre de sortie. Ces développements engendrent aujourd'hui trois problématiques importantes :

- En remplacement des dispositifs thermoioniques, les cathodes à nanotubes de carbone (CNTs) permettent d'atteindre de fortes densités de courant, également à haute fréquence. Cette technologie améliore la résolution des tubes et permet d'envisager le développement de cathodes à émetteurs uniques ou de multisources X.

Cependant la stabilité de l'émission de certaines cathodes n'atteint pas encore celle des cathodes thermoioniques ;

- La course à la haute résolution est, aujourd'hui, limitée par l'augmentation de la densité de puissance thermique générée par le tube. Les fenêtres actuelles, en béryllium, sont devenues un facteur limitant ;
- La toxicité du béryllium pose depuis longtemps d'importants problèmes lors de la fabrication des fenêtres de tubes à rayons X.

Afin de répondre à cette triple problématique, le Laboratoire Capteurs Diamant (LCD), Thales Electron Devices (TED) et Thales Research & Technology (TRT) ont déposé en 2012 un brevet visant à remplacer les fenêtres en béryllium existantes. La fenêtre des tubes en transmission est en effet un élément clé. Son rôle premier est d'être quasi transparente au rayonnement. Elle est également soumise à des densités de puissance extrêmes, engendrant une quantité de chaleur qu'il faut évacuer le plus efficacement possible tout en garantissant l'étanchéité du tube. Le diamant possède des propriétés thermiques, mécaniques et de transparence au rayonnement uniques. Malgré un coût de réalisation supérieur comparé au béryllium, le diamant est un candidat de choix pour le remplacer dans les fenêtres de tubes à rayons X. Les synchrotrons de troisième génération ont ainsi vu la plupart de leurs lignes de lumière migrer de béryllium à diamant depuis les années 2000. Pour répondre à la problématique de dissipation de chaleur liée aux sources micrométriques et nanométriques, des industriels comme General Electrics ou Diamond Material commencent à intégrer ces solutions dans des tubes à rayons X. La base de l'innovation des fenêtres étudiées pendant cette thèse repose sur les propriétés semiconductrices du diamant. Les phénomènes de photoconduction dans la fenêtre permettent de mesurer en temps réel le flux de rayonnement sans perturber l'utilisation du tube.

Cet objet, appelé smart-window, combine donc les fonctions d'une fenêtre classique et d'un détecteur de rayons X, afin d'améliorer les performances des tubes de demain.

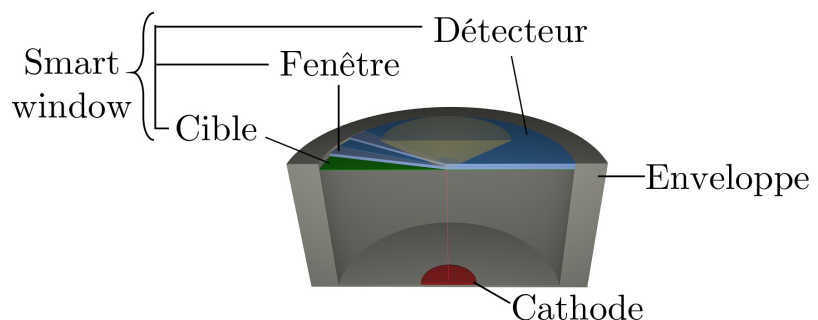


FIGURE 1 – Schéma de principe d'une smart-window.

Il se compose d'une fenêtre en diamant sur laquelle est intégrée la cible en transmission du tube ainsi qu'un détecteur. Le LCD développe depuis plusieurs années des détecteurs de rayonnement en diamant pour des applications diverses tels que des accélérateurs médicaux ou des synchrotrons [1]. Il possède également une forte expertise pour la synthèse de films de diamant pour la dissipation thermique. Cette thèse est alors née de la synergie entre les activités de recherche industrielle de Thales et l'expérience du LCD sur le diamant.

Le développement d'une smart-window nécessite cependant de lever un certain nombre de verrous technologiques et scientifiques. Les dispositifs fabriqués doivent être performants mais comment synthétiser un matériau qui allie efficacité thermique, résistance mécanique, transparence et capacité de photodétection ? La portée industrielle de ce projet nous amène à considérer un autre problème : comment développer un procédé de fabrication compatible avec une production de petite série ? Finalement, nous devons nous demander comment intégrer le dispositif sur un tube expérimental afin de réaliser un prototype fonctionnel ?

Afin de lever ces verrous, nous avons choisi d'avoir une double approche modélisation/expérimentation. Cette stratégie, développée en parallèle dans les domaines de la thermique, de la mécanique et de la photoconduction, est appliquée à plusieurs "briques technologiques" : fenêtre, cible, détecteur, brasage, etc. Ce travail se découpe en quatre parties :

- Le premier chapitre est consacré à la présentation du contexte des tubes à rayons X et des fenêtres en transmission. Cette étude présente également le procédé de synthèse du diamant utilisé pendant cette thèse. Puis le concept de smart-window est détaillé afin de définir la démarche adoptée pour leur fabrication ;
- Le deuxième chapitre décrit le travail de dimensionnement réalisé à l'aide de différentes modélisations. Dans un premier temps, les contraintes mécaniques imposées par le tube sur la fenêtre sont étudiées à travers des modèles analytiques et numériques. Ensuite, un modèle analytique a été développé et comparé à des simulations pour comprendre les phénomènes de dissipation thermique. Enfin, les interactions rayonnement-matière sont modélisées afin de décrire le fonctionnement de la partie "détection" ;

- Le troisième chapitre est dédié à la présentation du processus de fabrication des smart-windows. Deux modèles de fenêtres en diamant polycristallin ou monocristallin sont décrits. Les différentes étapes de fabrication sont ensuite détaillées depuis la synthèse du diamant par MPECVD jusqu'au dépôt d'une cible en transmission. Afin de pouvoir synthétiser de petites séries, le procédé de synthèse du diamant polycristallin est optimisé. Nous décrirons les outils de suivi *in situ* développés dans le cadre de cette thèse, nécessaires au contrôle en temps-réel du procédé ;
- Le dernier chapitre est consacré à la caractérisation des dispositifs fabriqués. Les smart-windows sont testées mécaniquement pour qualifier leur étanchéité et leur résistance aux contraintes de fonctionnement. Puis elles sont irradiées sous flux de photons X et d'électrons énergétiques afin de connaître la réponse du détecteur. Des prototypes sont enfin intégrés dans un tube à rayons X fabriqué par Thales afin de démontrer le contrôle rétroactif d'un tube par une fenêtre innovante en diamant.

Chapitre I

Des fenêtres innovantes en diamant pour les tubes à rayons X

Sommaire

I.1	Introduction	7
I.2	Les tubes à rayons X	7
I.2.1	Production des rayons X	8
I.2.2	Design et évolution des tubes	10
I.2.2.1	L'émergence des tube de Crookes	10
I.2.2.2	La maîtrise de l'émission : les tubes de Coolidge	11
I.2.2.3	Les fenêtres à rayons X en transmission	12
I.2.3	Les tubes microfoyers : vers la très haute résolution	13
I.2.3.1	Focalisation du faisceau	14
I.2.3.2	Miniaturisation de la source électronique	14
I.2.3.3	Les tubes nanofoyer	15
I.2.3.4	Les XED : <i>X-Ray Emitting Diodes</i>	16
I.3	Le diamant, un candidat idéal pour les fenêtres en transmission	16
I.3.1	Les deux formes cristallines du diamant	17
I.3.1.1	Le diamant monocristallin	17
I.3.1.2	Le diamant polycristallin	17
I.3.2	État de l'art des propriétés physiques du diamant	18
I.3.2.1	Propriétés mécaniques	18
I.3.2.2	Propriétés thermiques	19
I.3.2.3	Propriétés de transparence	20
I.3.2.4	Diamant pour la détection de rayonnement	21
I.4	La synthèse du diamant	23
I.4.1	La synthèse à basse pression : le procédé MPECVD	23
I.4.2	Croissance monocristalline par MPECVD	24
I.4.3	La synthèse de films polycristallins	25
I.4.3.1	Initiation de la croissance	25
I.4.3.2	Croissance	26

I.4.3.3	Le dopage du diamant de synthèse	27
I.5	De la fenêtre en diamant à la smart-window	28
I.5.1	Contexte industriel du projet et problématique	28
I.5.2	Objectifs de la thèse	29
I.6	Conclusion	30

I.1 Introduction

Le développement de technologies innovantes pour les tubes à rayons X est au cœur de l'activité de TED. Concernant la source électronique, la mise au point de nouvelles générations de cathodes froides à CNTs est depuis plusieurs années au centre d'une collaboration entre TRT et TED. Afin de s'adapter aux nouvelles technologies de tubes à rayons X à forte brillance, TED cherche à développer l'intégration du diamant pour la réalisation de fenêtre de tubes à rayons X. Par ailleurs, le LCD possède une expertise de plus d'une vingtaine d'années sur la synthèse du diamant et la réalisation de détecteurs de rayonnement. La collaboration entre TED, TRT et le CEA est donc née d'une volonté de créer une synergie entre plusieurs activités de recherche. Ce partenariat vise à développer des fenêtres innovantes en diamant pour les tubes à rayons X.

Un des objectifs de cette thèse est de concevoir, réaliser et tester un prototype de fenêtre en transmission combinant les propriétés thermiques et mécaniques du diamant avec ses propriétés semiconductrices afin de réaliser une fenêtre capable de mesurer un flux de photons en temps réel : une "smart-window". Ces dispositifs devront être caractérisés dans un prototype de tube à rayons X intégrant une source électronique à base de CNTs.

Après un bref historique de la fabrication des tubes à rayons X nous nous intéresserons aux problématiques inhérentes aux nouvelles générations de tube micro/nanofoyers. Un état-de-l'art détaillant les propriétés du diamant mettra en lumière les différents avantages de ce matériau pour la réalisation de fenêtres de tubes à rayons X. Nous présenterons la méthode de synthèse du diamant utilisée ainsi que les verrous technologiques à lever pour la fabrication de ces dispositifs. Enfin, nous développerons le concept de "smart-window" et nous aborderons la stratégie de fabrication de ces prototypes.

I.2 Les tubes à rayons X

La production de rayons X est aujourd'hui au centre d'un grand nombre d'activités de la société : recherche, industrie, contrôle et sécurité. Elle est également utilisée pour le diagnostic médical et le traitement thérapeutique. L'origine de cette technologie remonte au début de l'ère industrielle. Au XIX^{ème} siècle, les physiciens du monde entier tentent d'utiliser les nouvelles connaissances apportées par l'électromagnétisme et la thermodynamique pour étudier la spectroscopie des gaz. À cette époque sont construits les premiers

tubes à vide qui permettent la découverte des rayons cathodiques par Crookes en 1879 [2]. Il sera montré par Thomson en 1897 que les rayons cathodiques sont une émission continue d'électrons en dehors d'un matériau solide [3]. Jusqu'à cette découverte, la controverse sur la nature des rayons cathodiques entraîne un effort de recherche important dans ce domaine et permet la fabrication de tubes à vide performants. C'est en étudiant ces tubes que Röntgen découvre les rayons X en 1895 [4]. Il sera récompensé en 1901 par le premier prix Nobel de physique de l'histoire des sciences.

L'usage des rayons cathodiques puis des rayons X et plus généralement de la lumière dans le domaine médical a permis l'amélioration significative des diagnostics et des traitements. C'est au début du XX^{ème} siècle que les premiers tubes à rayons X à usage médical ont été développés. Cette technologie s'est enrichie et améliorée au cours des décennies suivantes. Cette partie présente le domaine de la production de rayons X depuis leur découverte dans un tube de Crookes jusqu'aux plus récents développements de tubes nanofoyers.

I.2.1 Production des rayons X

Les rayons X sont une forme de rayonnement et sont constitués de photons dont l'énergie est comprise entre quelques électrons-volts et quelques centaines de mégaélectrons-volts. Ce rayonnement peut avoir différentes origines :

- Tube à rayons X ;
- Accélérateurs linéaires ;
- Rayonnement synchrotron ;
- Laser X (à électrons libres ou à plasma) ;
- Source radioactive.

Les laser à rayons X, encore au stade de développement, permettent l'obtention d'un rayonnement X monochromatique, cohérent et intense. Les synchrotrons sont des installations permettant l'obtention d'un faisceau de rayons X de très haute énergie également cohérent. Cependant ces deux dispositifs ne sont utilisés que dans le domaine de la recherche fondamentale. Les sources radioactives peuvent également produire des rayons X de haute énergie lors du processus de désintégration d'un noyau. Les tubes à rayons X, sont eux utilisés depuis plus d'un siècle pour le diagnostic médical, l'analyse chimique, cristallographique, le contrôle non-destructif et la sûreté.

Dans un tube à rayons X, le rayonnement est produit lorsqu'un faisceau d'électrons accélérés sous plusieurs dizaines/centaines de kilovolts impacte une cible métallique possédant un numéro atomique élevé. Dans un tube, deux phénomènes sont à l'origine de la production de rayons X :

- Le rayonnement de fluorescence ;
- Le rayonnement de freinage.

La figure II.31 présente ces deux processus d'interaction.

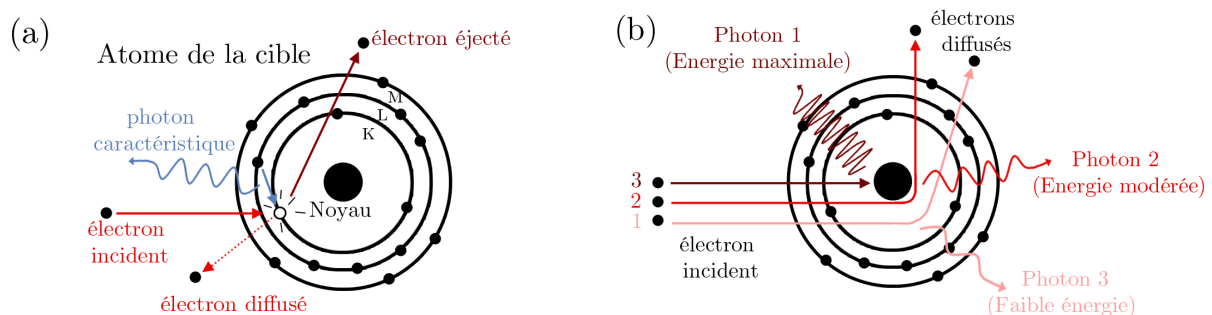


FIGURE I.1 – Schéma des interactions d'un électron incident avec un atome de la cible. *Figure a* : fluorescence d'un atome de la cible. L'électron incident est rétrodiffusé après avoir éjecté un électron d'une couche interne. La réorganisation du nuage électronique donne lieu à une émission caractéristique. *Figure b* : émission d'un rayonnement de freinage par interaction entre un électron et le noyau. La force de l'interaction définit l'énergie du photon produit [5].

Lors du processus de fluorescence, l'ionisation des atomes de la cible est suivie d'une réorganisation du cortège électronique. Les transitions entre les différents niveaux d'énergies conduisent à la production de photons X dont l'énergie est égale à la différence d'énergie entre deux niveaux. On parle de rayonnement de fluorescence (ou rayonnement caractéristique). Par ailleurs, le ralentissement des électrons pénétrant la cible produit un rayonnement de freinage, aussi appelé "Bremsstrahlung".

La figure I.2 schématise l'interaction du faisceau électronique avec une cible métallique. Le rayonnement produit par un tube est constitué d'un spectre continu (rayonnement de freinage) et de pics caractéristiques liés à la fluorescence du matériau de la cible (aussi dénommée anode).

Le rendement de production de ce rayonnement X est très faible puisqu'on considère que seulement 1 % de l'énergie du faisceau incident est converti en rayons X. L'énergie restante est dissipée soit par les électrons rétrodiffusés par l'anode, soit par effet Joule

dans la cible. Bien que le principe physique de production des rayons X dans les tubes soit resté le même à travers les siècles, la conception d'un générateur de rayons X a beaucoup évolué.

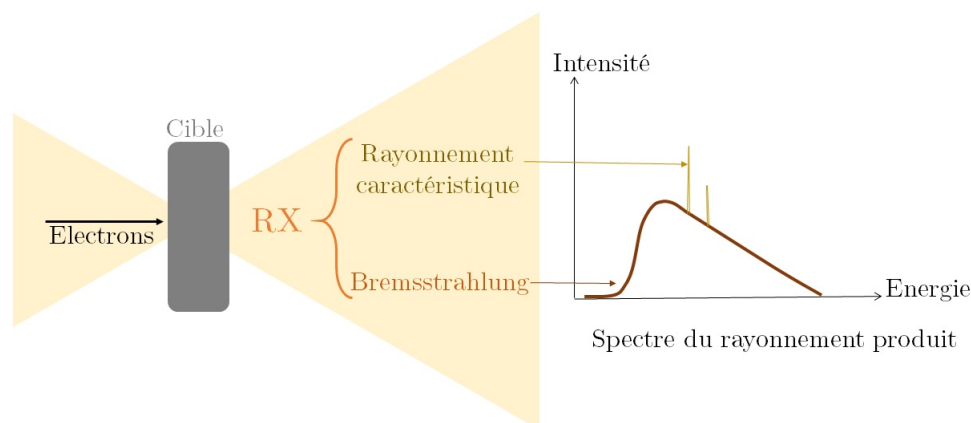


FIGURE I.2 – Schéma explicatif de la production de rayons X par un tube.

I.2.2 Design et évolution des tubes

Plusieurs dizaines d'années avant la découverte officielle par Röntgen [4], les tubes à décharges étaient déjà utilisés pour l'étude des rayons cathodiques. Ils étaient constitués d'une ampoule de verre contenant une faible pression de gaz. Deux électrodes portées à haute tension permettaient la production de "rayons cathodiques".

I.2.2.1 L'émergence des tube de Crookes

C'est dans un tube à décharge, aussi appelé "tube de Crookes" que les rayons X furent découverts. L'intérêt de ce nouveau rayonnement pour le diagnostic médical est très vite devenu une évidence et les premiers prototypes de tubes à rayons X ont été construits sur ce modèle [6]. Ils sont généralement constitués d'une ampoule de verre contenant une pression d'air entre 10^{-3} mbar et $5 \cdot 10^{-5}$ mbar. Une décharge électrique générée par l'application d'une haute tension entre deux électrodes permet l'ionisation des molécules d'air. Les électrons engendrés par la décharge impactent l'anode métallique et produisent des rayons X. L'utilisation d'une cathode concave permet d'obtenir une focalisation du faisceau électronique sur l'anode. Celle-ci est penchée afin de réfléchir le rayonnement en dehors de l'ampoule où il peut être utilisé, on parle de tube "en réflexion" (*cf.* figure I.3).

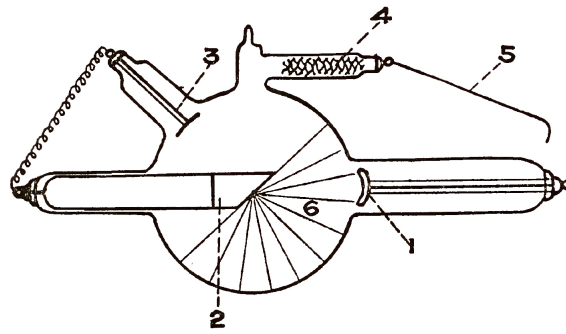


FIGURE I.3 – Schéma mettant en évidence les différents éléments d’un tube de Crookes. 1 : cathode, 2 : anode, 3 : anticathode, 4 : régulateur de pression, 5 : câble ajustable, 6 : rayons X, [7].

I.2.2.2 La maîtrise de l’émission : les tubes de Coolidge

En 1912, Coolidge dépose un brevet visant à utiliser un filament de tungstène, chauffé par un courant électrique, afin d’améliorer la production d’électrons. Le chauffage du filament permet l’émission d’électrons du tungstène vers le vide (émission thermoionique). La cathode est dite “chaude” par opposition aux cathode “froides” du tube de Crookes. Ces tubes possèdent un vide d’au moins 10^{-6} mbar. L’émission est contrôlée par le courant qui circule dans le filament. Il est donc possible d’ajuster indépendamment l’intensité du rayonnement et son énergie. Ce nouveau degré de liberté associé à la robustesse des tubes propulsent le marché des tubes à rayons X. La figure I.4.a présente une photo d’un tube de Coolidge produit par General Electrics (GE) dans les années 1920.

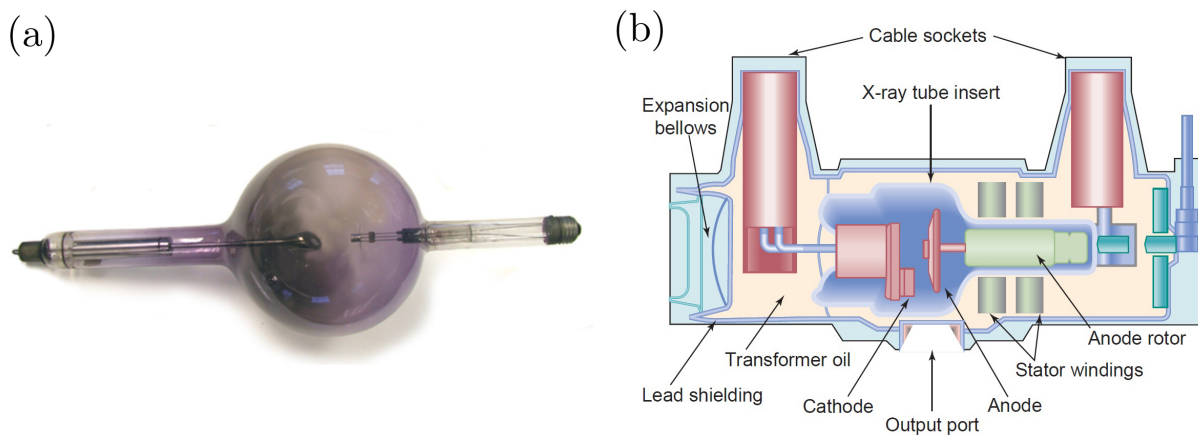


FIGURE I.4 – *Figure a* : photo d’un tube de Coolidge fabriqué par GE dans les années 1920 [8]. *Figure b* : schéma d’un tube médical à anode tournante actuel [5].

Il faut attendre 1929 pour qu’une autre amélioration important soit apportée à cette idée. Reprenant le concept de point d’émission mobile émis en 1897 par plusieurs scienti-

riques, Bouwers commercialise pour Philips le premier tube à anode rotative [9]. Il s'agit de faire tourner l'anode, également appelée "cible" afin que la zone d'interaction avec le faisceau n'ait pas le temps de s'échauffer. Ce design permet d'augmenter l'intensité du rayonnement produit de manière considérable. Les tubes à anode tournante sont par exemple utilisés de nos jours pour la tomographie computationnelle (CT) avec des puissances de près de 100 kW et des tailles de spot électronique de l'ordre d'une fraction de millimètre (figure I.4.b).

I.2.2.3 Les fenêtres à rayons X en transmission

Il existe deux configurations de tubes de Coolidge décrits par la figure I.5. La première, dite "en réflexion", dans laquelle le rayonnement est émis à approximativement 20° du faisceau électronique et traverse l'enveloppe du tube par la fenêtre (figure I.5.a). La seconde, dite "en transmission" où le flux émis est colinéaire au faisceau électronique (figure I.5.b). Cette configuration utilise une cible suffisamment fine pour que le rayonnement la traverse.

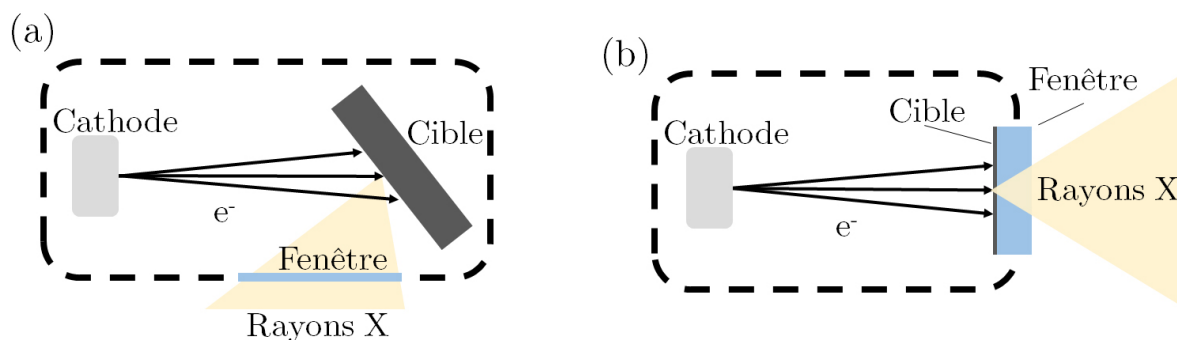


FIGURE I.5 – Schéma d'un tube en réflexion (figure a) et en transmission (figure b).

Afin de maximiser les performances du tube, une fenêtre en transmission doit posséder à la fois, une bonne conductivité thermique pour évacuer la chaleur dissipée par le faisceau, une bonne transparence au rayonnement et d'excellentes propriétés mécaniques pour assurer l'étanchéité du tube. Répondant à ces besoins, le béryllium est majoritairement utilisé puisqu'il présente un faible numéro atomique ($Z=4$) et une bonne conductivité thermique (autour de $200 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$).

Nombre de tubes actuels utilisent des cibles pouvant avoir seulement quelques micromètres d'épaisseur déposées sur des fenêtres en béryllium qui sont ensuite montées sur l'enveloppe du tube. Le béryllium est par ailleurs reconnu pour sa toxicité [10]. L'usage des fenêtres de tubes à rayons X est un procédé complexe et soumis à une réglementation

stricte. Cependant, jusqu'à récemment, aucun matériau de remplacement n'était utilisé commercialement. Les tubes en transmission sont aujourd'hui utilisés dans les applications qui demandent une haute résolution. Afin d'augmenter encore cette résolution, de nouveaux designs ont vu le jour : les tubes micro/nanofoyers.

I.2.3 Les tubes microfoyers : vers la très haute résolution

Lors de l'acquisition d'une image par exposition aux rayons X, la résolution est limitée par plusieurs facteurs :

- Taille de la source ;
- Absorption de l'objet ;
- Agrandissement ;
- Résolution du détecteur.

Une source étendue spatialement entraîne un manque de netteté sur l'image (figure I.6.a). Celle-ci est floue à cause de la superposition des images formées par tous les points de la source (flou géométrique). L'utilisation d'une source ponctuelle permet de s'affranchir de ce manque de netteté (figure I.6.b).

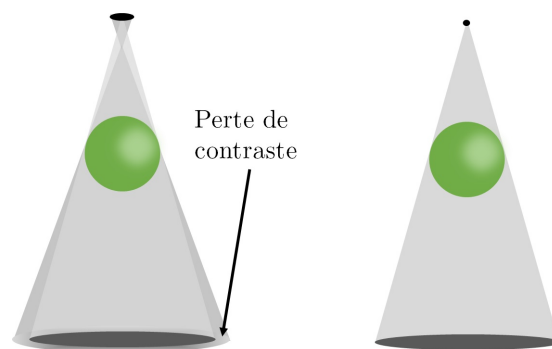


FIGURE I.6 – *Figure a* : phénomène d'ombrage obtenu avec une source étendue d'un tube classique. *Figure b* : image obtenue avec une source ponctuelle.

Dans la course à la haute résolution, un intérêt particulier est porté à la diminution de la taille de la source X. La figure I.7.a présente une photo de tube à rayon X microfoyer anciennement fabriqué par TED. Celui-ci permet, par exemple, d'obtenir l'image à haute résolution des connexions BGA d'une puce électronique (*cf.* figure I.7.b). Dans les tubes à rayons X, la résolution est directement liée à la taille du point focal sur la cible. Afin d'augmenter la résolution des images, il faut réduire les dimensions de ce point focal.

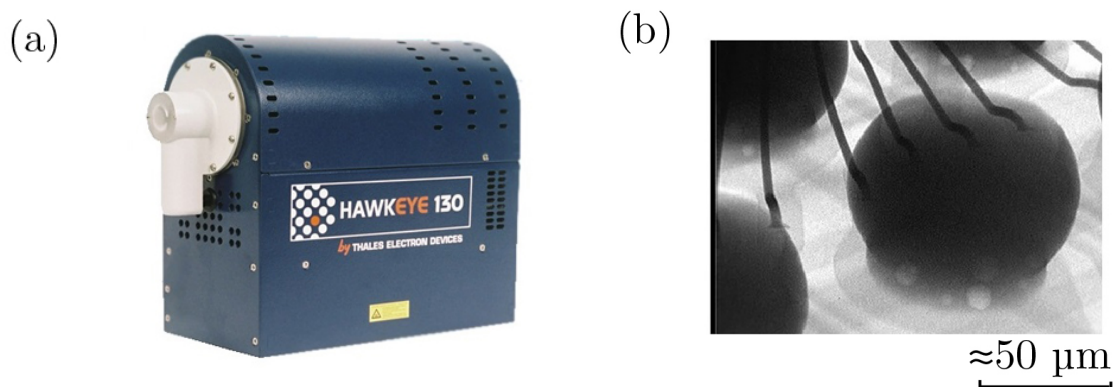


FIGURE I.7 – *Figure a* : photo d'un tube microfoyer de TED. *Figure b* : image obtenue avec ce tube des connexions BGA (*Ball Grid Array*) d'une puce électronique.

I.2.3.1 Focalisation du faisceau

Afin de focaliser un faisceau électronique divergent sur une cible, des lentilles électromagnétiques sont utilisées (*cf.* figure I.8). Pour bénéficier de cette focalisation, l'objet à imager doit être placé au plus près de la source de rayons X. Dans les tubes en transmission, la distance entre la source et l'objet peut être réduite au minimum si l'objet est collé à la fenêtre du tube. En contrepartie, la puissance injectée est limitée à cause de l'échauffement de la cible.

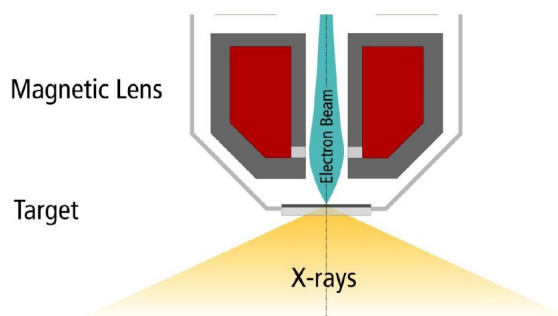


FIGURE I.8 – Schéma de la focalisation du faisceau électronique sur la cible d'un tube en transmission [11].

I.2.3.2 Miniaturisation de la source électronique

Plus la source d'électrons est ponctuelle, plus la focalisation du faisceau est simple à réaliser. C'est pourquoi l'étendue spatiale de la source doit être réduite au minimum. Une véritable source ponctuelle serait constituée, par exemple, d'un émetteur unique. Les

nanotubes de carbones (CNTs) offrent la possibilité de se rapprocher de ce type d'émission [12, 13, 14]. L'émission électronique se fait alors par "effet tunnel". Cette émission est rendue possible par l'application d'un champ intense. Les CNTs présentent une bonne conductivité électrique et leur fort rapport d'aspect permet d'obtenir un champ exacerbé à l'apex du nanotube. La figure I.9 présente un cliché MEB d'un nanotube de carbone unique utilisé pour produire un faisceau électronique. Ce dispositif est obtenu par croissance sélective de CNTs sur un échantillon structuré.

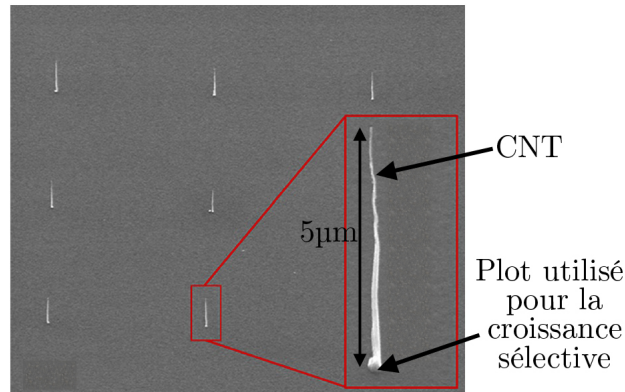


FIGURE I.9 – Cliché MEB d'un nanotube utilisé comme cathode à effet de champ [14].

Les cathodes à effet de champ sont dites "froides" puisque l'émission n'est pas déclenchée par une élévation de température mais par le champ électrique. Ce phénomène permet de moduler l'émission du tube en utilisant un signal électrique ou optique [12, 15].

I.2.3.3 Les tubes nanofoyer

Certains tubes en transmission sont équipés de systèmes permettant la focalisation du faisceau sur des spots sub-microniques, on parle de tube nanofoyer. Un de ces tubes commercialisé par GE est présenté sur la figure I.10.a. Sur ce modèle, la focalisation s'effectue à l'aide d'un système de double lentilles et de diaphragmes, le point focal est de seulement 200 nm.

Un système à transmission nanofoyer a également été breveté dès 1986 par l'entreprise Feinfocus [16]. Ce système est aujourd'hui utilisé par YXLON pour fabriquer des tubes pour le contrôle non-destructif (CND) (voir figure I.10.b). Ces technologies nanofoyers emploient de fortes densités de puissance thermique ($> 10^8 W.cm^{-2}$) et des fenêtres en transmission en diamant sont parfois proposées (GE ou Excillum).

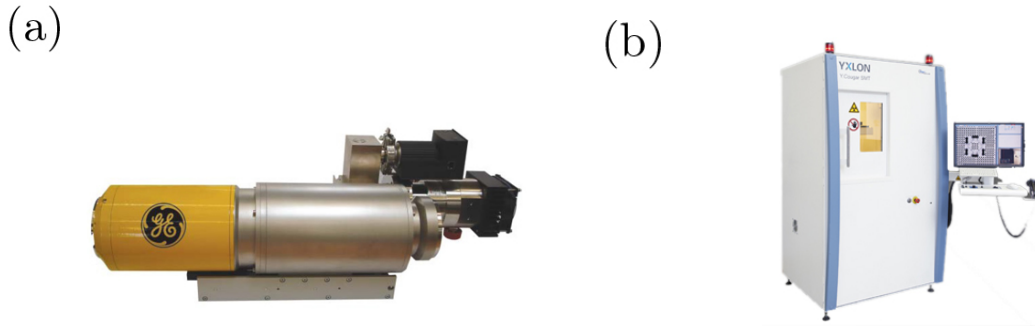


FIGURE I.10 – *Figure a* : photo d’un tube nanofoyer commercialisé par GE. *Figure b* : photo d’un système d’imagerie 3D utilisant un tube nanofoyer commercialisé par YXLON.

I.2.3.4 Les XED : *X-Ray Emitting Diodes*

TED travaille aujourd’hui à la réalisation de tubes à rayons X combinant hautes performances et encombrement minimum (quelques centimètres cube) : les XED. Ce concept est l’équivalent des LED pour la production de rayons X. Il s’agit d’un tube à rayons X fortement intégré et équipé d’une cathode à CNTs. Ce sujet fortement innovant pourrait combiner une cathode à effet de champ, une focalisation du faisceau et une smart-window en diamant.

I.3 Le diamant, un candidat idéal pour les fenêtres en transmission

Pour s’affranchir du béryllium, différents candidats ont été proposés pour réaliser des fenêtres de rayons X : films de polyimides [17], carbone graphénique [18] ou nitrure de silicium [19]. Ces différents candidats permettent de réaliser de très fines fenêtres avec une bonne transmission, spécifiquement à basse énergie. Cependant, leur résistance mécanique est inférieure à celle d’une fenêtre en béryllium. Elle est parfois améliorée en utilisant une structure de renforcement qui, par ailleurs, diminue les propriétés de transmission de la fenêtre. Ces dispositifs ne présentent pas la résistance nécessaire pour en faire des fenêtres de tube en transmission.

Les propriétés exceptionnelles du diamant lui valent d’être utilisé dans un grand nombre d’applications technologiques notamment dans des environnements sévères (outils de coupe, capteurs en milieu ionisant, contraintes de pression, etc.). Mais les propriétés souvent mises en avant sont celles du matériau diamant “parfait”. Les propriétés du matériau synthétisé sont différentes selon les défauts présents, le procédé de fabrication, etc.

Dans cette étude, nous allons détailler les propriétés de ces deux formes (monocristallin et polycristallin). Nous nous attacherons à intégrer des valeurs de propriétés physiques réalistes afin d'évaluer l'intérêt des matériaux disponibles pour les applications visées.

I.3.1 Les deux formes cristallines du diamant

Le diamant est une forme allotropique du carbone. Sa structure peut-être décrite comme deux réseaux CFC interpénétrés d'un quart du paramètre de maille valant $3,57 \text{ \AA}$. La maille élémentaire du diamant est constituée de huit atomes de carbone ce qui lui confère une très forte densité (masse volumique : $3,51 \text{ g.cm}^{-3}$).

I.3.1.1 Le diamant monocristallin

Il existe deux types de diamant monocristallin : le diamant naturel et le diamant de synthèse. Ce dernier peut être fabriqué par le procédé Haute Pression-Haute Température (HPHT) ou par dépôt chimique en phase vapeur (CVD). Les défauts sont présents dans le diamant naturel comme dans le diamant de synthèse. Ils sont de nature chimique ou structurelle. Le procédé de croissance utilisé pour synthétiser du diamant influence la nature et le nombre de ces défauts.

I.3.1.2 Le diamant polycristallin

Il existe de nombreuses méthodes pour synthétiser du diamant polycristallin. Ses propriétés se rapprochent de celles du monocristal mais sont modifiées par la présence de joints de grains. Le matériau intergranulaire est parfois apparenté à du carbone amorphe et/ou graphitique [20, 21].

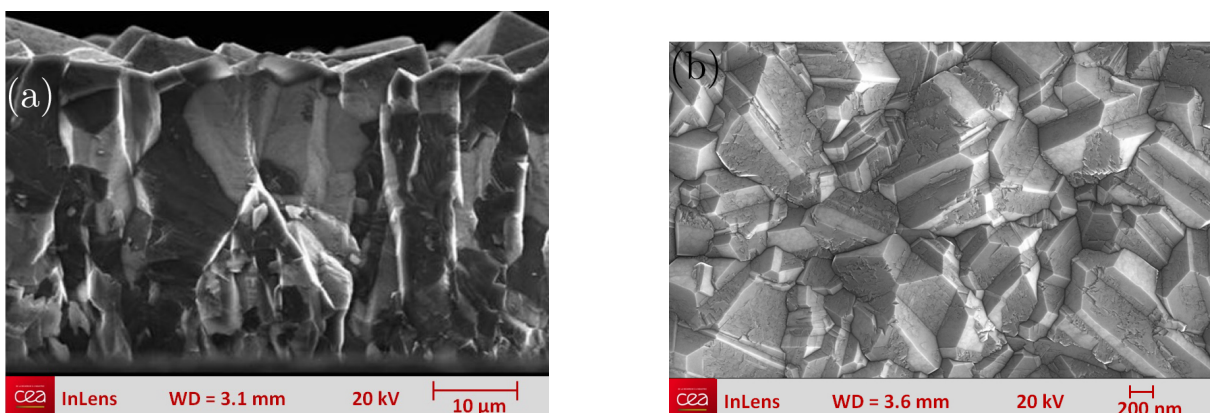


FIGURE I.11 – *Figure a* : vue en coupe de la structure colonnaire d'un film de diamant polycristallin de $40 \mu\text{m}$ d'épaisseur. *Figure b* : cliché MEB de la surface d'un film de $0,6 \mu\text{m}$ d'épaisseur qui présente des grains de dimension $< 1 \mu\text{m}$.

La croissance du diamant polycristallin est colonnaire et sélective. Cela signifie que le nombre de grains diminue au fur et à mesure de la croissance alors que leur taille augmente (figure I.11). Les propriétés physiques d'un film polycristallin sont donc anisotropes. Elles varient selon son épaisseur et selon la direction considérée.

I.3.2 État de l'art des propriétés physiques du diamant

Les propriétés du diamant dépendent de sa forme cristalline et du procédé de synthèse utilisé. Pour le diamant monocristallin, elles sont dictées par sa structure atomique et les défauts présents dans le cristal (impuretés, dislocations, etc.). Pour le diamant polycristallin, elles sont différentes à cause de la présence de joints de grains.

I.3.2.1 Propriétés mécaniques

Le diamant possède un des plus haut module d'élasticité. Sa grande dureté (la plus forte de tous les matériaux massifs) lui confère une excellente résistance aux rayures. Par ailleurs, il ne présente que très peu de résistance à la déformation plastique, ce qui en fait un matériau fragile. Les coefficients élastiques de films de diamant polycristallin épais diffèrent assez peu de ceux du monocristallin [22]. La résistance à la rupture du diamant polycristallin est plus faible puisque les joints de grains offrent un terrain propice à la propagation de fissures. Plusieurs études ont mis en évidence la variation de ces propriétés mécaniques avec la taille des grains [23, 24, 25].

Diamant	Module de Young (GPa)	Coefficient de Poisson	Dureté (GPa)	Résistance à la rupture (GPa)
Polycristallin	500-1000 [26, 27, 28, 29]	0,025-0,075 [27, 29, 30]	50 - 150 [28, 31, 32, 33]	0,2 - 3 [24, 25, 29, 34, 35]
Monocristallin	~1050 [36]	0,07 [30, 36, 37]	80-150 [32, 33, 38, 39]	2,5 - 4 [24, 36]

TABLE I.1 – Propriétés mécaniques du diamant polycristallin et monocristallin

Compte tenu du tableau I.1, les deux formes cristallines du diamant peuvent être utilisées pour la réalisation de fenêtres de tube à rayons X car elles présentent un module de Young suffisamment élevé. Une attention particulière doit être portée à la microstructure du diamant polycristallin puisqu'elle influence la résistance à rupture.

I.3.2.2 Propriétés thermiques

Le diamant possède une conductivité thermique de près de quatre fois celle du cuivre à température ambiante : il s'agit de la plus haute parmi les matériaux massifs connus. À cause du très petit nombre d'électrons de conduction, la propagation de la chaleur dans le diamant est uniquement contrôlée par les vibrations du réseau : les phonons. Ces vibrations contrôlent également le coefficient d'expansion thermique du diamant, l'un des plus bas de tous les matériaux. Parmi les applications thermiques des films de diamant se trouvent les dissipateurs thermiques pour les circuits électroniques [40] ou les applications SOD (Silicon-On-Diamond) pour la microélectronique [41, 42].

Contrairement aux autres grandeurs, la conductivité thermique est grandement affectée par la présence des joints de grains. C'est la conséquence de la diffusion des phonons à l'interface entre les grains. Les performances thermiques augmentent donc avec la taille des grains [43, 44, 45]. La conductivité thermique d'un film polycristallin est également anisotrope à cause de sa structure colonnaire. Dans la direction parallèle au substrat, elle peut atteindre 50% de la conductivité hors du plan [46, 47, 48].

Sa valeur moyenne dépend donc de l'épaisseur du film et peut varier de $5 W.m^{-1}.K^{-1}$ pour un film mince ($<150 nm$) à $2000 W.m^{-1}.K^{-1}$ pour un film épais ($>100 \mu m$) de bonne qualité structurale et chimique [45]. Les films de diamant polycristallin épais ont donc une conductivité moyenne très proche de celle du monocristal. Cependant, la face la plus dense en joints de grain présentera de mauvaises performances thermiques locales.

Diamant	Conductivité moyenne ($W.m^{-1}.K^{-1}$)	Capacité calorifique ($J.g^{-1}.K^{-1}$)	Expansion thermique (K^{-1})
Polycristallin ($>10\mu m$)	500-2000 [40, 43, 49, 50]	0,5 [51, 52]	1,0 - $3,8.10^{-6}$ [50, 52, 53, 54, 55, 56]
Monocristallin	2000-2500 [40, 50, 57, 58]	0,5 [51, 52, 59]	1 - $1,1.10^{-6}$ [40, 54, 60]

TABLE I.2 – Propriété thermiques du diamant polycristallin et monocristallin

Bien que les deux formes cristallines du diamant présentent un intérêt pour la fabrication des smart-windows, le diamant monocristallin permet d'atteindre de meilleures performances thermiques. Cependant, les films polycristallins présentent d'autres avantages et leur microstructure peut être contrôlée afin de garantir une conductivité thermique proche de celle du monocristal.

I.3.2.3 Propriétés de transparence

Le diamant est un semiconducteur et possède une large bande interdite de 5,5 eV. Lorsqu'il ne présente pas de défauts, cette caractéristique en fait un matériau transparent dans le visible et absorbant dans l'ultraviolet de 10 nm à 225 nm. L'indice optique du diamant polycristallin est légèrement inférieur à celui du monocristallin à cause de la plus faible densité du matériau intergranulaire [61]. Le diamant polycristallin est fréquemment utilisé pour faire des fenêtres optiques dans l'infrarouge (IR), notamment pour les lasers de puissance grâce à un coefficient élevé dans la bande de 10 μm des lasers CO₂ [62].

L'absorption des rayons X dépend fortement de leur énergie. Par exemple la transmission théorique d'un film de 100 μm de diamant est de 99,3 % à 50 keV. Ces propriétés de transparence sont principalement liées au numéro atomique et à la densité du matériau. Elles sont donc peu modifiées par la présence des joints de grains. Dans les années 1990, l'entreprise *Crystallume*[®] a commercialisé les premières fenêtres de diamant CVD pour les détecteurs de rayons X dédiés à l'analyse élémentaire [63, 64]. La figure I.12.a présente une fenêtre commerciale de 500 nm d'épaisseur et 6 mm de diamètre. Depuis ces premières tentatives, des fenêtres de tube à rayons X en diamant sont commercialisées par Diamond Material (DM) ou Element Six (E6). Les tubes à anode liquide sont également équipés de ce genre de fenêtre ainsi que les tubes à rayons X nanofoyer de GE et d'Excillum.

Diamant	Gamme de transparence (nm)	Indice optique (visible)	Atténuation massique à 50 keV (cm^{-1})
Polycristallin	225/500-2500 [50, 65, 66]	1,9 - 2,3 [61, 67, 68]	0,657 [69]
Monocristallin	225/500-2500 [50, 65]	2,4 - 2,7 [59, 61, 67]	0,657 [69]

TABLE I.3 – Propriété optiques du diamant polycristallin et monocristallin

Plusieurs études ont également montré la possibilité d'utiliser des films de diamant pour la réalisation d'optiques X [70, 71] et de masques de photolithographie X [72, 73]. Dans les années 1990, le diamant a fait son apparition dans les synchrotrons. Il y est utilisé comme fenêtre (voir figure I.12.b) [74, 75, 76, 77] ou comme monochromateur [78].

La transparence d'une fenêtre en diamant est relativement peu affectée par sa qualité cristalline. C'est pourquoi, du point de vue optique, les deux formes de diamant peuvent être utilisées pour les smart-windows.

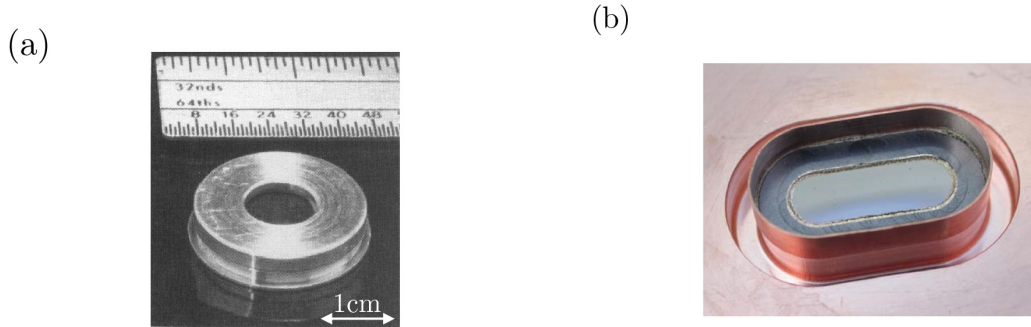


FIGURE I.12 – *Figure a* : fenêtre en diamant pour les détecteurs de rayons X commercialisée par *Crystallume*[®] [79]. *Figure b* : fenêtre de synchrotron en diamant [74].

I.3.2.4 Diamant pour la détection de rayonnement

La compacité du diamant est à l'origine de ses bonnes propriétés de détection. En effet, une grande quantité d'interactions entre le rayonnement et les atomes du réseau peut se produire. La sensibilité des détecteurs est donc élevée. Son grand gap entraîne une faible génération de porteurs thermiques et donc un faible courant d'obscurité. Le diamant possède également une énergie de déplacement élevée et donc une bonne résistance aux radiations [80]. La haute mobilité des porteurs, couplée à une vitesse de saturation élevée, lui permet d'avoir un temps de réponse rapide. De plus, son numéro atomique ($Z=6$) proche de celui du corps humain ($Z=4,5-6,4$) lui confère un caractère "équivalent tissu" utile aux applications de dosimétrie.

Diamant	Rigidité diélectrique (MV.cm ¹)	Résistivité (Ω.cm)	Mobilité (cm ² .V ⁻¹ .s ⁻¹)
Polycristallin	1 - 4 [84, 85, 86]	10 ² - 10 ¹⁵ [87, 88, 89, 90]	20 - 50 [90, 91]
Monocristallin	10-20 [92, 93, 94]	10 ¹⁵ - 10 ¹⁶ [90, 95]	(e ⁻) 500 - 3400 [96, 97, 98] (h ⁺) 2000 - 4500 [50, 96, 99]

TABLE I.4 – Propriété électroniques du diamant polycristallin et monocristallin.

L'intérêt du diamant pour la détection de rayonnements a été mis en avant par Kozlov *et al.* dès 1977 avec l'utilisation d'un cristal naturel de très haute qualité [81]. Depuis lors, il est utilisé pour la détection dans l'UV comme pour les rayons X ou γ [82, 83]. Le développement des procédés de synthèse a permis la fabrication de monocristaux de haute pureté pouvant être utilisés pour la radiothérapie [99, 100, 101]. Comme le montre le tableau I.4, la présence de joints de grains impacte majoritairement la mobilité des porteurs et le champ de claquage. Le diamant polycristallin est, lui aussi, utilisé pour la détection de rayons X. Ses performances dépendent de sa qualité cristalline et chimique [102, 103]. Des moniteurs d'intensité et des positionneurs de faisceau pour les lignes synchrotron peuvent être réalisés en diamant monocristallin [104, 105] (voir figure I.13) et polycristallin [106].

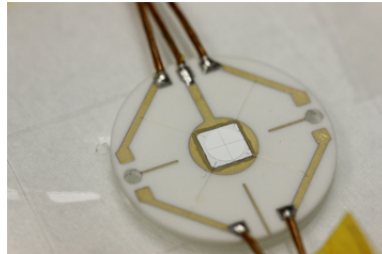


FIGURE I.13 – Positionneur de faisceau synchrotron en diamant monocristallin CVD [104].

Ces deux matériaux présentent donc un fort potentiel pour la réalisation du détecteur de rayons X des smart-windows. La qualité chimique et structurale doit être contrôlée pour assurer les meilleures performances (efficacité de collecte, temps de réponse, stabilité, etc.). Pour le diamant polycristallin, la densité de joints de grain est un paramètre important à surveiller pour obtenir des performances qui se rapprochent de celles du monocristal.

Conclusion

Le diamant possède des propriétés physiques extrêmes qui lui valent d'être utilisé comme dissipateur thermique, fenêtre et détecteur de rayons X. De manière générale le diamant monocristallin présente de meilleures propriétés thermiques et de détection. La microstructure du diamant polycristallin est l'élément clé qui influence notamment la résistance mécanique, la conductivité thermique et les performances de détection. A ce stade, le diamant monocristallin de synthèse semble le meilleur choix mais son coût et la limitation de sa taille sont des facteurs limitants pour cette application. C'est pourquoi, dans le

cadre de ce travail de thèse, nous allons nous intéresser à la synthèse de ces deux formes cristallines du diamant.

I.4 La synthèse du diamant

Historiquement, la méthode HPHT a permis la première synthèse de diamant monocristallin. Cette technique se rapproche des conditions de pression et de température que l'on trouve dans le manteau terrestre lors de la formation du diamant naturel. Il s'agit d'une synthèse à l'équilibre thermodynamique. Une autre catégorie de procédé, cette fois hors d'équilibre, existe : la synthèse CVD.

I.4.1 La synthèse à basse pression : le procédé MPECVD

Dans les années 1950, Eversole commence à étudier la synthèse du diamant à partir des gaz carbonés. Il démontre qu'elle est possible à basse pression. On parle alors de croissance "métastable" puisqu'elle se déroule en dehors de la zone stable du diagramme de phase. Il synthétise les premiers cristaux à basse pression en 1953 et dépose un brevet sur ce procédé [107]. En parallèle, les chercheurs soviétiques de l'équipe de Derjaguin arrivent au même résultat et déposent un brevet en 1956 qui ne sera publié qu'en 1980 [108]. Cette méthode permet la croissance de diamant à partir d'un gaz carboné à des pressions entre 10 *mbar* et 100 *mbar* et des température proches de 800°C. Elle a donné naissance à plusieurs voies de synthèse : MPECVD, HFCVD, plasma DC, torche plasma, etc.

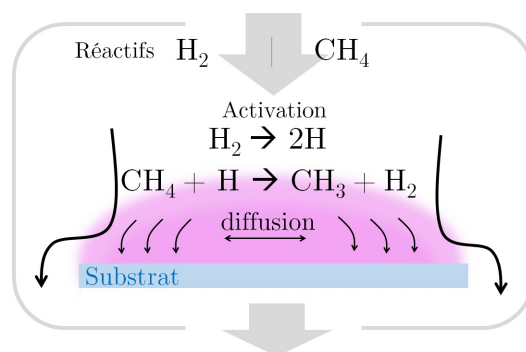


FIGURE I.14 – Schéma de principe de la croissance CVD. La dissociation des espèces H_2 et CH_4 produit des radicaux méthyles et de l'hydrogène atomique.

Parmi ces différentes méthodes, le LCD utilise la croissance MPECVD à 2,45 GHz. Cette méthode permet également la synthèse du diamant monocristallin. Pour réaliser ce

type de croissance, un générateur micro-onde à 2,45 GHz est utilisé pour créer un plasma à partir d'une atmosphère de méthane et d'hydrogène. La puissance est injectée dans une cavité résonnante à l'aide d'un guide d'onde. Le plasma permet la dissociation des gaz et la formation de radicaux méthyles et d'hydrogène atomique comme le décrit la figure I.14.

Cette technique permet de synthétiser les deux formes cristallines du diamant selon le substrat utilisé. Pour la croissance de monocristaux, des substrats en diamant (par exemple HPHT) sont utilisés (voir figure I.15). Pour le diamant polycristallin, différents matériaux peuvent servir de substrats.



FIGURE I.15 – Synthèse MPECVD homoépitaxique d'un diamant monocristallin sur substrat HPHT commercial de $4 \times 4 \text{ mm}^2$.

I.4.2 Croissance monocristalline par MPECVD

La synthèse du diamant monocristallin se fait en relation d'épitaxie avec un substrat en diamant monocristallin (homoépitaxie) ou sur un substrat différent (hétéroépitaxie). Dans ce dernier cas, le substrat peut être en silicium, en iridium, etc. Pour l'hétéroépitaxie, l'étape de nucléation est primordiale puisqu'il est nécessaire que des nucléi de diamant soient épitaxiés sur la surface. Pour cela, la méthode de Bias Enhanced Nucleation (BEN) est généralement utilisée [109, 110, 111]. La synthèse CVD de ce matériau est limitée par la taille du substrat utilisé. Aujourd'hui, la taille courante des monocristaux disponibles est de $2\text{-}4 \text{ mm}$ et ne dépasse pas $10 \times 10 \text{ mm}^2$ [112].

Le LCD possède une expertise dans la synthèse CVD du diamant monocristallin, notamment sur l'hétéroépitaxie sur iridium [109, 113] et l'homoépitaxie [114]. Notons que des monocristaux de diamant (HPHT et CVD) sont également disponibles commercialement. Durant cette thèse, les croissances monocristallines sont réalisées sur des substrats commerciaux HPHT.

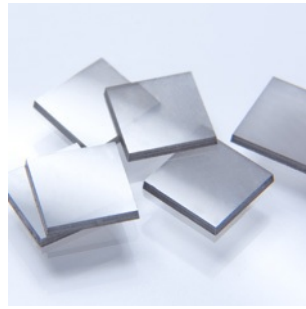


FIGURE I.16 – Monocristaux de diamant de synthèse produits par CVD [32].

I.4.3 La synthèse de films polycristallins

La synthèse sur silicium est un choix idéal puisque le fort développement de l'industrie micro-électronique a permis de rendre accessible des wafers de silicium d'excellente qualité et de toutes tailles. Une étape de nucléation est alors indispensable pour initier la croissance sur ces substrats.

I.4.3.1 Initiation de la croissance

Pour initier la croissance, trois méthodes sont possibles : le “scratch-seeding”, le BEN ou le nanoseeding. Le “scratch-seeding” consiste à rayer la surface avant la croissance. Cette méthode permet de laisser des défauts sur la surface à partir desquels la nucléation s'initie. La méthode de BEN engendre la formation de nucléii stables permettant la croissance. Enfin, la méthode de “nanoseeding”, utilisée durant cette thèse, consiste à déposer des nanocristaux de diamant (NDs) sur la surface du substrat avant la croissance. Il ne s'agit pas d'une technique de nucléation puisque les nanocristaux de diamant sont déposés. Ils peuvent être préparés par broyage mécanique de diamants HPHT ou par détonation de produits carbonés. Afin de déposer ces nanoparticules sur la surface (*seeding*), plusieurs voies sont envisageables :

- l'électro-spray : dispersion d'une suspension de NDs dans un solvant comme l'alcool puis spray par accélération dans un champ électrique ;
- le dépôt par *spin-coating* : une suspension de NDs est déposée sur la surface du substrat en rotation [115]. Après évaporation du solvant, les nanoparticules de diamant restent sur la surface du silicium. L'utilisation d'une suspension de nanodiamant dans le PVA permet l'obtention d'une couche mince et homogène [116] ;

- l'accroche électrostatique : les nanodiamants sont oxydés afin de présenter une charge négative. Le wafer de silicium est alors trempé (*dipcoating*) dans une solution de PDDAC, un polymère qui permet de créer une couche chargée positivement sur la surface. Ensuite, il est trempé dans une suspension aqueuse de NDs qui vont s'accrocher par interactions électrostatiques [117, 118, 119].

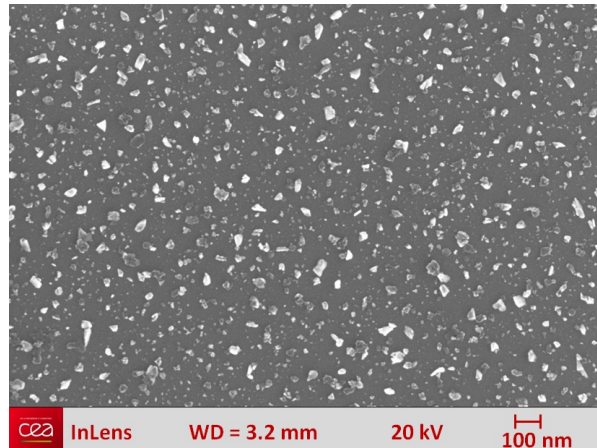


FIGURE I.17 – Cliché MEB de la surface du substrat en silicium nanoséché par accroche électrostatique avec une solution de PDDAC diluée cent fois et une solution de NDs de taille $\sim 30\text{ nm}$ issus du broyage de diamants HPHT.

Au LCD, la synthèse de diamant polycristallin par CVD est généralement réalisée sur silicium en utilisant une étape de seeding par accroche électrostatique ou *spin-coating* (voir figure I.17). La densité de nanocristaux obtenue avec cette méthode varie généralement entre 10^9 cm^{-2} et 10^{12} cm^{-2} . Elle peut être ajustée en jouant sur la concentration de la suspension et les différents temps de trempage [120].

Une fois ces opérations réalisées, le substrat est placé dans le réacteur de synthèse et le plasma peut brûler le polymère pour laisser apparaître une surface de silicium couverte de nanodiamants.

I.4.3.2 Croissance

La croissance des grains de diamant est décrite par un modèle géométrique d'évolution sélective (modèle de Van Der Drift [121]). La sélection compétitive entre les grains entraîne la survie des grains les mieux orientés et l'enterrement des autres.

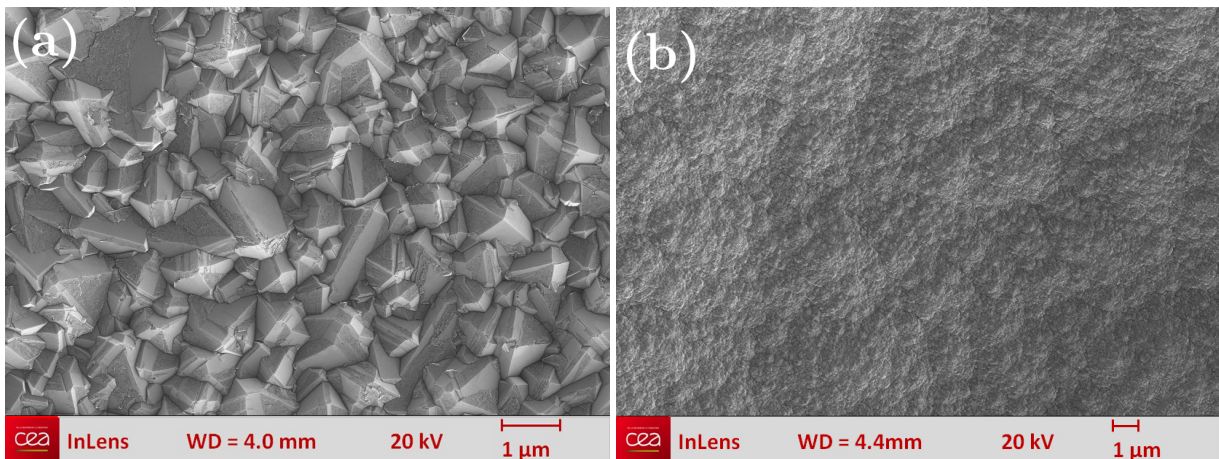


FIGURE I.18 – *Figure a* : Clichés MEB de cristaux cubo-octahédriques. *Figure b* : film nanocristallin de diamant.

Dans certains cas, la croissance n’est pas colonnaire mais forme des grains de taille nanométrique, il s’agit d’une morphologie “à empilement de grains” (ou diamant nanocristallin) que l’on peut apercevoir sur la figure I.18.b. La face en contact avec le substrat est nommée “face de nucléation”. La face opposée est appelée “face de croissance”. Le choix d’un substrat en silicium permet de synthétiser couramment au LCD des films de 2” et selon le réacteur utilisé jusqu’à 4” (*cf.* figure I.19).

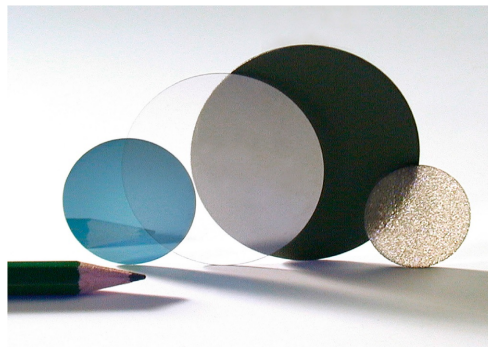


FIGURE I.19 – Wafers de diamant polycristallin de synthèse de différentes tailles réalisés par CVD [122].

I.4.3.3 Le dopage du diamant de synthèse

Bien que connu depuis les années 1950 pour le diamant naturel, le dopage intentionnel du diamant CVD a été développé dans les années 1970 [123]. Le dopage avec un atome accepteur comme le bore permet une conduction de type P. Ce dopage n’est effectif que si l’incorporation des atomes de bore se fait en position substitutionnelle. Avec des concentrations proches de 10^{21} cm^{-3} le diamant devient quasiment conducteur (jusqu’à

$10^{-4} \Omega.cm$). Au sein du laboratoire, du TMB (borate de triméthyle) est ajouté à la phase gazeuse pendant la croissance afin de réaliser cette étape [124].

Le procédé de synthèse MPECVD à 2,45 GHz nous permet de réaliser du diamant polycristallin et monocristallin. Le diamant monocristallin présente de meilleures propriétés mais sa synthèse est limitée en taille. C'est pourquoi les deux formes cristallines sont étudiées. Grâce à ce procédé, nous pouvons contrôler le dopage du diamant et donc sa conductivité électrique. Il nous permet également de moduler la structure des films polycristallins réalisés. L'innovation du concept de smart-window réside dans l'intégration d'un capteur de flux à la fenêtre. Nous allons donc présenter la stratégie adoptée pour concevoir ces smart-windows.

I.5 De la fenêtre en diamant à la smart-window

I.5.1 Contexte industriel du projet et problématique

TED travaille aujourd'hui au développement de nouvelles sources de rayons X alliant haute performance et hautes compacité comme les XED. La dissipation thermique est donc un enjeu majeur pour ces dispositifs majoritairement basés sur des fenêtres en transmission. L'utilisation de cathodes à CNTs photocontrôlées permet d'envisager des applications commutées à haute fréquence [125, 126]. La stabilité de la dose de rayons X délivrée passe par la maîtrise de l'émission des CNTs. L'utilisation du concept de XED dans le cadre des sources de type micro/nanofoyers soulève deux problèmes :

- L'augmentation de la densité de puissance thermique à dissiper dans la fenêtre ;
- La stabilité du flux de photons émis par le tube.

→ L'importante quantité de chaleur à dissiper est une conséquence inéluctable de la miniaturisation du foyer. La figure I.20 représente l'évolution de la densité de puissance sur la cible en fonction du rayon du spot électronique pour une puissance nominale de $10W$. Alors que la densité de puissance est de $10^6 W.cm^{-2}$ pour des tubes microfoyers, elle peut s'élever jusqu'à $10^{14} W.cm^{-2}$ pour des tubes nanofoyers. Cette puissance thermique doit être dissipée dans le système fenêtre-cible. À titre de comparaison, la densité de puissance thermique dissipée dans une tuyère de fusée et dans un réacteur nucléaire est représentée sur la figure I.20.

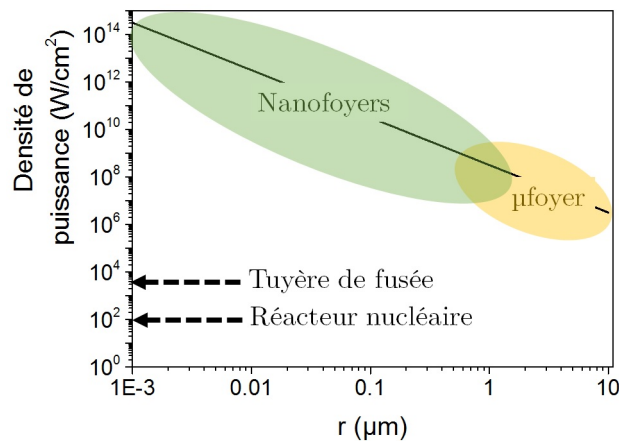


FIGURE I.20 – Densité surfacique de puissance à dissiper dans le système cible-fenêtre en fonction du rayon du faisceau.

Les performances d'un tube micro/nanofoyer sont conditionnées par la dissipation de cette densité de puissance élevée. À ces niveaux de puissance, la cible s'échauffe localement à plusieurs milliers de degrés et la fenêtre en béryllium atteint ses limites.

→ L'instabilité du flux de photons émis par le tube est la conséquence des fluctuations de l'alimentation haute tension ou de la source électronique. Cette instabilité se répercute directement sur le flux de photons émis par le tube et pose problème quant à la stabilité de l'image obtenue. Afin de contrôler l'instabilité de la dose émise, il faut disposer d'un détecteur capable d'enregistrer en temps réel le débit de photons du tube sans absorber une trop grande fraction du flux. Celui-ci doit être facile à positionner et donner une réponse reproductible. Ce détecteur pourrait également permettre d'asservir le courant d'émission et stabiliser le débit de dose du tube.

Le diamant, couplé au concept de smart-window, doit permettre d'apporter une solution à ces deux verrous technologiques et scientifiques.

I.5.2 Objectifs de la thèse

Dans la suite de ce document, une smart-window est définie comme la combinaison d'une fenêtre en diamant, d'une cible et d'un détecteur de rayons X. Comme le décrit le schéma I.21, la fonction de détection peut être intégrée au-dessus de la fenêtre. Cependant, différentes géométries de fenêtres et de détecteurs sont étudiées au cours de cette thèse.

Le développement de ce dispositif se découpe en plusieurs objectifs :

- Étudier le système pour être capable de prédire son comportement (thermique, mécanique, de détection) ;
- Dimensionner et concevoir un ou plusieurs designs de smart-window ;
- Développer un processus de fabrication ;
- Garantir la possibilité de réaliser une production de petite série ;
- Intégrer un prototype dans un tube à rayons X pour qualifier son fonctionnement.

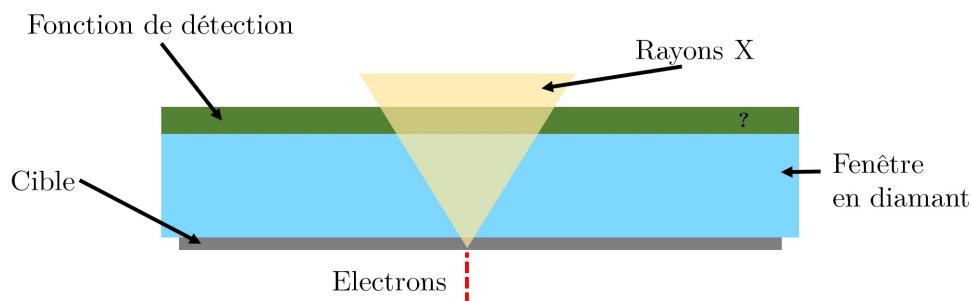


FIGURE I.21 – Schéma de principe d'une smart-window regroupant : la cible, la fenêtre et une fonction de comptage du flux de photons.

I.6 Conclusion

Compte-tenu de ses propriétés extrêmes, le diamant est un candidat de choix pour la réalisation de fenêtres innovantes de tubes à rayons X. Nous avons vu que les propriétés du diamant polycristallin et monocristallin ne sont pas identiques. La présence des joints de grain impacte notamment la conductivité thermique, la résistance à rupture et les performances de détection. Ces dernières sont également modifiées par la présence de défauts structurels ou chimiques.

Le matériau monocristallin est donc à privilégier du point de vue de ses propriétés. Il est disponible commercialement et peut être synthétisé par MPECVD. Cependant, l'utilisation de substrats de quelques millimètres carrés limite la taille des monocristaux et donc celle des fenêtres à réaliser. C'est pourquoi le diamant polycristallin présente une alternative intéressante. Il peut être synthétisé sur des surfaces de plusieurs centimètres

carrés. Le contrôle de sa microstructure permet d'obtenir un matériau aux propriétés approchant celles du monocristal. Ces deux formes cristallines sont donc retenues pour la réalisation de smart-windows et constituent deux voies de développement parallèles.

Les smart-windows que nous cherchons à développer doivent être capables d'apporter une réponse à l'augmentation de puissance des tubes à rayons X. Elle doivent également permettre d'améliorer le contrôle du flux émis. Afin d'apporter une solution à cette problématique, nous devons atteindre plusieurs objectifs : étudier et comprendre le système, développer un procédé de fabrication adapté, caractériser et intégrer les prototypes réalisés. Le chapitre suivant s'attache à lever le premier de ces verrous en utilisant une approche multidisciplinaire pour modéliser ces dispositifs.

Chapitre II

Modélisation d'une smart-window

Sommaire

II.1 Introduction	35
II.2 Modélisation du comportement mécanique d'une smart-window	36
II.2.1 Formulation du problème	36
II.2.2 Déformation d'une smart-window soumise à une pression différentielle	36
II.2.2.1 Modèle équi-biaxial	36
II.2.2.2 Modèle de Timoshenko	38
II.2.2.3 Modélisation de la contrainte à rupture d'une fenêtre	40
II.2.3 Influence de l'état de contrainte initial : les contraintes internes	42
II.2.3.1 Contraintes thermiques	42
II.2.3.2 Contraintes intrinsèques	43
II.2.3.3 Influence de l'état initial des contraintes	44
II.2.4 Modélisation d'un système réel	46
II.2.4.1 Conditions aux limites en bordure de membrane	46
II.2.4.2 Modélisation des contraintes dans la couche de tungstène	49
II.2.4.3 Phénomènes non-linéaires	50
II.3 Évaluation de l'efficacité thermique d'une smart-window	51
II.3.1 Nouveau modèle analytique pour le calcul de la température	53
II.3.1.1 Modèle équivalent	53
II.3.1.2 Description de la génération de chaleur dans la cible	58
II.3.1.3 Conductivité thermique variable	62
II.3.2 Évaluation du modèle analytique	65
II.3.2.1 Comparaison avec une simulation FEM	65
II.3.2.2 Fusion de la cible	67
II.3.2.3 Influence des phénomènes conductifs/radiatifs	67
II.3.2.4 Comparaison diamant/Be et évaluation de l'efficacité thermique	69
II.3.3 Modélisation de systèmes thermiques plus complexes	70
II.3.3.1 Dissipation thermique dans un système multisources	70
II.3.3.2 Modélisation croisée des contraintes thermo-mécaniques	71

II.4	Modélisation de la réponse électronique d'une smart-window	72
II.4.1	Du faisceau électronique au photocourant	73
II.4.1.1	Interaction rayonnement-matière	73
II.4.1.2	Photocourant dans une smart-window	75
II.4.2	Modélisation analytique	75
II.4.2.1	Flux de photons	75
II.4.2.2	Faisceau électronique	78
II.4.3	Simulation Monte-Carlo pour le transport des particules	80
II.4.3.1	Code MCNPX	81
II.4.3.2	Géométries et configurations des dispositifs simulés	81
II.4.3.3	Estimation du photocourant	82
II.4.3.4	Transparence du détecteur	83
II.4.3.5	Évaluation des courants parasites	84
II.5	Dimensionnement du système et limite de la modélisation . .	87
II.5.1	Dimensionnement mécanique des smart-windows	87
II.5.2	Le diamant polycristallin et ses limites	88
II.5.3	Limites énergétiques à la réponse des smart-windows	89
II.6	Conclusion du chapitre	90

II.1 Introduction

Dans ce chapitre est présenté le processus de modélisation des différents paramètres physiques d'une smart-window. Ces étapes de modélisation sont nécessaires pour mieux comprendre les phénomènes thermiques, mécaniques et de photoconduction attendus lors de son fonctionnement. Cette smart-window est soumise à des sollicitations de natures différentes. Tout d'abord, elle peut être considérée comme une membrane circulaire de rayon R et d'épaisseur t fixée à l'enveloppe du tube par ses bords. Pour éviter les phénomènes d'interception du faisceau électronique, la pression à l'intérieur de l'enceinte d'un tube doit être très basse ($<10^{-9}$ mbar). Or l'extérieur du tube est à la pression atmosphérique. Cette différence impose des contraintes mécaniques à la fenêtre (figure II.1.a). De plus, comme le montre la figure II.1.b, la dissipation de l'énergie des électrons dans la cible est la cause d'un échauffement local. Des phénomènes de transfert thermique sont alors mis en jeu et leur compréhension permet de dimensionner la fenêtre et d'optimiser son efficacité thermique. Enfin, la compréhension des phénomènes d'interactions rayonnement-matière au cœur de la smart-window est un pré-requis important pour prédire son comportement. La génération d'un flux de photons, son absorption dans la smart-window et la naissance d'un photocourant sont les éléments clés permettant la réalisation d'un dispositif performant.

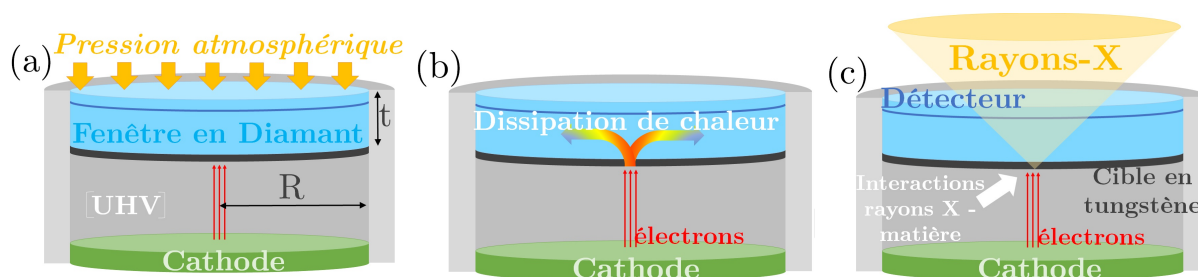


FIGURE II.1 – Schéma des différentes contraintes technologiques qui s'appliquent à une fenêtre de tube

L'épaisseur de ces fenêtres est un paramètre important à optimiser afin de réduire le temps de synthèse au minimum tout en conservant de bonnes propriétés mécaniques. En effet, la réalisation de ces dispositifs n'est viable du point de vue industriel que si elle nécessite un temps de fabrication raisonnable (typiquement quelques jours). Dans une première partie, nous étudions la réponse structurale d'une smart-window aux sollicitations mécaniques imposées par une différence de pression. Ensuite, la dissipation de l'énergie thermique générée par le faisceau électronique du tube est modélisée. Puis les interactions entre particules et rayonnement sont simulées afin de comprendre et prédire la réponse d'une smart-window. Enfin une synthèse de ces résultats de modélisation per-

mettra d'obtenir des paramètres géométriques dimensionnants pour le système afin de définir le design d'un prototype.

II.2 Modélisation du comportement mécanique d'une smart-window

II.2.1 Formulation du problème

Pour cette étude, nous modélisons des membranes de quelques millimètres à quelques centimètres de diamètre avec une épaisseur variant d'une centaine de nanomètres à une centaine de micromètres. Lors du montage d'un tube à rayons X et pendant son fonctionnement, la pression à l'intérieur du tube est inférieure à 10^{-9} mbar. La membrane est donc soumise à une différence de pression de 1 bar entre sa face interne et sa face externe supportant la pression atmosphérique. Le module de Young du diamant monocristallin est souvent pris égal à 1050 GPa bien que cette valeur puisse différer légèrement selon la direction cristallographique considérée [30, 36]. Le coefficient de Poisson peut varier selon la nature du matériau considéré et la méthode de mesure [27, 29, 30, 127, 128, 129]. Pour du diamant polycristallin synthétisé par CVD, sa valeur est généralement comprise entre 0,057 et 0,075 pour des films de $13\ \mu\text{m}$ à $400\ \mu\text{m}$ [27, 129]. L'étude suivante s'intéresse à la prédiction du comportement global d'une smart-window et à sa résistance aux contraintes d'un tube à rayons X. Nous choisissons une valeur moyenne de 1050 GPa pour le module de Young et de 0,07 pour le coefficient de Poisson. Il s'agit en effet des valeurs couramment utilisées pour représenter le diamant.

Dans un premier temps, nous nous intéressons aux relations contrainte-pression données par deux modèles analytiques et à leur pertinence dans ce problème. Une comparaison FEM (méthode des éléments finis) nous permettra de déterminer le domaine de validité de chaque modèle afin de pouvoir modéliser la contrainte à rupture du diamant et d'étudier l'influence des contraintes initiales.

II.2.2 Déformation d'une smart-window soumise à une pression différentielle

II.2.2.1 Modèle équi-biaxial

Comme le montre la figure II.2 l'invariance par rotation du problème nous amène à considérer une représentation axisymétrique en deux dimensions de cette membrane.

La situation se rapproche donc du problème simple d'une coquille de matière soumise à une pression interne [130, 131, 132]. Considérons que la fenêtre déformée est une portion de sphère dont le centre est défléchi d'une distance D (appelée "flèche") par rapport à la position au repos. Cette hypothèse est vérifiée pour $D \ll R$. Si l'épaisseur de la membrane est suffisamment fine devant le rayon, nous pouvons faire l'hypothèse d'une contrainte circonférentielle uniforme dans l'épaisseur de la membrane [133].

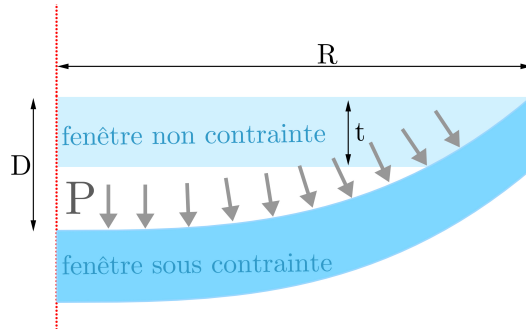


FIGURE II.2 – Schéma représentatif du problème. La ligne de pointillés rouges représente l'axe de symétrie et de révolution de la fenêtre. Celle-ci est soumise à une pression différentielle $P_{ext} - P_{int}$ qui entraîne une déflexion maximale D au centre de la fenêtre.

Les contraintes σ_H s'appliquent sur un élément de volume de cette coquille comme le représente la figure II.3. Elles dépendent uniquement de la pression différentielle appliquée ΔP , de l'épaisseur t et du rayon de courbure R_c de cette membrane. La déformation ε_H de la membrane peut, elle aussi, être calculée à partir de considérations géométriques.

$$\sigma_H = \frac{PR_c}{2t} = \frac{PR^2}{4Dt} \quad \varepsilon_H = \frac{2D^2}{3R^2} \quad (2.1)$$

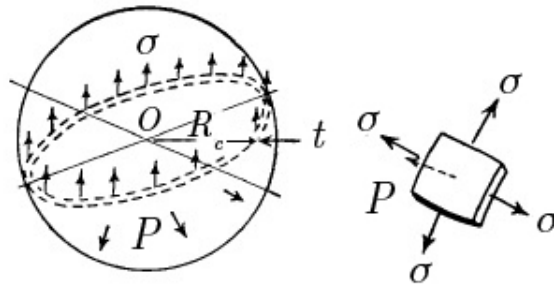


FIGURE II.3 – Schéma des contraintes equi-biaxiales, notées σ dans une coquille de matière d'épaisseur t et soumise à une pression interne P [130]. Le rayon de courbure de cette coquille est ici noté R_c .

La contrainte est dite équi-biaxiale puisque son intensité ne dépend pas du point de la membrane considéré comme l'indique la figure II.3. La déformation varie, elle, comme le carré du rapport entre la flèche D et le rayon R . Comme décrit en début de paragraphe, les membranes étudiées vérifient $t \ll R$. La combinaison des deux équations 2.1 et de la loi de Hook permet de trouver une relation entre la pression différentielle appliquée à la membrane et sa déflexion.

$$\Delta P = \frac{E}{(1-\nu)} \frac{8t}{3R^4} D^3 \quad (2.2)$$

E est le module de Young de la membrane et ν son coefficient de Poisson. L'équation 2.2 est utilisée pour modéliser les contraintes dans les films minces de diamant [34, 134, 135], ou d'autres matériaux [131, 132, 133, 136, 137, 138, 139, 140].

Ce modèle présente l'avantage d'être simple d'utilisation mais nécessite un certain nombre d'hypothèses résumées ci-après :

- Matériau élastique au sens de la loi de Hook : $\sigma = \frac{E}{1-\nu} \varepsilon$;
- Membrane fine : $t \ll R$;
- La membrane déformée a la forme d'une portion de sphère ;
- Contraintes/déformations équi-biaxiales dans toute la membrane.

Les deux premières hypothèses sont respectées dans le cas d'une fenêtre en transmission en diamant. En effet, le diamant peut être considéré comme un matériau purement élastique à température ambiante. Des déformations plastiques peuvent parfois apparaître à plus haute température ou autour de défauts chimiques [141]. Si la membrane est définie comme une portion de sphère, la contrainte circonférentielle 2.1 est indéfinie pour une déflexion nulle. Ceci implique que ce modèle est imprécis pour des faibles déformations. Dans le cas réel où les conditions aux limites impliquent une déformation nulle aux bords, la dernière hypothèse n'est plus valable. Afin d'améliorer la description du problème, nous pouvons nous intéresser à un modèle plus complet.

II.2.2.2 Modèle de Timoshenko

Dans son ouvrage de référence Timoshenko a décrit de manière plus précise le comportement mécanique de ces systèmes en ne conservant que l'hypothèse élastique [130]. L'équation différentielle du déplacement vertical d'un point de la membrane est alors

obtenue à partir des relations de minimisation de l'énergie élastique. Cette équation est résolue pour un profil de déflexion sphérique, cette-fois, valide aux faibles déformations ($D \ll R$). L'équation reliant pression différentielle et déflexion s'écrit :

$$\Delta P = \frac{E}{(1 - \nu^2)} \frac{16t^3}{3R^4} D \quad (2.3)$$

Cette formulation présente l'avantage d'être plus précise aux faibles déformations. En résolvant les équations de minimisations à l'aide de séries numériques et en ajoutant un terme de correction dû à la flexion du plan milieu de la membrane, nous obtenons une forme, alors valide quel que soit le régime considéré [130].

$$\Delta P = \frac{E}{(1 - \nu^2)} \frac{16}{3R^4} (Dt^3 + 0,488tD^3) \quad (2.4)$$

Les relations 2.2 et 2.4 peuvent être utilisées pour modéliser le comportement d'une smart-window soumise à la pression différentielle d'un tube à rayons X (*cf.* figure II.4).

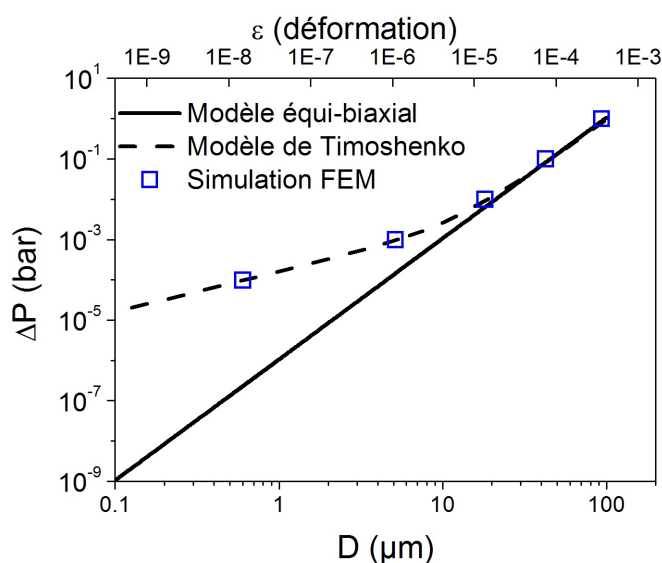


FIGURE II.4 – Comparaison des relations pression-déflexion pour une simulation FEM et les modèles analytiques présentés. Une fenêtre de 8 mm de diamètre et de 9 μm d'épaisseur est soumise à une pression différentielle de 1 bar. La déformation du centre de la membrane est également présentée

Pour des déflexions importantes, les deux modèles présentent des résultats similaires. La déformation est également représentée sur l'axe supérieur. Par ailleurs, le modèle équi-biaxial présente des valeurs sur-estimées à faible déformation ($\varepsilon \ll 0,01\%$). Le modèle de Timoshenko est, quant à lui, plus représentatif des faibles déformations puisqu'il inclut une relation caractéristique en Dt^3 . Ces deux modèles analytiques sont comparés à une

simulation par la méthode des éléments finis (FEM) de la même géométrie. Celle-ci correspond parfaitement aux résultats donnés par le modèle de Timoshenko et permet de valider cette approche analytique. Dans des conditions normales de fonctionnement, la flèche au centre d'une fenêtre en diamant de $9\ \mu\text{m}$ d'épaisseur et $8\ \text{mm}$ de diamètre atteint $100\ \mu\text{m}$. le dispositif présente donc un profil de déformation important.

Nous retenons donc que le comportement mécanique des smart-windows est bien décrit par le modèle de Timoshenko mais dans l'hypothèse de déformations supérieures à $0,01\ \%$, le modèle équi-biaxial, plus simple, peut être utilisé.

II.2.2.3 Modélisation de la contrainte à rupture d'une fenêtre

Comme décrit précédemment, les relations analytiques 2.2 et 2.4 nous renseignent sur les relations pression-déflexion. En combinant différemment les équations 2.1 et l'équation de Hook, nous pouvons trouver la loi de variation de la contrainte. Pour le modèle équi-biaxial, nous trouvons la relation suivante :

$$\sigma^3 = \frac{E}{(1 - \nu)} \frac{P^2 R^2}{24t^2} \quad (2.5)$$

Cette expression est utilisée lors des tests de gonflement de membranes (*bulging*). En effet, ce genre d'expérience implique généralement des fortes déformations pour lesquelles le modèle équi-biaxial est valide (régime élastique). Si le test se poursuit jusqu'à la rupture de la membrane, la contrainte à rupture est définie comme la contrainte dans la membrane au moment où celle-ci se rompt. En appliquant une pression différentielle croissante sur une smart-window, cette valeur est calculée grâce à l'équation 2.5.

La contrainte à rupture du diamant est variable selon la qualité du matériau fabriqué. La valeur théorique est de $190\ \text{GPa}$ et les valeurs mesurées dans la littérature sur des monocristaux vont de $2,5\ \text{GPa}$ à $4\ \text{GPa}$ [24, 36]. Pour du diamant polycristallin, cette valeur est bien moins importante à cause des défauts structuraux et chimiques et des contraintes résiduelles liées à la croissance. Plusieurs articles rapportent des valeurs variant de $200\ \text{MPa}$ à $3000\ \text{MPa}$ selon la taille des grains du film [24, 29, 34, 35, 134]. Cette grande hétérogénéité des valeurs publiées nous a motivé à mettre au point un montage de test afin de mesurer la contrainte à rupture sur le matériau synthétisé dans notre laboratoire.

Après caractérisation des smart-windows polycristallines fabriquées (cinq échantillons provenant d'une même synthèse), nous mesurons une contrainte à rupture moyenne de 358 MPa par un test en gonflement (*cf.* section IV.2.1.2). Cette mesure dépend des conditions de croissance mais permet avant tout de dimensionner les smart-windows du point de vue de leur résistance mécanique. L'écart-type de ces mesures est de 54,6 MPa et provient de la nature statistique du phénomène de rupture du diamant. Une étude statistique de Weibull sur un plus grand nombre d'échantillons aurait permis d'évaluer la reproductibilité de ce phénomène de fracture mais n'est pas nécessaire pour obtenir l'ordre de grandeur de la contrainte à rupture des fenêtres fabriquées. La figure II.5 présente la variation de la contrainte équi-biaxiale dans une fenêtre de 8 mm de diamètre pour une pression différentielle de 1 bar en fonction de son rapport d'aspect.

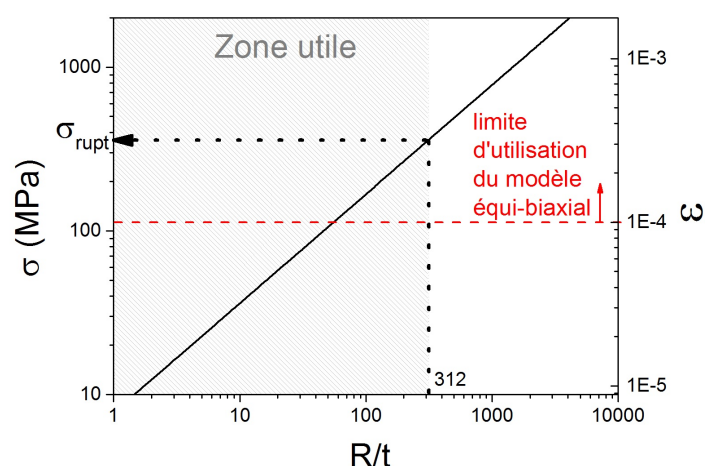


FIGURE II.5 – Contrainte et déformation équi-biaxiale dans une smart-window de 8 mm de diamètre en fonction de son rapport d'aspect pour une pression différentielle de 1 bar.

La contrainte à rupture mesurée sur les smart-windows est représentée par une flèche horizontale. Compte-tenu des conclusions du paragraphe précédent, le modèle équi-biaxial peut-être utilisé pour définir un rapport d'aspect (R/t) maximum de 312. La description utilisée jusqu'à présent ne tient cependant pas compte de l'état mécanique initial des fenêtres, c'est pourquoi, l'origine et l'influence des contraintes internes du diamant sont présentées dans le paragraphe suivant.

II.2.3 Influence de l'état de contrainte initial : les contraintes internes

Le procédé de fabrication du diamant et la nature même du matériau induisent des contraintes dans les films de diamant utilisés. Ces précontraintes, notées σ_0 , sont de deux natures : compressives à cause de la différence de dilatation thermique entre le substrat et le film ou tensives à cause de la nature polycristalline du diamant. Elles peuvent altérer le comportement mécanique décrit jusqu'alors [142, 143, 144].

II.2.3.1 Contraintes thermiques

Dans le cas particulier de la synthèse de fenêtres polycristallines, le dépôt s'effectue sur un substrat de silicium dont le coefficient d'expansion thermique est de $\alpha_{Si}=2,57.10^{-6} K^{-1}$ à la température ambiante tandis que celui du diamant est de $\alpha_d=1,05.10^{-6} K^{-1}$ [60]. Le substrat se dilatant plus que le film qui se dépose, la contrainte thermique résiduelle après croissance est alors compressive :

$$\sigma_{th} = \frac{E}{(1 - \nu)} (\alpha_d - \alpha_{Si}) \Delta T \quad (2.6)$$

La contrainte moyenne dans un film peut être calculée à l'aide du rayon de courbure et de la formule de Stoney [145].

$$\sigma_{St} = \frac{E_{Si}}{(1 - \nu_{Si})} \frac{t_{Si}^2}{6t_d R_c} \quad (2.7)$$

Les épaisseurs respectives du substrat et du film sont notées t_{Si} et t_d . R_c est le rayon de courbure du film. Les propriétés mécaniques du silicium E_{Si} et ν_{Si} sont relevées à partir des travaux de Wortman et Evans [146] et le rayon de courbure R_c peut-être calculé à partir de la solution analytique de Menčík [147]. Cette contrainte varie aussi radialement à cause du gradient thermique imposé par le refroidissement [148]. À partir de la relation 2.7 et comme l'illustre la figure II.6, nous voyons qu'elle peut être minimisée en réalisant des films épais. Sachant que la température du procédé peut varier entre 500°C et 900°C, la variation de cette contrainte reste limitée dans la plage de température considérée. La mesure des contraintes résiduelles donne parfois un résultat positif. Ainsi, pour rendre compte de ces observations expérimentales, des contraintes tensives doivent être intégrées à ce modèle [142].

II.2.3.2 Contraintes intrinsèques

Ces contraintes, nommées “intrinsèques”, tirent leur origine de la structure intergranulaire du film. Les joints de grains, leur composition, leur densité jouent un rôle prépondérant dans cette contrainte. Elle peut s'exprimer à partir d'un modèle de relaxation des joints de grains, en fonction du rayon atomique du diamant r_0 et de la taille des grains d [34, 142, 149] :

$$\sigma_i = \frac{E}{1 - \nu} \frac{r_0}{d} \quad (2.8)$$

La croissance du diamant donne lieu à des grains colonnaires. C'est pourquoi la proportion volumique de joints de grains n'est pas la même dans toute l'épaisseur d'un film. Cette contrainte intrinsèque n'est pas uniforme dans l'épaisseur, elle est plus importante à la base du film que sur sa face de croissance. La taille des grains varie linéairement avec l'épaisseur de film. Dans le cas d'une croissance d'un film polycristallin de bonne qualité cette relation expérimentale peut se mettre sous la forme [45] :

$$d(z)[nm] = 0,093t[nm] + 33 \quad (2.9)$$

L'épaisseur du film est notée t . Elle s'exprime en nanomètres. Le diamètre des grains est représenté par d . Pour connaître l'évolution de la contrainte intrinsèque en fonction de l'épaisseur du film synthétisé, une valeur moyenne de l'expression 2.8 est calculée entre $z=0$ et $z=t$ à l'aide de la relation 2.9. Le rayon atomique r_0 lié à la liaison C-C est pris égal à $0,77 \text{ \AA}$ [150]. La figure II.6 met en évidence la diminution de σ_i avec l'augmentation de la taille des grains sur la face de croissance. Ainsi, un film polycristallin de $100 \mu m$ d'épaisseur présente une contrainte intrinsèque totale de 85 MPa à comparer à plusieurs gigapascals pour des films minces (épaisseur $< 1 \mu m$). Sur cette figure, la contrainte thermique du film a également été représentée pour trois températures de synthèse différentes.

La précontrainte totale d'un film de diamant est généralement compressive dès que l'épaisseur atteint quelques micromètres. Elle est principalement contrôlée par les effets thermiques entre $10 \mu m$ et $100 \mu m$. Avec ce modèle, les films possèdent une contrainte tensile qui augmente rapidement lorsque l'épaisseur diminue. Cet effet peut être modifié lors d'une croissance à basse température ou lorsque la qualité cristalline du diamant ne peut pas être représentée par l'expression 2.9. La présence d'impuretés dans le film peut également changer ce comportement.

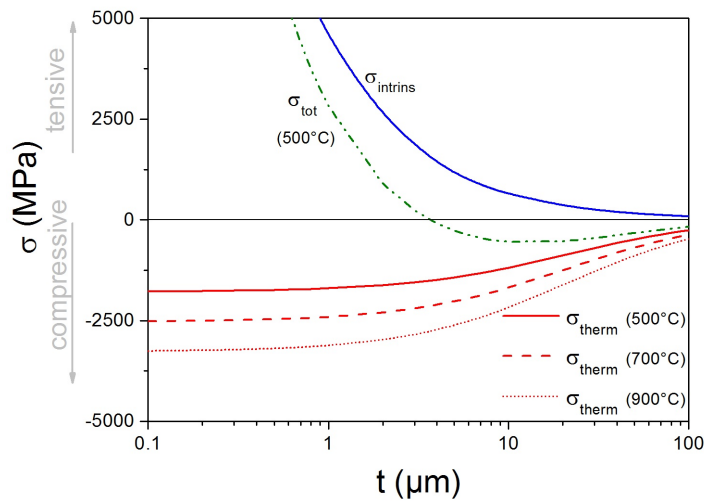


FIGURE II.6 – Contribution des différentes précontraintes moyennes. Contrainte intrinsèque tensile calculée à partir du modèle de relaxation des joints de grains 2.8. Contrainte thermique compressive pour un film synthétisé à 500°C, 700°C et 900°C en fonction de son épaisseur. Épaisseur du substrat de silicium : 400 μm .

II.2.3.3 Influence de l'état initial des contraintes

L'état initial peut également être illustré par la figure II.7 qui représente deux films de diamant synthétisés dans des conditions différentes. La somme des contraintes thermiques et intrinsèques donne lieu à une précontrainte tensile ou compressive selon la nature du matériau fabriqué. Lorsque le substrat de silicium est gravé pour libérer la membrane de diamant, la relaxation partielle de ces contraintes donne lieu à une déformation du film qui peut influencer sur son comportement mécanique.

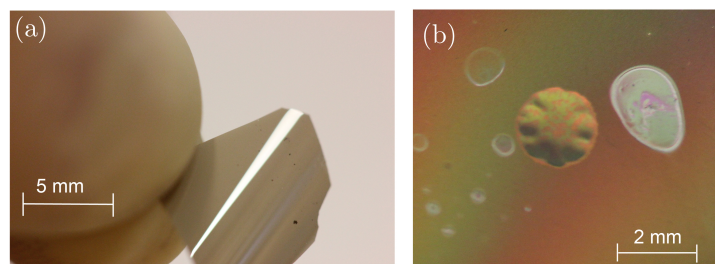


FIGURE II.7 – *Figure a* : membrane de diamant avec une précontrainte tensile (déformation convexe). Le substrat a été gravé sur la totalité du film. *Figure b* : membrane de diamant avec une précontrainte compressive (déformation concave). Le substrat a été gravé sur un disque de 2mm de diamètre.

Dans le cas d'une contrainte tensile, le film se déforme de manière convexe (face de nucléation vers le bas) comme sur la membrane de gauche de la figure II.7.a. Au contraire, la déformation est concave si la contrainte est compressive comme l'illustre la photo de la figure II.7.b. Des rides apparaissent sur la surface de la membrane partiellement libérée. Elles sont caractéristiques d'un état de contrainte compressif. La prise en compte de la précontrainte σ_0 du matériau qui somme les contributions σ_{th} et σ_i dans les modèles analytiques précédents donne lieu aux équations suivantes :

— Modèle équi-biaxial

$$\Delta P = \frac{E}{(1-\nu)} \frac{8t}{3R^4} D^3 + 4\sigma_0 \frac{Dt}{R^2} \quad (2.10)$$

— Modèle de Timoshenko

$$\Delta P = \frac{E}{(1-\nu^2)} \frac{16}{3R^4} (Dt^3 + 0,488tD^3) + 4\sigma_0 \frac{Dt}{R^2} \quad (2.11)$$

Un des problèmes posé par la présence de contraintes internes est la courbure des fenêtres. Elle perturbe le procédé de brasage. Afin de la limiter, il est nécessaire de minimiser la précontrainte totale. Fixons comme critère arbitraire une déformation inférieure à 0,01 %. Rappelons que cette déformation correspond à une contrainte initiale et non à une contrainte différentielle lors du fonctionnement. Comme le montre la figure II.8, il faut alors une déflexion initiale $\frac{D}{R} < 1,2 \cdot 10^{-2}$. La précontrainte maximale admissible est alors de 112 MPa.

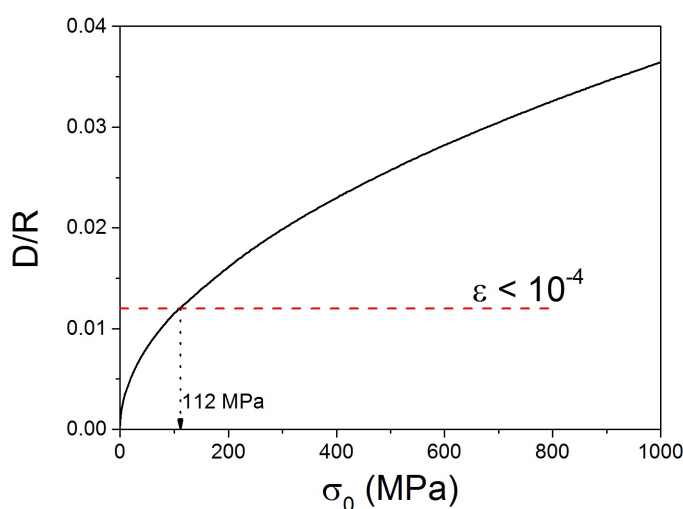


FIGURE II.8 – Flèche normalisée par rapport au rayon en fonction de la précontrainte d'une smart-window.

Dans le cas où la pression atmosphérique s'applique sur la face convexe, la déformation initiale est dans le même sens que la déformation en fonctionnement. Pour le cas inverse, la déformation initiale doit permettre de compenser partiellement la déformation liée au fonctionnement.

Nous avons vu que la modélisation de la contrainte à rupture d'une fenêtre sans précontrainte donne un critère dimensionnant pour son rapport d'aspect. En effet, avec un rapport R/t inférieur à 312, la fenêtre résiste théoriquement à la pression différentielle et sa déformation est inférieure à 0,03 %. Nous avons également vu que la prise en compte de l'état de contrainte initial du film pouvait modifier ce comportement et qu'une déformation supplémentaire doit être ajoutée ou retranchée selon le sens d'utilisation. Une contrainte tensile peut-être utilisée idéalement pour compenser la contrainte de fonctionnement. Dans notre cas, c'est la face de croissance qui peut être utilisée pour le dépôt de la cible en tungstène (position concave et meilleures propriétés thermiques). Afin de limiter la déformation initiale à 0,01 % et obtenir une surface suffisamment plane pour être brasée, on cherchera à limiter la contrainte initiale à 112 MPa.

II.2.4 Modélisation d'un système réel

La modélisation analytique du comportement mécanique d'une smart-window a permis de comprendre l'influence de la géométrie sur son comportement lorsqu'elle est soumise à une sollicitation mécanique. Il s'agit d'une approche facile à mettre en œuvre et robuste mais qui ne décrit pas le système dans son ensemble. Des simulations numériques sont nécessaires pour prendre en compte un plus grand nombre de paramètres et pour vérifier si l'approche analytique présentée jusqu'à maintenant reflète le véritable comportement du dispositif. Une méthode numérique nous permet de modéliser des systèmes plus complexes (multicouches, phénomènes non-linéaires...). La méthode FEM consiste à concevoir un modèle géométrique reproduisant les caractéristiques de l'élément à modéliser et à le subdiviser en voxels, eux-mêmes délimités par des mailles. Dans la littérature, des modèles FEM sont fréquemment utilisés pour simuler le comportement de membranes en gonflement [133, 151] et les comparer aux modèles analytiques.

II.2.4.1 Conditions aux limites en bordure de membrane

La modélisation FEM nous permet de représenter un modèle géométrique beaucoup plus complet que les descriptions analytiques. Il inclut, par exemple, un collet en cuivre sur lequel est fixé la smart-window. Dans la réalité, les fenêtres de tube à rayons X sont

brasées sur l'enveloppe du tube. Cette condition est modélisée par une zone de fixation de $500\ \mu\text{m}$ de large. La répartition spatiale de la contrainte et le déplacement de la fenêtre sont représentés sur la figure II.9. La contrainte n'est plus uniforme dans la fenêtre, elle est maximale sur les bords. La déflexion maximale est de $73\ \mu\text{m}$ au centre de la fenêtre avec une faible déformation associée.

Des zones de forte contrainte apparaissent autour du point d'attache entre la fenêtre et le collet. La contrainte locale peut alors dépasser de plus d'un ordre de grandeur la valeur moyenne dans la membrane. Chaque point de la fenêtre est ici décrit par un tenseur des contraintes. Pour plus de clarté, la contrainte principale maximale (σ_1) est représentée en chaque point de la figure II.9.

Dans la théorie des contraintes normales maximales, la rupture d'un matériau fragile intervient lorsque σ_1 dépasse la valeur qui aurait causé la rupture dans un test mécanique uniaxial. Il n'est donc pas possible de comparer cette valeur à la contrainte à rupture mesurée à l'aide du modèle équi-biaxial. Sur la figure II.10, la contrainte principale est représentée avec la déflexion le long du rayon et sur la face supérieure d'une smart-window car c'est à cet endroit qu'elle est maximale.

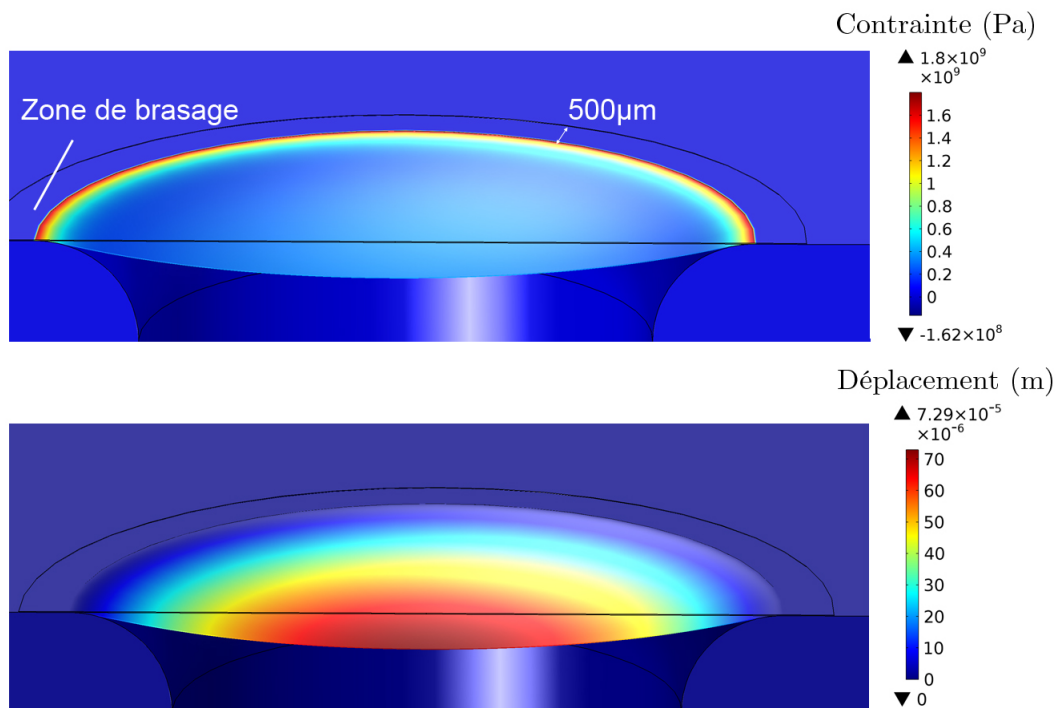


FIGURE II.9 – Simulation FEM de la contrainte principale et du déplacement d'une fenêtre de $9\ \mu\text{m}$ d'épaisseur et de $8\ \text{mm}$ de diamètre. La pression différentielle est de 1 bar.

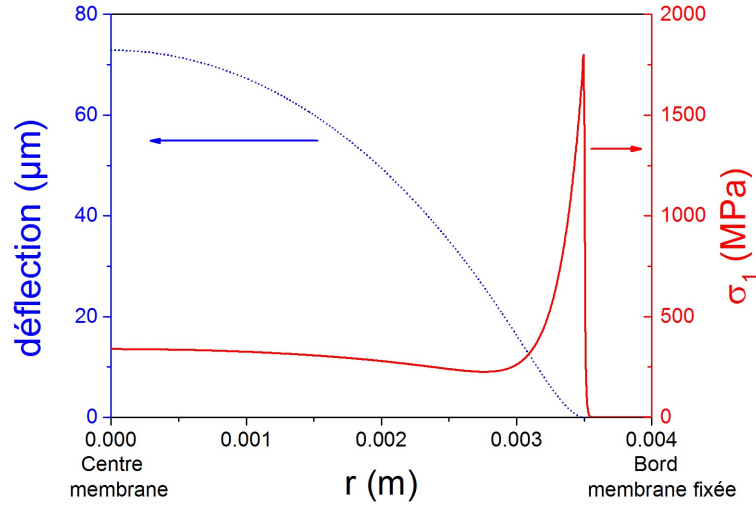


FIGURE II.10 – Modélisation de la contrainte principale et de la déflexion d'une smart-window de 8 mm de diamètre, 9 μm d'épaisseur, brasée sur un collet en cuivre et soumise à une pression différentielle de 1 bar

Comme le montre la figure II.10, au contraire du déplacement qui diminue du centre vers le bord, σ_1 présente une discontinuité au point d'attache de la fenêtre. À cet endroit, elle atteint 1,8 GPa alors qu'elle est au maximum de 350 MPa dans la fenêtre. Cet excès de contrainte local doit être pris en compte pour dimensionner le dispositif. Comme le propose Fields *et al.* [128], la théorie d'Orowan peut être utilisée pour calculer la limite théorique d'un film de diamant [152]. Il faut cependant utiliser les équations modifiées de Griffith pour prendre en compte les défauts présents dans le matériau [153]. L'équation de Griffith reliant cette limite théorique à la présence initiale de micro-fissures de longueur $2c$ est :

$$\sigma_f = \sqrt{\frac{2E}{\pi c}} \quad (2.12)$$

Ces micro-fissures proviennent généralement de défauts dans les joints de grains. L'hypothèse généralement admise consiste à prendre des défauts d'une taille équivalente aux grains [154]. Considérons des grains de quelques centaines de nanomètres pour la face de nucléation à 10 μm pour la face de croissance [142]. Le calcul donne des contraintes limites théoriques de 365 MPa à quelques gigapascals. Ces valeurs sont proches de celles mesurées expérimentalement sur le diamant par Cardinale et Robinson (entre 340 et 1380 MPa) pour différentes tailles de grains [134].

Les résultats du modèle FEM, représentés sur la figure II.11, montrent l'évolution de la contrainte principale σ_1 le long du rayon pour différentes épaisseurs. Un amortissement de la contrainte locale est obtenu lorsque l'épaisseur augmente et nous encourage donc à augmenter l'épaisseur de la fenêtre pour diminuer l'influence des contraintes en bordure de fenêtre.

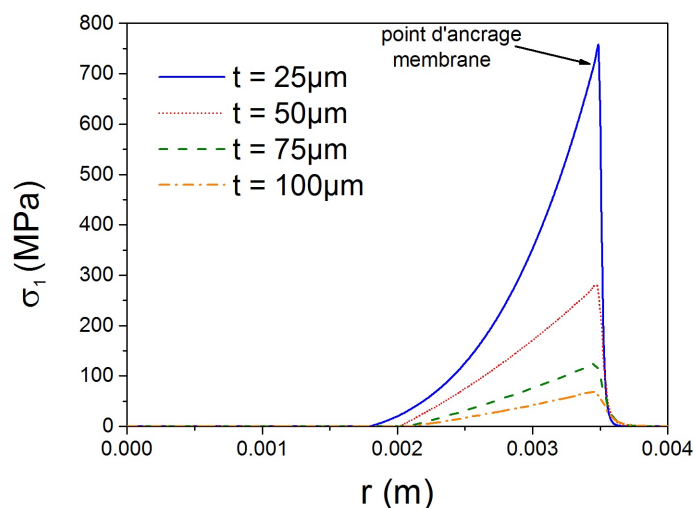


FIGURE II.11 – Modélisation de la contrainte principale sur la surface supérieure d'une fenêtre de 8mm de diamètre pour différentes épaisseurs.

II.2.4.2 Modélisation des contraintes dans la couche de tungstène

Ces simulations numériques sont également utilisées pour modéliser des phénomènes plus complexes, comme la répartition des contraintes dans la cible de tungstène qui est déposée sur la face interne de la fenêtre. La compréhension de ce système multicouche est primordiale pour la réalisation du système complet. La figure II.12 présente la distribution des contraintes pour ce système avec une cible en tungstène de 3 mm de diamètre et de 6 μm d'épaisseur.

Les contraintes apparaissent dans la cible lorsque la fenêtre se déforme et que la cible doit épouser son déplacement. Pour les dimensions utilisées, les contraintes sont homogènes et relativement faibles (35 MPa de contrainte moyenne). Par contre, le déplacement et la déformation de la cible peuvent être problématiques à cause, d'une part, de l'adhésion, et d'autre part, de la déformation du faisceau de rayons X. Afin de minimiser les contraintes mécaniques dans la cible, il faut donc minimiser le déplacement de la fenêtre.

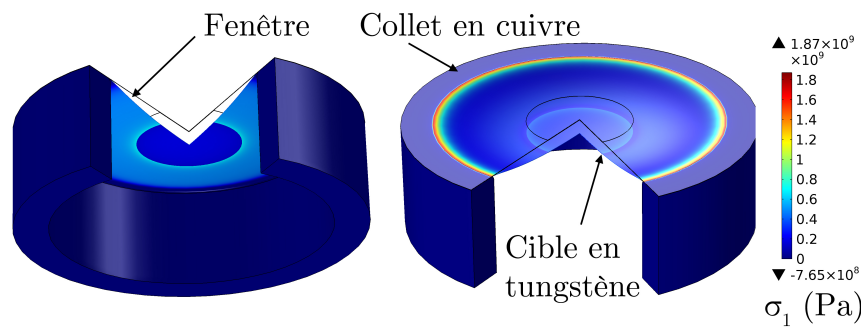


FIGURE II.12 – Simulation FEM 3D d'une fenêtre en diamant brasée sur un collet en cuivre. Un disque de tungstène déposé sous la fenêtre modélise la cible et les contraintes qu'elle implique dans la fenêtre.

II.2.4.3 Phénomènes non-linéaires

La simulation numérique nous permet également de modéliser de manière plus précise l'influence des précontraintes dans une fenêtre en diamant. En effet, la relaxation partielle des contraintes thermiques et intrinsèques présentes initialement dans la fenêtre induit une courbure des fenêtres lorsqu'elles sont libérées de leur substrat. En modélisant cette courbure, des phénomènes de flambage apparaissent (également appelés *buckling*, *winkles*, *snaping...*) et sont confirmés par des observations expérimentales. La figure II.13 met en évidence les résultats obtenus pour une membrane de 1 cm de diamètre présentant, a priori, une flèche au centre de 800 μm . Nous observons la formation des rides (wrinkles) et du flambage au fur et à mesure que la pression augmente. Les photos correspondent à des observations expérimentales sur une membrane de diamant d'environ 30 μm d'épaisseur et 1 cm de diamètre soumise à différentes pressions différentielles.

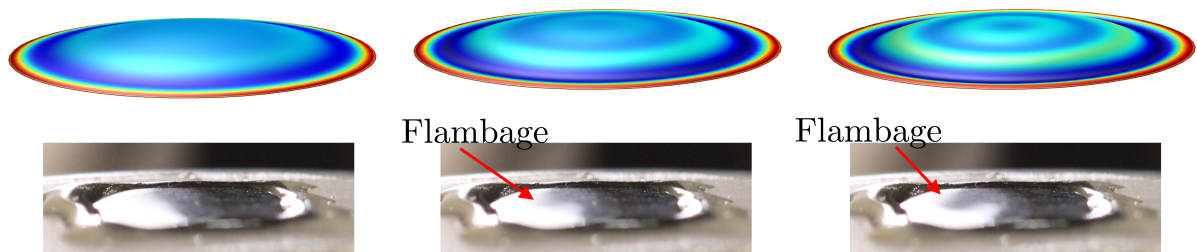


FIGURE II.13 – Illustration du phénomène de flambage en présence d'une forte précontrainte.

Ce phénomène de flambage apparaît pour des déformation importantes. Il peut-être évité en réalisant des fenêtres épaisses où la déformation est minimale.

Dans un premier temps, la modélisation analytique nous a permis d'analyser le déplacement d'une smart-window en fonction de la pression différentielle qui lui était appliquée. Différents modèles ont été comparés et utilisés pour modéliser la contrainte à rupture de ce dispositif. Un rapport d'aspect maximal de 312 est retenu pour un film non précontraint. Cette valeur garantit la résistance de la fenêtre à la pression différentielle. Les contraintes initiales, thermiques ou intrinsèques, ont également été modélisées analytiquement. Cette étude a mis en évidence que le sens d'utilisation du film de diamant est important et que ces contraintes s'estompent lorsque l'épaisseur du film augmente.

Dans un second temps, un modèle FEM a été comparé à ces expressions analytiques pour en vérifier la cohérence. Ce modèle numérique a pu être utilisé pour modéliser des phénomènes mécaniques plus complexes. Trois phénomènes ont pu être mis en évidence :

- La concentration des contraintes à la brasure ;
- La relation entre les contraintes dans la cible et le déplacement de la fenêtre ;
- L'apparition du flambage à forte déformation.

Il est clair que pour minimiser l'influence de ces phénomènes, il est nécessaire de réaliser des films de diamant suffisamment épais pour garantir une déformation et un déplacement minimal. De manière analogue à cette modélisation mécanique, une modélisation analytique des phénomènes thermiques est proposée dans la section suivante.

II.3 Évaluation de l'efficacité thermique d'une smart-window

Cette section vise à modéliser les transferts thermiques qui interviennent au niveau d'une smart-window lors de son fonctionnement. Dans les tubes à rayons X, le faisceau électronique qui impacte la cible perd 99 % de son énergie en chaleur. Seulement 1 % de l'énergie des électrons est convertie en rayons X. Dans les tubes en transmission, afin d'assurer la transparence de la cible elle-même, celle-ci doit faire quelques micromètres d'épaisseur (1-10 μm). Elle est donc trop fine pour pouvoir être auto-supportée et doit être déposée directement sur la fenêtre du tube. Lorsque le faisceau électronique d'un tube impacte cette cible, une partie de l'énergie des électrons est convertie en rayons X

II.3 Évaluation de l'efficacité thermique d'une smart-window

par phénomène de fluorescence et par rayonnement de freinage. La majorité de l'énergie est dissipée thermiquement dans la cible par relaxation énergétique.

Afin d'augmenter la résolution des images, il est nécessaire de diminuer le diamètre du spot formé par le faisceau électronique sur la cible. Cependant, l'échauffement local de l'émetteur d'électrons d'une part et de la cible d'autre part sont les deux verrous technologiques identifiés depuis longtemps [155]. Les nombreux et récents développements dans le domaine de l'émission de champ ont permis de réaliser des émetteurs électroniques puissants et suffisamment résistants, comme les CNTs [14, 156].

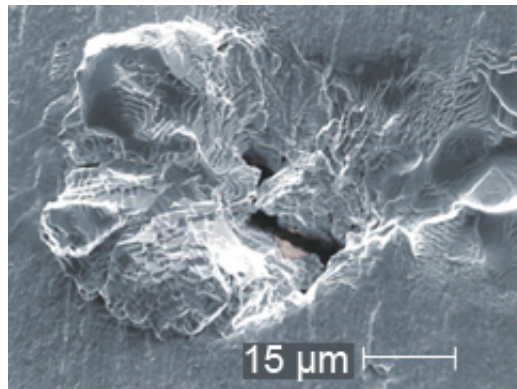


FIGURE II.14 – Dégâts thermiques provoqués par l'impact du faisceau électronique sur une cible en tungstène d'un tube microfoyer de TED.

La puissance thermique dissipée est telle que la température de la cible en transmission peut monter jusqu'à son point de fusion (pour le tungstène $T_f=3400^\circ\text{C}$ [157]), voir jusqu'à son point de sublimation. Le contact avec un fluide (par exemple l'air ambiant) permet à la fenêtre d'évacuer la chaleur par convection sur sa face supérieure tandis que des phénomènes radiatifs peuvent intervenir sur sa face inférieure. Par ailleurs, un refroidissement latéral par un fluide caloporteur peut améliorer cette dissipation.

Le développement des tubes micro/nano foyers où la densité de puissance est très importante ont mis en évidence les limites thermiques des fenêtres actuelles en béryllium. La figure II.14 est une photo d'une cible en tungstène prise après montage et utilisation sur un tube X microfoyer (spot : 5-7 μm).

Grâce à sa haute conductivité thermique, le diamant de synthèse est un candidat de choix pour la réalisation de fenêtre de tubes à rayons X micro/nanofoyer. Pour cette raison,

la compréhension des phénomènes thermiques est primordiale. Un modèle analytique a été développé afin de répondre à ce besoin. Ensuite, une comparaison avec une simulation FEM a permis de mettre en évidence sa robustesse et sa flexibilité. Plusieurs résultats de ce modèle sont présentés et discutés dans ce chapitre.

II.3.1 Nouveau modèle analytique pour le calcul de la température

La modélisation analytique de ce problème thermique devrait permettre d'atteindre plusieurs objectifs. Tout d'abord, il s'agit d'un modèle propre aux tubes micro/nanofoyers. Ensuite elle permet de valider les résultats obtenus par une approche FEM plus complexe. Enfin, le temps de calcul peut-être réduit au minimum, notamment par l'utilisation d'abaques. Plusieurs approches analytiques ont déjà été essayées sur des problèmes similaires mais pour des cibles en réflexion [75, 158, 159, 160, 161, 162]. Nous nous plaçons ici dans le cas d'une fenêtre en transmission en diamant monocristallin et nous développons un modèle analytique simple permettant de prédire les distributions des températures [163].

II.3.1.1 Modèle équivalent

Dans la littérature, le calcul de la distribution de température à symétrie axiale se fait en résolvant l'équation de la chaleur en coordonnée cylindrique par séparation des variables [158, 164]. Le résultat est alors obtenu sous la forme de séries de Bessel. D'autres approches utilisent les transformées de Hankel [159, 165]. Dans toutes ces études, la source de chaleur est définie en surface comme une condition de flux. Cette hypothèse est valide pour des cibles en réflexion dont l'épaisseur est très supérieure au diamètre du spot. Pour les fenêtres à transmission, la cible en tungstène est bien plus fine. Une dissipation volumique de la chaleur doit donc être envisagée et la résolution de ces équations est alors bien plus compliquée.

Afin de résoudre ce problème, nous faisons le choix de décrire une situation thermiquement identique, plus simple d'un point de vue analytique. La géométrie de notre fenêtre sera alors remplacée par une géométrie différente, plus simple à résoudre.

La géométrie initiale de notre fenêtre se résume à une membrane cylindrique de rayon R et de hauteur t (figure II.15 à gauche). Dans un premier temps, nous considérons que la

membrane est seulement refroidie par sa surface latérale. Ainsi cette surface est maintenue à la température T_{th} par un thermostat parfait. La zone d'échauffement liée à l'impact du faisceau électronique sur la cible est modélisée par une source ponctuelle qui dissipe une puissance Q .

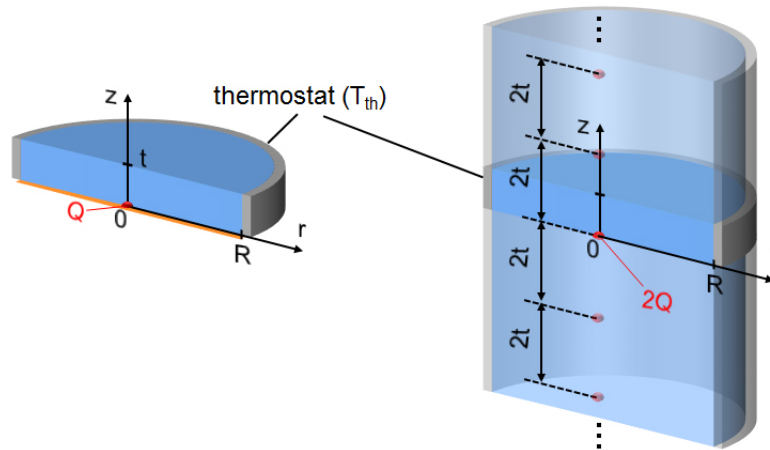


FIGURE II.15 – Schéma analogue du problème. Sur la gauche sont représentés le système réel et son thermostat. Sur la droite est représenté un système de sources virtuelles donnant une distribution de température identique.

Les conditions d'adiabaticité sur les surfaces supérieures et inférieures de la fenêtre imposent un flux de chaleur normal nul sur ces dernières. Ces considérations montrent que notre problème est analogue à une distribution linéaire verticale de sources de chaleur ponctuelles, chacune espacées de $2t$, dans un cylindre infini de matériau (*cf.* figure II.15 à droite). Ces sources virtuelles dissipent chacune une puissance égale à $2Q$. La présence de deux sources virtuelles contiguës entraîne l'annulation des composantes non-radiales le long des surfaces horizontales médianes. Il est possible d'étudier ce système analogue et de restreindre la représentation des résultats à la géométrie de notre fenêtre : $0 \leq r \leq R$ et $0 \leq z \leq t$.

D'un point de vue thermique, le système constitué par une série de sources virtuelles distribuées verticalement donne la même distribution de température que notre géométrie initiale de fenêtre. Comme nous allons le voir, ce système est simple à résoudre analytiquement. Ce changement de géométrie pour simplifier le problème est similaire aux solutions proposées dans de nombreux problèmes électrostatiques.

Considérons tout d'abord la température en tout point (r, z) de l'espace à l'origine duquel est placée une source de chaleur de puissance $2Q$ (cf. figure II.15). Par analogie avec l'équation de Poisson qui donne le potentiel autour d'une charge électrique, la température autour d'une source de chaleur s'écrit en coordonnées cylindriques :

$$T = \frac{Q}{2\pi\lambda\sqrt{r^2 + z^2}} \quad (2.13)$$

λ est la conductivité thermique du matériau considéré, ici prise égale à $2000 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ (diamant monocristallin). Si maintenant nous ajoutons une infinité de sources identiques à la première et distribuées le long de l'axe vertical tous les $2t$, on indexe alors les sources en prenant $n = 0$ pour la source à l'origine. L'indice n est alors positif suivant l'axe z . La distance entre un point quelconque de l'espace de coordonnées (r, z) et la source n est donnée par d_n .

$$d_n = \sqrt{r^2 + (2nt - z)^2} \quad (2.14)$$

Par application du principe de superposition et à l'aide des expressions 2.13 et 2.14, la contribution de chacune des sources est ajoutée pour connaître la contribution totale. L'élévation de température est donc maintenant définie par une série.

$$\Delta T = \frac{Q}{2\pi\lambda} \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \frac{1}{\sqrt{r^2 + (2nt - z)^2}} \quad (2.15)$$

L'expression 2.15 représente l'élévation de température en tout point de notre fenêtre. Cependant comme le thermostat n'a pas encore été modélisé cette expression diverge rapidement puisque chaque source supplémentaire augmente indéfiniment la température au point considéré. De la même manière que le potentiel électrostatique, la température est définie à une constante près. Nous pouvons donc choisir le thermostat T_{th} comme référence. Un problème similaire mais appliqué à l'électrostatique a été traité en définissant le potentiel d'un point par rapport à un potentiel de référence pour chaque contribution [166, 167]. En appliquant ce principe à notre problème, nous pouvons définir la température en (r, z) par rapport au thermostat latéral en (R, z') .

$$\Delta T = \frac{Q}{2\pi t\lambda} \lim_{N \rightarrow +\infty} \sum_{n=-N}^N \left(\frac{1}{\sqrt{\left(\frac{r}{t}\right)^2 + \left(2n - \frac{z}{t}\right)^2}} - \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{R}{t}\right)^2 + \left(2n - \frac{z'}{t}\right)^2}} \right) \quad (2.16)$$

Cette fois-ci l'expression ne diverge plus et il est possible de s'en assurer en procédant

II.3 Évaluation de l'efficacité thermique d'une smart-window

à une comparaison intégrale présentée en annexe. Comme le thermostat est positionné sur l'ensemble de la surface latérale et si $R \gg t$, l'expression de la température ne dépend plus de z' . Notons ξ la limite de cette série. L'équation 2.16 se simplifie en posant $z' = 0$ et en utilisant les paramètres géométriques normalisés : $x^* = x/t$.

$$T = \frac{Q}{2\pi t\lambda} \xi(r^*, z^*, R^*) \quad (2.17)$$

Dans le cas général, l'expression de ξ est donc une double série convergente qui ne dépend que des paramètres géométriques de la fenêtre.

$$\xi(r^*, z^*, R^*) = \sum_{n=-\infty}^{+\infty} \left(\frac{1}{\sqrt{r^{*2} + (2n - z^*)^2}} - \frac{1}{\sqrt{R^{*2} + 4n^2}} \right) \quad (2.18)$$

Si $R^* \gg 1$, comme c'est le cas pour des fenêtres en transmission, la température sur la surface supérieure de la fenêtre n'est pas constante. Il s'agit d'une différence importante par rapport aux différents modèles de la littérature qui font l'hypothèse d'un thermostat sur la face supérieure et qui s'appliquent à des cibles en réflexion [75, 158, 159, 160, 161, 162].

Lorsque le point d'intérêt est loin de la zone de génération de chaleur, *i.e.* lorsque $r \gg t$, une expression exacte de ξ peut être trouvée (voir annexes). Celle-ci correspond à l'expression que l'on obtiendrait pour une source verticale avec une densité linéique de chaleur de $2Q/t$.

$$\Delta T = \frac{Q}{2\pi t\lambda} \ln \left(\frac{R}{r} \right) \quad (2.19)$$

Dans le cas où $r \ll t$, les isothermes sont sphériques et l'expression de la température se rapproche de l'équation 2.13. Dans le cas général, ξ n'admet aucune limite analytique simple à exprimer. La série peut tout de même être tronquée pour exprimer une valeur approchée de la solution et tabuler ξ . Pour ce faire, la série est tronquée à $2P + 1$ sources virtuelles.

Afin d'obtenir une troncature correcte, le reste de la série ξ après le $2P + 1^{\text{ème}}$ terme peut être encadré (voir annexes). La borne supérieure de cet encadrement est alors utilisée pour calculer le nombre minimal de sources permettant d'obtenir une précision suffisante pour le résultat. Par exemple, pour obtenir une valeur de ξ à $0,1^\circ\text{C}$ près, il faut ajuster P selon l'expression de sa borne supérieure. La figure II.16 représente les isovaleurs prises par le nombre de sources ($2P + 1$) en fonction des dimensions de la fenêtre. Par ailleurs, cette expression dépend également des paramètres thermiques du problème : Q et λ .

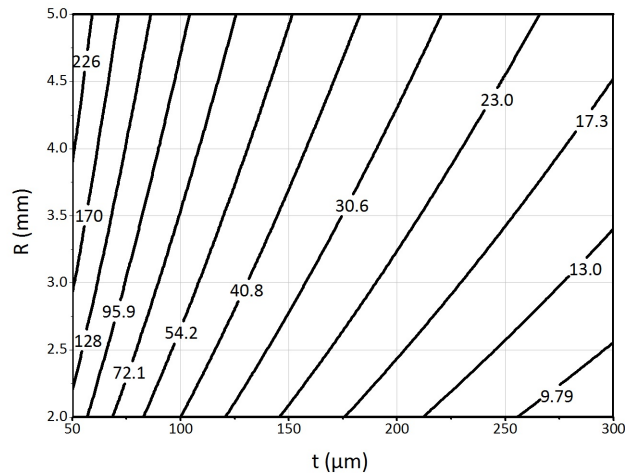


FIGURE II.16 – Nombre minimal de sources virtuelles à utiliser pour obtenir une précision de $0,1\text{ }^{\circ}\text{C}$ sur la température pour une source de $8,5\text{W}$ et avec $\lambda = 2000\text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$.

Le nombre minimal de sources virtuelles à utiliser varie entre quelques sources et quelques centaines de sources pour des smart-windows entre 2 et 5 mm de rayon et 50 et $300\mu\text{m}$ d'épaisseur. De plus, ce paramètre diminue avec le rapport R/t car l'influence d'un plus grand nombre de sources se fait sentir sur des membranes fines et longues. Ainsi, le calcul de ξ pour n'importe quel point (r, z) de la membrane peut se faire simplement et nécessite peu de temps de calcul. La figure II.17 représente les valeurs de ξ prises selon le point étudié pour différents rapports d'aspect de la membrane.

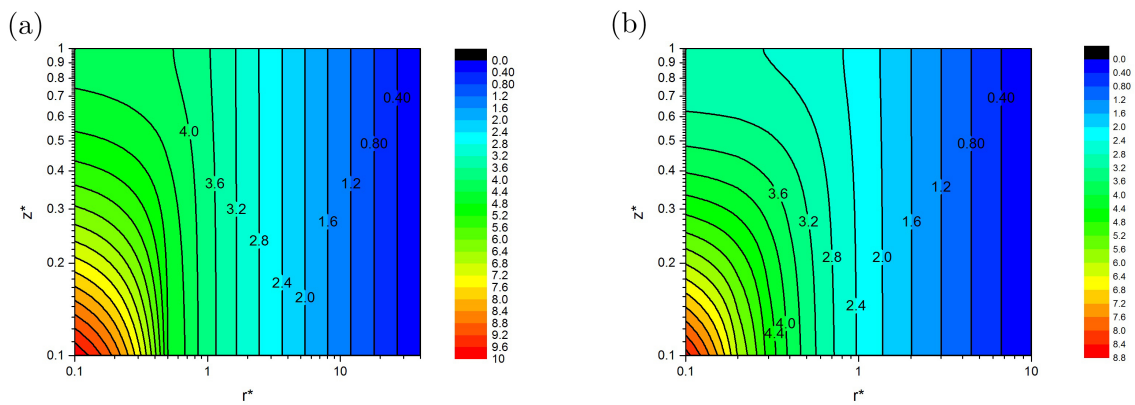


FIGURE II.17 – Tabulation de la fonction ξ dans une fenêtre de diamant pour plusieurs rapports d'aspect R/t de 40 (figure a) et 50 (figure b).

L'utilisation d'un abaque comme celui de la figure II.17, permet le calcul rapide de la température en tout point de la membrane, à l'exception de la zone proche du point de génération de chaleur. Le résultat obtenu est précis à 0,1 °C. Par ailleurs, un des points clés à étudier est justement l'origine du système, où se situe la génération de chaleur car c'est à ce point que la température est maximale. Pour contourner ce problème, il faut résoudre l'équation de Poisson dans cette zone.

II.3.1.2 Description de la génération de chaleur dans la cible

Modélisation de la source

Pour décrire la distribution de la température dans la zone de génération de chaleur, il faut connaître le volume que prend cette zone. Dans une cible de tube à rayons X, l'échauffement est causé par la thermalisation des électrons énergétiques pénétrant la cible. Cet effet thermique se produira donc dans toute la zone d'interaction entre les électrons incidents et la matière.

La taille de cette zone d'interaction dépend de l'énergie des électrons considérés et du numéro atomique de la cible. Dans un tube à rayons X standard, la taille du faisceau d'électrons est plus grande que cette zone d'interaction, ce qui provoque un étalement de la zone de génération de chaleur qui devient une ellipsoïde. Dans les tubes micro/nanofoyer, deux cas sont à distinguer : pour les matériaux légers, la longueur de diffusion des électrons est importante et la zone d'interaction est une sphère pleine comme le montre la figure II.18. Pour les matériaux à Z élevé comme le tungstène, cette distance de diffusion (x_d) est petite devant la profondeur de pénétration totale des électrons (r_s). Le volume d'interaction peut donc être représenté par une demi-sphère [161, 162, 168, 169].

La source ponctuelle de chaleur utilisée jusqu'à présent peut donc être remplacée par une demi-sphère de rayons r_s . Ce rayon sera déterminé par le numéro atomique de la cible Z , sa masse atomique A , sa densité ρ et par la tension d'accélération du faisceau U [168].

$$r_s = \frac{2,76 \cdot 10^{-11} A U^{5/3} (1 + 0,978 \cdot 10^{-6} U)^{5/3}}{\rho Z^{8/9} (1 + 1,957 \cdot 10^{-6} U)^{4/3}} \quad (2.20)$$

Pour une gamme d'énergie entre 30 keV et 200 keV, le rayon de la zone de génération de chaleur est donc compris entre 1,6 μm et 66 μm . Dans la suite de ce modèle, r_s est pris égal à 3,5 μm ce qui correspond à une tension d'accélération de 50 keV approximativement.

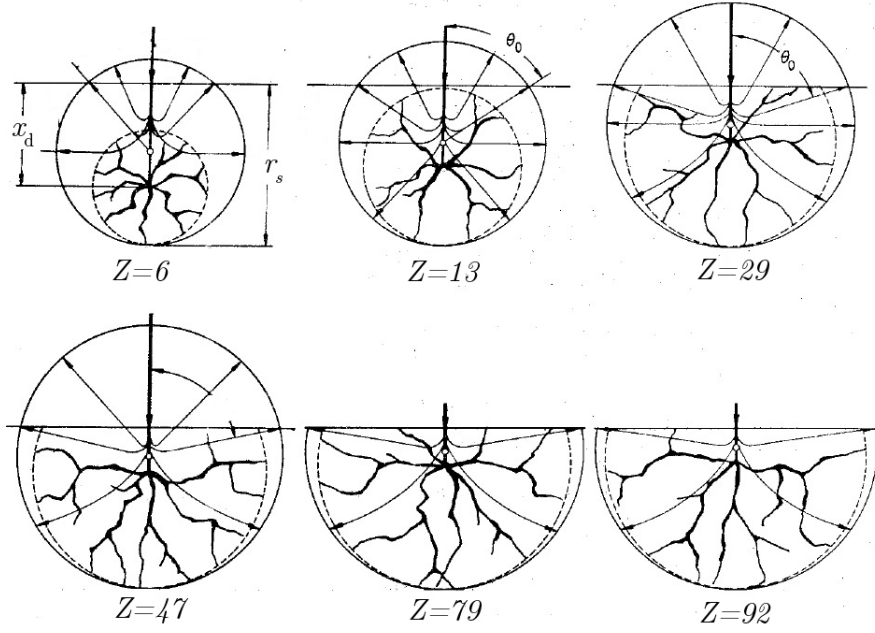


FIGURE II.18 – Forme du volume d'interaction entre un faisceau d'électrons et une cible en carbone, aluminium, cuivre, argent, or et uranium [168]. Le numéro atomique du tungstène étant de 74, le volume d'interaction se rapproche d'une demi-sphère.

Pour le calcul de la température dans cette zone, il est nécessaire de revenir à l'équation de Poisson 2.13. La zone de chaleur ayant une symétrie sphérique, elle est décrite par la coordonnée polaire $\rho = \sqrt{r^2 + z^2}$:

$$\frac{d^2T}{d\rho^2} + \frac{2}{\rho} \frac{dT}{d\rho} = P(\rho) \quad (2.21)$$

Le profil de génération dans la source est représenté par $P(r, z)$. Celui-ci peut-être uniforme, gaussien, linéaire, etc. et dépend principalement du profil du faisceau d'électrons. Pour représenter simplement différents types de profil, on peut exprimer cette puissance de manière polynomiale.

$$P(r, z) = \sum_{n=0}^{\infty} a_n \left(\sqrt{r^2 + z^2} \right)^n \quad (2.22)$$

Les a_n sont alors à calculer selon le profil de chaleur. La résolution de l'équation avec second membre 2.21 en utilisant 2.22 donne donc une expression de la température à l'intérieur de la source.

$$\Delta T = \frac{Q\xi(r_s^*, R^*, 0)}{2\pi t\lambda_w} + Q \sum_{n=0}^{\infty} \frac{a_n \left(r_s^{n+2} - \left(\sqrt{r^2 + z^2} \right)^{n+2} \right)}{(n+2)(n+3)\lambda_t} \quad (2.23)$$

Le premier terme de l'équation correspond à la résistance thermique de la fenêtre en de-

II.3 Évaluation de l'efficacité thermique d'une smart-window

hors de la zone de génération tandis que le second représente justement la contribution du terme source. Dans cette expression, on note λ_t la conductivité thermique de la cible et λ_w , la conductivité de la fenêtre. Dans la plupart des cas énoncés ci-dessus, le profil de chaleur peut être décrit par un polynôme pair de degré 8. Le tableau II.1 résume les différents coefficients pour deux types de faisceaux.

Coefficient	$a_8 (m^{-8})$	$a_6 (m^{-6})$	$a_4 (m^{-4})$	$a_2 (m^{-2})$	a_0	Multiplicateur
Gaussien	$5,322.10^{-4}$	$-1,252.10^{-2}$	$1,129.10^{-1}$	$-0,5$	1	$\frac{2}{(2\pi)^{\frac{3}{2}} \sigma^{n+3}}$
Uniforme	0	0	0	0	1	$\frac{3}{2\pi r_s^3}$

TABLE II.1 – tableau des coefficients du polynôme descriptif de la distribution de puissance dans la zone de génération de chaleur.

Dans le cas simple d'une source de chaleur uniforme, la température maximale du système est atteinte en $r=z=0$. Cette température s'exprime simplement par :

$$\Delta T_{max} = \frac{Q}{2\pi t} \left(\frac{\xi(r_s^*, R^*, 0)}{\lambda_w} + \frac{t}{2\lambda_t r_s} \right) \quad (2.24)$$

Cette expression 2.24 est utilisée par la suite du modèle pour déterminer l'élévation de température maximale dans la fenêtre.

Résistance thermique de la cible

Comme le montre la figure II.19, ce modèle est développé autour de deux secteurs, une zone de génération de chaleur hémisphérique de conductivité λ_t et une zone de conduction cylindrique de conductivité λ_w . Cependant, la conduction de chaleur dans la cible et en dehors de la source est négligée. Pour tenir compte de ce phénomène de manière simple, nous définissons une seconde zone hémisphérique de rayon r_t autour de la source dans laquelle la conductivité est λ_t mais sans aucun terme source. Cette zone joue le rôle de la résistance thermique de la cible.

La température en un point (r, z) de la zone de chaleur s'écrit alors à partir de l'expression ?? comme la somme de trois termes. Le premier correspond à la résistance thermique de la fenêtre, le deuxième à la résistance thermique de la zone de conduction et le dernier à l'augmentation locale de température liée à la génération de chaleur.

$$\Delta T_{max} = \frac{Q}{2\pi t} \left(\frac{\xi(r_t^*, R^*, 0)}{\lambda_w} + \frac{t}{\lambda_t} \left(\frac{3}{2r_s} - \frac{1}{r_t} \right) \right) \quad (2.25)$$

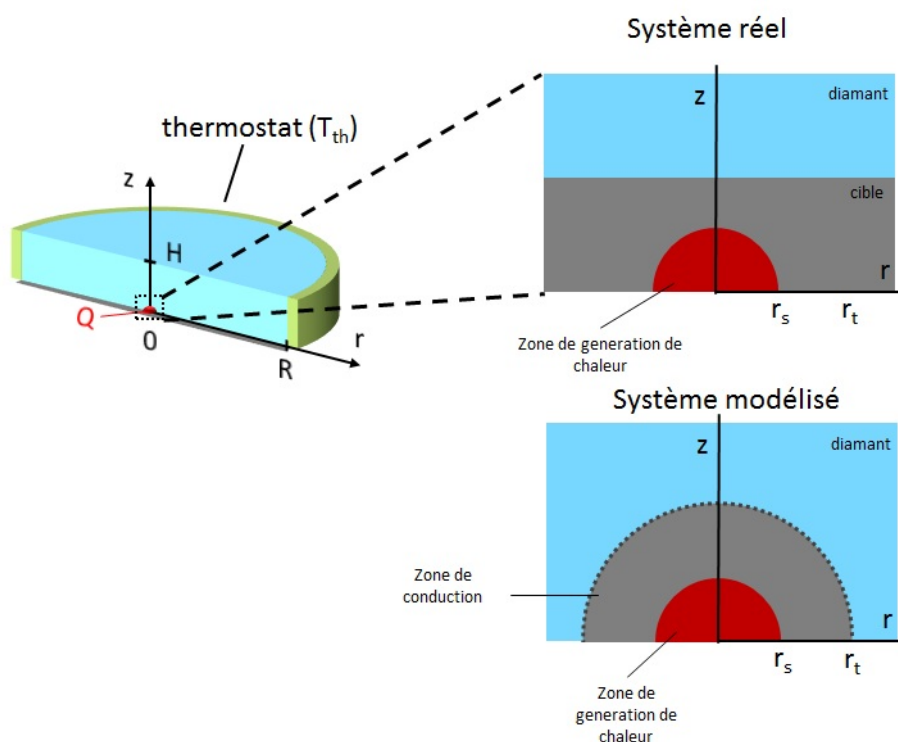


FIGURE II.19 – Modèle géométrique représentatif de la cible. Le système réel (en haut) est modélisé par une zone de conductivité λ_t sans source de chaleur et de rayon r_t (en bas)

Dans ce modèle, une zone hémisphérique de conduction est définie autour de la source pour représenter l'ensemble de la cible. Cependant, la cible réelle est cylindrique et pour que les deux descriptions correspondent, il faut prendre en général r_t égal à 3/2 de l'épaisseur réelle de la membrane.

Résistance thermique de l'interface

La conduction thermique dans le diamant est assurée par les phonons. Bien que l'on considère un contact parfait entre la cible et la fenêtre, la diffusion de ces phonons à l'interface entre les deux matériaux produit une résistance à l'évacuation de la chaleur [170]. Un terme de résistance thermique d'interface doit donc être ajouté au modèle. Puisque la cible est modélisée par une zone hémisphérique de rayon r_t , l'interface entre tungstène et diamant correspond à la surface de cette hémisphère. La conductance d'interface est alors notée G et l'expression 2.25 se réécrit :

$$\Delta T_{max} = \frac{Q}{2\pi t} \left(\frac{\xi(r_t^*, R^*, 0)}{\lambda_w} + \frac{t}{\lambda_t} \left(\frac{3}{2r_s} - \frac{1}{r_t} \right) + \frac{t}{2Gr_t^2} \right) \quad (2.26)$$

II.3 Évaluation de l'efficacité thermique d'une smart-window

Des mesures expérimentales de la conductance diamant-tungstène ont montré que celle-ci était comprise entre $40 \text{ MW}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ et $200 \text{ MW}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ [171, 172]. Cependant, ce paramètre est sensible à l'état initial de surface des matériaux ainsi qu'aux différents traitements thermiques pouvant altérer l'interface (formation de carbures par recuit par exemple) [173, 174, 175]. Pour ce modèle, une valeur moyenne de $100 \text{ MW}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{K}^{-1}$ est utilisée pour modéliser une interface lisse entre un diamant monocristallin et une cible en tungstène.

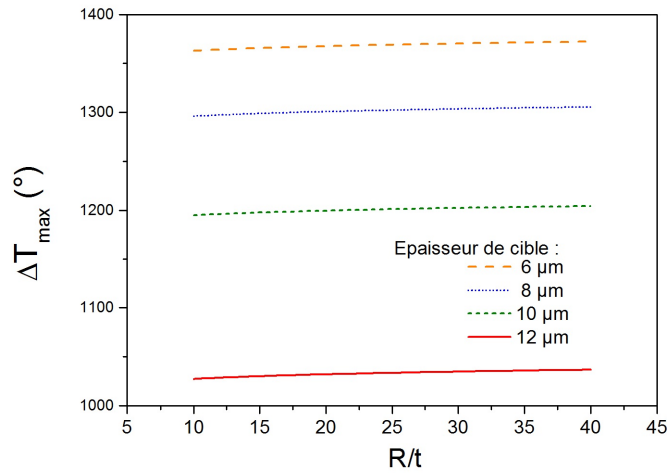


FIGURE II.20 – Élévation maximale de température du système, au centre de la zone de génération de chaleur, pour une puissance dissipée de $8,5 \text{ W}$ et une conductivité de $2000 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ en fonction du rapport d'aspect R/t et pour plusieurs épaisseurs de tungstène.

En utilisant l'expression 2.26 qui prend en compte à la fois la résistance thermique de l'interface et celle de la cible, nous pouvons calculer l'élévation de température au centre de la source (figure II.20). La température du système est donc dépendante du rapport d'aspect R/t mais nous notons une plus forte influence de l'épaisseur de la cible.

II.3.1.3 Conductivité thermique variable

Dans les conditions de fonctionnement étudiées, la température dans la fenêtre reste relativement basse mais la température de cible varie énormément d'un point à un autre. Ce fort gradient thermique implique que la conductivité thermique locale varie également beaucoup. Pour tenir compte d'une conductivité thermique non constante, nous pouvons reprendre les développements analytiques précédents pour y incorporer une conductivité variable. Les transformées de Kirchoff sont un bon moyen pour exprimer ces variations

[176]. Les conductivités thermiques utilisées pour le tungstène, le béryllium et le diamant de synthèse sont calculées à partir de la formule suivante :

$$\lambda(x) = Kx^\alpha \quad (2.27)$$

Les valeurs des paramètres α et K sont présentées dans la table II.2 et ont été calculées à partir de différentes données expérimentales de la littérature.

Conductivité thermique du diamant

La conductivité thermique du diamant de synthèse peut varier selon la qualité cristalline du diamant (*cf.* Chapitre 1). Ce modèle thermique s'intéresse au diamant monocristallin uniquement. La conduction dans le diamant étant limitée par les interactions phonon-phonon, le coefficient α doit être proche de -1 [47, 177]. La dépendance de la conductivité du diamant a été calculée à partir de données expérimentales complémentaires entre 25°C et 930°C [58, 177, 178]. Les courbes utilisées sont représentées sur la figure II.21.

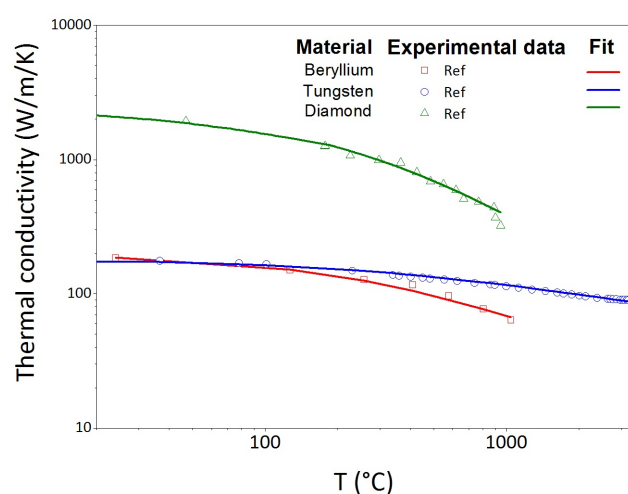


FIGURE II.21 – Évolution de la conductivité thermique des matériaux utilisés en fonction de la température. Les marqueurs représentent les données expérimentales et les traits continus, les ajustements réalisés avec l'expression 2.27.

Compte-tenu de l'expression 2.27, la conductivité du diamant à la température ambiante est donc maintenant de $2113 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$. Cette valeur est plus haute que la conductivité du diamant monocristallin prise jusqu'à présent mais permet d'ajuster cette expression dans toute la gamme de température considérée. Afin de simplifier le modèle, la

II.3 Évaluation de l'efficacité thermique d'une smart-window

conductance d'interface (G) est considérée constante avec la température. Cette approximation conduit à une surestimation de la température et constitue donc une marge de sécurité [179].

Matériau	k	α	Référence	Gamme
tungstène	860	-0,28	[180]	[25°C ; 3530°C]
diamant	1771.10 ⁶	-1,18	[58, 177, 178]	[25°C ; 930°C]
béryllium	9484	-0,69	[57]	[25°C ; 930°C]

TABLE II.2 – Tableau des paramètres de l'ajustement pour les conductivités des différents matériaux utilisés.

La transformée de Kirchoff de la température, notée θ s'écrit simplement :

$$\theta = \frac{1}{\lambda_{amb}} \int_{T_{amb}}^T \lambda(x) dx \quad (2.28)$$

L'équation 2.21 est résolue avec la transformée θ . La véritable température est obtenue par transformée inverse.

$$\Delta T_{max} = \left(\frac{\lambda_{w,amb}(\alpha + 1)}{k} \left(\frac{Q\xi(r_s^*, R^*, 0)}{2\pi t \lambda_{w,amb}} + \frac{Q}{2\pi \lambda_{t,amb}} \left(\frac{3}{2r_s} - \frac{1}{r_t} \right) \right) + T_{th}^{\alpha+1} + \frac{t}{2Gr_t^2} \right)^{\frac{1}{\alpha+1}} - T_{th} \quad (2.29)$$

La figure II.22.a met en évidence l'importance de cette description non-linéaire pour une fenêtre de 100 μm d'épaisseur et de rayon 4 mm comportant une cible de 6 μm d'épaisseur. Comme nous pouvons le voir, dès que la température atteint $T_{th} + 200$ °C, la différence entre la description linéaire et non-linéaire devient importante.

Dans notre cas, l'utilisation d'un modèle contenant des conductivités constantes induit des erreurs importantes sur l'estimation de la température. Par ailleurs, cet effet est fortement diminué pour le point à l'aplomb du spot électronique sur la fenêtre en diamant figure II.22.b. La non-linéarité des conductivités est donc importante lorsqu'on s'intéresse à la température dans la cible.

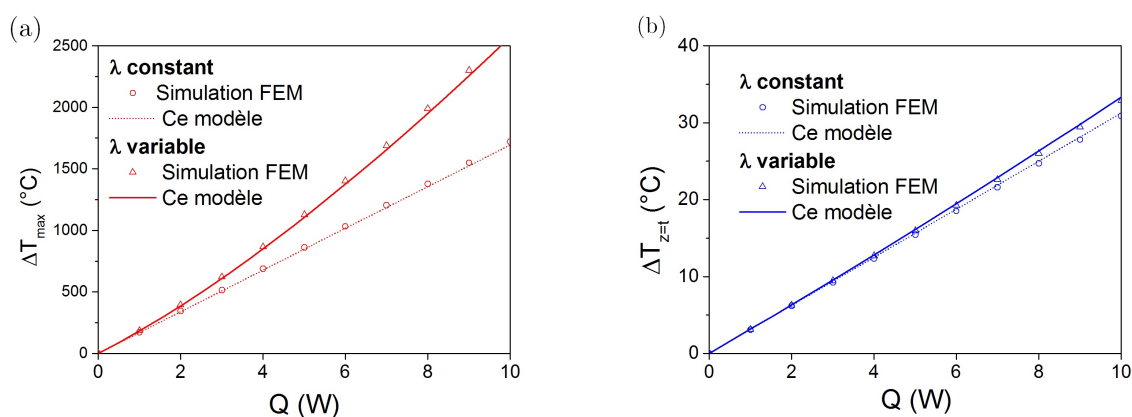


FIGURE II.22 – *Figure a* : élévation de température au centre de la zone de génération de chaleur. *Figure b* : élévation de température à l'aplomb de la source, sur la face supérieure. Les modèles linéaire (trait pointillé) et non-linéaire (trait continu) sont représentés. Les résultats d'une simulation FEM sont présentés pour comparaison (points).

II.3.2 Évaluation du modèle analytique

Afin de vérifier la validité de ce modèle analytique, nous avons réalisé des simulations FEM. Comme pour la modélisation mécanique, la géométrie de la fenêtre a été recréée numériquement. Après définition des conditions aux limites du problème thermique, un maillage du volume permet de calculer la température dans la fenêtre.

II.3.2.1 Comparaison avec une simulation FEM

Dans un premier temps, nous pouvons vérifier la précision des valeurs tabulées de ξ en traçant l'augmentation de température ΔT le long de lignes de coupes horizontales $z = k$, avec k une constante. Alors que l'expression de ξ considère une génération de chaleur ponctuelle, le modèle FEM, tient compte d'une zone de génération de chaleur uniforme sphérique. Le modèle analytique correspond très précisément au modèle FEM hors de la zone de génération de chaleur (*cf.* figure II.23).

Pour connaître la température dans la zone de génération de chaleur, il faut utiliser l'expression 2.29. Le profil de température sur le plan vertical $x = 0$ peut alors être calculé pour plusieurs types de puissance. Nous pouvons, par exemple, représenter une dissipation uniforme et gaussienne avec des valeurs d'écart-type variant de r_s à $r_s/3$. Encore une fois, la correspondance avec le modèle est très bonne et permet de valider cette approche analytique.

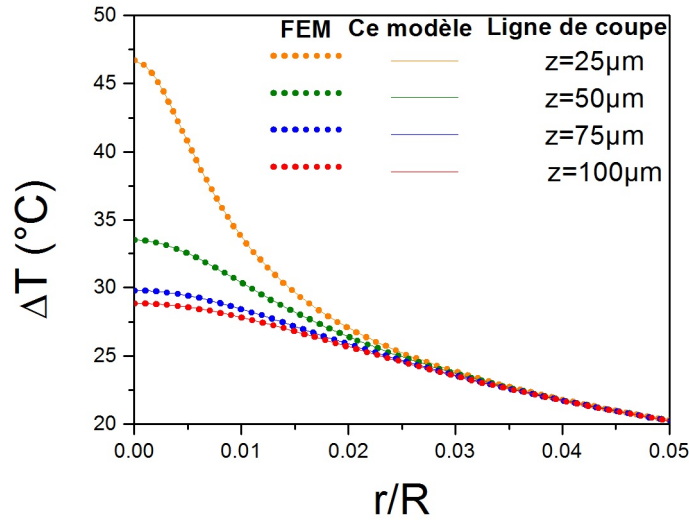


FIGURE II.23 – Élévation de la température dans la smart-window ($100\ \mu\text{m}$ d'épaisseur et $4\ \text{mm}$ de rayon) le long de lignes de coupe horizontales. La puissance dissipée est de $8,5\ \text{W}$. Les lignes représentent les résultats du modèle analytique et les points les résultats obtenus par simulation FEM.

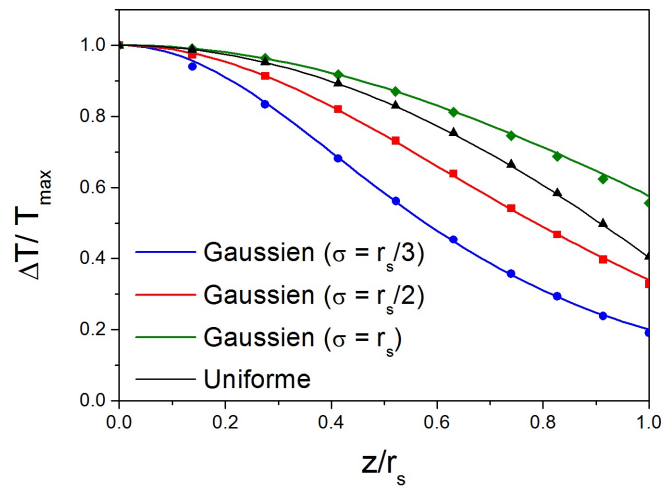


FIGURE II.24 – Élévation de température dans la source de chaleur le long de l'axe vertical pour une puissance nominale dissipée de $8,5\ \text{W}$ et pour différents profils de faisceau. La fenêtre fait $100\ \mu\text{m}$ d'épaisseur et $4\ \text{mm}$ de rayon. Les lignes représentent les résultats du modèle analytique et les points les résultats obtenus par simulation FEM.

II.3.2.2 Fusion de la cible

Lorsque la température dans la cible s'élève au dessus du point de fusion du tungstène ($T_f = 3400^\circ\text{C}$), la cible peut fondre ou se vaporiser et perturber la production de rayons X du tube. Il est donc primordial de connaître les conditions d'apparition de ce phénomène.

Nous considérons une zone de fusion hémisphérique, on note r_c le rayon de cette zone. Si $r_c=0$, il n'y a pas de fusion de la cible. Cette zone de fusion a été étudiée sur des cibles métalliques de tube à rayons X en réflexion [160]. Dans notre cas, il faut utiliser l'expression de la température dans la source et dans la zone de conduction et poser $T = T_f$ (T_f est la température de fusion du tungstène). Deux régimes sont alors à distinguer dans notre cas selon que cette zone de fusion est contenue dans la source ou s'étend à l'extérieur de celle-ci. Dans le premier cas, le rayon critique de fusion s'écrit :

$$r_c = \begin{cases} 0 & P < P_{max} \\ \sqrt{6\lambda_t\theta_f \left(\frac{1}{P_{max}} - \frac{1}{P} \right)} & \text{si } P > P_{max} \end{cases} \quad (2.30)$$

Avec P la densité de puissance appliquée et P_{max} , la densité de puissance maximale admissible avant l'apparition de ce rayon critique. Dans le second cas, l'expression doit être recalculée à partir de l'équation de Poisson. En s'appuyant sur les données expérimentales publiées par Grider *et al.* [160], nous pouvons comparer l'évolution de r_c à une mesure expérimentale sur une cible en réflexion avec un faisceau électronique de $7 \mu\text{m}$.

Comme le montre la figure II.25, ce modèle correspond de manière précise aux données expérimentales. L'intersection de la courbe et de l'axe des abscisses nous donne la puissance Q_{max} à partir de laquelle cette zone de fusion commence à apparaître. Le cas où le rayon critique s'étend au-delà de la source de chaleur est représenté par le rectangle hachuré. Pour la géométrie modélisée, une puissance critique de 10 W est obtenue. Celle-ci dépend principalement de l'épaisseur de la cible et du rayon de la zone de chaleur.

II.3.2.3 Influence des phénomènes conductifs/radiatifs

Comme nous l'avons vu au début de cette section, seuls les phénomènes conductifs ont été pris en compte. Dans le système réel, la fenêtre n'est pas uniquement refroidie par le thermostat latéral, elle est refroidie sur sa face supérieure par un flux convectif d'air et des échanges radiatifs peuvent intervenir sur l'ensemble de sa surface.

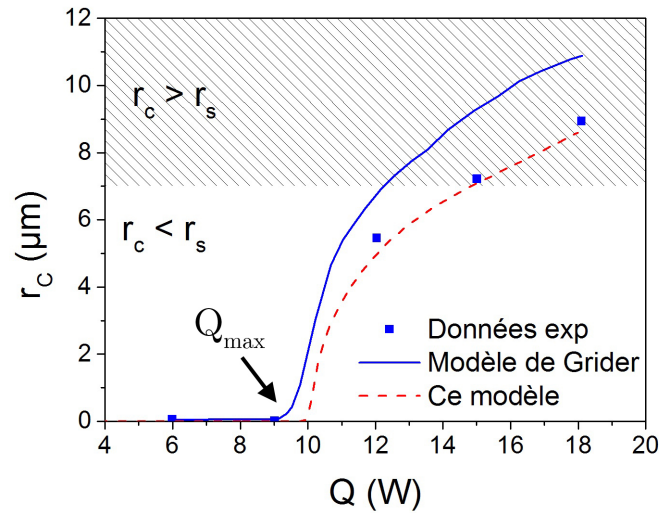


FIGURE II.25 – Évolution du rayon critique en fonction de la puissance pour une fenêtre en réflexion en tungstène et un spot de $7 \mu\text{m}$ de rayon. La ligne continue correspond au modèle de Grider *et al.*, la ligne pointillée au modèle présenté ici et les points aux données expérimentales mesurées par Grider *et al.*

Cependant, en négligeant ces phénomènes convectifs, l'élévation de température de la face supérieure reste de quelques dizaines de degrés au maximum (*cf.* figure II.23). Comme les flux convectifs sont proportionnels à cette élévation de température, cette première hypothèse est correcte. Ce résultat n'est pas altéré par une modification du coefficient d'échange de la surface supérieure (correspondant à un échange libre ou forcé d'air ou d'eau).

Ensuite, les flux radiatifs sont décrits par la formule de Planck qui varie comme T^4 . Ces flux peuvent s'avérer très importants si la température est suffisamment élevée comme c'est le cas dans la source. Cependant, pour des faisceaux micro/nanométriques, les surfaces rayonnantes sont considérablement petites par rapport aux surfaces mises en jeu pour la conduction. L'effet radiatif ne devrait donc n'apporter qu'une contribution mineure à ce modèle analytique.

En utilisant les simulations FEM présentées, les flux surfaciques conductifs sur la face supérieure et inférieure de la fenêtre sont tracés sur la figure II.26 pour différentes puissances (flux de conduction liés à la dissipation de chaleur dans la fenêtre en diamant par conduction thermique vers le thermostat). Sur cette même figure ont été tracés le

flux radiatif de la surface inférieure et le flux convectif de la face supérieure. Les flux négligés sont inférieurs de plusieurs ordres de grandeur au flux conductif principal. Ainsi, les hypothèses de départ sont vérifiées. Par ailleurs, la vitesse et la nature du fluide de refroidissement ne modifient pas ce comportement (résultats non présentés).

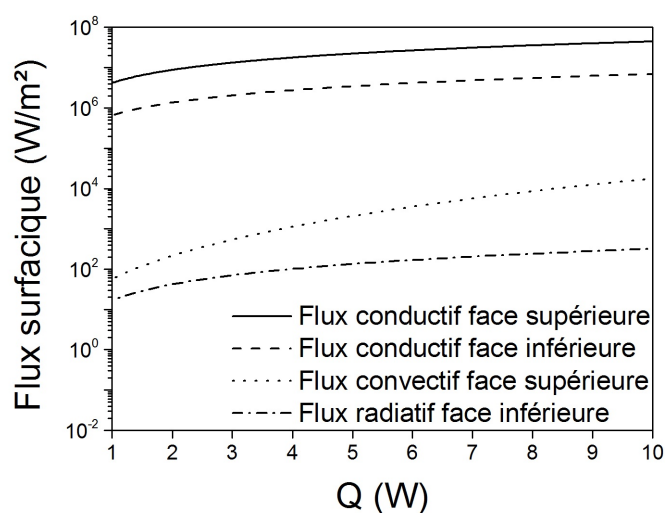


FIGURE II.26 – Variations des principaux flux surfaciques sur les faces inférieures et supérieures d'une smart-window calculées à partir de la simulation FEM.

II.3.2.4 Comparaison diamant/Be et évaluation de l'efficacité thermique

En utilisant les résultats obtenus jusqu'à maintenant, nous pouvons comparer une smart-window et une fenêtre classique en béryllium. À puissance identique, la conductivité thermique du diamant permet à une smart-window de fonctionner à une température 1,7 fois inférieure comme le présente la figure II.27.

En d'autres termes, un gain en puissance entre 20 % et 40 % est attendu en travaillant à température constante selon la géométrie et les conditions utilisées. L'influence de la conductivité du matériau de la fenêtre sur la puissance est donc déterminante.

Nous avons donc développé un modèle analytique simple et cohérent avec des simulations FEM. Il permet de déterminer le rayon critique de fusion dans la cible mais aussi de quantifier les avantages d'une smart-window en diamant par rapport à une fenêtre en béryllium.

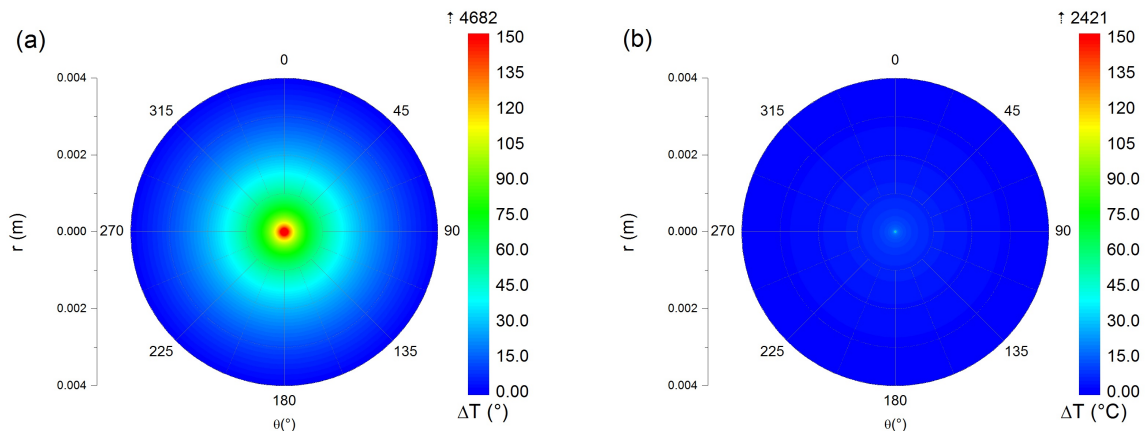


FIGURE II.27 – *Figure a* : cartographie 2D de l'élévation de température sur la face inférieure d'une fenêtre en béryllium avec une cible de $4 \mu\text{m}$ d'épaisseur et une puissance de 5 W. *Figure b* : idem pour une fenêtre en diamant.

II.3.3 Modélisation de systèmes thermiques plus complexes

II.3.3.1 Dissipation thermique dans un système multisources

Le développement de systèmes à micro/nanofoyers à transmission permet d'envisager de nouveaux systèmes d'imagerie. Par exemple, en imagerie médicale il est possible de remplacer un système de tomographie rotatif à fort encombrement par de multiples sources X miniatures. Cela permet alors d'obtenir plusieurs points de vue et une image identique mais avec une dose déposée au patient plus précise. De plus, l'imagerie par sources X distribuées est une technique prometteuse permettant d'atteindre une très bonne résolution.

Pour de telles applications, une smart-window en diamant peut être soumise à un motif de sources générant un motif spécifique d'illumination. Cette disposition entraîne alors un motif d'échauffement dans la cible et la fenêtre. Simplement par application du principe de superposition, on peut calculer l'élévation de température sur la surface inférieure du système. Par ailleurs, ce modèle est ici limité à des sources suffisamment espacées pour que les phénomènes d'influence entre sources soient négligeables. L'intérêt de cette modélisation analytique est le temps de calcul, puisque des motifs complexes peuvent être traités rapidement. Par exemple, une matrice pseudo-aléatoire de sources pouvant être utilisée en imagerie par ouverture codée est modélisée sur la figure II.28. La distribution des températures est obtenue en quelques minutes seulement. Une simulation FEM du même système serait bien plus longue, notamment à cause de la modélisation de la géométrie et son maillage.

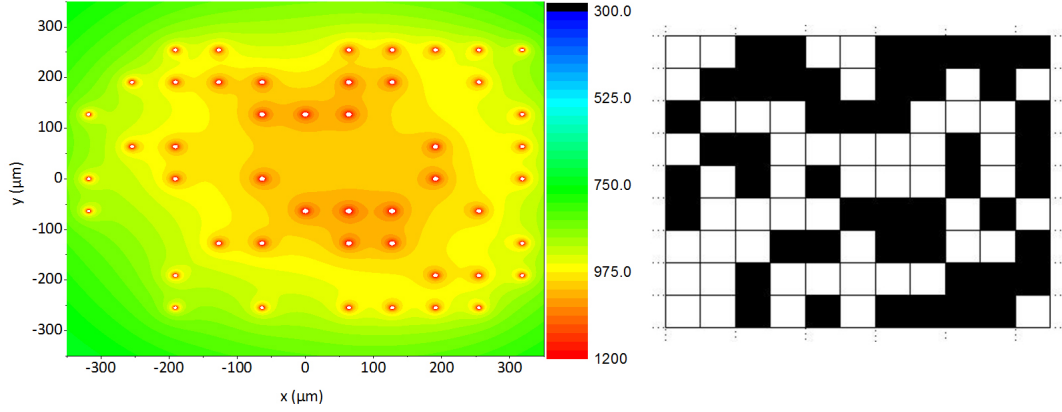


FIGURE II.28 – Cartographie 2D de l'élévation de température dans un système pseudo-aléatoire de 9x11 sources de chaleur, chacune dissipant 2 W. Ici la température à l'intérieure de chaque source n'est pas représentée pour pouvoir visualiser le motif d'échauffement autour des sources.

II.3.3.2 Modélisation croisée des contraintes thermo-mécaniques

Compte tenu des résultats précédents, la température du système induit une dilatation thermique de la fenêtre. En réalité, c'est le fort gradient de température qui est responsable d'une dilatation différentielle importante et donc d'une contrainte locale spécifique. La contrainte est compressive dans tout le matériau et le tenseur des contraintes au point (r, z) s'écrit.

$$\underline{\sigma}(r, z) = -\frac{E}{1-\nu}\alpha_t \Delta T(r, z)\underline{I} \quad (2.31)$$

Le coefficient d'expansion thermique du tungstène est noté α_t et \underline{I} représente la matrice identité. En première approche, ces contraintes sont donc proportionnelles à l'élévation locale de température. Compte tenu du coefficient de dilatation thermique du tungstène et de ses propriétés mécaniques [181, 182], la relation de proportionnalité est la suivante :

$$\sigma_{rr}[MPa] = -2,4 \cdot \Delta T(r, z) \quad (2.32)$$

Ces contraintes sont importantes au centre de la membrane et diminuent le long du rayon. La cible peut donc se déformer sous l'effet conjugué de l'élévation de température et des contraintes thermo-mécaniques. La contrainte liée à la pression différentielle est tensile dans toute la cible. La contrainte totale peut alors s'annuler en certains points et change de sens en s'éloignant de la source (*cf.* figure II.29).

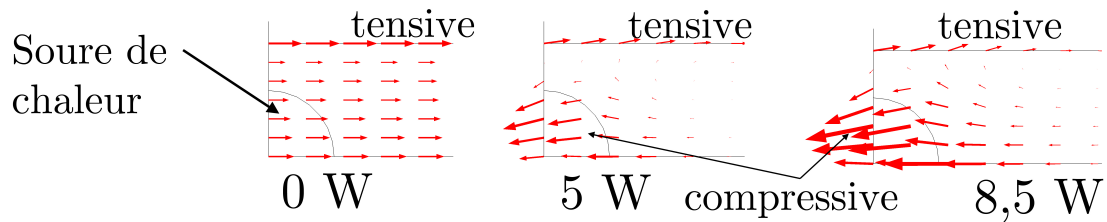


FIGURE II.29 – Représentation du champ de contraintes 2D dans la cible à l'aide d'une simulation FEM. Une membrane de 8 mm de diamètre et $20 \mu\text{m}$ d'épaisseur est représentée. Elle est soumise à une pression différentielle de 1bar et à une puissance thermique de 0 W, 5 W et 8,5 W.

II.4 Modélisation de la réponse électronique d'une smart-window

Le caractère innovant d'une smart-window réside dans la possibilité de réaliser une mesure en ligne du débit de dose. L'intérêt de ce dispositif est de ne prélever qu'une infime fraction du flux pour la mesure. L'énergie déposée par les photons dans le détecteur donne lieu à la création de paires électrons/trous et donc à un signal potentiellement mesurable. L'objectif de cette partie est de modéliser la dose déposée dans la partie détecteur d'une smart-window en fonction de plusieurs paramètres et de prédire l'amplitude et le type de signal donné par ces dispositifs.

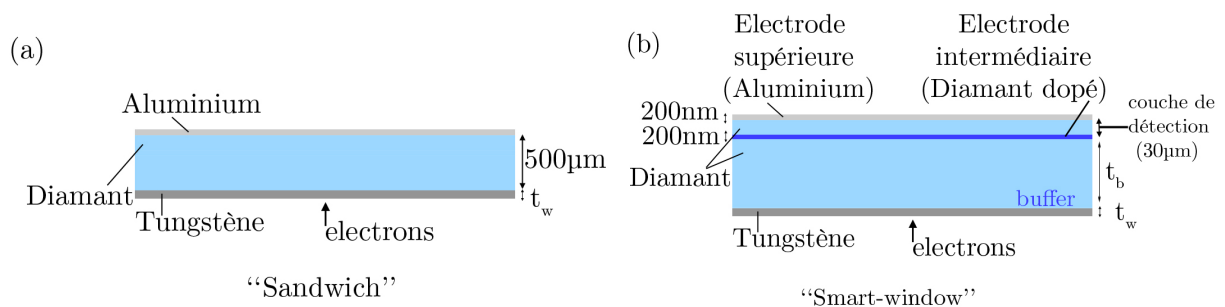


FIGURE II.30 – *Figure a* : configuration "sandwich", diamant de $3 \times 3 \times 0.5 \text{ mm}^3$, pas de buffer. *Figure b* : configuration "smart-window", fenêtre de 1 cm de diamètre, buffer layer de $100 \mu\text{m}$ d'épaisseur et détecteur de $30 \mu\text{m}$ d'épaisseur.

Deux configurations de détecteur sont décrites dans cette section et correspondent à des dispositifs expérimentaux réalisés. La première structure, appelée "sandwich" (figure II.30.a) consiste en un film épais ($500 \mu\text{m}$) faisant à la fois office de fenêtre et de détecteur. La seconde, notée "smart-window" (figure II.30.b), utilise une couche intermédiaire de diamant qui sépare la cible du détecteur : le buffer. Une électrode intermédiaire (en

bleu foncé sur la figure II.30.b) en diamant dopé est ajoutée. Cette seconde configuration, plus complexe, peut présenter un certain nombre d'avantages sur la première, notamment d'un point de vue thermique puisque **le buffer dissipe la chaleur et évite que le détecteur ne soit affecté par des perturbations thermiques.**

Dans un premier temps, nous modélisons le passage d'un flux de rayons X à travers une smart-window avant de décrire la génération de ce flux à partir de la cible.

II.4.1 Du faisceau électronique au photocourant

Nous dissocions la production des rayons X par les électrons incidents d'une part et la propagation de ces rayons X à travers le détecteur d'autre part. Nous nous intéressons alors uniquement à la réponse d'une smart-window soumise à un flux de photons X.

II.4.1.1 Interaction rayonnement-matière

Lors du passage d'un photon d'énergie $h\nu$ dans la matière, l'énergie peut être transférée de plusieurs façons :

- **Effet photoélectrique** : transfert de la totalité de l'énergie incidente $h\nu$ à un électron des couches profondes de l'atome. L'électron éjecté possède une énergie égale à l'énergie du photon incident diminuée de l'énergie de liaison W_l . Suite à l'éjection de l'électron, le réarrangement des couches externes entraîne l'émission d'un photon X ou d'un électron supplémentaire appelé électron Auger.
- **Diffusion Compton** : phénomène de diffusion inélastique d'un photon avec un électron des couches superficielles d'un atome. Le photon est diffusé dans une direction différente et avec une énergie $h\nu'$ inférieure. Le reste de l'énergie est transférée à l'électron impliqué, qui est alors éjecté ;
- **Diffusion Rayleigh** : processus de diffusion élastique d'un photon avec le nuage électronique d'un atome. Le photon change alors de direction sans céder d'énergie à l'atome ;
- **Réaction photonucléaire** : transfert d'énergie entre un photon d'énergie supérieure à 10 MeV et un nucléon. Le noyau excité est alors radioactif et retourne à son état fondamental en émettant un photon γ ;
- **Création de paires** : matérialisation d'une paire électron/positron lors du passage d'un photon d'au moins 1,022 MeV près du noyau. Le photon disparaît en transférant la totalité de son énergie sous forme d'énergie cinétique à la paire créée.

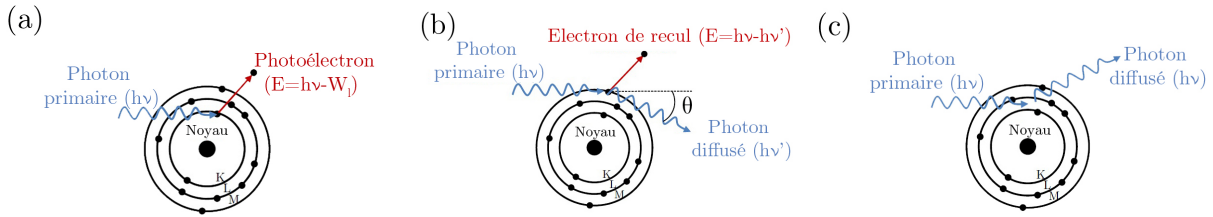


FIGURE II.31 – Interactions intervenant dans la gamme d'énergie considérée [183]. *Figure a* : effet photoélectrique. *Figure b* : diffusion Compton. *Figure c* : diffusion Rayleigh.

La création de paires et les réactions photonucléaires interviennent lors d'interactions avec des photons de très hautes énergies ($E > 1-10$ MeV). Dans la gamme d'énergie considérée pour les smart-windows, l'interaction rayonnement-matière donnera plutôt lieu à des diffusions inélastiques, élastiques et à l'ionisation d'atomes par effet photoélectrique. Ces interactions, schématisées sur la figure II.31 ont des probabilités différentes qui dépendent de l'énergie et du matériau en question. La probabilité d'interaction entre un photon et un atome est égale au produit du nombre de particules et de la section efficace du phénomène considéré. L'effet photoélectrique, par exemple, a une section efficace σ qui augmente avec le numéro atomique ($\sigma \propto Z^3$) alors que la diffusion Compton y est moins sensible. Le processus dominant pour le diamant entre quelques keV et 20 keV est l'effet photoélectrique, puis la diffusion Compton prend le relais jusqu'à 1 Mev (*cf.* figure II.32).

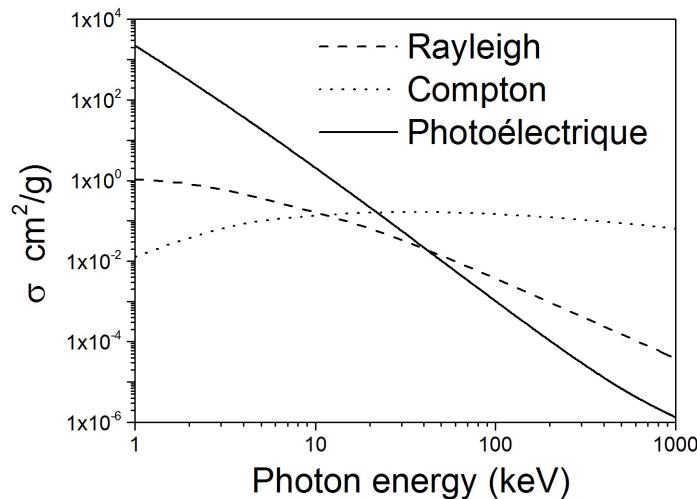


FIGURE II.32 – Section efficace des différentes interactions rayonnement-matière dans le diamant entre 1 keV et 1 MeV. Informations issues de la base de donnée XCOM du NIST [69].

II.4.1.2 Photocourant dans une smart-window

Dans les semiconducteurs, l'effet photoélectrique permet la création de paires électrons/trous (électron dans la bande de conduction et trou dans la bande de valence). Ces porteurs de charge peuvent apparaître uniquement lorsque un photon incident possède une énergie supérieure à l'énergie du gap du matériau. Le nombre de charges créées dépend de l'énergie d'ionisation ε . Dans le cas du diamant cette énergie se situe entre 13 eV et 16 eV selon la littérature [184, 185, 186]. Pour la suite de cette modélisation, nous choisissons une valeur de 13 eV [187]. Si E_p est l'énergie déposée dans le détecteur par l'ensemble des photons qui traversent la fenêtre pendant une seconde, alors le courant théorique mesurable par ce détecteur est donnée par :

$$I_p = q \frac{E_p}{\varepsilon} \quad (2.33)$$

La charge élémentaire est notée q . Ce courant peut également être calculé à partir du débit de dose \dot{D} (en $Gy.s^{-1}$) délivré par un tube à rayons X. Il s'écrit :

$$I_p = \frac{\dot{D}\rho V q}{\varepsilon} \quad (2.34)$$

Où ρ est la masse volumique du matériau du détecteur en $kg.m^{-3}$ et V le volume d'interaction du détecteur en m^3 . En faisant l'hypothèse que toutes les charges créées sont collectées et uniquement ces charges là, l'équation 2.34 montre bien que le courant mesurable dans une smart-window est directement proportionnel au débit de dose d'un tube à rayons X.

II.4.2 Modélisation analytique

II.4.2.1 Flux de photons

Dans un premier temps, nous souhaitons connaître l'énergie déposée par un flux de photons issu de la cible en tungstène dans le détecteur d'une smart-window. Il faut commencer par modéliser la distribution énergétique de ce flux de photons. Kramer a proposé un modèle simple utilisant une fonction triangulaire pour le flux de photons [188]. U représente alors l'énergie maximale des photons (donnée par la tension d'accélération), Z son numéro atomique et $\varphi(E)$ l'intensité spectrale (ou débit de fluence énergétique), E l'énergie des photons et K est une constante égale à $2,2 \cdot 10^{-9} eV^{-1}$ [188, 189].

$$\varphi(E)dE = KZ(U - E)dE \quad (2.35)$$

Ce flux de photons est partiellement absorbé par la cible (auto-absorption) et par le

II.4 Modélisation de la réponse électronique d'une smart-window

buffer de diamant dans le cas de la configuration "smart-window". Enfin une partie de l'énergie est absorbée dans le détecteur. L'absorption par l'électrode intermédiaire est ici négligée du fait de son faible numéro atomique et de son épaisseur (quelques centaines de nanomètres par rapport à des dizaines de micromètres pour le buffer et le détecteur) [183]. La transmission d'un rayonnement X d'énergie E est modélisée par la loi de Beer-Lambert :

$$T(E) = \frac{I}{I_0} = e^{-\rho\mu(E)x} \quad (2.36)$$

Où $T(E)$ représente le coefficient de transmission du matériau entre E et $E + dE$. La densité et l'épaisseur de la couche considérée sont notées ρ et x . Le coefficient d'absorption massique à l'énergie E est $\mu(E)$. Notons T_t et T_w les coefficients de transmission de la cible et du buffer en diamant. A_d représente le coefficient d'absorption de la couche de détection. La figure II.33 représente l'évolution des coefficients de transmission d'une cible en tungstène de 120 nm et $5 \mu\text{m}$ et d'un buffer en diamant de $100 \mu\text{m}$. Le coefficient d'absorption du détecteur en diamant est également représenté (épaisseur : $30 \mu\text{m}$). Ces courbes sont obtenues à partir des coefficients d'absorption massiques disponibles sur la base de donnée du NIST [69].

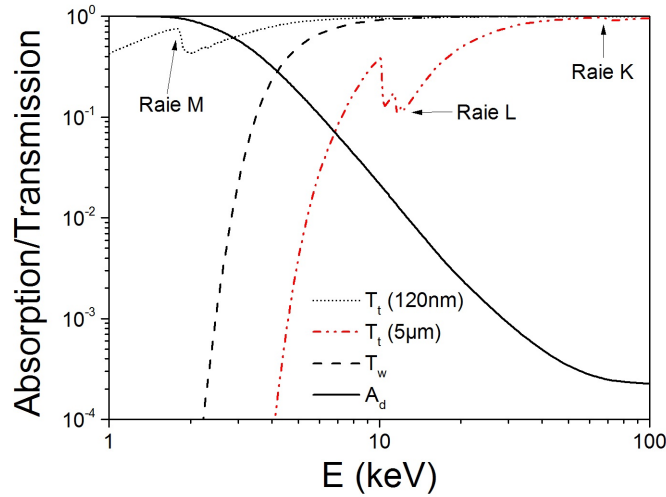


FIGURE II.33 – Coefficients de transmission de la cible (T_t) pour deux épaisseurs (120 nm et $5 \mu\text{m}$) et coefficient de transmission de la fenêtre de $100 \mu\text{m}$ (T_w). Le coefficient d'absorption (A_d), du détecteur de la smart-window est également représenté.

Les discontinuités sur la courbe du coefficient de transmission de la cible en tungstène sont liées au phénomène de fluorescence des atomes de tungstène. L'énergie d'excitation d'un électron entre plusieurs niveaux du nuage électronique est quantifiée et seules certaines transitions sont possibles. La profondeur d'auto-absorption correspond à la dif-

férence entre l'épaisseur de la cible et la profondeur de pénétration des électrons. Ce phénomène est important jusqu'à 10 keV pour une épaisseur de 120 nm et jusqu'à 50 keV pour une épaisseur de $5\ \mu\text{m}$. Le détecteur de $30\ \mu\text{m}$ absorbe la quasi-totalité du rayonnement en dessous de 10 keV. À des énergies supérieures, le flux est moins absorbé mais l'énergie déposée est plus importante.

Le spectre énergétique de la théorie de Kramer peut être représenté pour une tension d'accélération de 5 keV (figure II.34.a) et 60 keV ((figure II.34.b). Ces deux énergies correspondent à deux situations expérimentales. À l'aide des coefficients de transmission précédents, nous pouvons calculer le spectre transmis après une cible de 120 nm pour la plus faible énergie et $5\ \mu\text{m}$ pour la plus haute.

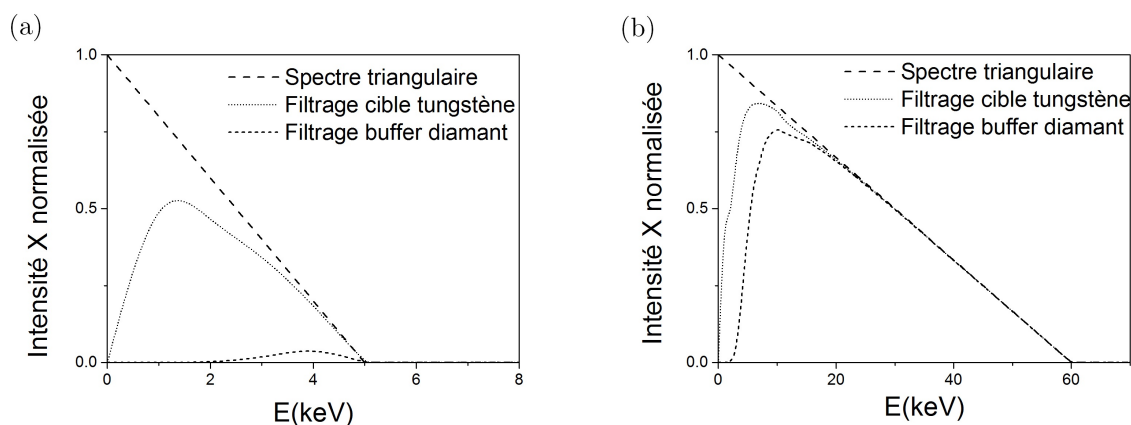


FIGURE II.34 – Distribution énergétique normalisée après filtrage des différents éléments. Le buffer mesure $100\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. *Figure a* : la cible mesure 120 nm d'épaisseur ($U=5\ \text{kV}$). *Figure b* : cible de $5\ \mu\text{m}$ ($U=60\ \text{kV}$).

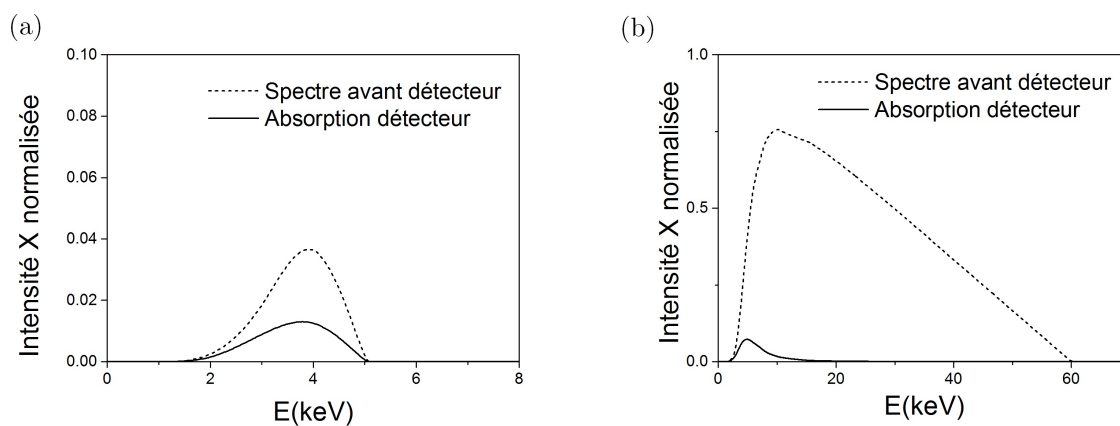


FIGURE II.35 – Traits pointillés : distribution énergétique normalisée arrivant jusqu'au détecteur. Traits pleins : spectre absorbé par le détecteur. *Figure a* : cible de 120 nm d'épaisseur ($U=5\ \text{kV}$). *Figure b* : cible de $5\ \mu\text{m}$ ($U=60\ \text{kV}$).

II.4 Modélisation de la réponse électronique d'une smart-window

L'aire sous chaque courbe en pointillée de la figure II.34 représente l'énergie du flux de photons après filtrage de la cible et du buffer. L'auto-absorption de la cible et l'absorption du buffer sont donc moins importants à 60 keV qu'à 5 keV. L'aire sous la courbe en trait plein de la figure II.35 représente la fraction d'énergie déposée dans le détecteur. Comme le montre la figure II.35.b, le détecteur absorbe une proportion d'énergie moins grande lorsque l'énergie augmente. La conséquence de cette observation est un effet de saturation du courant donné par le détecteur.

Afin de vérifier l'effet de saturation proposé, l'équation 2.37 est alors utilisée pour calculer l'énergie déposée dans le détecteur à chaque seconde.

$$E_p = \int_0^U \varphi(E) T_t(E) T_w(E) A_d(E) dE \quad (2.37)$$

Cette description ne tient pour l'instant pas compte du courant d'électrons incidents. Afin de compléter l'expression précédente, nous devons nous intéresser à la façon dont le flux $\varphi(E)$ est généré dans la cible.

II.4.2.2 Faisceau électronique

Plusieurs formules existent pour décrire la pénétration des électrons dans la matière. L'expression donnée de Kanaya *et al.* est une bonne approximation de cette valeur jusqu'à 1 MeV [168] (*cf.* equation 2.20). Deux cas sont à distinguer pour leur intérêt expérimental.

- Premièrement, celui d'une cible fine impactée par des électrons de 5 keV (utilisé pour les mesures préliminaires sur les smart-windows).
- Ensuite nous considérons le cas d'une cible plus épaisse pouvant fonctionner jusqu'à 60 keV.

Pour ces deux exemples, la profondeur de pénétration est respectivement de 83,4 nm et de 5,0 μm . Afin de s'assurer de l'absorption complète des électrons dans la cible, et pour des raisons expérimentales de temps de dépôt, nous modélisons des cibles de 120 nm et 5 μm . Dans le second cas, nous avons choisi de limiter le temps de dépôt à une durée raisonnable et de ne pas déposer une épaisseur supérieure à la profondeur de pénétration.

Compte tenu des rapports d'intensité entre le phénomène de fluorescence et le rayonnement bremsstrahlung, nous nous intéressons ici principalement au rayonnement de freinage.

Nous pouvons calculer le rendement d'efficacité η pour la production des rayons X grâce à la formule de Kramer [188].

$$\eta = \frac{KZU}{2} \quad (2.38)$$

Cette formule s'applique à des cibles suffisamment épaisses pour que les électrons soient arrêtés dans le volume du matériau, ce qui est majoritairement le cas pour une cible de tube à rayons X en transmission. L'efficacité d'une cible en tungstène impactée par des électrons de 50 keV est de $0,4\%$ mais elle descend à $0,08\%$ en dessous de 10 keV . Ainsi on peut écrire l'énergie déposée dans le détecteur lors de l'utilisation d'un tube avec un courant I_b et une tension d'accélération U .

$$E_p = \frac{KZI_b}{2q} \int_0^U (U - E) T_t(E) T_w(E) A_d(E) dE \quad (2.39)$$

Cette intégrale peut être calculée en interpolant une expression analytique pour les valeurs des coefficients d'absorption. Cependant en première approche, une intégration par la méthode des rectangles permet d'obtenir des valeurs approchées. Le courant théorique attendu dans le détecteur I_p est alors extrait de l'expression 2.39 à l'aide de l'équation 2.33. Celui-ci est calculé pour une fenêtre en configuration "smart-window" avec une cible de 120 nm (figure II.36). Le courant du tube est fixé à 10 nA (traits pointillés) et $10 \mu\text{A}$ (traits continus).

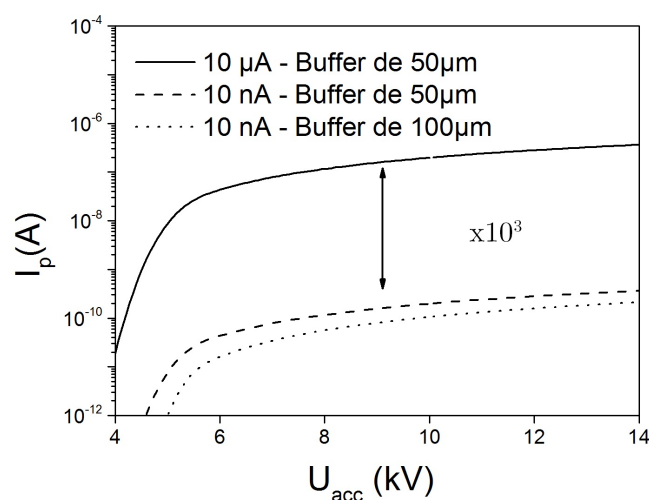


FIGURE II.36 – Courant théorique mesurable dans une fenêtre en configuration "smart-window" pour deux épaisseurs de buffer et deux courant de faisceaux électroniques.

Le courant augmente avec l'énergie des électrons incidents et l'effet de saturation évoquée précédemment apparaît. Nous retrouvons également la proportionnalité entre photocourant I_p et courant du tube I_b décrit par la formule 2.39. Par ailleurs, l'atténuation du courant lorsque l'épaisseur de buffer passe de $50 \mu m$ à $100 \mu m$ tend à diminuer lorsque l'énergie augmente.

Nous avons donc pu modéliser les phénomènes électroniques depuis l'interaction entre le faisceau d'électrons et la cible, jusqu'à l'absorption du flux de photons dans la smart-window et la génération d'un photocourant. Cependant cette approche analytique est limitée par certaines de ses hypothèses :

- Le calcul du courant n'est représentatif que jusqu'à $10 keV$ (respectivement $80 keV$) pour une épaisseur de cible de $120 nm$ (respectivement $5 \mu m$). Au-delà, la profondeur de pénétration devient trop proche, voir supérieure, à l'épaisseur de la cible et on sort du cadre de la théorie de Kramer ;
- Les pics de fluorescence ne sont pas pris en compte pour le calcul de l'intensité X rayonnée, ce qui peut donner lieu à une sous estimation du courant ;
- L'intégration par la méthode des rectangles reste une approximation grossière de la puissance déposée par les photons ;
- Seul l'effet photoélectrique est ici pris en compte.

Ainsi, pour aller plus loin et obtenir une description plus réaliste, il est nécessaire de passer par des modèles numériques prenant en compte les différentes interactions possibles et des abaques.

II.4.3 Simulation Monte-Carlo pour le transport des particules

La méthode Monte-Carlo (MC) regroupe différents algorithmes visant à effectuer un calcul en utilisant une description probabiliste du problème. Cette méthode est utilisée car elle permet de modéliser les trajectoires et les probabilités d'interaction entre les particules, et la matière environnante. Le traitement de ces interactions se fait par un processus aléatoire qui utilise les densités de probabilité de chaque phénomène. À chaque étape de calcul, l'algorithme MC évalue la prochaine interaction subie par la particule, la distance qu'elle a parcouru entre deux interactions successives ainsi que son énergie et sa direction après interaction. Le code MC transporte donc chaque particule, depuis son point de génération jusqu'à l'endroit où elle sort du volume d'intérêt. En pratique, on peut suivre l'histoire des particules jusqu'à ce que leur énergie soit inférieure à l'énergie

de coupure minimum du programme (1 keV). Pour obtenir un résultat cohérent, il est nécessaire de suivre l'évolution d'un grand nombre de particules. L'ensemble de ces histoires représente une série statistique dont la moyenne peut être utilisée comme estimateur d'un paramètre. Dans le cas qui nous intéresse, l'énergie déposée par des particules dans une smart-window est estimée. L'écart type de la série représente alors l'incertitude statistique sur cet estimateur, et varie comme $\frac{1}{\sqrt{N}}$, si N est le nombre de particules utilisées dans la simulation. En pratique, tous les résultats présentés dans cette thèse ont une incertitude à 2σ , c'est-à-dire inférieure à 5 %.

II.4.3.1 Code MCNPX

Il existe plusieurs codes de simulation MC des interactions rayonnement-matière : GEANT4, PENELOPE, VXI, EGSnrc. Mais les résultats présentés ici, ont été obtenus à l'aide du code MCNPX qui permet de suivre l'évolution des photons entre 1 keV et 100 GeV et des électrons entre 1 keV et 1 GeV. Ce code, développé aux États-Unis en 1977, utilise le langage FORTRAN. Le choix de cet outil repose en partie sur les bonnes performances du programme et sur l'utilisation d'un exécutable unique pour la compilation des programmes. Il est cependant important de noter que d'autres outils peuvent être utilisés. Pour effectuer une simulation avec MCNPX, il est nécessaire de définir un fichier, qui se découpe en trois parties. La première permet de définir les cellules, c'est-à-dire les éléments de la géométrie qui forment les différents volumes d'intérêt. Pour chaque cellule, il faut définir le matériau qui la compose, sa densité et les surfaces qui la composent. La deuxième partie consiste à définir les surfaces de référence utilisées dans les cellules : plans, cylindres, cubes, etc. Enfin la dernière partie permet de définir les "tallies", *i.e.* les paramètres à estimer : énergie déposée, nombre de particules, flux surfacique, flux volumiques, etc.

II.4.3.2 Géométries et configurations des dispositifs simulés

Les deux géométries précédentes ont été simulées. Comme le présente la figure II.30, la configuration "sandwich" est constituée d'un diamant de $3 \times 3 \text{ mm}^2$ et de $500 \mu\text{m}$ d'épaisseur. Sur sa face inférieure, nous modélisons une cible en tungstène. La configuration "smart-window" est une couche de diamant de $100 \mu\text{m}$ et 8 mm de diamètre supportant la cible en tungstène. Sur ce buffer, nous modélisons une électrode intermédiaire en diamant de 200 nm , puis une couche de détection en diamant de $30 \mu\text{m}$ et enfin une électrode en aluminium de 200 nm (figure II.30.b).

Pour la première structure, l'énergie déposée dans l'ensemble du volume de diamant est calculée. Dans le second cas, c'est l'énergie déposée dans le détecteur au-dessus du buffer qui est observée. Le courant théorique est alors calculé grâce à l'équation 2.33.

II.4.3.3 Estimation du photocourant

La première étape consiste à calculer le courant théorique attendu dans le détecteur, en fonction de l'énergie du faisceau électronique. Pour ce faire, les deux géométries précédentes sont modélisées sous MCNPX pour différentes tensions d'accélération. L'épaisseur de cible considérée est de 120 nm et l'énergie des électrons varie entre 1 keV et 10 keV. Le courant d'émission est ici de 10 nA. Pour la configuration "sandwich", le courant est plus important de plus d'un ordre de grandeur. C'est l'effet de l'absorption du buffer. La même simulation est faite avec une cible de 5 μm . L'énergie des électrons varie alors entre 20 keV et 200 keV. La même tendance est observée mais les courants sont environ dix fois plus importants (figure II.37.b).

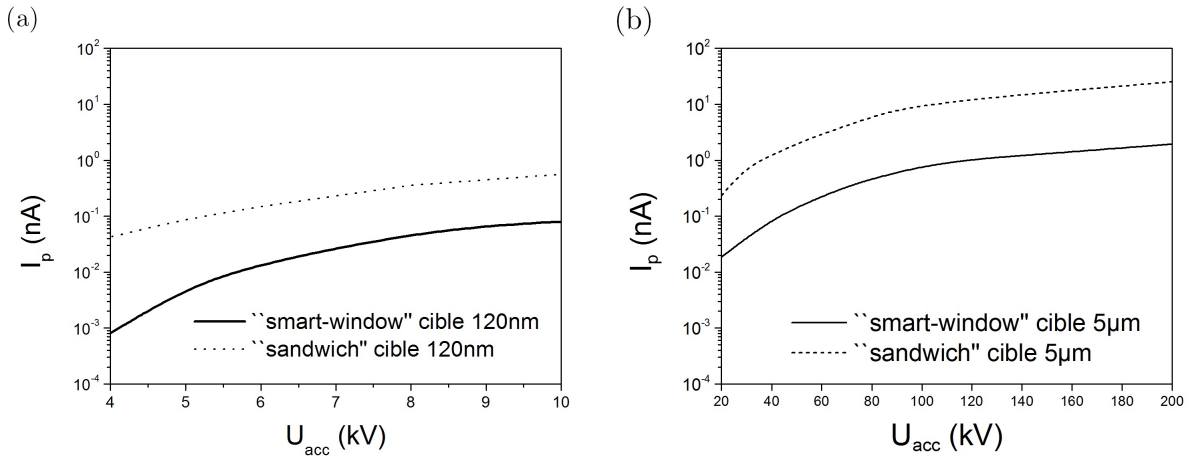


FIGURE II.37 – *Figure a* : Photocourants théoriques mesurables dans le détecteur d'une smart-window en configuration "sandwich" (pointillés) et "smart-window" (ligne) pour une cible de 120nm d'épaisseur. *Figure b* : idem pour une cible de 5 μm .

Dans ces deux structures, le courant I_p mesurable présente une stabilisation lorsque l'énergie augmente. Cet effet traduit le compromis entre une absorption qui diminue et un flux qui augmente avec l'énergie. Dans une configuration "basse énergie" (cible de 120 nm), le courant I_p est dans la gamme du picoampère pour la structure "smart-window" et du nanoampère pour la structure sandwich. À courant constant, ces valeurs sont dix fois plus importantes dans une configuration "haute énergie" (cible de 5 μm).

II.4.3.4 Transparence du détecteur

Compte-tenu de ces résultats, la quantité d'énergie déposée dans le détecteur est directement accessible. Le rapport entre cette valeur et l'énergie totale du flux de photons est une donnée caractéristique de la transparence. En effet, pour assurer un fonctionnement optimal du tube, il faut minimiser cette absorption, tout en s'assurant qu'un courant suffisamment important soit généré pour être mesuré. Nous définissons deux grandeurs :

- L'absorption énergétique effective (notée AEE) qui correspond à l'énergie déposée dans le détecteur divisée par l'énergie disponible en sortie du tube sans détecteur ;
- Le rapport des courants I_p/I_b qui représente la quantité de paires électron/trou créées par électron incident et donc le courant théorique mesurable avec une efficacité de collecte de charge de 100% (I_b = courant du tube, I_p =photocourant).

Ces deux paramètres sont tracés sur la figure II.38 pour différentes énergies. À faible énergie, le coefficient AEE est important mais diminue et se stabilise lorsque l'énergie augmente. Le rapport des courants, lui, ne cesse d'augmenter avec l'énergie du tube. Une smart-window performante peut être définie par un faible coefficient AEE, c'est-à-dire une bonne transparence, et un haut rapport I_p/I_b , c'est-à-dire un fort courant.

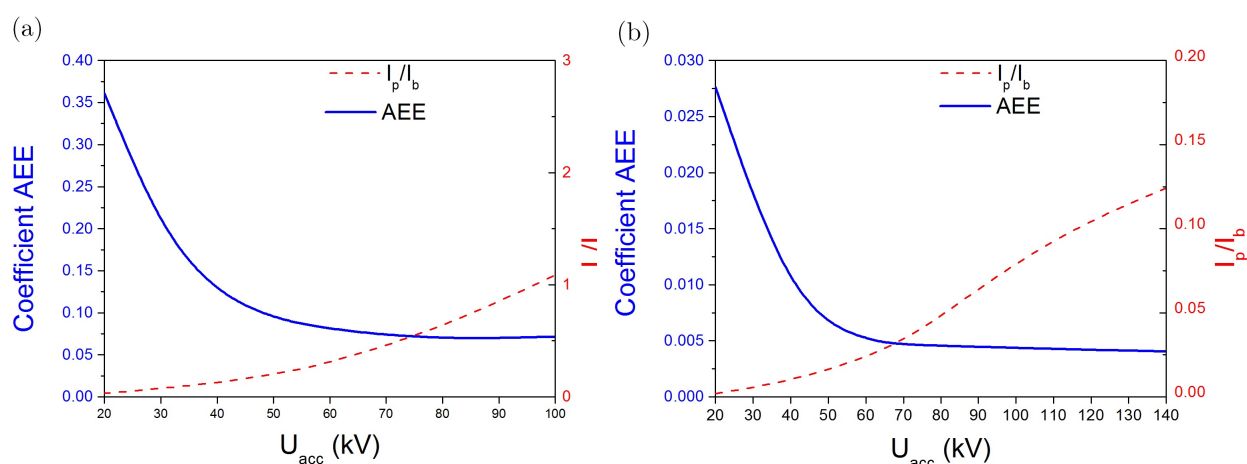


FIGURE II.38 – Coefficient d'absorption effective énergétique (AEE) du détecteur d'une smart-window en configuration "sandwich" (figure a) et "smart-window" (figure b). Le rapport entre photocourant théorique mesurable et courant du faisceau électronique est également représenté. Cible en tungstène de $5\ \mu m$.

Deux configurations ont été représentées sur cette figure, une smart-window "sandwich" et une "smart-window" pour laquelle, ces deux grandeurs sont moins importantes, à cause de l'atténuation dans le buffer. Les performances d'une smart-window résultent d'un compromis entre une faible atténuation de rayonnement et un courant mesurable suf-

fisamment important. Des valeurs caractéristiques pour le coefficient AEE et le rapport $\frac{I_p}{I_b}$ peuvent alors être fixées pour permettre un fonctionnement optimal.

II.4.3.5 Évaluation des courants parasites

La mesure du débit de dose d'un tube se fait généralement par utilisation d'un détecteur déporté. Les smart-windows sont des objets qui fonctionnent dans un environnement plus complexe, puisque la proximité du faisceau électronique peut donner lieu à un effet indésirable. Le courant mesuré doit être proportionnel à l'énergie déposée par les photons en une seconde. Cependant, une certaine quantité d'énergie peut être déposée par des particules parasites et engendrer une modification de la réponse du détecteur. Ces particules parasites sont issues de l'interaction du faisceau de rayons X principal avec les éléments situés avant le détecteur sur le trajet du faisceau : cibles, buffer, etc.

Nous pouvons utiliser MCPNX pour évaluer la contribution de ce phénomène. L'énergie totale déposée dans le système par les électrons est comparée à l'énergie déposée par des photons. Le transfert d'énergie se faisant principalement par effet photoélectrique et/ou Compton, la différence entre ces deux estimations nous renseigne sur l'énergie déposée dans le détecteur par des électrons parasites (dépôt non-local). La contribution de ces parasites (I_e) est calculée en utilisant la formule 2.33 :

$$I_{sw} = q \frac{E_p + E_e}{\varepsilon} = I_p + I_e \quad (2.40)$$

Le photocourant est noté I_p . Les simulations MC mettent en évidence que cette contribution parasite ne peut être négligée. Les figures II.39 et II.41 présentent I_p et I_e pour deux épaisseurs de cible différentes et deux configurations différentes : "sandwich" et "smart-window". Dans les deux cas, la cible en tungstène a une épaisseur de 120 nm.

Comme le montre la figure II.39.a, lorsque l'énergie dépasse 5 keV, le signal parasite I_e est plus important que le photocourant I_p . Cet effet disparaît dans la configuration "smart-window" grâce à l'atténuation du buffer. À cette énergie, la profondeur de pénétration (83 nm) est plus faible que l'épaisseur de la cible. Les électrons du faisceau primaire ne sont donc pas les seuls responsables de ce phénomène.

Le schéma II.40 détaille les processus possibles d'interaction du faisceau primaire avec la cible. La contribution des photons (non-parasites) est représentée par les trajets A, C et D sur la figure. La contribution parasite des électrons est représentée par les trajets

B et E. Lors de ces événements, des électrons primaires, secondaires (trajet E) ou Auger (trajet B) déposent leur énergie dans le diamant. Cet effet mène à une surestimation du débit de dose.

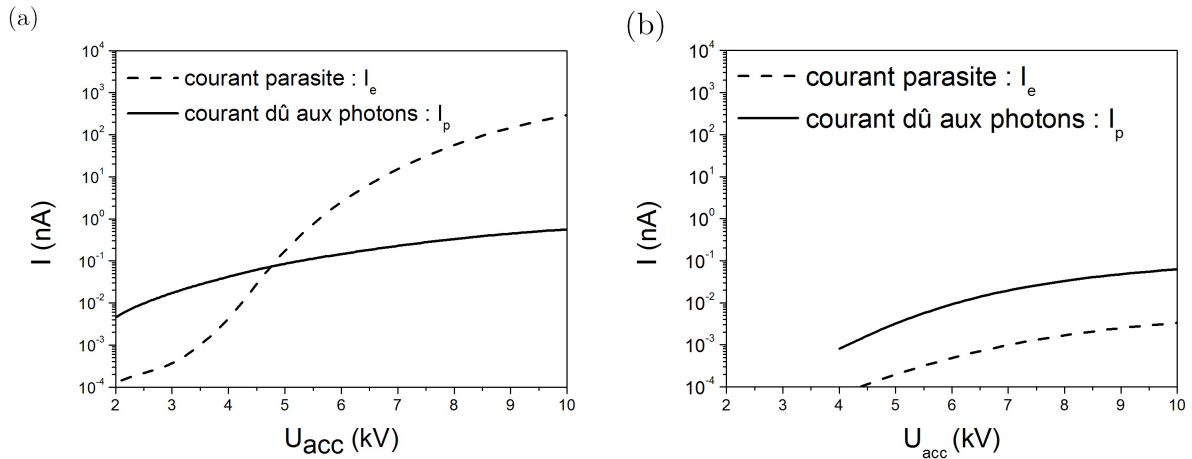


FIGURE II.39 – *Figure a* : Photocourant mesurable I_p (trait continu) et courant parasite I_e (trait pointillé) pour une smart-window en configuration “sandwich”. *Figure b* : idem pour une fenêtre en configuration “smart-window”.

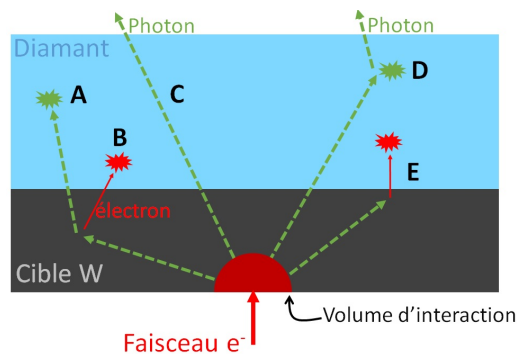


FIGURE II.40 – Schéma des différents dépôts d'énergie parasites (en rouge) et non parasites (en vert). A : photon absorbé dans le détecteur. B : électron issu d'une diffusion inélastique. C : photon non absorbé. D : dépôt partiel d'énergie dans le diamant par un photon. E : absorption du photon dans la cible et génération d'un électron qui peut déposer son énergie dans le diamant.

Afin de vérifier si le comportement des deux structures est le même à haute énergie, la courbe II.39 est retracée pour une cible de $5\ \mu\text{m}$. Le phénomène décrit précédemment se reproduit à l'identique dans la fenêtre “sandwich”. Cette configuration possède donc toujours des courants parasites au dessus de 60 keV (profondeur de pénétration à cette énergie : $5\ \mu\text{m}$).

II.4 Modélisation de la réponse électronique d'une smart-window

De manière surprenante, le courant parasite I_e dans la “smart-window” devient supérieur au courant I_p dès 40 keV. Ce phénomène, absent dans la simulation précédente, peut s'expliquer par l'interaction entre le faisceau X et le buffer. À ces énergies, la diffusion inélastique des rayons X produit des électrons qui peuvent pénétrer le détecteur s'ils sont générés suffisamment près de celui-ci.

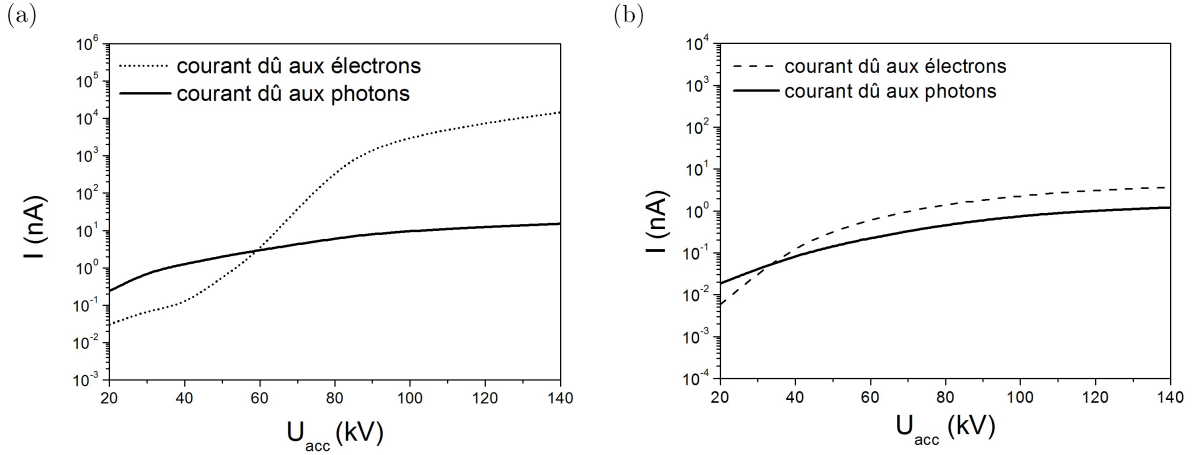


FIGURE II.41 – Photocourants théoriques mesurables et courants parasites pour une smart-window en configuration “sandwich” (figure a) et “smart-window” (figure b). Cible en tungstène de $5 \mu m$.

Pour comprendre et maîtriser la réponse énergétique des smart-windows, l'influence de ces parasites doit être minimisée. Une façon de résoudre le problème consiste à augmenter l'épaisseur de diamant. Ainsi, pour une fenêtre en configuration “smart-window” dont l'épaisseur du détecteur est de $100 \mu m$ (au lieu de $30 \mu m$), le courant parasite reste inférieur au photocourant dans toute la gamme 20-100 keV. Ce phénomène est également valable pour la configuration “sandwich”.

Cette troisième partie nous a permis de modéliser les interactions entre un faisceau de rayons X et une smart-window. Un modèle analytique simple a mis en évidence l'effet de filtrage du buffer attendu dans une configuration smart-window et la saturation du courant mesurable à l'aide du détecteur. L'utilisation de simulations MC a permis de calculer les niveaux de courant attendus pour une cible de $120 nm$ et de $5 \mu m$. La transparence de chaque structure a également été étudiée. Un effet parasite dû à l'interaction du faisceau électronique primaire avec les éléments en amont du détecteur a été mis en évidence.

Les trois précédentes sections nous ont permis de mieux comprendre les phénomènes physiques liés à l'utilisation d'une smart-window. La partie suivante vise à extraire de cette modélisation des paramètres dimensionnants.

II.5 Dimensionnement du système et limite de la modélisation

À la lumière des résultats obtenus par des modèles analytiques ou par des simulations FEM, un certain nombre de critères de résistance, de dissipation thermique ou de détection peuvent être définis. Ils permettent de dimensionner les smart-windows à réaliser.

II.5.1 Dimensionnement mécanique des smart-windows

Dans un premier temps, le dimensionnement mécanique de la fenêtre tient compte de deux critères :

- La déflexion de la fenêtre doit être minimale ;
- La contrainte doit être minimale.

Comme représentée au paragraphe II.2, la contrainte à rupture correspond à la contrainte présente dans le matériau au moment de sa rupture. Après avoir mesuré une valeur moyenne de 358 MPa sur des fenêtres synthétisées au laboratoire, nous pouvons trouver l'épaisseur minimale qui permet de résister à une pression différentielle de $\Delta P=1$ bar. Cette épaisseur t_{min} est proportionnelle au rayon R :

$$t_{min} = \Delta P R \sqrt{\frac{E}{(1 - \nu) 24 \sigma_{rupt}^3}} \quad (2.41)$$

Cette relation donne un rapport d'aspect R/t maximal de 312. C'est-à-dire, une épaisseur minimale de $12 \mu m$ pour une smart-window de $8 mm$ de diamètre.

La flèche au centre de la fenêtre varie alors comme :

$$D^6 = \frac{27 R^6 (1 - \nu)^3 \sigma^3}{8 E^3} \quad (2.42)$$

Une fenêtre de $8 mm$ de diamètre et $12 \mu m$ d'épaisseur se déplace de $83 \mu m$ en son centre. Afin de diviser cette déflexion par deux pour éviter une déformation trop importante du tungstène, il faut diviser la contrainte dans la fenêtre par quatre et donc multiplier l'épaisseur par huit. L'épaisseur minimale retenue est donc de $100 \mu m$ pour une smart-window de $8 mm$ de diamètre. Cette valeur est retenue pour la suite car elle implique une faible déflexion en son centre et un facteur de sécurité important sur la contrainte.

II.5.2 Le diamant polycristallin et ses limites

D'un point de vue thermique, nous avons vu au paragraphe II.3, que l'élévation de température maximale dans une smart-window de $100\ \mu\text{m}$ d'épaisseur, de rayon $4\ \text{mm}$ et avec une cible de $6\ \mu\text{m}$ était comprise entre 2000°C et 2500°C pour des puissances de $8\ \text{W}$ à $10\ \text{W}$ dissipées dans un volume de $3\ \mu\text{m}$ de rayon. La température maximale de la cible reste donc bien inférieure à la température de fusion du tungstène ($\sim 3400^\circ\text{C}$ [157]) et la smart-window permet une dissipation optimale de la chaleur. Ces résultats sont obtenus avec une conductivité de $2113\ \text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ (à température ambiante) correspondant à une fenêtre en diamant monocristallin (*cf.* tableau II.2). Cette conductivité peut varier selon la qualité du matériau utilisé. En effet, le phénomène de transport de la chaleur est décrit par les processus d'interaction entre les phonons et les défauts du matériaux. Graebner et Herb ont par exemple montré qu'un diamant polycristallin de bonne qualité pouvait avoir une conductivité thermique inférieure de seulement 25 % à celle du diamant monocristallin [43]. Par ailleurs, comme pour les propriétés mécaniques, la densité de joints de grains dans le matériau est un paramètre déterminant pour la conductivité thermique. Ainsi, Lions a montré que la conductivité thermique mesurée en surface d'un film de diamant polycristallin pouvait être reliée à la surface moyenne de contact des joints de grains par unité de volume (η_{JdG}) par la relation :

$$\lambda = a(\eta_{JdG})^{-b} \quad (2.43)$$

Où a et b représentent des constantes expérimentales [45]. Et comme ce paramètre η_{JdG} diminue lorsque la taille de grain augmente, il est nécessaire d'envisager la réalisation d'une smart-window avec les grains les plus larges possible pour améliorer la dissipation thermique. De plus, la présence des joints de grains, entraîne une anisotropie de cette conductivité thermique. Graebner *et al.* ont mesuré expérimentalement une variation d'environ 50 % entre la conductivité dans le plan et celle hors du plan à $100\ \mu\text{m}$ de la surface de nucléation [46]. Pour une distance trois fois plus grande, l'écart n'est que de quelques pourcents.

Afin de mesurer l'impact d'une variation de λ , en passant par exemple du diamant monocristallin au diamant polycristallin, sur la dissipation thermique, il faut utiliser la formule 2.30. Cette expression définit la densité de puissance maximale admissible dans une smart-window. L'effet d'une variation de λ se répercute sur ce paramètre et sur les performances thermiques de la fenêtre.

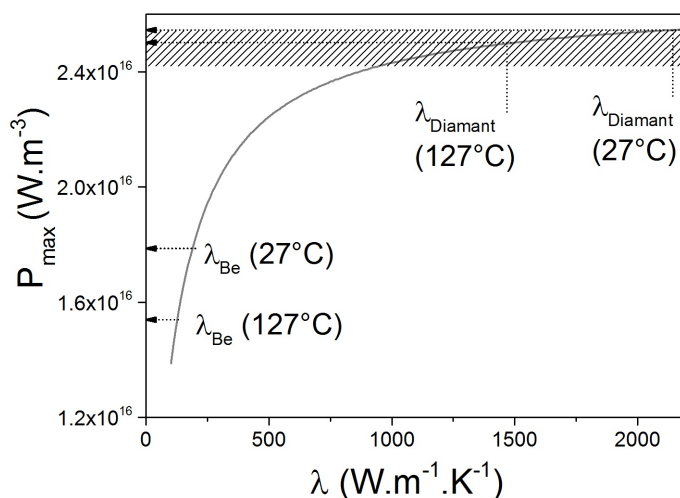


FIGURE II.42 – Densité de puissance maximale admissible dans une smart-window en fonction de la conductivité du matériau utilisé.

Comme le présente la figure II.42, plus la conductivité du matériau est haute, moins les variations de puissance maximale sont importantes. Cela met en évidence les bonnes performances du diamant par rapport au béryllium. D'autre part, une variation de conductivité du diamant de quelques pourcents change peu cette puissance maximale. La zone grisée représente la variation de conductivité tolérée pour limiter la variation de puissance admissible à $\pm 5\%$. Notons que l'utilisation d'un matériau polycristallin présentant une conductivité 50 % inférieure à celle du monocristal, conduira à une réduction de la densité de puissance admissible de moins de 5 %.

II.5.3 Limites énergétiques à la réponse des smart-windows

Comme le présente le paragraphe II.4, le courant théorique mesurable dans une smart-window peut être modélisé. Pour optimiser le fonctionnement d'une smart-window, il est nécessaire de s'intéresser à deux paramètres clés : l'absorption du détecteur et le courant mesurable. Il est important de minimiser le premier et de maximiser le second pour assurer un comportement optimal de la fenêtre. Fixons comme critère arbitraire une absorption du détecteur inférieure à 0,05 % et un courant mesurable supérieur à 5 % du courant du tube. Nous pouvons définir le facteur de mérite (FDM) pour l'absorption et le courant :

$$FDM_{abs} = \min\left(1, \frac{1 - A_d}{0,9995}\right) \quad (2.44)$$

$$FDM_{courant} = \min\left(1, \frac{1}{0,05} \frac{I_p}{I_b}\right) \quad (2.45)$$

La figure II.43 représente ces FDM en fonction de la tension d'accélération du tube.

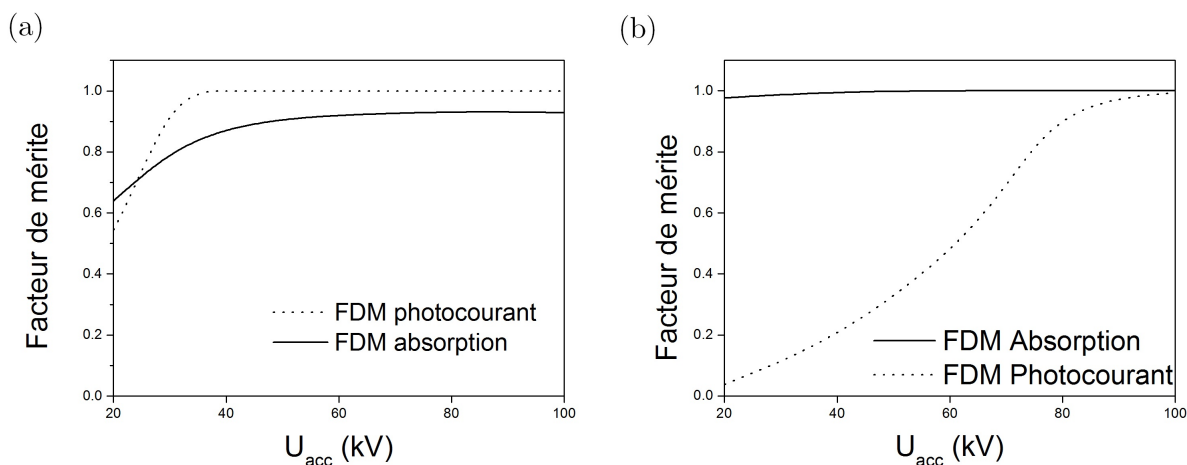


FIGURE II.43 – *Figure a* : FDM d’une fenêtre en configuration “sandwich” d’une épaisseur de $500\mu\text{m}$. *Figure b* : FDM d’une fenêtre en configuration “smart-window”. L’épaisseur du détecteur est de $30\mu\text{m}$ et celle du buffer de $100\mu\text{m}$. Ces deux dispositifs comportent une cible de $5\mu\text{m}$

La configuration “sandwich” (figure a) permet d’obtenir des meilleures performances sur le photocourant. En effet, dès 40 kV ce dispositif délivre un courant supérieur à 5 % du courant de faisceau. À cause de l’atténuation dans le buffer, la seconde configuration n’atteint cette limite qu’à partir de 100 kV . Cependant, ces résultats sont à nuancer compte-tenu des discussions du paragraphe II.4 sur les courants parasites. Du point de vue de l’absorption, le détecteur du design “smart-window” ne ponctionne qu’une petite partie du flux utile. Au contraire, le design “sandwich” présente un FDM_{abs} inférieur à un, même à 100 keV . Son absorption est donc supérieure à 0,05 % sur la gamme d’énergie considérée. La configuration “smart-window” est donc à privilégier, du point de vue de l’absorption, même si le courant délivré n’atteint la valeur désirée qu’à partir de 60 keV . L’utilisation du buffer permet, en outre, de diminuer l’échauffement thermique du détecteur et de s’affranchir de la pénétration des électrons primaires.

II.6 Conclusion du chapitre

Ce chapitre nous a permis de dresser l’inventaire des différents phénomènes physiques qui impactent de près ou de loin une smart-window. D’une part, la différence de pression entre l’intérieur et l’extérieur du tube impose des contraintes mécaniques dans la fenêtre. Une modélisation analytique couplée à des simulations FEM a permis de comprendre le comportement mécanique de ces dispositifs ainsi que l’influence des précontraintes du matériau. L’utilisation de modèles FEM plus complexe a également mis en évidence l’appari-

tion de contrainte importantes à la jonction entre la fenêtre et la brasure. Des phénomènes de flambage ont également été mis en évidence lorsque la déformation est trop importante.

Ensuite, nous avons développé un nouveau modèle analytique. Il permet de calculer le champ des températures dans une fenêtre. Celui-ci est plus flexible et plus rapide qu'une modélisation FEM et peut donc servir à modéliser des systèmes complexes comme les tubes à multisources X ou la fusion de la cible en tungstène. La température maximale du système a été étudiée en fonction des dimensions géométriques de la fenêtre afin de quantifier le gain thermique obtenu en utilisant le diamant.

Enfin l'absorption d'énergie dans la fenêtre permet la création d'un photocourant directement proportionnel au débit de dose du tube. Nous avons utilisé une description analytique simple et des simulations MC plus complètes pour modéliser deux configurations de smart-windows différentes. Nous avons ainsi mis en évidence l'effet de filtrage du buffer sur le spectre de photons émis, mais aussi sur la saturation du courant mesurable. Les simulations MC nous ont également permis de définir les gammes de courant attendus dans chaque structure pour deux épaisseurs de cible différentes. Ces deux épaisseurs de cible correspondent aux deux phases expérimentales de caractérisation de ces détecteurs. L'absorption des structures "smart-window" et "sandwich" a été comparée afin de montrer la bonne transparence de ces dispositifs. Enfin, l'effet parasite du faisceau électronique primaire a été mis en évidence. Il conduit à une surestimation du débit de dose et peut être compensé par une augmentation de l'épaisseur de diamant. Les courants ont été évalués en supposant un rendement de collecte de charge de 100%. Les phénomènes de piégeage et de recombinaison peuvent altérer ce facteur et modifier les prévisions effectuées dans cette partie.

L'ensemble de ces modélisations sert à dimensionner les smart-windows à fabriquer. Mécaniquement, nous avons calculé le rapport d'aspect maximal pour une fenêtre non précontrainte. Le diamètre des fenêtres est une donnée qui dépend du tube sur lequel elle sera montée. En pratique, un diamètre de 8 mm est utilisé. Afin de minimiser la déflexion ($<50\ \mu\text{m}$) au centre de la fenêtre, nous choisissons de réaliser des fenêtres de $100\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. Du point de vue thermique, le diamant polycristallin possède une conductivité inférieure à celle du diamant monocristallin. Cependant, si l'on s'intéresse à la densité de puissance maximale admissible dans la cible, l'utilisation d'un matériau polycristallin de conductivité inférieure à celle du monocristal est tout à fait envisageable. Sur le plan des interactions rayonnement/matière, nous avons défini les facteurs de mérite des struc-

tures “sandwich” et “smart-window” du point de vue de l’absorption du rayonnement et du courant mesurable. La structure “smart-window”, bien que plus compliquée à réaliser présente un certain nombre d’avantages (absorption minimale, dissipation thermique, parasites réduits).

Ce dimensionnement nous amène donc à considérer la phase de réalisation de ces dispositifs. Les deux structures de fenêtres peuvent être fabriquées en diamant polycristallin et/ou monocristallin.

Chapitre III

Réalisation et optimisation d'un prototype

Sommaire

III.1 Introduction	95
III.2 Fabrication des smart-windows	95
III.2.1 Design et processus de fabrication	96
III.2.1.1 Réacteurs de synthèses utilisés dans cette étude	96
III.2.1.2 Choix du design des fenêtres	100
III.2.1.3 Mise en forme des fenêtres polycristallines	101
III.2.1.4 État de surface	102
III.2.2 Intégration de la fonction détection	103
III.2.2.1 Synthèse du détecteur pour le design “smart-window”	103
III.2.2.2 Choix d’une électrode supérieure	104
III.2.3 Dépôt d’une cible en transmission	106
III.2.3.1 Épaisseur de la cible en tungstène	106
III.2.3.2 Dépôt de la cible et optimisation de l’adhérence	107
III.2.3.3 Homogénéisation de l’épaisseur de la cible	109
III.2.4 Fabrication d’une fenêtre de type “monopoly”	111
III.2.4.1 Un design optimisé	111
III.2.4.2 Synthèse d’une fenêtre “monopoly”	112
III.3 Optimisation des smart-windows	113
III.3.1 Objectifs et moyens	113
III.3.2 Méthodologie de l’optimisation	114
III.3.2.1 Montage expérimental	115
III.3.2.2 Principe de la mesure	115
III.3.3 Analyse des résultats	116
III.4 Suivi <i>in situ</i> de la synthèse des smart-windows	123
III.4.1 Croissance séquentielle	124
III.4.1.1 Détails expérimentaux	124
III.4.1.2 Mesure de la vitesse de dépôt	125

III.4.1.3	Mesure de la rugosité	125
III.4.1.4	Observation de la morphologie	127
III.4.2	Développement d'un modèle pour le suivi de la texturation	131
III.4.2.1	Modèle statistique de croissance	131
III.4.2.2	Suivi en ligne de la fabrication des smart-windows et reproductibilité	137
III.5	Brasage des smart-windows	140
III.5.1	Brasage du diamant, brasage actif	140
III.5.2	Géométrie de l'assemblage	141
III.5.3	Brasage d'un prototype	141
III.5.3.1	Contact électrique de l'anode	142
III.5.3.2	Réalisation du brasage d'une fenêtre "sandwich" monocristalline	142
III.6	Vers des procédés de dépôt grande surface	143
III.6.1	Problématique	143
III.6.2	État de l'art	143
III.6.3	Premières croissances par plasma matriciel à 352 MHz	144
III.6.3.1	Montage expérimental	144
III.6.3.2	Analyse des résultats	146
III.7	Conclusion du chapitre	148

III.1 Introduction

Ce chapitre présente le processus de fabrication des smart-windows modélisées au chapitre précédent. Dans un premier temps, chaque étape est détaillée depuis le choix du réacteur de synthèse jusqu'au design retenu en passant par l'intégration du détecteur et le dépôt d'une cible en tungstène. Afin de répondre aux contraintes d'industrialisation de ces dispositifs, la seconde section présente une optimisation du procédé MPECVD. L'objectif est d'améliorer la vitesse de dépôt et la qualité cristalline des films de diamant polycristallin fabriqués tout en garantissant une bonne reproductibilité. Lors de cette optimisation, l'ajout d'azote permet d'augmenter la vitesse de dépôt et d'obtenir une texture $\{100\}\{111\}\langle 100 \rangle$. Celle-ci permet l'obtention d'une surface de croissance lisse, utile pour le dépôt d'une cible en tungstène. La formation de cette texture est étudiée via une croissance séquentielle. Ensuite, nous présentons le brasage des fenêtres fabriquées. Ce procédé permet de fixer les smart-windows au corps d'un tube à rayons X et de garantir l'étanchéité du système. Enfin, une des limitations du procédé de synthèse est la taille des dépôts réalisables. Afin de contourner ce problème, nous explorons un nouveau procédé de synthèse du diamant à 352 MHz à partir de sources plasma matricielles. Cette étude ouvre la voie à la synthèse simultanée d'un grand nombre de smart-windows et s'inscrit dans le contexte d'une potentielle fabrication industrielle.

III.2 Fabrication des smart-windows

La synthèse du diamant est réalisée par un procédé de dépôt MPECVD. Deux types de croissance sont à distinguer selon la nature du matériau synthétisé : polycristallin ou monocristallin. Dans le premier cas, la synthèse se fait sur un substrat en silicium. Dans le second cas, elle se fait sur un substrat en diamant monocristallin via une croissance homoépitaxiale. La taille des smart-windows synthétisées dépend de la taille du substrat utilisé. Ceux en diamant monocristallin sont réalisés par un procédé HPHT qui limite leur taille à quelques millimètres carrés. Les substrats en silicium sont, quant à eux, disponibles jusqu'à plusieurs centaines de centimètres carrés. Le diamant polycristallin a donc l'avantage de pouvoir être synthétisé sur de larges surfaces. Le diamant monocristallin est limité en taille mais il est largement utilisé comme détecteur de rayonnement pour ses bonnes propriétés électroniques. Ces deux filières présentent donc des avantages et des inconvénients différents et sont explorées pour la réalisation et l'étude des smart-windows.

III.2.1 Design et processus de fabrication

III.2.1.1 Réacteurs de synthèses utilisés dans cette étude

Pour réaliser des smart-windows en diamant monocristallin et polycristallin, différents réacteurs de synthèse sont utilisés car le design d'un réacteur est adapté au type de diamant synthétisé. Trois réacteurs sont utilisés pour les synthèses de smart-windows. L'ensemble DIADEME est utilisé pour la croissance polycristalline. Son design est optimisé pour la synthèse d'échantillon de 2" avec une grande homogénéité (uniformité <5 %) et une bonne reproductibilité. Le réacteur NABOO est utilisé pour la croissance monocristalline et permet la synthèse d'échantillon de $3 \times 3 \text{ mm}^2$ de haute qualité chimique et cristalline. Enfin, le réacteur BAOBAB est utilisé pour la croissance de diamant dopé de type P. L'utilisation de bore pendant la croissance contamine le réacteur et la présence de bore résiduel empêche la synthèse de couches intrinsèques ($[\text{B}] < 10^{14} \text{ cm}^{-3}$). C'est pourquoi un réacteur dédié est utilisé pour la croissance au bore.

Réacteur DIADEME et croissance de films polycristallins

Les synthèses polycristallines ont été réalisées sur l'ensemble expérimental DIADEME. C'est le réacteur qui a été le plus utilisé durant cette thèse. Il se compose de trois chambres sous vide connectées entre elles :

- Un réacteur MPECVD ;
- Une chambre de préparation sous UHV ;
- Une chambre d'analyse sous UHV.

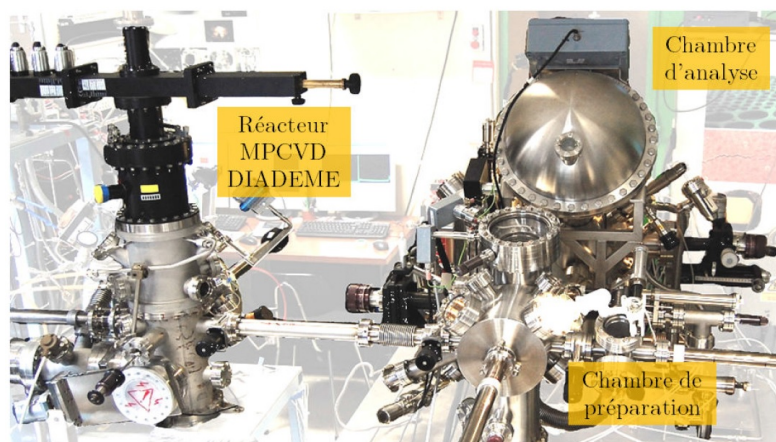


FIGURE III.1 – Photographie de l'ensemble DIADEME utilisé pour la synthèse de diamant polycristallin.

La figure III.2, présente une vue de la chambre de synthèse. Celle-ci permet l'introduction de substrats 2". Elle est équipée d'un générateur micro-onde SAIREM de 2kW opérant à 2,45 GHz, d'un système d'injection et de régulation des gaz. Celui-ci permet le contrôle et la commande des taux de méthane, d'hydrogène, d'argon, d'oxygène et d'azote dans le milieu réactionnel. Le méthane et l'hydrogène utilisés ont une très haute pureté (N56 ou 99,9996). Le vide est assuré par une pompe à palettes couplée à une pompe turbomoléculaire qui permet de descendre à des pressions $\leq 5.10^{-8}$ mbar. Le pompage des gaz pendant la croissance est assuré par une pompe à membrane. Un automate programmable permet le contrôle de la rotation de l'échantillon. Grâce à cette rotation, l'uniformité des dépôts ($\frac{ep_{max}-ep_{min}}{ep_{max}+ep_{min}}$) est inférieure à 5 % sur 2".

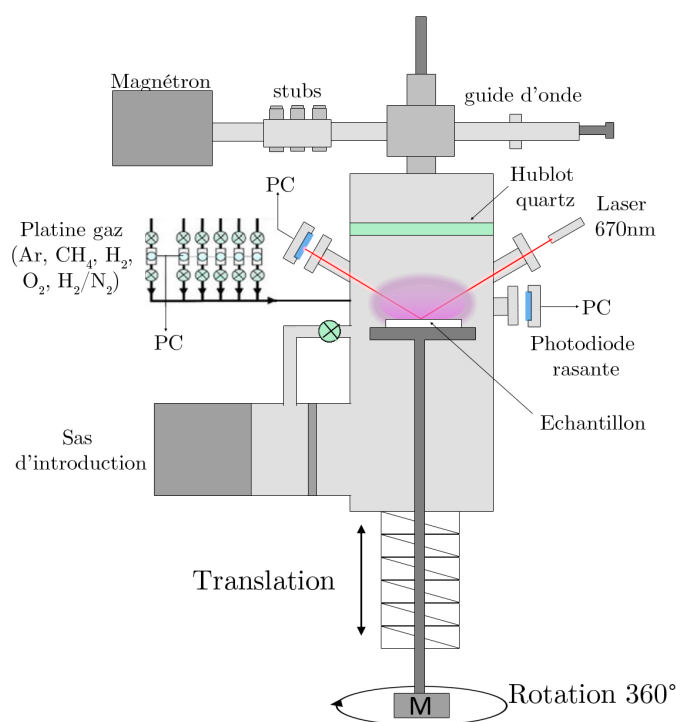


FIGURE III.2 – Vue de face de la chambre de synthèse de l'ensemble DIADEME.

Ce réacteur assure un suivi *in situ* de la croissance. Il permet par exemple de suivre la vitesse de croissance au cours du temps par la méthode LRI (Laser Reflectance Interferometry) [190]. Pour ce faire, un laser émettant à 670 nm est couplé à une photodiode et à une détection synchrone pour mesurer cette vitesse. La méthode utilisée est décrite en détails au paragraphe III.3.2. Une photodiode positionnée à incidence rasante permet de capter la lumière diffusée par la surface de l'échantillon.

La mesure de la température de l'échantillon est réalisée par un pyromètre à simple longueur d'onde IMPAC interfacé à un ordinateur et sensible à la gamme : $[1,45-1,80] \mu\text{m}$. La mesure est réalisée sur un substrat témoin en silicium placé à côté de l'échantillon sur le porte-substrat. L'émissivité du silicium a été calibrée lors de la thèse de M. Lions. Une valeur de 0,57 est utilisée pour cette gamme de longueur d'onde [45].

L'interface informatique de ce réacteur permet le contrôle et la commande des paramètres de consigne : pression, composition gazeuse, puissance micro-onde, et la lecture en temps réel de différentes grandeurs : température, signal LRI, puissance réfléchie, pression. La fréquence d'échantillonnage de cette acquisition est fixée à une seconde. Cette interface permet le suivi des croissances longues et d'assurer la sécurité du réacteur. Un automate permet la redondance de ces sécurités.

Réacteur NABOO et croissance de films monocristallins

La croissance monocristalline de diamant intrinsèque est réalisée dans le réacteur expérimental NABOO. La figure III.3 présente une vue de ce réacteur. Il bénéficie de l'expérience du développement de six générations de réacteurs MPECVD au LCD. Ses caractéristiques élevées en étanchéité (technologie UHV) permettent le dépôt de monocristaux de bonne qualité cristalline et chimique. Ses spécificités sont : accord automatique de la cavité résonnante, contrôle commande semi-automatique, gestion des sécurités. Sur ce réacteur, des croissances longues sont possibles en autonomie. Un moteur pas-à-pas pour le positionnement vertical ($\pm 0,1 \text{ mm}$) assure la reproductibilité du positionnement du porte-substrat.

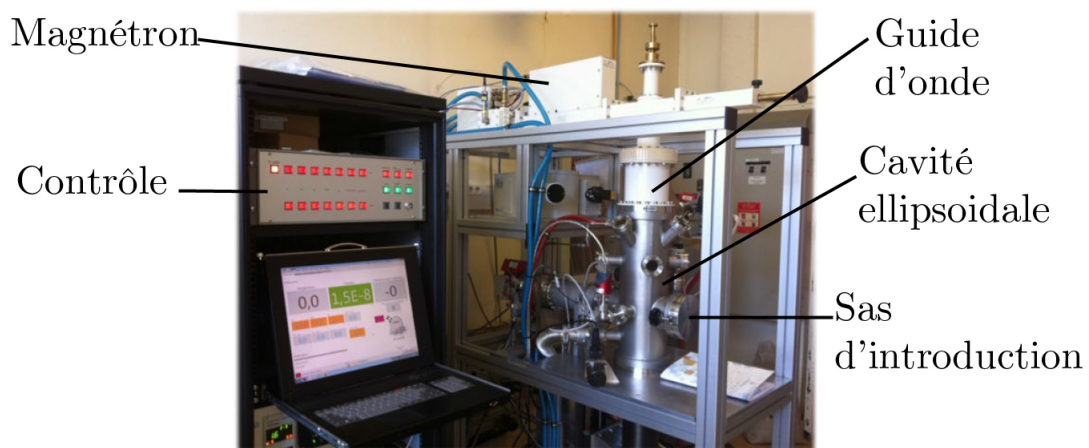


FIGURE III.3 – Photographie du réacteur NABOO utilisé pour la croissance de diamant monocristallin.

Réacteur BAOBAB et synthèse de diamant dopé au bore

Le réacteur expérimental BAOBAB est utilisé pour la synthèse homoépitaxiale des électrodes dopées P. Du même type que les réacteurs précédents, il peut être utilisé avec de l'hydrogène, du méthane et de l'oxygène. L'incorporation de dopants est réalisée en injectant du borate de triméthyle (TMB) dilué à 200 ppm dans de l'hydrogène. Le niveau de dopants incorporés peut atteindre $5.10^{21} \text{ cm}^{-3}$ [124, 191]. Il permet la synthèse d'échantillons polycristallins de 2" mais aussi de monocristaux. À cause de la contamination des parois du réacteur, le bore résiduel ne permet pas un dopage inférieur à 10^{19} cm^{-3} (ou 10^{16} cm^{-3} en présence d'oxygène). Il n'est donc pas utilisé pour réaliser les synthèses de diamant intrinsèque.

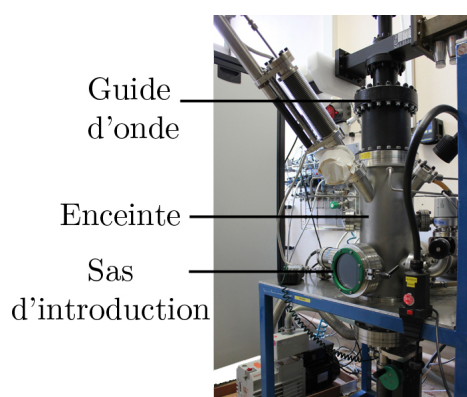


FIGURE III.4 – Réacteur BAOBAB utilisé pour les croissances de diamant dopé au bore.

Le tableau III.1 résume les différents points forts et points faibles de chacun des réacteurs utilisés.

	DIADEME	NABOO	BAOBAB
Taille substrat	$\leq 2''$	$\leq 2''$	$\leq 2''$
Croissance monocristalline		***	*
Croissance polycristalline	***	*	**
Croissance dopée de type p			*
Homogénéité	***	*	**
Reproductibilité	***	***	**
Porte-substrat rotatif	***		
Contrôle <i>in situ</i>	*		
Pilotage informatique	*	*	
Croissance longue	*	*	

TABLE III.1 – Tableau récapitulatif des trois réacteurs utilisés et de leurs caractéristiques.

III.2.1.2 Choix du design des fenêtres

Deux configurations de fenêtres ont été étudiées durant cette thèse. Le premier design, appelé “sandwich”, est composé d’un monocristal commercial de diamant de qualité électronique sur lequel une cible en tungstène est déposée. Sur sa face supérieure, une électrode en métal (Z faible) est déposée. Le diamant agit à la fois comme membrane mécanique, dissipateur thermique et comme détecteur. L’intérêt de ce design est la simplicité de sa mise en œuvre mais il présente un certain nombre de désavantages. D’une part, la taille du diamant commercial est limitée et son prix augmente rapidement ($\simeq 500\text{€}$ pour $2\times 2\text{ mm}^2$ et 1800€ pour $4,5\times 4,5\text{ mm}^2$). D’autre part, la proximité entre le volume de détection et la source de chaleur entraîne la génération d’un bruit thermique important.

Le second design, appelé “smart-window”, permet de s’affranchir de ces problèmes. Il peut-être réalisé en diamant monocristallin ou polycristallin. Une membrane de diamant est utilisée pour ses propriétés mécaniques et thermiques. Cette membrane est appelée “buffer”. Une électrode en diamant dopé est synthétisée sur ce buffer. Une couche de diamant intrinsèque est ensuite synthétisée pour réaliser la couche de détection. Enfin, une électrode supérieure vient terminer le dispositif. Le tableau III.2 résume ces différentes options.

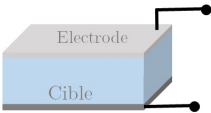
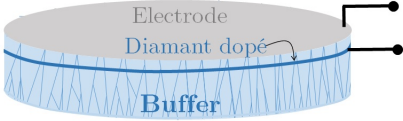
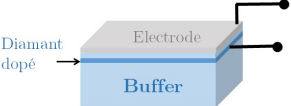
Design	Diamant	Dimensions	Schéma
“Sandwich”	monocristallin	$4\times 4\text{ mm}^2$	
“Smart-window”	polycristallin	$\phi 8\text{ mm}$	
	monocristallin	$4,5\times 4,5\text{ mm}^2$	

TABLE III.2 – Tableau récapitulatif des configurations de smart-window réalisées.

Afin de passer d'un film de diamant au design de la fenêtre décrit dans le tableau III.2, un certain nombre d'étapes de traitement est nécessaire.

III.2.1.3 Mise en forme des fenêtres polycristallines

La synthèse d'un film polycristallin est réalisée sur un substrat de silicium de $400\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. Après croissance, le film de diamant est libéré de son substrat par une attaque acide. Le silicium est gravé en utilisant un mélange stœchiométrique d'acide fluorhydrique (HF) et d'acide nitrique (HNO_3). Le film de diamant n'est pas affecté par ce procédé et la membrane ainsi libérée est récupérée pour être mise en forme.

Découpe laser

Les fenêtres polycristallines peuvent être découpées au laser afin de leur donner la forme désirée. Ce n'est pas le cas des fenêtres monocristallines du fait de leurs faibles dimensions initiales. Afin de se conformer au mieux à la géométrie du tube à rayons X, il est préférable que la fenêtre présente la forme d'un disque. La découpe se fait au laboratoire avec un laser Nd :YAG à $1064\ \text{nm}$. Lors de cette découpe, la lumière du laser est absorbée lors de processus multi-photons conduisant à un échauffement local du diamant sous atmosphère oxydante. Une platine rotative contrôlée par ordinateur permet la découpe circulaire du film. La graphitisation du bord découpé peut engendrer des court-circuits entre les électrodes. Pour les éviter, la membrane doit être nettoyée avec un mélange d'acide sulfurique bouillant à 300°C (H_2SO_4) et de nitrate de potassium (KNO_3).

Réduction de la courbure

La croissance du diamant produit des contraintes thermiques et intrinsèques (*cf.* chapitre 2). Avec les conditions de croissance utilisées, la contrainte des échantillons est toujours extensive. Lors de la libération du film, celui-ci présente une courbure naturelle concave par rapport à la face de nucléation.

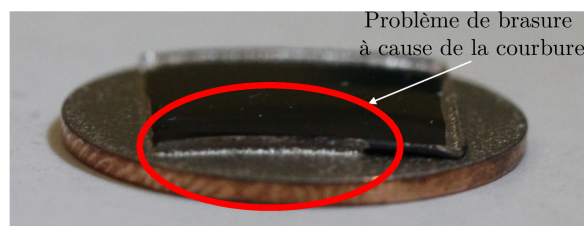


FIGURE III.5 – Photo d'un mauvais mouillage lors de la brasure d'une fenêtre courbée.

Nous savons que cette courbure entraîne une flèche de plusieurs centaines de micromètres au centre du film et pose problème pour le brasage de celui-ci (*cf.* figure III.5). En effet, lors du montage sur un tube à rayons X, la fenêtre doit être brasée sur un support métallique et nécessite une surface aussi plane que possible.

Afin de réduire cette courbure, il doit exister des conditions de croissance limitant la contrainte extensive, probablement au détriment de la vitesse. Plutôt qu'une modification des conditions expérimentales, la solution retenue est une synthèse double face. Cette opération consiste à faire croître le film en deux étapes. Après la première synthèse, le substrat en silicium est gravé et le film est retourné. Les mêmes conditions et la même durée de synthèse sont appliquées afin de réduire les contraintes formées lors de la première croissance. Une photo de l'échantillon après la double croissance est présentée sur la figure III.6.

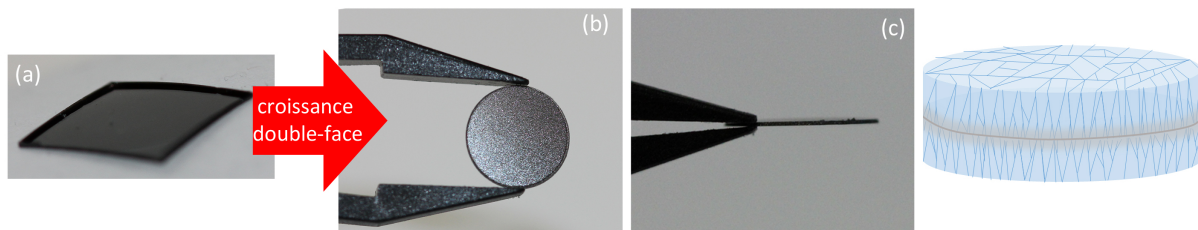


FIGURE III.6 – Photos de la courbure d'une fenêtre en diamant polycristallin. (a) fenêtre libérée de son substrat avec courbure naturelle. (b) Vue de dessus après découpe laser et croissance double-face. (c) Vue de côté après croissance double-face.

Cette méthode possède un intérêt supplémentaire : la fenêtre synthétisée possède de larges grains de chaque côté. En effet, pour les smart-windows, nous avons besoin de larges grains du côté de la cible pour la dissipation thermique ; et du côté du détecteur pour les propriétés de détection.

III.2.1.4 État de surface

L'état de surface des échantillons est primordial tout au long de leur mise en forme. Lorsque l'échantillon doit subir une reprise de croissance, sa surface doit être nettoyée avec beaucoup d'attention pour éviter que des impuretés perturbent la synthèse. Avant chaque reprise de croissance et chaque dépôt métallique, les échantillons sont nettoyés pendant 1h dans un mélange à 300°C d'acide sulfurique (H_2SO_4) et de nitrate de potassium (KNO_3), puis ils sont rincés à l'eau désionisée et séchés sous flux d'azote.

III.2.2 Intégration de la fonction détection

Pour appliquer le champ électrique nécessaire à la séparation des charges, deux électrodes sont utilisées. Dans le cas du design “sandwich”, le volume de détection est constitué par le volume de la fenêtre elle-même. Une électrode métallique est déposée sur la face supérieure par PVD. Dans la configuration “smart-window”, une couche additionnelle de diamant est synthétisée.

III.2.2.1 Synthèse du détecteur pour le design “smart-window”

Le design “smart-window” utilise une couche de diamant dopé p servant d'électrode enterrée. Une couche de diamant intrinsèque est ensuite synthétisée définissant le volume de détection. Comme le montre la figure III.7, une partie de l'échantillon est masquée afin de pouvoir connecter électriquement l'électrode enterrée.

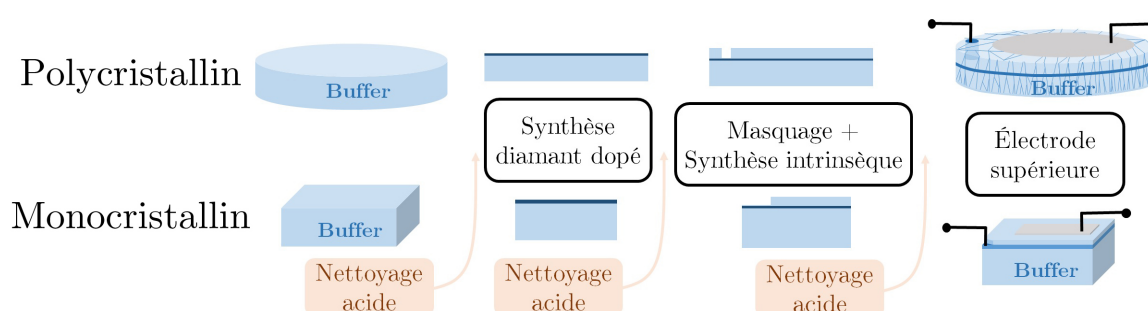


FIGURE III.7 – Schéma de principe de la synthèse d'un détecteur pour le design “smart-window”.

La figure III.7 résume les différentes étapes de synthèse de la fonction détection pour le design “smart-window” qu’il soit monocristallin ou polycristallin. Les deux croissances (électrode enterrée et couche de détection) sont homoépitaxiques. Le tableau III.3 résume les conditions expérimentales utilisées pour chaque croissance.

Notons que les conditions de croissance de l'électrode restent inchangées quelle que soit la morphologie du buffer. Avec les conditions définies, la morphologie ne change pas. Pour le dispositif polycristallin, il faut adapter les conditions de croissance homoépitaxiques de la couche de détection à celle du buffer. La figure III.8 présente deux clichés MEB de la surface de deux buffers en diamant qui présentent des morphologies très différentes.

	Diamant	Réacteur	Puiss. (kW)	Press. (mbar)	H ₂ (%)	CH ₄ (%)	TMB (%)
Électrode	poly	BAOBAB	1,4	35	88	0,22	12
	mono	BAOBAB	0,5	120	93	1	6
Décteur	poly	DIADEME	variable selon morphologie du buffer				
	mono	NABOO	0,8	120	97	3	0

TABLE III.3 – Conditions de croissance pour les deux synthèses d’une “smart-window”.

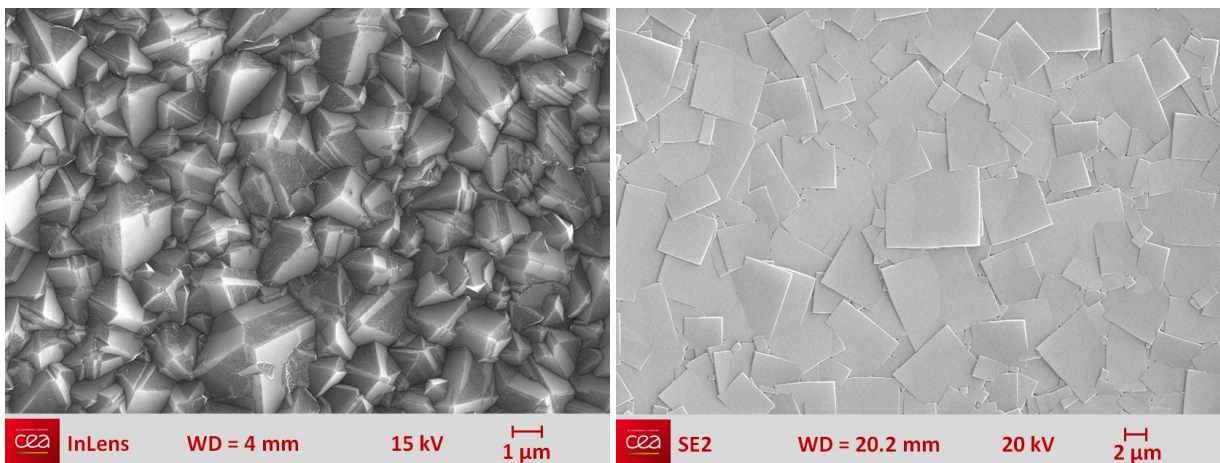


FIGURE III.8 – Clichés MEB de la surface de deux fenêtres en diamant avec des morphologies contrôlées et différentes et un axe de fibre également différent.

III.2.2.2 Choix d’une électrode supérieure

Choix du matériau

L’intégration de la fonction de détection se termine par le dépôt d’une électrode supérieure sur chacun des designs envisagés. Les électrodes doivent être réalisées dans un matériau de faible numéro atomique pour ne pas perturber le flux sortant du tube. Pour la réalisation des smart-windows, l’aluminium et un matériau en couches de graphite pulvérisé de la famille des DLC ont été utilisés. L’aluminium est fréquemment employé car il permet de réaliser un contact Schottky sur le diamant dopé. La polarisation du détecteur en mode “reverse” permet alors de fabriquer des photodétecteurs performants [192, 193, 194, 195]. Cependant son bas point de fusion le rend inutilisable sur un prototype final qui doit être traité thermiquement à 900°C lors du montage du tube. La figure III.10 met en évidence des électrodes supérieures en graphite pulvérisé, déposées par PVD. Ce matériau est également utilisé pour réaliser des contacts ohmiques ou Schottky sur diamant [196, 197, 198].

Choix d'une géométrie

La figure III.9 présente plusieurs possibilités de design d'une fenêtre "sandwich". L'approche la plus simple est de déposer un contact "plein" sur la totalité de la surface de la fenêtre comme sur la figure III.9.a. De cette manière, un champ électrique homogène est obtenu entre les deux électrodes planes. L'ajout d'un anneau de garde sur le schéma (b) permet d'éviter les courants parasites surfaciques. Le schéma (c) présente des électrodes en peignes interdigités pour une détection en surface. Ce design permet d'éloigner le volume de détection de la source électronique et donc de s'affranchir du bruit thermique et des perturbations liées au faisceau primaire. Cependant la réduction du volume de détection entraîne une chute du signal mesuré. Le schéma (d) présente une structure d'électrodes verticales qui peuvent être réalisées par graphitisation laser directement dans le diamant [199, 200]. Dans cette configuration, le champ électrique est exacerbé à la pointe des électrodes et la collection des charges est plus efficace pour un matériau donné.

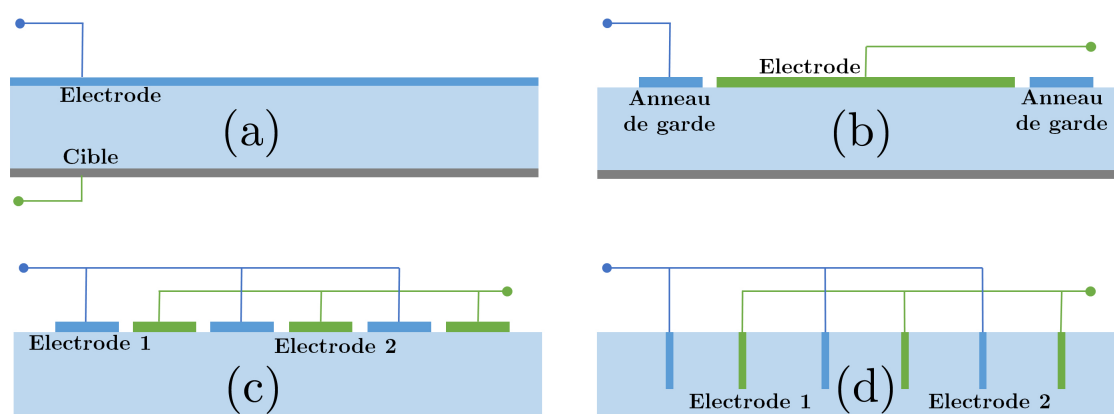


FIGURE III.9 – Différents designs de détecteurs envisagés pour une fenêtre en configuration "sandwich".

L'étude de dosimètres en diamant monocristallin a montré que les contacts "couvrants" sont à privilégier pour atteindre une collecte de charge proche de 100 % et indépendante du champ électrique appliqué [183]. Si les contacts ne recouvrent pas la totalité de la surface, plus le potentiel appliqué augmente, plus le volume de collecte augmente. Les géométries des figures III.9.a et III.9.b sont donc les plus intéressantes pour les fenêtres "sandwich". Pour des raisons de simplicité, seule la configuration III.9.a est utilisée par la suite.

Pour le design "smart-window", la reprise de contact de la couche enterrée ne permet

pas de recouvrir toute la surface. Une électrode circulaire de 200 nm d'épaisseur est donc déposée sur une partie seulement de la face supérieure (voir figure III.10).

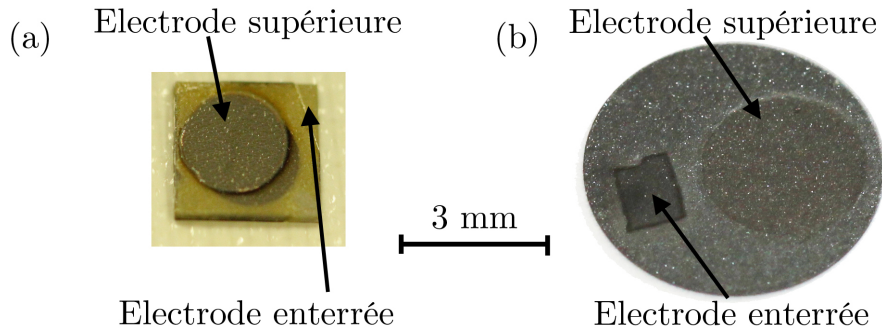


FIGURE III.10 – Face supérieure d’une fenêtre monocristalline (a) et polycristalline (b) en configuration “smart-window”.

III.2.3 Dépôt d’une cible en transmission

L’anode du tube à rayons X doit être déposée sur la face inférieure de la fenêtre en diamant. L’épaisseur de ce dépôt doit être optimisée pour garantir une bonne efficacité de la production de rayons X. Son adhérence est également primordiale pour assurer la stabilité et la durée de vie du tube. De plus, sa planéité est importante pour assurer un faisceau homogène.

III.2.3.1 Épaisseur de la cible en tungstène

La cible des tubes en transmission est plus fine que dans un tube en réflexion. Son épaisseur résulte d’un compromis entre la quantité d’énergie absorbée et le flux de photons transmis [201]. Afin de maximiser le nombre d’électrons absorbés dans la cible, il faut augmenter son épaisseur. Cependant, une épaisseur trop importante réduira sa transmission. L’optimisation de ce paramètre dépend de la tension d’accélération du tube (U) et nécessite l’utilisation de simulations MC [201, 202, 203]. L’épaisseur optimale (d_w) peut être ramenée à une loi puissance [203] :

$$d_w = 4,8 \cdot 10^{-3} U^{1,48} \quad (3.1)$$

La tension d’accélération U est en kiloélectrons-volts et l’épaisseur optimale d_w est en micromètres. Cette épaisseur est légèrement plus faible que la profondeur de pénétration des électrons dans le matériau afin de minimiser l’auto-absorption des photons.

Le prototype expérimental de TED (appelé "Gated diode") est choisi comme véhicule de test pour les smart-windows. Ce prototype pouvant fonctionner jusqu'à 100 kV , l'épaisseur optimale de l'anode se situe autour de $4,4\ \mu\text{m}$. Pour des raisons de simplicité, les tests sur ce prototype sont réalisés avec une cible de $5\ \mu\text{m}$ d'épaisseur.

III.2.3.2 Dépôt de la cible et optimisation de l'adhérence

Une couche de $5\ \mu\text{m}$ de tungstène est déposée par PVD sur une fenêtre en diamant. Les conditions du dépôt sont résumées dans le tableau III.4. La vitesse de dépôt est mesurée via une pesée différentielle. L'adhésion du dépôt est testée en plongeant l'échantillon dans l'isopropanol et dans un bain à ultra-sons pendant 15min. Comme le montre la photo de la figure III.11, le dépôt direct de tungstène sur diamant polycristallin délamine rapidement.

Puiss. (W)	Press. (mbar)	Débit (sccm)	T (°C)	Vitesse (nm/min)	Durée
200	$8 \cdot 10^{-3}$	42	35	16	5h

TABLE III.4 – Conditions de dépôt de l'anode des smart-windows.

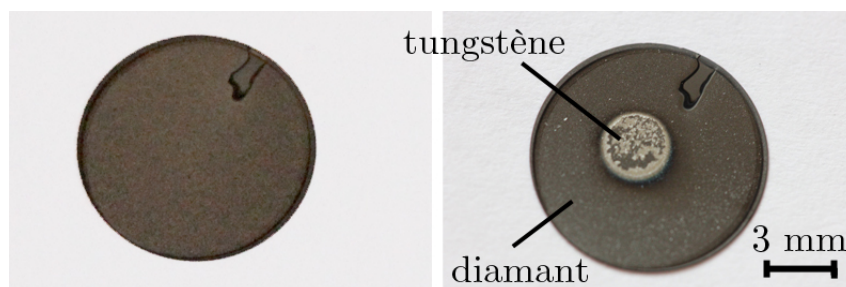


FIGURE III.11 – Photo d'une fenêtre en diamant polycristallin avant et après le dépôt d'une cible de tungstène de $5\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. Après dépôt, la fenêtre est plongée 15min dans un bain à ultrasons et dans l'isopropanol.

Il existe plusieurs moyens pour améliorer l'adhésion entre deux matériaux. Parmi ces techniques, nous nous intéressons aux traitement thermiques et au dépôt d'une sous-couche.

Traitements thermiques sous vide

De nombreuses études ont montré la possibilité de déposer du diamant sur des substrats en WC consolidé au cobalt ou simplement en tungstène [204, 205, 206, 207]. Cela permet, par exemple, d'améliorer les performances mécaniques des outils de coupe. Le

tungstène est connu pour former des carbures de stœchiométries différentes avec le carbone [208, 209, 210, 211]. Leur formation lors de recuits thermiques est dépendante de la température du traitement [212]. La formation de WC intervient dès 500°C par réaction entre le tungstène et le carbone graphitique. Puis, lorsque la totalité du carbone résiduel est converti en WC, ces carbures se transforment en W_2C à partir de 700°C. Grâce à la formation de liaisons chimiques, la présence de ces carbures améliore l'adhésion entre les deux matériaux [210, 211].

Sous-couche métallique

Une sous-couche métallique formant, elle aussi, des carbures est souvent utilisée pour améliorer l'adhésion entre le diamant et un substrat métallique [213, 214, 215, 216] ou entre le tungstène et un substrat métallique [217].

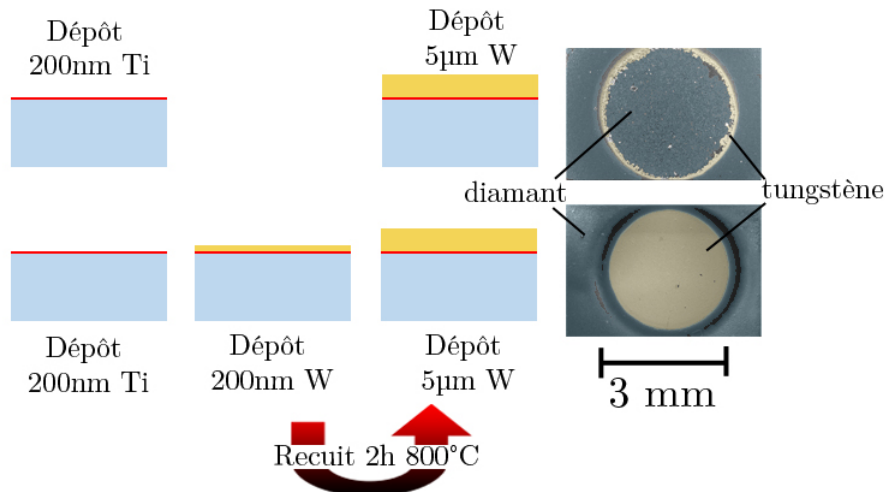


FIGURE III.12 – Clichés MEB d'une cible en tungstène de 5 μm d'épaisseur avec une sous-couche en titane, avec et sans recuit thermique.

Ces deux solutions sont étudiées sur deux smart-windows en diamant. La figure III.12 présente les clichés MEB obtenus pour une sous-couche de titane de 200 nm. Aucun traitement thermique n'est appliqué sur le premier échantillon, l'anode est directement déposée sur la sous-couche en titane. Pour le second échantillon, une couche de 200 nm de tungstène est déposée sur le titane. Un recuit thermique (2h, 800°C, 10^{-8} mbar) permet la formation des carbures avec le titane. Enfin, l'anode de 5 μm de tungstène est déposée sur cette sous-couche. Après dépôt de la cible, les deux échantillons sont plongés dans l'isopropanol et dans un bain à ultra-sons avant d'être observés au MEB. Cette technique permet d'obtenir facilement et rapidement une bonne idée de l'adhérence du dépôt.

Comme le montre la figure III.12, le dépôt de l'anode sans traitement thermique entraîne une perte d'adhérence. Le second échantillon, quant à lui, présente une anode adhérente.

III.2.3.3 Homogénéisation de l'épaisseur de la cible

La rugosité de la fenêtre représente un problème pour la génération de rayons X. En effet, si la zone de génération n'est pas spatialement homogène, cela se répercute géométriquement sur l'homogénéité du faisceau produit. L'interface entre tungstène et diamant doit donc être la plus lisse possible. La rugosité du diamant non texturé augmente linéairement avec l'épaisseur [45]. Pour des films épais de $100\ \mu\text{m}$, elle peut atteindre plusieurs dizaines de micromètres. La figure III.13 montre schématiquement le dépôt conforme de la cible par PVD sur une surface rugueuse.



FIGURE III.13 – Schéma du dépôt conforme d'une cible sur une surface rugueuse.

Pour contourner ce problème, la synthèse du buffer est optimisée afin de produire des films texturés qui présentent une rugosité réduite. Afin d'aller encore plus loin, il est possible de lisser la fenêtre en diamant avant le dépôt de la cible. Le polissage CMP est utilisé pour produire des surfaces de diamant lisses mais les durées de polissage sont très longues et des défauts sub-surfaciques sont générés. Le lissage du diamant peut également se faire par laser, par faisceau d'ions, par décharges électriques, par lissage thermomécanique ou par gravure plasma [218, 219, 220].

La méthode DPE (*Deposition Planarization Etching*) développée pour les films minces combine le lissage CMP d'une couche de silice avec la gravure plasma pour diminuer la rugosité à quelques nanomètres seulement [221, 222]. Une méthode alternative a été développée pour les films minces par Blin *et al.* Elle met en jeu la gravure RIE par ICP d'un film de diamant sur lequel une résine de silice est déposée [223, 224]. En partenariat avec l'IEF, cette méthode a été mise au point sur un film de diamant texturé de $2,5\ \mu\text{m}$ afin de démontrer la faisabilité du procédé sur films épais (voir figure III.14).

Comme le montre la figure III.14.a, le film présente des cristaux en pyramides tronquées à l'état initial. Une rugosité RMS de $96\ \text{nm}$ a été mesurée par AFM sur un film similaire et une surface de $20 \times 20\ \mu\text{m}^2$. Le premier lissage diminue la rugosité mais fait également apparaître des points de gravure entre les grains (figure b). Les deuxième et troisième lissages permettent de diminuer encore cette rugosité (figure c et d). La figure

III.15 présente un cliché MEB de la surface après trois lissages. La moyenne RMS est seulement de $2,8\text{ nm}$ sur cette zone. Ce procédé de lissage est bien adapté aux films épais.

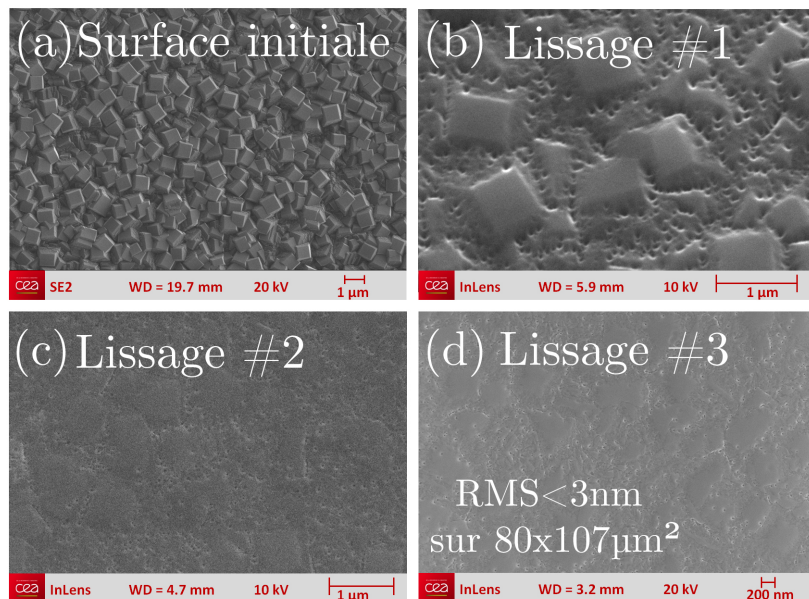


FIGURE III.14 – Clichés MEB de la surface de l'échantillon avant lissage (a), et après un (b), deux (c) et trois (d) lissages successifs.

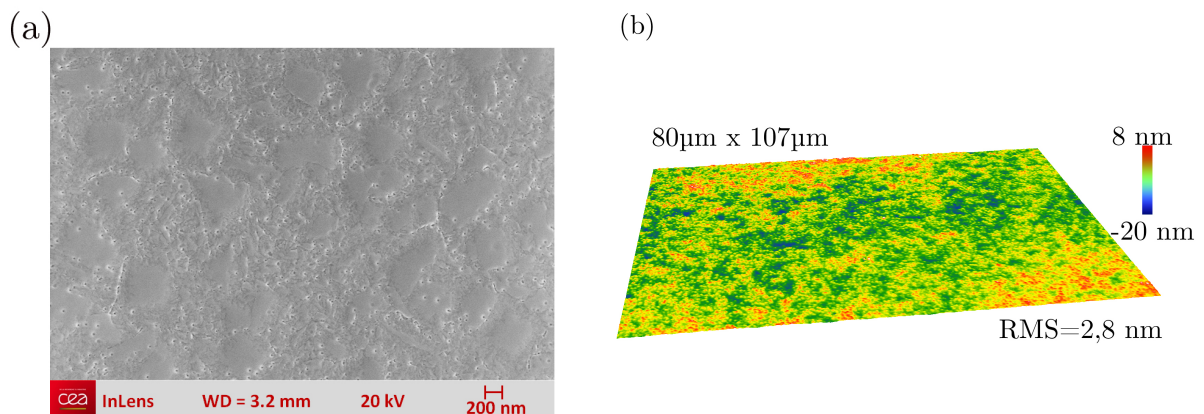


FIGURE III.15 – *Figure a* : cliché MEB de la surface d'un film de $2,5\mu\text{m}$ d'épaisseur après trois lissages successifs. *Figure b* : cartographie de la rugosité de la surface du même échantillon obtenue par profilométrie optique.

Un film non texturé présente généralement une rugosité de l'ordre de 5%-10% de son épaisseur [223]. La figure III.16 présente une cartographie de $150\mu\text{m} \times 115\mu\text{m}$ de la surface d'un buffer de $100\mu\text{m}$ d'épaisseur et texturé. Sur cette zone la rugosité RMS est de $287,2\text{ nm}$. La texture formée pendant la croissance permet donc de synthétiser un buffer

avec une rugosité bien plus faible que l'épaisseur de la cible en tungstène. Pour des raisons de simplicité, l'étape de lissage n'est donc pas retenue dans le processus de fabrication.

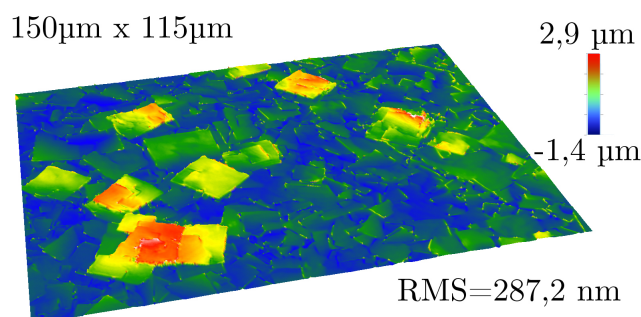


FIGURE III.16 – Cartographie de la rugosité d'un film texturé de 100 μ m d'épaisseur obtenue par profilométrie optique.

Cette étude démontre la possibilité de déposer par PVD une cible en tungstène sur la fenêtre. L'épaisseur de cette cible (5 μ m) est optimisée pour le fonctionnement jusqu'à 100 keV. Son adhérence est améliorée par l'ajout d'une sous-couche en titane et un recuit thermique à 800°C et 10⁻⁸ mbar pendant 2h. Sa planéité est assurée par l'utilisation de films en diamant texturés. Pour améliorer encore son homogénéité, les films de diamant polycristallins pourraient être lissés jusqu'à l'obtention d'une surface de très faible rugosité (< 3 nm RMS sur 105x87 μ m²).

III.2.4 Fabrication d'une fenêtre de type "monopoly"

III.2.4.1 Un design optimisé

Pour le détecteur des smart-windows, le diamant monocristallin représente l'idéal à atteindre en terme de propriétés de détection. Les performances du diamant polycristallin sont, elles, limitées par la qualité du film et la taille de grains. Cependant, la synthèse de monocristaux est limitée à des échantillons de quelques millimètres. Ainsi, la combinaison du monocristal pour ses propriétés de détection et du diamant polycristallin pour sa large surface permet de réaliser des structures appelées "monopoly".

La croissance simultanée d'échantillons monocristallins dans une matrice polycristalline a été proposée en 2012 par Vikharev *et al.* [225, 226]. Des substrats en diamant monocristallins de 3x3 mm² sont disposés sur un wafer en silicium. Une matrice polycristalline est ensuite synthétisée par MPECVD. La croissance est homoépitaxiale et le film présente donc des insertions monocristallines dans un film de diamant polycristallin.

III.2.4.2 Synthèse d’une fenêtre “monopoly”

Afin d’obtenir le même résultat, il est possible de procéder à une croissance MPECVD en masquant la surface du monocristal. Ainsi, la matrice polycristalline croît et fixe le monocristal sur le film. Pour masquer le monocristal pendant la croissance, un morceau de silicium de $2 \times 2 \text{ mm}^2$ et $400 \mu\text{m}$ d’épaisseur est positionné dessus. Une importance particulière doit être apportée à l’épaisseur de ce masque afin que celui-ci ne soit pas intégré lors de la croissance polycristalline. Le substrat silicium peut-être gravé chimiquement pour libérer l’échantillon et le procédé est répété sur la face inférieure pour améliorer la tenue mécanique de l’empilement. Sur la figure III.17, le diamant monocristallin se distingue au centre de la matrice. Le substrat en silicium a été gravé.

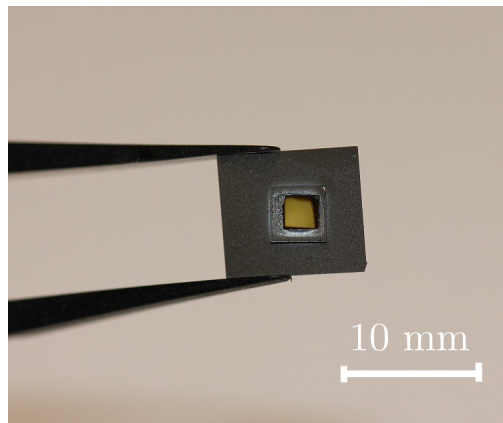


FIGURE III.17 – Photo d’une fenêtre “monopoly” après gravure du substrat silicium et croissance double face. Le monocristal HPHT de $3 \times 3 \text{ mm}^2$ et de $200 \mu\text{m}$ d’épaisseur est visible au centre de la matrice polycristalline de $10 \times 10 \text{ mm}^2$ et de $100 \mu\text{m}$ d’épaisseur.

L’observation MEB de la jonction entre l’insertion monocristalline et la matrice met en évidence différentes morphologies de diamant. La microstructure évolue du diamant polycristallin au nanocristallin à l’approche du monocristal. L’évolution morphologique autour d’un élément plus haut que le substrat pendant la croissance a été mise en évidence par Tang *et al.* [227]. D’autre part, l’effet d’antenne produit par les bords du monocristal dans le plasma peut être responsable d’une modification de la température [227] ou de la densité du plasma [228].

Dans notre cas, trois fenêtres monopoly ont pu être fabriquées mais deux ont montré des signes de fragilité à la jonction entre le monocristal et la matrice. Lorsqu’il est sollicité mécaniquement, le bord du monocristal engendre une concentration importante des contraintes rendant le dispositif fragile. À cause de cette fragilité, cette configuration n’est pas utilisée en tant que smart-window.

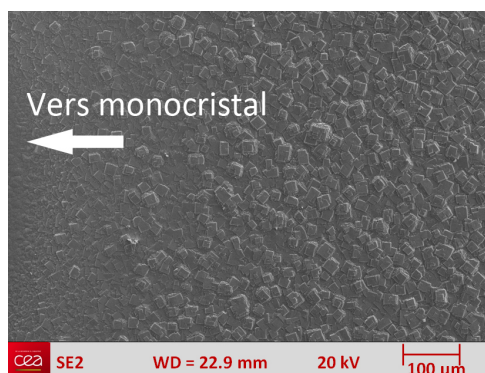


FIGURE III.18 – Cliché MEB mettant en évidence l'évolution de la morphologie du film polycristallin en se rapprochant de la jonction entre le monocristal et la matrice.

Le processus de fabrication des smart-windows vient d'être décrit en détail. Le choix de trois réacteurs de synthèse nous permet de réaliser deux designs différents en diamant polycristallin ou monocristallin. Pour le design "smart-window", l'intégration de la fonction de détection se fait via une croissance homoépitaxiale et se termine par le dépôt d'une électrode supérieure. Une cible en tungstène est ensuite déposée sur la face inférieure de la fenêtre. Son adhérence et sa planéité sont optimisées afin de garantir une émission stable et homogène. La synthèse des films polycristallins fait l'objet d'une optimisation décrite dans la partie suivante.

III.3 Optimisation des smart-windows

Le contexte industriel de cette étude nous amène à considérer la synthèse MPECVD sous l'angle d'une fabrication de petite série. Les critères déterminants sont : une fabrication à l'échelle d'une petite série de fenêtres fonctionnelles ayant une fonction de détection performante.

III.3.1 Objectifs et moyens

Pour la synthèse polycristalline, ces critères se traduisent en terme d'objectifs pour la fabrication :

- Temps de fabrication total inférieur à une semaine ;
- Synthèse de plusieurs smart-windows simultanément ;
- Performances thermiques : maximiser conductivité → maximiser la taille des grains ;
- Performances optiques : maximiser la transparence → uniquement du carbone ;

- Performances mécanique : limiter la contrainte initiale → observation de la microstructure et de la déformation post-synthèse ;
- Performances de détection : minimiser la quantité de défauts → pas d'azote dans le détecteur, maximiser la qualité cristalline.

Pour arriver à ces objectifs, nous pouvons dégager plusieurs axes de travail :

- Augmenter la vitesse de croissance ;
- Conserver un plasma homogène sur 2" ;
- Optimiser la taille des grains ;
- Optimiser la rugosité de la face de croissance ;
- Optimiser et contrôler la microstructure ;
- Minimiser la courbure.

III.3.2 Méthodologie de l'optimisation

L'optimisation de la synthèse MPECVD se fait en étudiant l'influence de chaque paramètre expérimental sur la vitesse de croissance. La morphologie du film et l'homogénéité du plasma sont contrôlés pour trouver le meilleur compromis entre vitesse et qualité cristalline.

Choix d'un couple pression/puissance

Il y a généralement une relation linéaire entre la vitesse de croissance et la puissance micro-onde injectée [229, 230]. Par ailleurs, la pression à l'intérieur de l'enceinte influence, elle aussi, la vitesse de croissance [231]. Afin de maximiser cette vitesse, il est possible d'augmenter la pression et la puissance tout en conservant un plasma homogène sur la surface. Nous choisissons pour cette étude une pression de 90 mbar et une puissance de 1,5 kW ; ce qui représente le maximum atteignable sur l'ensemble DIADEME. Une fois ce couple pression/puissance établi, la composition gazeuse du plasma peut être optimisée.

Mesure de la vitesse de croissance

Pour mesurer la vitesse, les échantillons sont généralement soumis à une pesée différentielle ou à une mesure d'épaisseur post-croissance (MEB, ellipsométrie, interférométrie). Pour bénéficier d'une mesure *in situ*, en temps réel de la vitesse de croissance, deux alternatives sont possibles : l'interférométrie d'émission [232, 233, 234] ou la méthode LRI (Laser Reflectance Interferometry) [235, 236, 237, 237, 238, 239]. Dans les deux cas, la vitesse d'acquisition de la mesure est inversement proportionnelle à la longueur d'onde.

Nous choisissons donc la méthode LRI, plus rapide et locale, pour réaliser une étude paramétrique de l'influence de la composition gazeuse.

III.3.2.1 Montage expérimental

Comme le montre la figure III.2, une diode laser de 1 mW émettant à une longueur d'onde de 670 nm illumine la surface de l'échantillon avec un angle de 45° . La lumière réfléchie par la surface est captée par une photodiode placée symétriquement sur le réacteur : cette réflexion est dite "spéculaire". La croissance du film de diamant donne lieu à un phénomène d'interférences entre l'onde lumineuse réfléchie par le diamant et celle réfléchie par le substrat. La figure III.19 schématise le processus d'acquisition du signal LRI. Afin de s'affranchir de la lumière émise par le plasma, du rayonnement thermique ainsi que des parasites lumineux extérieurs, un hacheur optique opérant à 18 Hz est placé sur le trajet du faisceau. Le courant de la photodiode est alors transmis à une détection synchrone. Avec cette méthode, un rapport signal sur bruit de 4000 peut être obtenu et de très faibles intensités peuvent être mesurées.

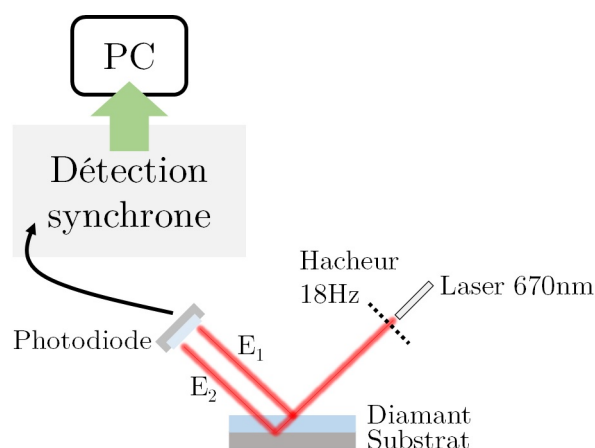


FIGURE III.19 – Schéma du système d'acquisition du signal LRI.

III.3.2.2 Principe de la mesure

La photodiode produit un courant proportionnel à l'intensité lumineuse reçue. Une partie du faisceau incident est réfléchi sur l'interface gaz/diamant tandis que le reste du faisceau traverse la couche de diamant et se réfléchit sur l'interface diamant/silicium. Les

champs électriques s'écrivent respectivement :

$$\begin{aligned}\vec{E}_1(\vec{r}, t) &= R_d \vec{E}_0 e^{(i\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} \\ E_2(\vec{r}, t) &= R_{Si} T_d \vec{E}_0 e^{(i\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r} + \phi)}\end{aligned}$$

R_d , R_{Si} et T_d sont les coefficients de réflexion de la surface du diamant, du silicium et le coefficient d'absorption correspondant au trajet du faisceau à travers le film. La superposition de ces deux ondes dans la direction spéculaire donne lieu à des interférences. Le déphasage associé à la différence de chemin optique est :

$$\phi = \frac{4\pi}{\lambda} n e(t) \cos \left(\arcsin \left(\frac{\sin(\theta)}{n} \right) \right) = \frac{4\pi}{\lambda} n e(t) \cos(\theta') \quad (3.2)$$

L'angle d'incidence du faisceau laser est $\theta = 45^\circ$ et λ est la longueur d'onde. L'épaisseur croissante du film est notée $e(t)$ et n l'indice optique du diamant pris égal à 2,4. Cette valeur correspond aux mesures expérimentales de la littérature et ne varie que très peu dans la gamme de température considérée [61]. L'intensité totale a la forme :

$$I = I_0 \cos \phi = I_0 \cos \left(\frac{4\pi n t \cos(\theta')}{\lambda} v_0 \right) \quad (3.3)$$

La vitesse de croissance du film dans la direction verticale se note v_0 . Une mesure de la période des interférences permet de connaître la vitesse de croissance du film. La réflectance est obtenue en divisant l'intensité mesurée par l'intensité initiale et en l'ajustant pour que la réflectance initiale corresponde à celle du substrat en silicium [240]. La valeur de cette réflectivité est calculée à partir des données à 670 nm de Green *et al.* [241]. Pour un angle d'incidence de 45° , elle est de 46 %.

III.3.3 Analyse des résultats

La figure III.20.a présente le signal LRI obtenu au cours d'une synthèse de 18h. Aucune rotation du porte-substrat n'est utilisée pour ne pas perturber l'acquisition. Les conditions expérimentales sont résumées dans le tableau III.5. L'amplitude du signal LRI diminue fortement (figure III.20.a) à cause de l'augmentation de rugosité. La contribution de l'absorption du film est moins importante [242].

La figure III.20.b présente l'évolution de la vitesse et de la température au cours de la croissance. Un régime transitoire occupant la première heure du procédé est visible sur la température. Il est lié à la stabilisation thermique de l'ensemble du réacteur. Nous observons également un régime transitoire de la vitesse mais cette fois visible pendant

quatre heures. Ce régime transitoire n'est donc pas uniquement lié à la thermalisation du procédé. Nous faisons l'hypothèse que la désorption d'espèces sur les parois du réacteur pourrait contribuer à l'évolution observée. Après ce régime transitoire, la vitesse de croissance est très stable au cours du temps. Cette méthode peut donc être utilisée pour mesurer l'influence des paramètres expérimentaux sur la vitesse de croissance du film.

Puiss. (kW)	Press. (mbar)	H_2 (%)	CH_4 (%)	O_2 (%)	Temperature (°C)
0,9	35	99,4	0,6	0	[750 ; 850]

TABLE III.5 – Conditions de croissance utilisées pour vérifier l'acquisition du signal LRI.

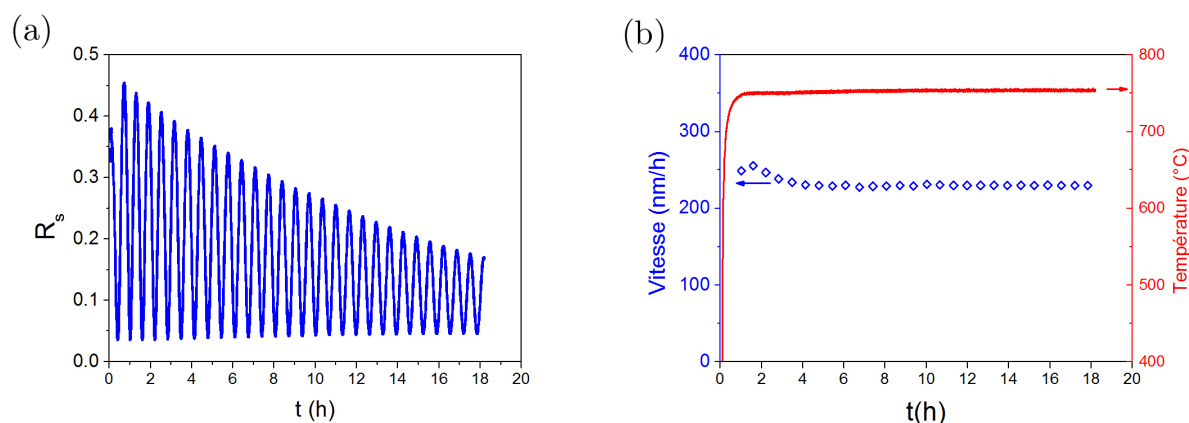


FIGURE III.20 – *Figure a* : signal LRI mesuré au cours de la croissance avec 0,6 % de CH_4 , 99,4 % de H_2 , 35 mbar et 0,9 kW. *Figure b* : évolution temporelle de la vitesse déduite du signal LRI et de la température au cours de la synthèse.

Pour trouver les conditions de croissance qui donnent la plus grande vitesse de dépôt, le signal LRI est enregistré pendant une synthèse de plusieurs heures. Une application automatique fait varier les concentrations gazeuses à intervalles réguliers. Pour chaque concentration, le signal est enregistré pendant une durée de 4 à 6 périodes d'interférences pour permettre un moyennage des résultats sur une zone donnée ($< 1 \text{ mm}^2$). La variation des paramètres commence une fois le signal stabilisé (vitesse constante).

Influence du taux de méthane

Plusieurs synthèses à 1,5 kW et 90 mbar sont réalisées dans les conditions du tableau III.6 et le taux de méthane varie de 1 % à 4 %.

Puiss. (kW)	Press. (mbar)	H ₂ (%)	CH ₄ (%)	O ₂ (%)	Temperature (°C)
1,5	90	variable	variable	0	[750 ; 950]

TABLE III.6 – Conditions de croissance utilisées pour étudier l’influence du taux de méthane. Mesures réalisées sur quatre échantillons différents.

Les résultats sont présentés sur la figure III.21. La vitesse de croissance du film augmente avec la proportion de méthane et semble linéaire dans la gamme [1% ; 3%]. Une stabilisation semble apparaître à 4%. La vitesse augmente donc avec le nombre de radicaux carbonés mais également à cause de l’augmentation de température causée par le méthane [243].

De nombreuses études rapportent une variation linéaire de la vitesse avec la racine carrée du taux de méthane [244, 245, 246]. Ce comportement est attribué à un régime d’abord linéaire dans lequel la vitesse de croissance est limitée par la quantité de radicaux présents à la surface. Puis vient une phase de stabilisation lorsque la surface est saturée en radicaux. La figure III.21 ne présente pas assez de points pour que ces deux régimes soient identifiés. Lorsque le taux de méthane augmente, la morphologie du film évolue vers une croissance nanocristalline à empilement de grains. Pour des teneurs encore supérieures, la vitesse chute [247, 248, 249].

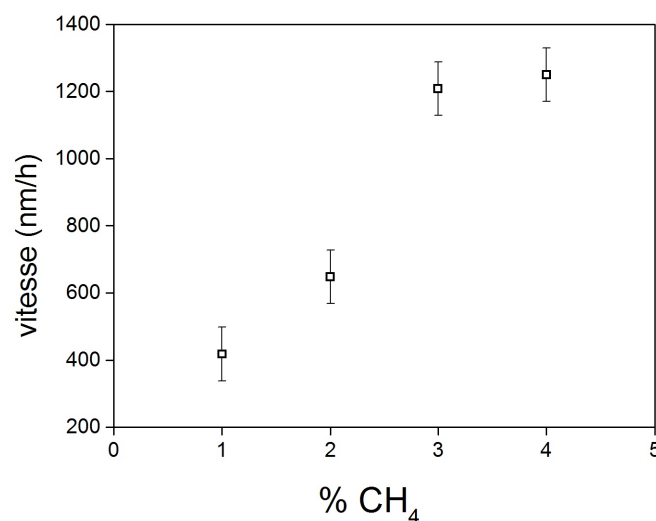


FIGURE III.21 – Évolution de la vitesse de croissance avec le taux de méthane.

Influence du taux d'oxygène

Les conditions de croissance sont décrites par le tableau III.7 et le taux d'oxygène varie entre 0 et 2%. La figure III.22 présente la vitesse obtenue par LRI sur un même échantillon. Cette vitesse diminue rapidement avec l'augmentation du taux d'oxygène.

Puiss. (kW)	Press. (mbar)	H ₂ (%)	CH ₄ (%)	O ₂ (%)	Temperature (°C)
1,1	35	variable	1	variable	[650 ; 750]

TABLE III.7 – Conditions de croissance utilisées pour étudier l'influence du taux d'oxygène

Par ailleurs, l'expérience décrite à la figure III.21 est répétée en ajoutant 1 % d'oxygène. La figure III.23 présente les résultats obtenus et les clichés MEB associés. Comme le montre cette figure, l'ajout d'oxygène à taux de méthane constant diminue la vitesse mais augmente la qualité cristalline. L'oxygène contribue en effet à la gravure du carbone sp² comme le fait l'hydrogène atomique [250, 251, 252, 253]. La substitution d'oxygène à l'hydrogène contribue, quant à elle, à la baisse du nombre de radicaux méthyles et donc à la diminution de la vitesse.

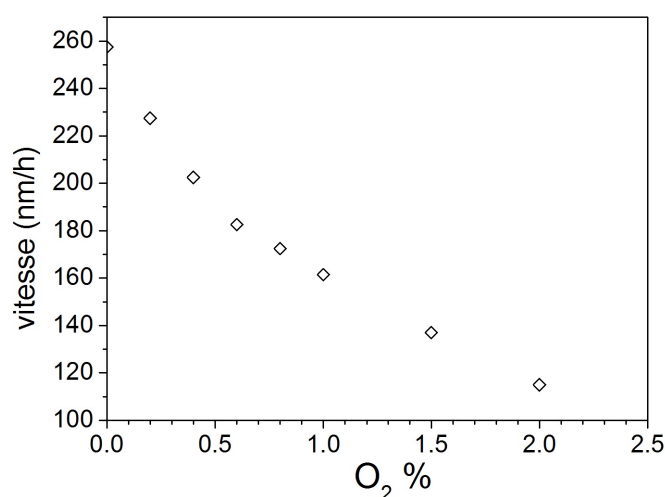


FIGURE III.22 – Diminution de la vitesse de croissance du film avec l'augmentation de la proportion d'oxygène dans le plasma.

L'ajout de 1 % d'oxygène à 4 % de méthane transforme la structure nanocristalline en structure colonnaire. Pour chaque expérience, il est possible d'optimiser le couple vitesse/qualité cristalline.

- Sans oxygène, nous déterminons un taux de méthane optimal de 2 % et une vitesse de 620 nm/h.
- Avec 1 % d’oxygène, le taux de méthane optimal est de 5 % avec une vitesse de 1200 nm/h.

Afin de garantir une haute vitesse de croissance et une microstructure acceptable (pas de nucléation secondaire visible au MEB) nous employons un mélange de 4 % de méthane, 1 % d’oxygène et 95 % d’hydrogène pour la synthèse des smart-windows.

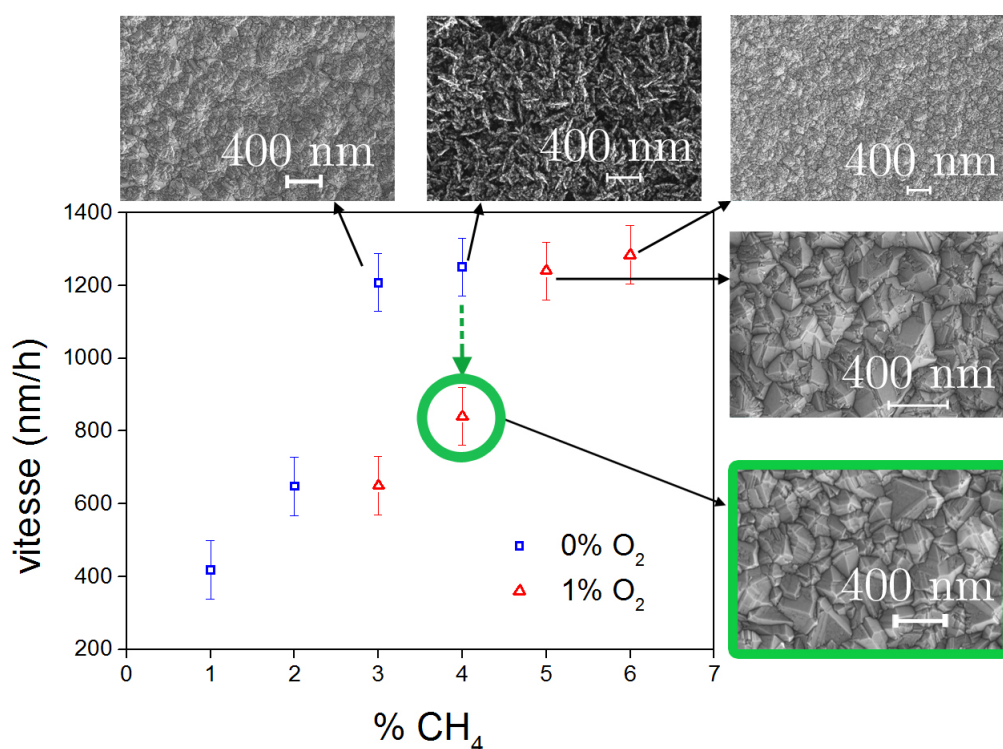


FIGURE III.23 – Évolution caractéristique de la vitesse de croissance avec le taux de méthane pour une croissance sans oxygène (carrés) et avec 1 % d’oxygène (triangles). Les conditions retenues sont encadrées en vert.

Influence du taux d’azote

La vitesse de croissance est mesurée pour une synthèse avec 300 ppm d’azote (conditions décrite dans le tableau III.8). La figure III.24 met en évidence une augmentation progressive de la vitesse de croissance.

Au contraire de l’expérience décrite par la figure III.20, celle-ci ne se stabilise pas, même après 6h de croissance. La température de la synthèse est tracée sur la même figure et met en évidence la stabilité thermique du système après les premières trente minutes.

Puiss. (kW)	Press. (mbar)	H_2 (%)	CH_4 (%)	O_2 (%)	N_2 (ppm)
1,5	90	95	4	1	300

TABLE III.8 – Conditions de croissance avec azote pour étudier la stabilité de la vitesse.

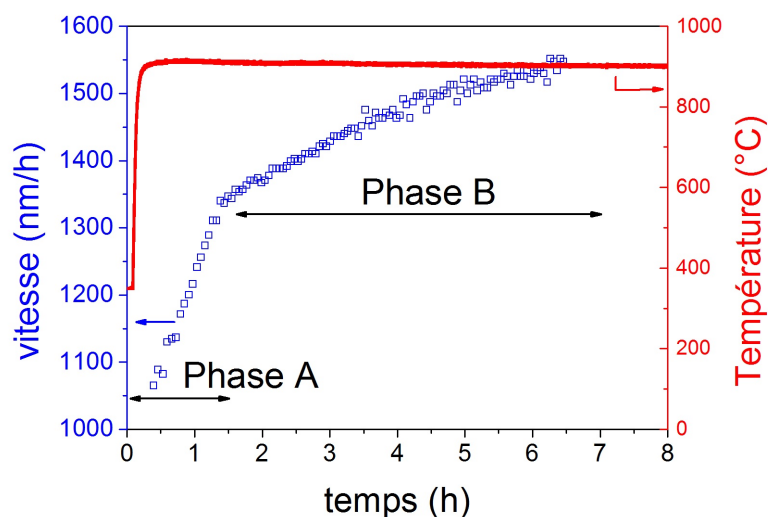


FIGURE III.24 – Évolution temporelle de la vitesse de croissance du film en présence d'azote.

L'ajout d'azote est connu pour conduire, jusqu'à un certain seuil, à une augmentation de la vitesse de croissance du diamant monocristallin [254, 255, 256] et polycristallin [257]. Différents modèles ont été développés pour expliquer ce phénomène [245, 258].

La figure III.24 met en évidence une évolution de la vitesse de croissance au cours du temps. Cette évolution (toutes conditions gardées fixes par ailleurs) empêche donc la détermination de la vitesse de croissance en présence d'azote. Un régime d'augmentation rapide (phase A) correspond à la croissance non-contrainte de grains orientés ainsi qu'à l'augmentation de la rugosité. Une seconde phase, plus progressive, marque la jonction de ces grains.

Comme le montre la figure III.25, la surface du film présente une morphologie particulière après 50h de croissance. La présence majoritaire des faces cristallographiques $\{100\}$ est caractéristique d'une texture $\{100\}\{111\}\langle 100 \rangle$.

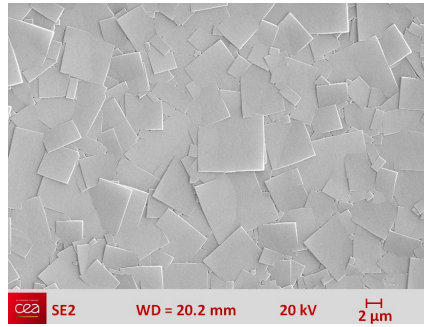


FIGURE III.25 – Cliché MEB de la surface d'un échantillon synthétisé dans les conditions du tableau III.8 pendant 50h. Epaisseur estimée : $80\mu\text{m}$

Afin d'expliquer le comportement observé sur la courbe III.24, nous nous intéressons à la morphologie des cristaux du film. Le paramètre α , défini par Wild *et al.*, fait référence au rapport des vitesses v_{100} et v_{111} de croissance dans les directions cristallographiques $\langle 100 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$ d'un monocristal [259] :

$$\alpha = \sqrt{3} \frac{v_{100}}{v_{111}} \quad (3.4)$$

L'axe de fibre d'un cristal est la direction $\langle hkl \rangle$ pour laquelle la vitesse de croissance est maximale [260]. La figure III.26 représente la morphologie d'un cristal de diamant selon ce paramètre α .

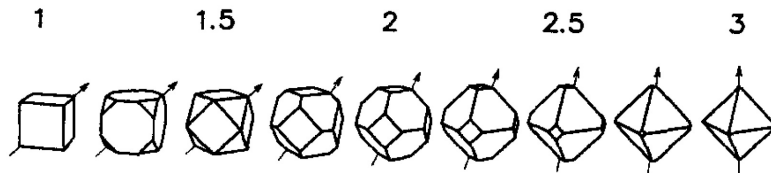


FIGURE III.26 – Schéma représentant l'évolution du paramètre de croissance α et la morphologie d'un cristal de diamant associé [261]. La flèche représente l'axe de fibre.

Le paramètre de croissance est déterminé par les conditions expérimentales : température, taux de méthane, etc. Pour un couple pression/puissance donné, la texture $\{100\}\{111\}\langle 100 \rangle$ apparaît généralement lorsque la concentration de méthane augmente et que la température diminue [229, 261, 262, 263, 264]. Cependant, l'azote permet également l'ouverture de ces faces [265]. La texture observée sur la figure III.25 est caractéristique d'un axe de fibre proche de $\langle 100 \rangle$ et d'un paramètre α vérifiant $2,5 < \alpha < 3$ [240, 266, 267]. La valeur de 2,5 est prise comme référence arbitraire pour garantir une texture suffisamment marquée.

Pour expliquer la courbe III.24, nous faisons les hypothèses suivantes :

- Le film est initialement composée de faces $\{100\}$ et $\{111\}$;
- $v_{100} > v_{111}$;
- $2,5 < \alpha < 3$;
- La sélection des grains entraîne un “enterrement” des faces $\{111\}$ et donc une augmentation de la vitesse.

Cette hypothèse, évoqué par Zuiker *et al.* dans un contexte différent [239], serait ici causée par la présence d'azote. Deux régimes se distinguent dans la courbe III.24. Le premier (phase A) jusqu'à $t=2h$, correspondant à évolution linéaire rapide tandis que le second correspond à une saturation lente de la vitesse (phase B). Le premier régime peut être expliqué par la croissance libre des cristaux selon l'axe de fibre. Le second par une croissance contrainte par la présence des cristaux environnants.

Après avoir fixé un couple pression/puissance, nous avons optimisé le taux de méthane et le taux d'oxygène. Ces conditions permettent de maximiser la vitesse tout en conservant une qualité cristalline optimale (absence de nucléation secondaire). Nous avons également démontré que l'azote a un rôle déterminant dans ce processus d'optimisation. D'une part, il augmente la vitesse de synthèse jusqu'à $1,5 \mu\text{m/h}$ et d'autre part il permet la formation d'une texture $\{100\}\{111\}\langle 100 \rangle$ qui donne une surface peu rugueuse. L'évolution temporelle de la vitesse est expliquée par une nouvelle hypothèse sur l'enterrement progressif des faces $\{100\}$. Afin de la vérifier nous nous intéressons au suivi *in situ* de cette texture lors de la synthèse.

III.4 Suivi *in situ* de la synthèse des smart-windows

Afin de comprendre l'influence de l'azote sur la vitesse de croissance d'un film polycristallin, nous proposons de suivre la formation de la texture au cours du temps. Une méthode originale de synthèse séquentielle a été développée pour répondre à cet objectif. Cette méthode permet de construire un modèle analytique et phénoménologique de suivi de la texturation des films synthétisés.

III.4.1 Croissance séquentielle

La synthèse d'un film de diamant est découpée en dix étapes entre lesquelles le film est caractérisé *ex situ*. Les mesures obtenues hors du réacteur sont comparés aux caractéristiques mesurées *in situ*.

III.4.1.1 Détails expérimentaux

Un substrat en silicium de $10 \times 10 \text{ mm}^2$ est nanoseedé par *dipcoating*. La première étape consiste en une courte croissance de cinq minutes afin de fixer les cristaux sur la surface du silicium. Ensuite, neuf croissances homoépitaxiales de 2000s sont réalisées dans des conditions identiques. Chaque étape, hormis la première, commence par une phase de montée en température sous plasma H_2 afin de stabiliser la température du procédé (15min). Le signal LRI est enregistré pendant les 10 synthèses. La lumière diffusée par la surface de l'échantillon (signal DR) est également enregistrée par une photodiode à incidence rasante (*cf.* figure III.27). Le signal DR est une mesure de la diffusion élastique de la surface de l'échantillon.

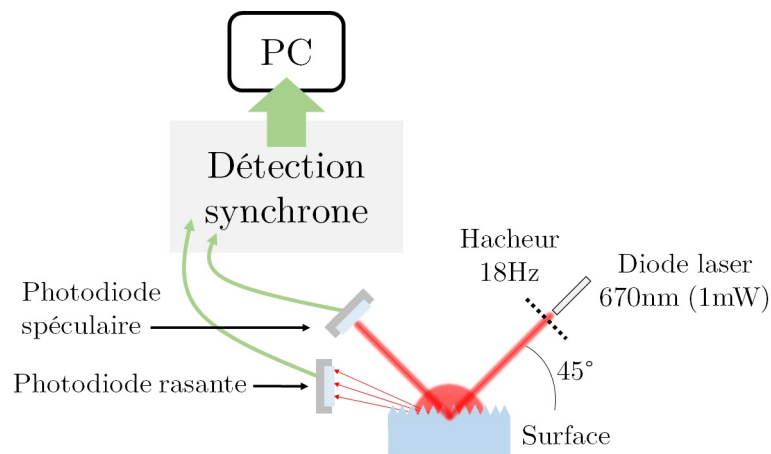


FIGURE III.27 – Schéma du montage optique utilisé pour le suivi *in situ*.

Après chaque étape, l'échantillon est sorti du réacteur et soumis aux caractérisations suivantes :

- Pesée différentielle ;
- Interférométrie en lumière blanche ;
- Ellispométrie ;
- Observations MEB ;
- Observations AFM.

Ainsi, en fixant la durée de chaque étape à 2000s, la vitesse de croissance est calculée de trois manières différentes : par pesée, par ellipsométrie et par interférométrie. Les mesures AFM et l'ellipsométrie permettent également de mesurer la rugosité. Après chaque synthèse, l'observation MEB de l'échantillon est réalisée sur une zone identique et parfaitement localisée. Pour observer la même zone à chaque fois, nous choisissons de marquer la surface de l'échantillon avec une poudre micrométrique de diamant. Dès la première synthèse, la formation d'agrégats permet d'identifier plusieurs zones et de les repérer par rapport au bord de l'échantillon. Trois zones sont observées au MEB avec trois grossissements différents. Le tableau III.9 résume les conditions expérimentales utilisées pour la croissance. La densité du nanoseeding est mesurée par traitement d'image sur un cliché MEB à l'aide du logiciel *ImageJ*.

Puiss. (kW)	Press. (mbar)	H_2 (%)	CH_4 (%)	O_2 (%)	N_2 (ppm)	Densité nanoseeding (10^{10} cm^{-2})	T (°C)
1,5	90	95	4	1	300	3,7	850

TABLE III.9 – Conditions de croissance utilisées pour la croissance séquentielle.

III.4.1.2 Mesure de la vitesse de dépôt

La figure III.28.a présente le signal LRI obtenu lorsque les contributions des dix étapes de croissance sont “recollées”. Avant chaque synthèse, l'échantillon ne peut pas être replacé exactement au même endroit. La zone sondée par le laser est donc légèrement différente lors des croissances successives. C'est pourquoi des sauts de valeurs sont observables dans la figure III.28.a. La vitesse de croissance mesurée par pesée, par interférométrie et par LRI est représentée en fonction du temps (figure III.28.b.). Malgré la présence de points manquants dans le signal LRI, l'augmentation de la vitesse observée (figure III.24) est encore visible et confirmée par les mesures *ex situ*.

III.4.1.3 Mesure de la rugosité

La rugosité peut être mesurée *in situ* par deux méthodes optiques :

- À l'aide du signal LRI et en utilisant un modèle simple de réflectivité [239, 268]. Dans ce cas, elle se met sous la forme :

$$\delta_{RMS} = \frac{2\pi}{\lambda} \sqrt{\frac{1}{2} \ln \left(\frac{2r_1}{R_{max} + R_{min}} \right)} \quad (3.5)$$

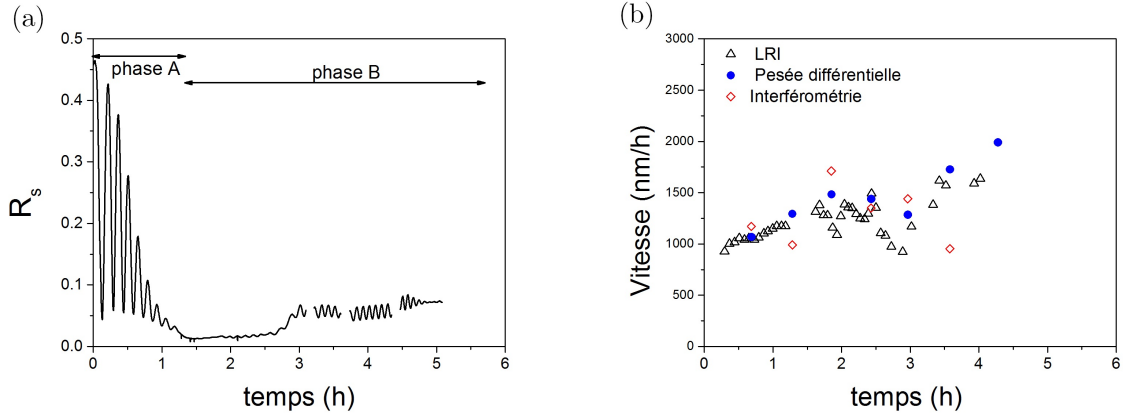


FIGURE III.28 – *Figure a* : signal LRI mesuré sur l'échantillon au cours des dix étapes. *Figure b* : évolution de la vitesse mesurée par LRI (triangles noirs), par pesée (carrés bleus) et par interférométrie (losanges rouges).

— À l'aide de la lumière diffusée (signal DR) [269]. Dans l'hypothèse où $\delta'_{RMS} \ll \lambda$, la théorie de la diffusion donne :

$$\delta'_{RMS} = C\sqrt{R_d}. \quad (3.6)$$

R_{min} et R_{max} sont les extrema d'amplitude du signal LRI, λ est la longueur d'onde de la diode laser et $r_1 = 0,53$ est le coefficient de Fresnel de l'interface gaz/diamant à 45° d'incidence. R_d est la réflectance détectée à incidence rasante et C une constante. La lumière diffusée par la surface a déjà été étudiée pour observer les phénomènes de nucléation en début de synthèse [190, 238]. Elle est ici utilisée pour mesurer l'évolution de la morphologie de surface. La constante C dépend de l'angle solide d'observation mais aussi de la longueur d'onde. Pour des raisons de simplicité, elle est prise arbitrairement égale à 50.10^3 afin de pouvoir comparer le signal DR aux mesures *ex situ*.

La mesure AFM est réalisée sur une zone de $20\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$ après redressement de l'image AFM. Elle est caractéristique de la topographie. La valeur de rugosité RMS est obtenue par traitement d'image. La rugosité mesurée par ellipsométrie correspond à l'épaisseur d'une couche composée de diamant et d'air intégrée au modèle ellipsométrique. Le signal DR présente des oscillations correspondant à des interférences. Ce phénomène est la conséquence de la différence de chemin optique entre la lumière rasante et la lumière réfléchie par le substrat [237].

La valeur mesurée pour chaque caractérisation est représentative de phénomènes différents. δ_{LRI} représente la diminution de l'intensité optique dans la direction spéculaire. δ_{DR} est caractéristique de l'augmentation de la diffusion de surface. δ_{AFM} mesure la topographie de surface tandis que $\delta_{ellipso}$ représente plutôt la rugosité lié à la porosité de la surface (modélisation d'une couche poreuse d'épaisseur $\delta_{ellipso}$ dans le système d'ellipsométrie). Deux régimes sont observés sur la courbe. Jusqu'à $t=2h$, la rugosité augmente à cause de la croissance libre de cristaux selon l'axe de fibre (phase A). Puis, elle diminue lorsque les faces $\{100\}$ commencent à se rejoindre (phase B). Ces deux étapes semblent corrélées aux deux régimes observés pour la vitesse de croissance (*cf.* figure III.24).

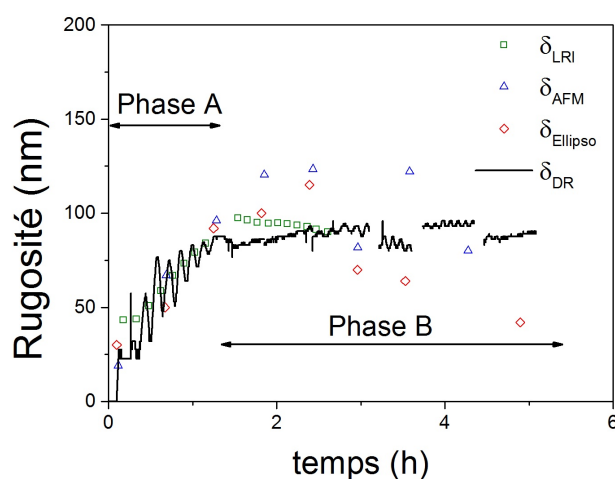


FIGURE III.29 – Évolution de la rugosité du film lors du phénomène de texturation. La rugosité est mesurée par LRI (carrés verts), par DR (ligne noire), par AFM (triangles bleus) et par ellispométrie (losanges rouges).

III.4.1.4 Observation de la morphologie

Observation séquentielle d'une même zone

La morphologie est observée par MEB entre chaque croissance sur une zone identique (figure III.30). Cette imagerie par “retour sur zone” est très complexe à réaliser car elle nécessite de repositionner le faisceau du MEB sur une zone micrométrique. Quatre grains sont colorisés pour suivre leur évolution. Les faces $\{100\}$ s'ouvrent dès la première étape de 2000s et ils croissent presque tous librement jusqu'au quatrième cliché. Cela correspond à la phase A observées sur la courbe III.24. Ensuite, la croissance se poursuit et la jonction des faces forme une surface plane (phase B).

Calcul du taux de couverture

En utilisant ces clichés MEB, nous utilisons un algorithme de traitement d'image pour sélectionner les faces $\{100\}$. Cet algorithme nous permet de calculer le ratio R_{100} correspondant au taux de couverture des faces $\{100\}$.

$$R_{100} = \frac{S_{100}}{S_{100} + S_{111}} \quad (3.7)$$

Trois zones de l'échantillon sont étudiées indépendamment. La figure III.31.a, présente les résultats pour ces trois zones. Ce ratio augmente progressivement à mesure que la sélection des grains progresse. Un taux de 100 % devrait être atteint mais il se stabilise à presque 85 % de la surface totale. Il n'atteint pas 100 % principalement à cause de la désorientation axiale (tilt) mais également à cause de la désorientation azimutale (twist) des cristaux. Cette stabilisation nous permet de comprendre que la vitesse de croissance du film doit, elle aussi, se stabiliser lorsque la texture est formée.

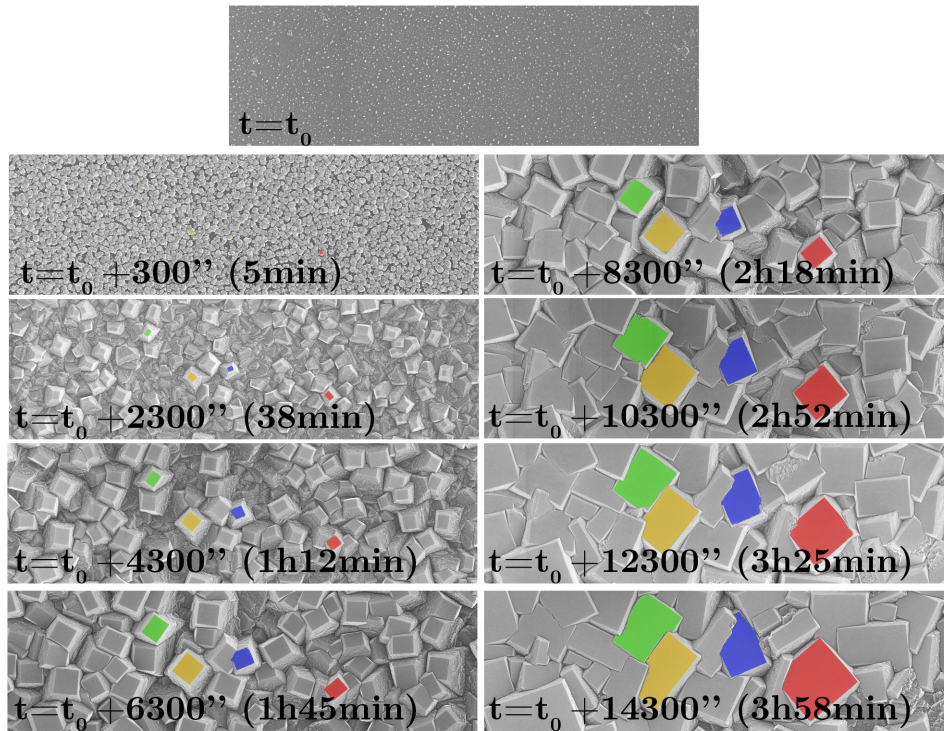


FIGURE III.30 – Clichés MEB de la même zone de l'échantillon pris au cours des neuf étapes de la croissance séquentielle.

Calcul de la densité surfacique

Le traitement d'image nous permet également de remonter à la densité surfacique des faces $\{100\}$ (figure III.31.b). Nous définissons le taux d'ouverture (K) comme le ratio

entre la densité du nanoseeding ($3,7 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ et la densité de faces $\{100\}$, cf. tableau III.9). Dans notre cas, ce ratio est de 121. En d'autres termes, pour un film de $\sim 7 \mu\text{m}$, seuls $\sim 1\%$ des cristaux initialement présents participent à la texture.

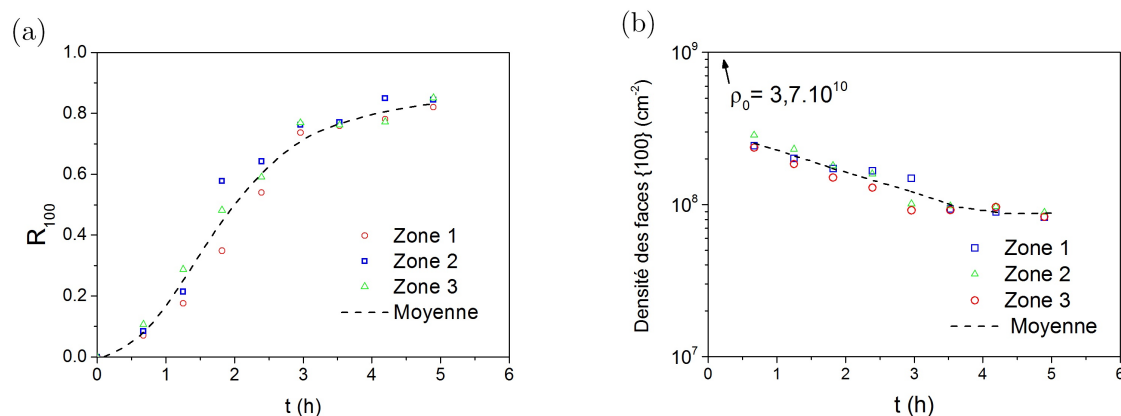


FIGURE III.31 – *Figure a* : évolution temporelle du taux de couverture des faces $\{100\}$. Trois mesures expérimentales (points) sont superposées à une moyenne lissée (trait pointillé). *Figure b* : densité surfacique de cristaux.

Après les premières heures, la sélection des grains se poursuit mais plus lentement à cause de la compétition entre les cristaux. Ce ralentissement après 1,5h de croissance est corrélé à la stabilisation du ratio R_{100} . Les résultats présentés nous permettent de corroborer l'hypothèse émise pour expliquer le phénomène présenté par la courbe III.24.

Reconstruction 3D des grains

L'étude des clichés MEB nous renseigne sur l'évolution en deux dimensions de chaque cristal. En utilisant une technique d'imagerie par tomographie, il est possible d'utiliser ces données pour obtenir une représentation 3D du film synthétisé.

Sur un cliché MEB d'une même zone, chaque cristal est référencé par quatre sommets. Un traitement d'image par *ImageJ* permet de relever les coordonnées (x,y) des sommets d'un cristal pour chaque étape. Connaissant l'épaisseur moyenne du film à chaque synthèse, une matrice des coordonnées (x,y,z) peut être obtenue. Le schéma III.32 permet de comprendre le processus d'acquisition de ces coordonnées. À l'aide d'un algorithme de traitement, quatre cristaux sont suivis au cours de leur croissance et leurs coordonnées sont stockées. Une reconstruction 3D est réalisée à l'aide du logiciel *Blender* (figure III.33). Les grains reconstruits en 3D sont colorisés sur le cliché MEB correspondant à l'étape finale.

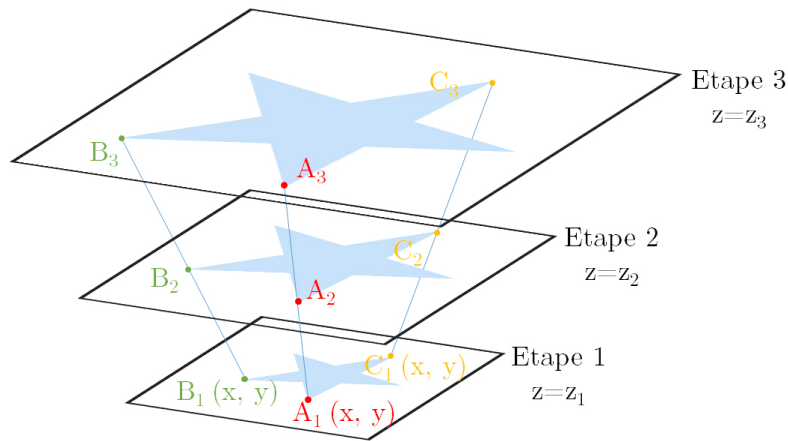


FIGURE III.32 – Schéma de principe de la reconstruction 3D des grains (de type “tomographie”) à l’aide de la croissance séquentielle.

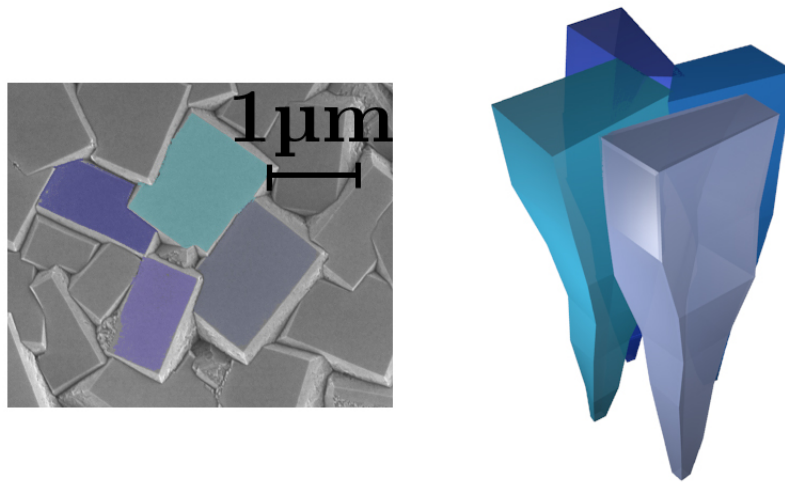


FIGURE III.33 – Reconstruction 3D “tomographique” sous *Blender* de quatre cristaux voisins lors d’une synthèse avec formation d’une texture $\{100\}\{111\}\{100\}$.

Un plus grand nombre de grains pourrait être ainsi qualifié afin de remonter à une reconstruction 3D de l’ensemble du film. Bien que coûteuse en temps, cette méthode offre un moyen unique d’imager le processus de croissance à partir de ces expériences. Cet outil est particulièrement intéressant lors de la formation d’une texture puisqu’il permet de vérifier si le processus de croissance est contrôlé par le modèle de Van Der Drift [121]. La figure III.33 met en évidence la croissance de 4 voisins orientés de manière identique. La déformation des grains souligne que la croissance d’un cristal est contrainte par ses voisins.

Nous avons vu que l'ajout d'azote lors de la synthèse permet la formation d'une texture particulière et donne lieu à une augmentation de la vitesse de croissance. Ce phénomène est étudié à travers une méthode originale de croissance séquentielle. Cette approche permet de combiner des mesures *in situ* et *ex situ* au cours de la synthèse. L'hypothèse de l'enterrement progressif des faces lentes $\{111\}$ a pu être confirmée par des observations morphologiques. La rugosité du film croît lors d'une première phase (notée A) puis diminue lorsque le taux de couverture R_{100} augmente (phase B). L'analyse des clichés MEB de cette croissance séquentielle permet de reconstruire par tomographie 3D des cristaux. Cette méthode d'imagerie ouvre la voie à la reconstruction de films entiers et à la vérification des modèles de croissance proposés jusqu'ici. Cependant, cette étude n'est pas utilisable pour un suivi en temps réel. Afin de développer une méthode de suivi de cette synthèse, un modèle analytique simple est développé. Il doit permettre de suivre *in situ* l'évolution de la morphologie et d'en déduire *a posteriori* le paramètre de croissance d'un film.

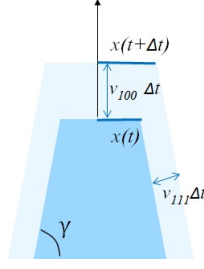
III.4.2 Développement d'un modèle pour le suivi de la texturation

De nombreuses études définissent les conditions expérimentales permettant l'obtention de films texturés. Cependant, il est difficile et long d'établir un jeu de paramètres pouvant être transposé directement entre plusieurs réacteurs. L'objet de cette partie est de développer un modèle phénoménologique capable de suivre en temps réel et *in situ* la texturation d'un film de diamant.

III.4.2.1 Modèle statistique de croissance

De nombreux modèles numériques sont utilisés pour modéliser la texture du diamant [266, 270, 271, 272, 273, 274, 275, 276]. Afin de suivre l'évolution de la texture, le ratio R_{100} est modélisé. Cette grandeur, étudiée numériquement par Barrat *et al.* [271], est proche de zéro en début de synthèse puisque tous les grains sont orientés de manière aléatoire. En imposant des conditions de texturation avec $2,5 < \alpha < 3$, ce ratio tend vers 1 avec une cinétique donnée. L'objectif de cette partie est d'établir une expression analytique et phénoménologique pour R_{100} .

Dans un premier temps, nous considérons un cristal isolé (*cf.* III.34). Les faces perpendiculaires aux directions $\langle 100 \rangle$ et $\langle 111 \rangle$ sont représentées en 2D. Elles sont notées respectivement $\{100\}$ et $\{111\}$ et forment géométriquement entre elles un angle $\gamma=54,7^\circ$.


 FIGURE III.34 – Évaluation géométrique de l'expansion des faces $\{100\}$.

La demi-arrête $x(t)$ limite la face $\{100\}$ (cf. figure III.34). Considérons l'évolution de cette grandeur entre un instant t et un instant $t+\Delta t$. Si v_{111} est la vitesse de croissance dans la direction $\langle 111 \rangle$ et v_{100} celle dans la direction $\langle 100 \rangle$, et que ces vitesses sont considérées comme constantes, le cristal s'étend alors de $v\Delta t$ dans chaque direction. Par des considérations géométriques, nous pouvons alors calculer l'expansion de la demi-arrête pendant cette durée :

$$x(t + \Delta t) = x(t) + \left(\frac{v_{111}}{\sin(\gamma)} - v_{100} \cotan(\gamma) \right) \Delta t = x(t) + \delta \Delta t \quad (3.8)$$

Il faut $\alpha < 3$ pour garantir $\delta > 0$. Cette expression est cohérente avec les calculs de Von Kaenel *et al.* [277]. En considérant que la surface $\{100\}$ d'un cristal isolé est un carré, l'accroissement de surface à partir de l'état initial où aucune face $\{100\}$ n'est présente se note :

$$s_{100}(t) = 4 \left(\frac{v_{111}}{\sin(\gamma)} - v_{100} \cotan(\gamma) \right)^2 t^2 = 4\delta^2 t^2 \quad (3.9)$$

Ce modèle phénoménologique utilise l'hypothèse suivante : pendant une phase A, la surface S_{100} de chaque cristal varie selon l'expression 3.9 jusqu'à ce que deux cristaux voisins se rejoignent. Puis, lors d'une phase B la quantité de faces $\{100\}$ varie très peu. Considérons le cas où deux cristaux sont espacés d'une distance d (cf. figure III.35). Ces deux cristaux présentent un tilt τ , considéré constant. $x'(t) = x(t)\cos(\tau)$ est alors la projection de la demi-arrête de la face $\{100\}$ sur le plan d'observation. Il a été montré que le tilt d'un cristal de paramètre α est égal à [259] :

$$\tau = \arccos \left(\frac{1}{\sqrt{\left(\frac{3}{\alpha} - 1\right)^2 + 1}} \right) \quad (3.10)$$

La jonction de deux cristaux est un événement statistique qui dépend d'une probabilité

notée p . La surface $S_{100}(t)$ est représentée par la somme des faces qui croissent librement (phase A) et la somme des faces ayant déjà rejoint leur voisin (phase B). Ces deux termes sont donc pondérés par les probabilités p et $(1 - p)$:

$$S_{100}(t) = N_0(x')s_{100}(t) \left(1 - p(x'\sqrt{2} \geq d)\right) + N_04d^2p(x'\sqrt{2} \geq d) \quad (3.11)$$

Où $p(x'(t)\sqrt{2} \geq d)$ représente la probabilité qu'un cristal atteigne son voisin le plus proche à l'instant t . La distance entre plus proches voisins est notée d . N_0 est le nombre total de cristaux émergeant et s'écrit :

$$N_0(x') = \rho_0 (S_{100} + S_{111}) \quad (3.12)$$

La figure III.35 résume la situation décrite jusqu'à présent.

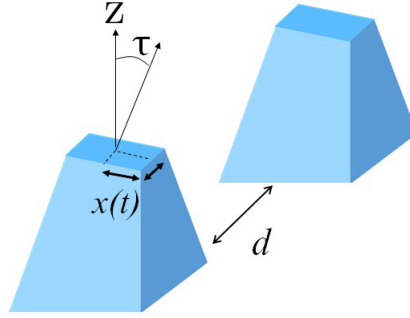


FIGURE III.35 – Schéma de principe de la croissance sélective de deux cristaux voisins.

La distance moyenne au plus proche voisin, notée d (appelée NND) peut s'exprimer par rapport à la densité initiale de cristaux ρ_0 :

$$d = \frac{1}{2\sqrt{\rho_0}} \quad (3.13)$$

En combinant les équations 3.11, 3.12 and 3.13, le taux de couverture devient :

$$R_{100} = \rho_0 \left[x'^2 \left(1 - p(d \leq x'\sqrt{2})\right) + 4d^2p(d \leq x'\sqrt{2}) \right] \quad (3.14)$$

$$= P \left(1 - \rho_0 x'^2\right) + \rho_0 x'^2 \quad (3.15)$$

Pour plus de simplicité, l'expression $p(d \leq x'\sqrt{2})$ est notée P . Pour connaître R_{100} de manière plus précise, il faut donc calculer la probabilité d'interaction entre deux cristaux voisins. La distribution en taille des nanoparticules de diamant sur une surface après nanoseeding a été étudiée par Cigler *et al.* [278], mais aucune information n'existe sur la distribution des NND entre particules. La disposition des nanocristaux de diamant sur

la surface du silicium dépend d'un grand nombre de phénomènes physiques aléatoires (encombrement stérique, charge électrique, liaisons chimiques, mouvement brownien...). Nous faisons donc l'hypothèse que la NND suit une loi normale. La densité de probabilité de cette loi s'écrit :

$$\phi(X) = \frac{1}{2\pi\sigma_0} e^{-\frac{X-d}{2\sigma_0^2}} \quad (3.16)$$

La NND moyenne (d) se définit à partir de l'équation 3.13. σ_0 est l'écart-type de la distribution. Ainsi, on accède à la probabilité d'interaction entre deux cristaux voisins :

$$P = p(d \leq x'\sqrt{2}) = \frac{1}{2} \left(1 + \operatorname{erf} \left(\frac{x'\sqrt{2} - d}{\sqrt{2}\sigma_0} \right) \right) \quad (3.17)$$

Finalement, le taux de couverture s'exprime simplement en fonction de paramètres initiaux de la distribution des cristaux : ρ_0 , d et σ_0 ainsi que du taux d'accroissement δ .

$$R_{100}(t) = \left[\operatorname{erf} \left(\frac{\delta\sqrt{2} \cos(\tau)t - d}{\sqrt{2}\sigma_0} \right) \left(\frac{1}{2} - \frac{\rho_0\delta^2 t^2}{2} \right) \right] + \left(\frac{1}{2} + \frac{\rho_0\delta^2 t^2}{2} \right) \quad (3.18)$$

Si nous souhaitons tenir compte du tilt du cristal, l'expression précédente se réécrit :

$$R_{100}(t) = \cos(\tau) \left[\operatorname{erf} \left(\frac{\delta\sqrt{2} \cos(\tau)t - d}{\sqrt{2}\sigma_0} \right) \left(\frac{1}{2} - \frac{\rho_0\delta^2 t^2}{2} \right) \right] + \left(\frac{1}{2} + \frac{\rho_0\delta^2 t^2}{2} \right) \quad (3.19)$$

Dans les expressions précédentes, ρ_0 fait référence à la densité initiale des cristaux possédant des faces $\{100\}$ visibles. Cependant, la figure III.30 met en évidence que le nombre de faces $\{100\}$ qui émergent dès les premiers instants de croissance n'est pas égal au nombre initial de cristaux nanoseedés :

$$\rho_0 = \frac{\rho_0^s}{K} \quad (3.20)$$

Où ρ_0^s est la densité initiale du nanoseeding et K représente le taux d'ouverture des faces $\{100\}$. Ce taux a été évalué à 121 pour la croissance séquentielle précédente. Une expression de $R_{100}(t)$ est donc obtenue par une approche descriptive de la formation de la texture. Elle fait appel aux hypothèses suivantes :

- Les cristaux croissent librement jusqu'à ce qu'il se rejoignent. À cet instant, la surface $\{100\}$ ne varie plus ;
- La NND suit une loi normale ;
- Les cristaux ont un twist nul.

$R_{100}(t)$ est décrit par l'expression 3.19. Il dépend de paramètres connus ou mesurables : V_{100} , ρ_0 et σ_0 et de paramètres inconnus : α et K . Afin de valider cette approche, nous utilisons la croissance séquentielle présentée au paragraphe III.4.1.

Vérification du modèle

Une observation MEB suivie d'une analyse des nanodiamants avec un algorithme approprié permet de calculer leur distribution statistique sur le substrat. La figure III.36 montre la correspondance entre les valeurs de NND relevées et une courbe gaussienne caractéristique d'une distribution normale. On obtient alors les paramètres $\rho_0 = 3,7 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ et $\sigma_0 = 13 \text{ nm}$.

La figure III.28.b est utilisée pour extrapoler la valeur de $v_{100} = 1600 \text{ nm/h}$ pour $t > 6\text{h}$. Tous les paramètres d'entrée du modèle sont donc connus ($\rho_0 = 3,7 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$, $\sigma_0 = 13 \text{ nm}$ et $v_{100} = 1600 \text{ nm/h}$). L'ajustement du R_{100} mesuré (courbe III.31.a) avec l'expression 3.19 est fait en utilisant la méthode des moindres carrés (*cf.* III.37). Un facteur multiplicatif inférieur à 1 est ajouté à l'expression 3.19 afin de tenir compte de la désorientation azimutale des cristaux qui diminue nécessairement le ratio de couverture. Une valeur de $\alpha = 2,76$, un taux d'ouverture de $K = 96$ et un facteur multiplicatif de 0,81 sont alors obtenus. Les barres d'erreurs représentent la dispersion statistique des mesures expérimentales.

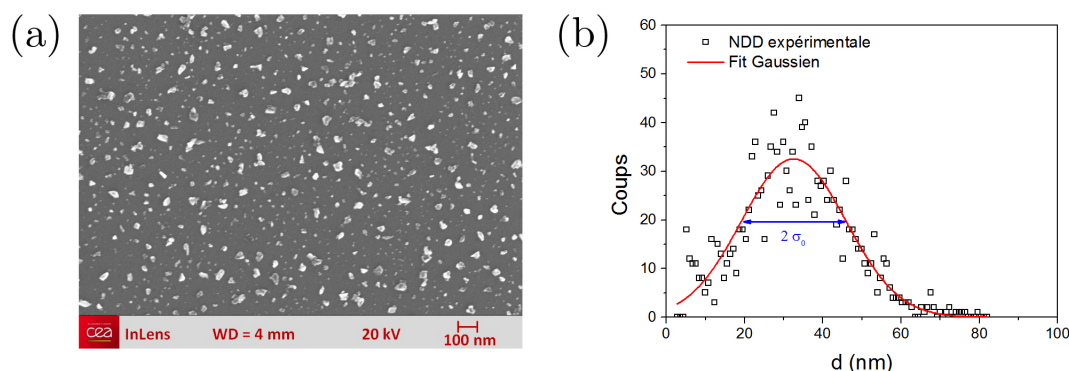


FIGURE III.36 – *Figure a* : cliché MEB du nanoseeding avant croissance. *Figure b* : distribution de NND relevée par analyse d'image et ajustement Gaussien.

Le taux d'ouverture de 121 calculé lors de la croissance séquentielle est cohérent avec le taux d'ouverture de 96 obtenu avec l'ajustement précédent. Ces résultats sont également en adéquation avec les probabilités de sélection proposées par Nørgård *et al.* [267]. Pour le paramètre α calculé, le pourcentage de cristaux survivants doit être autour de 1% (équivalent à un taux d'ouverture proche de 100).

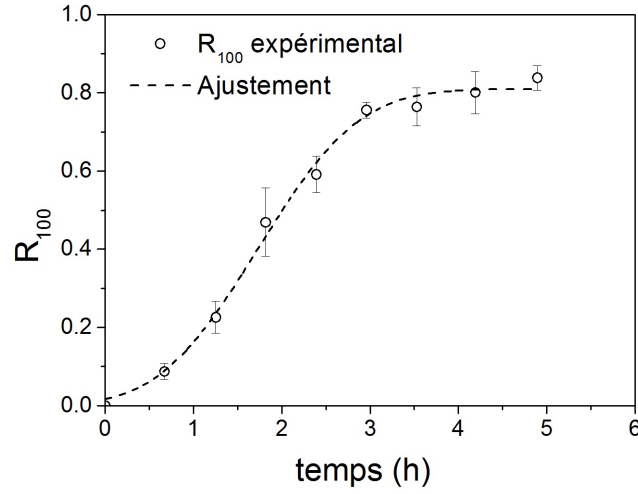


FIGURE III.37 – Ajustement du taux de couverture R_{100} mesuré expérimentalement avec l'expression 3.19.

Un corollaire de ce résultat est que l'épaisseur minimale théorique pour arriver à la jonction des faces est inférieure à $10 \mu m$. Ces résultats correspondent une nouvelle fois aux résultats expérimentaux puisqu'une épaisseur de $7 \mu m$ après cette croissance séquentielle permet la jonction des faces.

Le paramètre de croissance peut être mesuré à partir des dimensions d'un cristal isolé [279]. Pour un cristal cuboctaédrique, il est fonction des dimensions s d'une face $\{100\}$ et g d'une face $\{111\}$:

$$\alpha = \frac{3(s + g)}{2s + g} \quad (3.21)$$

Un cliché MEB de la première synthèse nous donne une valeur de α de 2,69. Une méthode alternative proposée par Von Kaenel *et al.* donne elle une valeur de 2,62 [277]. Les informations obtenues à l'aide de cette méthode sont donc en accord avec la théorie. La vitesse mesurée par LRI correspond à une moyenne des vitesses de chacune des faces présentes. Dans le cas d'un film texturé, elle s'écrit simplement :

$$v(t) = R_{100}(t)v_{100} + [1 - R_{100}(t)]v_{111} \quad (3.22)$$

La vitesse calculée à partir de l'expression 3.22 et des données du modèle est correctement ajustée à la courbe expérimentale (*cf.* figure III.38).

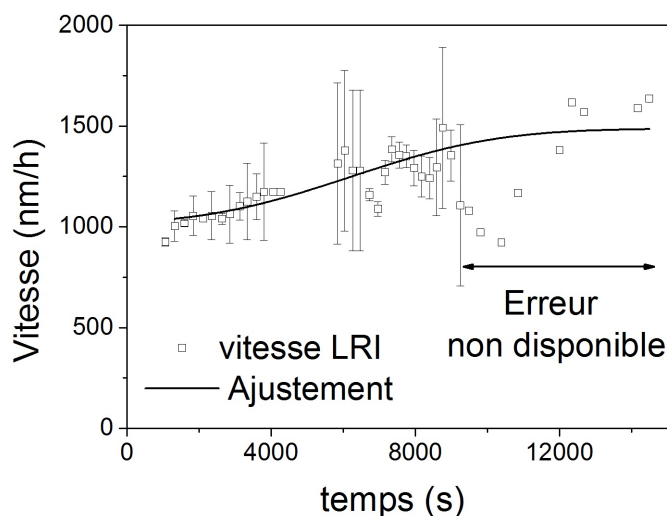


FIGURE III.38 – Ajustement de la vitesse mesurée par LRI avec l'expression 3.22.

Les erreurs sur la mesure de vitesse sont estimées (lorsque c'est possible) en prenant une incertitude de $\Delta t=20$ s sur chaque mesure de la période des oscillations. Un paramètre proportionnel à la pente du signal LRI et inversement proportionnel à l'amplitude est ajouté. Il permet de tenir compte des difficultés de mesure des extrema autour des points d'inflexion du signal LRI. La correspondance entre ce modèle phénoménologique et l'expérience semble validée par cette croissance séquentielle. Les mesures expérimentales de R_{100} sont ajustées avec l'expression analytique présentée. Les paramètres α et K sont extraits de cet ajustement. L'évolution de la vitesse de croissance est ensuite modélisée et comparée avec les valeurs expérimentales mesurées par LRI. L'intérêt de ce modèle phénoménologique est de pouvoir utiliser le signal LRI pour calculer R_{100} et en déduire les paramètres de la texturation.

III.4.2.2 Suivi en ligne de la fabrication des smart-windows et reproductibilité

Afin d'évaluer la reproductibilité de cette texture, nous appliquons ce modèle en temps réel sur deux croissances réalisées dans des conditions identiques. Étant bien conscient que deux croissances représentent un faible échantillon d'expériences, nous souhaitons simplement faire une première évaluation de ce modèle. Pour chaque croissance, la vitesse est mesurée par LRI et ajustée avec l'expression 3.22 afin d'extraire le taux d'ouverture K et le paramètre de croissance α . La vitesse de chaque croissance est mesurée par LRI. Ces données sont ajustées au modèle précédent (*cf.* figure III.39 et tableau III.10). Par analyse d'image nous relevons respectivement $\rho_0^s=4,2 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ et $3,4 \cdot 10^{10} \text{ cm}^{-2}$ pour les

densités et $\sigma_0=15,4\text{nm}$ et $12,5\text{nm}$ pour les distributions. Prenons $v_{100}=2100\text{nm/h}$ pour chaque expérience. Les barres d'erreur n'ont pas été représentées pour faciliter la lecture.

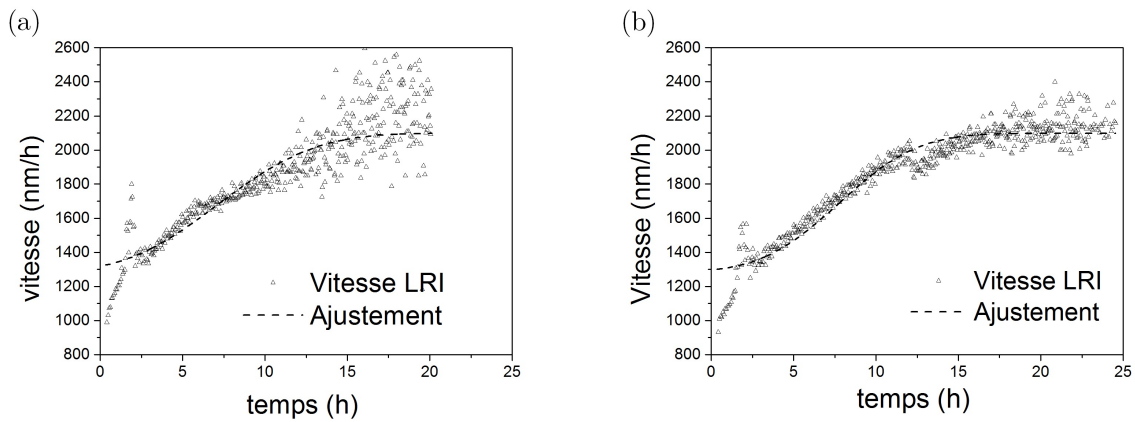


FIGURE III.39 – Ajustement de la vitesse de croissance mesurée par LRI avec l'expression 3.22 pour deux croissances successives dans les mêmes conditions.

	α	K
Film 1	2,83	1475
Film 2	2,86	1078

TABLE III.10 – Paramètres obtenus en ajustant la courbe III.39.

Les deux clichés MEB de la surface des échantillons après croissance laissent supposer que le taux de recouvrement R_{100} doit avoir atteint son maximum (cf. figure III.40).

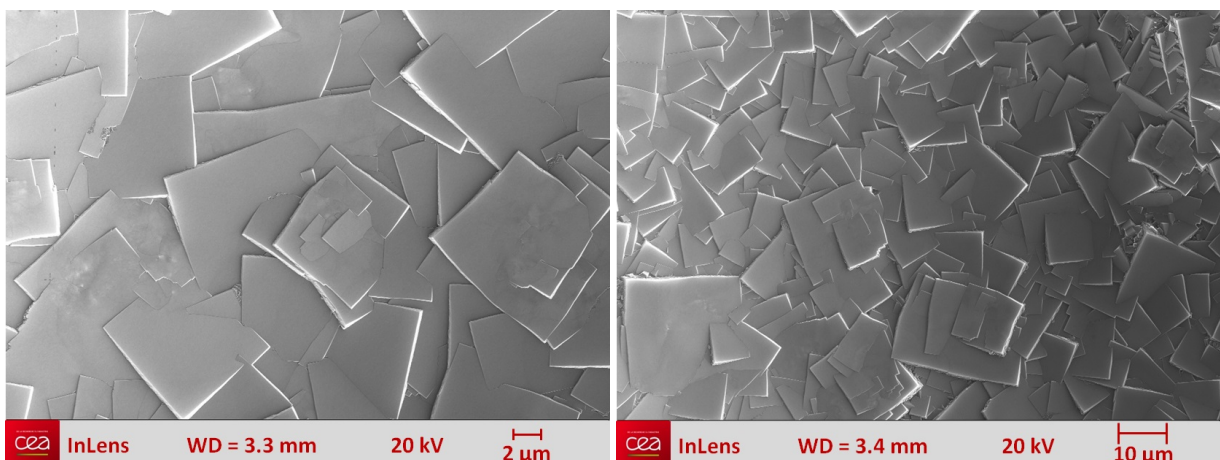


FIGURE III.40 – Clichés MEB post-croissance de la surface des deux échantillons synthétisés dans les mêmes conditions.

Les deux courbes LRI présentent un profil en “bosse”, observé lorsque la rugosité du film est à son minimum (*cf.* figure III.41). Cette “bosse” n’apparaît pas au même moment pour les deux expériences. Or la surface des échantillons présente une hétérogénéité en température. De plus, la mesure optique est très locale. Pour deux synthèses successives, cela se traduit par des valeurs de α et de K légèrement différentes.

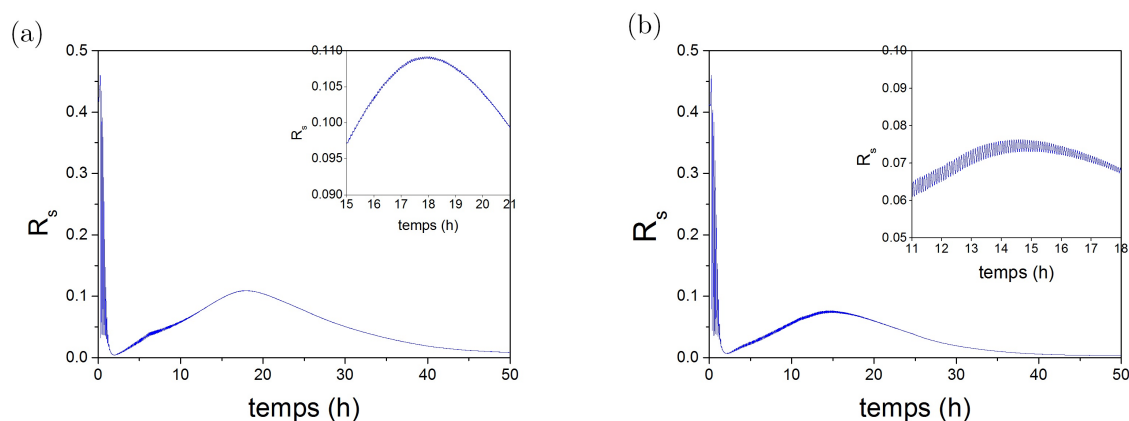


FIGURE III.41 – Signaux LRI mesurés sur les deux échantillons pour les mêmes conditions expérimentales.

Le signal DR (Diffuse Reflectance) obtenu au cours de cette expérience pour les deux échantillons augmente avec la rugosité puis diminue lorsque la texture s’établit (*cf.* figure III.42). Le taux de couverture R_{100} est tracé à partir de l’expression 3.19 en utilisant les paramètres du tableau III.10. Le taux de couverture atteint son maximum au moment où le signal DR se stabilise. La correspondance entre ces deux signaux offre un moyen unique d’accéder à l’évolution de R_{100} en temps réel.

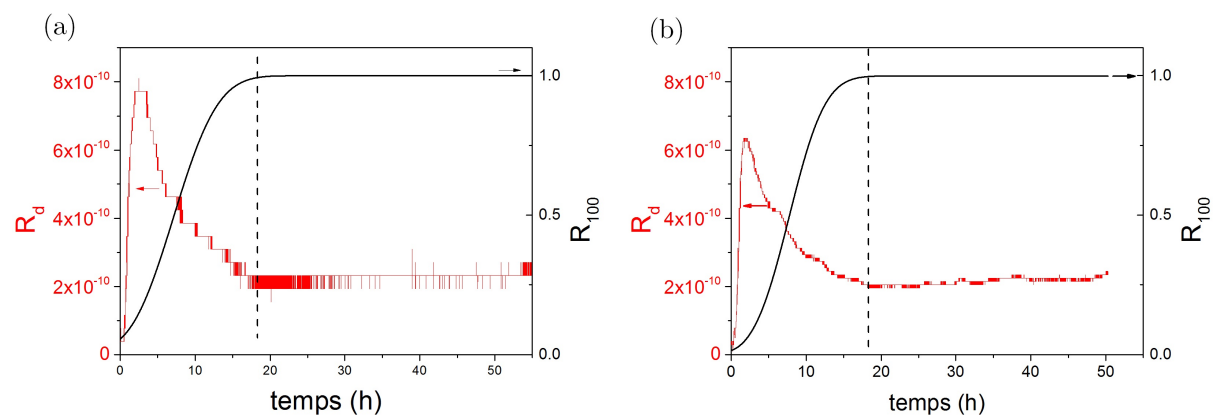


FIGURE III.42 – Signaux DR obtenus pour les deux échantillons (rouge). Le taux de couverture analytique est représenté en noir.

Nous avons développé un modèle phénoménologique de la texturation d'un film de diamant. Ce modèle permet d'utiliser le signal LRI pour extraire le paramètre de croissance α et le taux d'ouverture K . Nous démontrons, pour la première fois, l'utilisation de la lumière diffusée (DR) pour suivre l'évolution du taux de couverture des faces $\{100\}$. Le signal LRI peut être utilisé pour le suivi de la vitesse de croissance mais il est soumis à une perte d'information. En effet, la rugosité diminue l'amplitude des oscillations et la vitesse ne peut plus être mesurée au delà d'une certaine épaisseur (typiquement quelques micromètres correspondant à une rugosité de plusieurs centaines de nanomètres). Nous démontrons la possibilité d'utiliser le signal DR pour obtenir des informations tout au long de la synthèse même après la disparition du signal LRI. La synthèse des smart-windows est donc suivie *in situ* et en temps réel par cette nouvelle méthode optique. Nous pouvons alors étudier la dernière étape de montage d'une fenêtre : le brasage.

III.5 Brasage des smart-windows

Le maintien des smart-windows sur l'enveloppe du tube à rayons X doit assurer l'étanchéité du système à l'UHV. Cette étape se fait généralement par brasage. Ce procédé d'assemblage permanent se base sur la diffusion des espèces des deux côtés des pièces à assembler. Il nécessite donc l'apport d'une certaine quantité d'énergie thermique (laser, four, arc électrique, flamme, induction, etc.) et utilise parfois un métal d'apport pour réaliser la jonction. Le métal d'apport se présente comme une pâte, appelée brasure, contenant des particules métalliques à plus bas point de fusion que les pièces. La brasure peut alors fondre et mouiller par capillarité les surfaces à coller. Ce procédé est largement utilisé dans l'industrie pour assembler des pièces métalliques mais le brasage du diamant reste un processus complexe.

III.5.1 Brasage du diamant, brasage actif

Le brasage des éléments métalliques se fait par migration atomique entre deux métaux. Pour braser des matériaux non métalliques comme le diamant, une brasure dite active est nécessaire. Un élément additionnel est alors ajouté à la brasure afin de former des liaisons chimiques avec la surface du diamant lors du procédé [280, 281]. Dans le cas du diamant, composé de carbone, l'élément actif est sélectionné pour former des carbures. En pratique, le chrome, le silicium et le titane sont souvent employés comme éléments actifs avec du cuivre ou du nickel pour faciliter leur dissolution et leur migration. Plusieurs autres éléments métalliques peuvent être également ajoutés. Le brasage du diamant a été largement étudié pour la fabrication des outils de coupe [280, 282, 283], mais éga-

lement pour le transfert de films épais sur des substrats métalliques pour améliorer leurs propriétés mécaniques ou tribologiques [283, 284, 285].

III.5.2 Géométrie de l'assemblage

Afin de faciliter le refroidissement latéral des smart-windows, leur brasage sur le tube doit se faire sur une pièce en cuivre. Les brasures retenues pour braser du diamant sur du cuivre sont composées majoritairement d'argent et de cuivre et dans de plus petites proportions d'un mélange pouvant contenir, indium, titane, étain et nickel. Le coefficient d'expansion thermique du cuivre est environ quinze fois plus important que celui du diamant [286]. Ainsi, la dilatation thermique différentielle fait apparaître de fortes contraintes au refroidissement qui peuvent altérer la brasure ou le film de diamant.

La figure III.43 présente deux photos de films de diamant auto-supportés de $100\ \mu\text{m}$ d'épaisseur, brasés sur un anneau de cuivre. Comme le montre la photo de droite, la contrainte thermique lors du brasage a engendré la fracture de la fenêtre. En réduisant la surface de contact entre la pièce en cuivre et la fenêtre en diamant, la contrainte thermique associée au brasage peut être minimisée. Pour ce faire, un film de diamant est brasé sur un collet en cuivre cylindrique de $500\ \mu\text{m}$ d'épaisseur (figure III.44). L'assemblage a fonctionné et la fenêtre est intacte. Le mouillage de la brasure est visible sur la figure III.44. Un congé de brasure se forme à l'extérieur et à l'intérieur de la fenêtre.

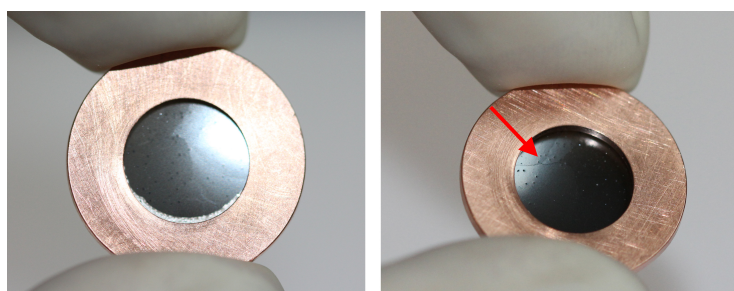


FIGURE III.43 – Apparition de contraintes différentielles lors de la brasure. Une fissure est apparue lors du refroidissement (flèche).

III.5.3 Brasage d'un prototype

Afin de pouvoir tester un prototype de smart-window dans un tube à rayon X expérimental, les fenêtres doivent être brasées à la place de la fenêtre en béryllium. Un disque de cuivre de $2\ \text{cm}$ de diamètre est utilisé. Il est percé en son centre pour laisser passer le

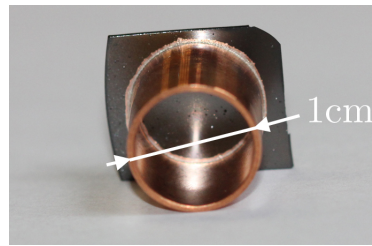


FIGURE III.44 – Brasage d’une fenêtre en diamant sur un collet en cuivre. Ce nouveau design génère moins de contraintes.

faisceau et les fenêtres sont brasées sur un collet cylindrique de $500\ \mu\text{m}$ d’épaisseur. Ce travail s’est déroulé en collaboration avec TED.

III.5.3.1 Contact électrique de l’anode

Puisque le brasage se fait entre le cuivre et le diamant, la cible en tungstène doit être plus petite que les dimensions de la pièce en cuivre. Le disque en cuivre étant percé par un trou de 3mm de diamètre, le dépôt de la cible en tungstène est un disque de $2,5\text{mm}$ de diamètre. La figure III.45 schématise la géométrie utilisée. Une petite quantité de brasure est déposée à l’extérieur du collet et le mouillage des pièces permet à la brasure d’assurer le contact électrique de la cible. Ce contact permet l’évacuation des charges de l’anode.

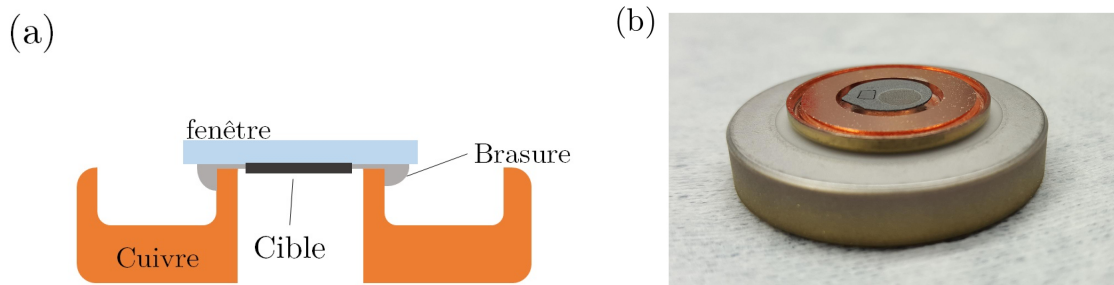


FIGURE III.45 – *Figure a* : schéma de la géométrie utilisée pour le brasage des prototypes. *Figure b* : photo d’une smart-window polycristalline brasée.

III.5.3.2 Réalisation du brasage d’une fenêtre “sandwich” monocristalline

La figure III.46 présente le résultat du brasage d’une fenêtre monocristalline en configuration “sandwich”. L’électrode supérieure en DLC peut être aperçue sur la figure III.46.a. La pièce en cuivre est ensuite soudée au laser sur l’enveloppe d’un tube expérimental (photo III.46.c).

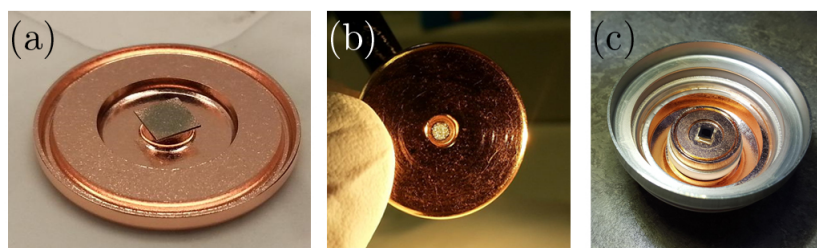


FIGURE III.46 – *Figure a et b* : smart-windows brasées par TED sur un disque en cuivre qui permet de finaliser le montage d'une fenêtre innovante en diamant sur un tube à rayons X. *Figure c* : soudage laser du disque en cuivre sur la tête du tube.

Le procédé de brasage du diamant développé par TED permet le maintien des smart-windows sur l'enveloppe du tube. Une pièce en cuivre est conçue pour minimiser les déformations thermiques et plusieurs fenêtres ont été brasées avec succès sur cette pièce. Un prototype de fenêtre "sandwich" monocristalline ainsi qu'un prototype de fenêtre "smart-window" monocristalline ont été brasées et montées avec succès sur un tube expérimental. Ces deux dispositifs assurent l'étanchéité à l'UHV du système. L'évacuation des charges de la cible est assurée par le congé de brasure. L'industrialisation des dispositifs fabriqués nous amène maintenant à explorer la synthèse du diamant sur de grandes surfaces. Nous nous intéressons à un procédé de croissance par sources plasma matricielles.

III.6 Vers des procédés de dépôt grande surface

III.6.1 Problématique

L'utilisation des réacteurs de croissance présentés en début de chapitre permet la synthèse simultanée de cinq fenêtres. Le procédé de fabrication est ainsi adapté à la réalisation de quelques smart-windows. D'un point de vue industriel, le procédé de croissance constitue une limite à la fabrication de plus grandes séries. C'est pourquoi nous explorons un nouveau procédé de croissance à 352 MHz utilisant un réseau d'applicateurs. Son utilisation est donc un atout majeur pour l'industrialisation du processus de fabrication des smart-windows. La conjonction des travaux de TED sur les procédés plasma RF, du LPSC sur la physique des plasmas et du LCD sur la croissance du diamant a donné lieu à une étude collaborative sur le développement de ce procédé.

III.6.2 État de l'art

Parmi les différentes méthodes utilisées pour synthétiser du diamant à basse pression, celle permettant d'atteindre les plus grandes surfaces ($\sim 30\text{ cm}$) est sans doute la méthode

HFCVD développée dans les années 1980 [287]. Elle utilise un filament de tungstène ou de tantale chauffé pour dissocier les espèces gazeuses au-dessus du substrat. Le filament peut être formé selon différentes géométries et peut être étendu pour augmenter la taille du dépôt. Cependant ce procédé possède un certain nombre de désavantages : contamination du film avec le tungstène ou le tantale, stabilité du filament et maintenance des réacteurs.

La synthèse MPECVD en cavité résonnante à 2,45 GHz permet le dépôt de diamant homogène sur 2". Certains industriels ou laboratoires ont optimisé ce type de réacteurs pour aller jusqu'à 3-4" [288, 289]. La première solution pour augmenter la taille des dépôts passe par une diminution de la fréquence du procédé. En effet, la taille de la cavité et la fréquence d'excitation contrôlent la taille du plasma. En abaissant la fréquence à 915 MHz, des surfaces de 6" ont été synthétisées [290, 291, 292]. Des industriels prétendent même pouvoir synthétiser des surfaces jusqu'à 16" [293]. Cependant les réacteurs à cavités à 915 MHz souffrent du prix très élevé du générateur.

Afin de réaliser de larges dépôts, une solution consiste à utiliser des réseaux d'antennes à 2,45 GHz. Dans ce cas, les premiers travaux ont porté sur les réseaux d'antennes linéaires pour créer un plasma étendu sur la surface du substrat [294, 295, 296]. Cette solution permet de s'affranchir de la géométrie du réacteur. Plus récemment, des applicateurs individuels ont été utilisés en matrice par *Mehedi et al.* pour créer un plasma étendu et permettre la synthèse de diamant nanocristallin [297]. Ce type d'applicateur individuel est aujourd'hui commercialisé par l'entreprise SAIREM.

Bien que ces méthodes (croissance à 915 MHz, antenne linéaire ou réseau d'applicateurs) ouvrent la voie à la synthèse sur de grandes surfaces, le coût d'un réacteur est un facteur limitant. Pour contourner ce problème, nous explorons un nouveau procédé combinant une fréquence plus basse associé à un réseau d'applicateurs individuels. Celui-ci devrait permettre de construire des réacteurs de dépôt de grande surface à plus bas coût.

III.6.3 Premières croissances par plasma matriciel à 352 MHz

III.6.3.1 Montage expérimental

Comme pour les réseaux d'antennes micro-onde, il est possible de réaliser un réseau 2D ou 3D d'applicateurs RF qui vont transmettre localement leur énergie au gaz pour former un plasma étendu au-dessus du substrat. La collaboration entre TED et le LPSC a permis la réalisation d'applicateurs RF fonctionnant à 352 MHz. Ces applicateurs sont

alimentés par un générateur RF 2x800 W fabriqué par TED. Afin de vérifier la possibilité de synthétiser du diamant avec cette nouvelle technologie, un adaptateur spécifique a été conçu pour utiliser trois applicateurs sur un réacteur à cavité existant (DIADEME). Ce design inclut une pièce d'adaptation qui s'insère dans la cavité ainsi que trois applicateurs et le circuit de refroidissement associé (*cf.* figure III.47).

Pour assurer une bonne transmission de l'énergie et une bonne étanchéité, chaque applicateur est terminé par une céramique en alumine (côté réacteur). Du côté opposé, des adaptateurs d'impédances sont utilisés pour répartir correctement la puissance incidente et minimiser la puissance réfléchie. Afin de pouvoir mener une étude paramétrique sur la croissance du diamant, un porte-substrat chauffant a été ajouté au réacteur. Il permet de chauffer le substrat jusqu'à 800°C. Ce système permet de réaliser les premiers tests de croissance de diamant à cette fréquence d'excitation. Les substrats utilisés sont des wafers 2" de silicium nanoseeds.

Le premier avantage de ces applicateurs est la facilité de mise en œuvre puisque l'allumage du plasma est instantané et l'adaptation d'impédance très rapide. Les pertes de transmission sont négligeables dans ce système, ce qui autorise le fonctionnement à des puissances élevées. La figure III.48 présente une photo du plasma généré par les trois applicateurs.

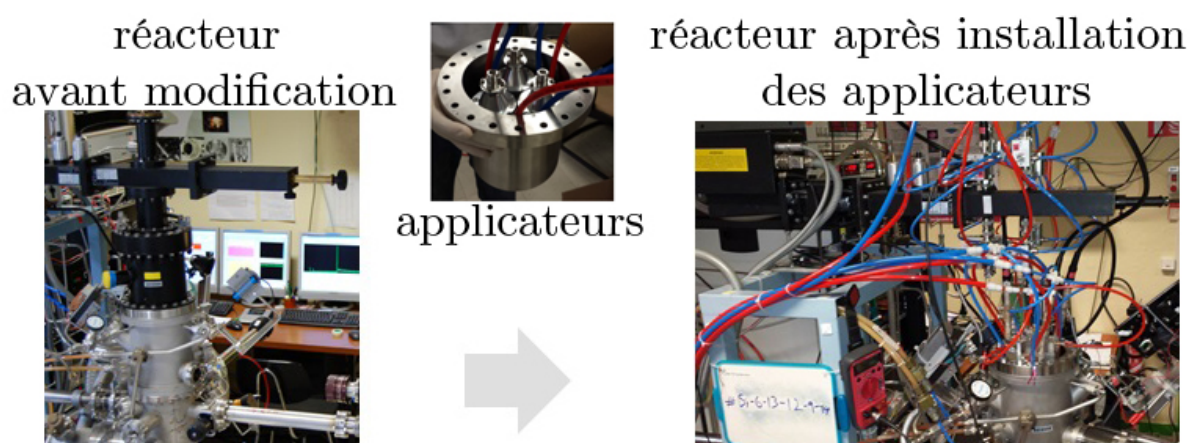


FIGURE III.47 – Photo du réacteur DIADEME avant et après adaptation du système de sources matricielles à 352 MHz.

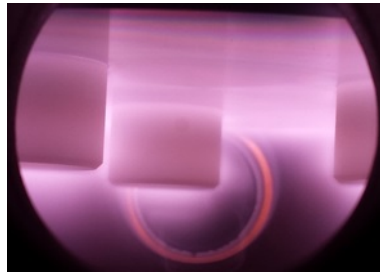


FIGURE III.48 – Photo du plasma généré par trois applicateurs RF à 352 MHz.

III.6.3.2 Analyse des résultats

Les conditions expérimentales (température, composition gazeuse, puissance, etc.) sont explorées dans une large gamme (*cf.* tableau III.11). La morphologie du dépôt est observée au MEB après chaque croissance.

T (°C)	%CH ₄	%H ₂	d (mm)	Puissance/applicateur (W)	Pression (mbar)
[600 ; 800]	[0,6 ; 6]	[94 ; 99,4]	[3 ; 4]	[150 ; 250]	[0,1-12]

TABLE III.11 – Conditions de croissance utilisées pour la synthèse à 352 MHz.

Pour toute la gamme des paramètres étudiés, nous observons un dépôt cristallin dont la morphologie est présentée sur le cliché MEB de la figure III.49. Une analyse EDX dont les résultats sont présentés sur la même figure permet d'identifier un mélange de carbone, de silicium, d'aluminium et d'oxygène. Ce dépôt est donc contaminé par de l'aluminium provenant des céramiques. La synthèse se fait en régime capacitif et cela entraîne la gravure de ces éléments en alumine.

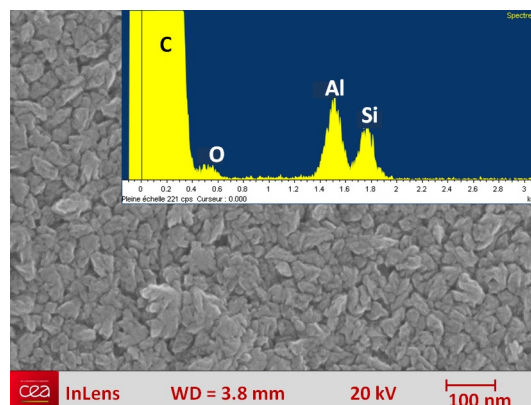


FIGURE III.49 – Morphologie du dépôt obtenu. Insert : analyse EDX du dépôt.

Afin de diminuer l'effet de bombardement de ces éléments, un jeu de conditions est optimisé. Il n'inclut que de l'hydrogène, du méthane et une puissance de seulement 70 W par applicateurs. La figure III.50 présente l'évolution de la morphologie du dépôt à différents endroits du wafer. Un matériau biphasé est visible sur ces clichés. Les zones sombres sont identifiées comme de l'alumine. Les zones claires font apparaître la morphologie caractéristique d'un dépôt de diamant polycristallin.

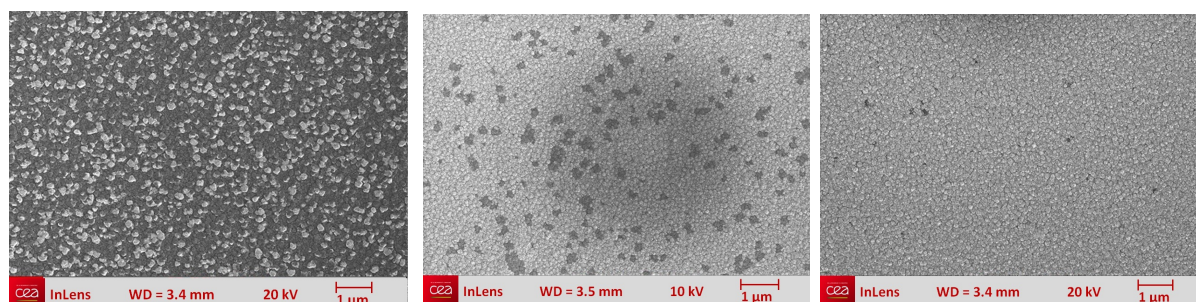


FIGURE III.50 – Clichés MEB de la morphologie du dépôt à 70 W/applicateur. Évolution de la quantité d'aluminium contaminant en fonction de la position de l'applicateur.

La densité des zones sombres diminue en s'éloignant de l'applicateur RF (de gauche à droite sur la figure). Ainsi la contamination du dépôt de diamant se fait principalement sous les céramiques. Le cliché III.51 présente la morphologie du film loin d'un applicateur. Aucune zone sombre n'est visible. La microstructure du matériau met en évidence un dépôt de diamant polycristallin avec quelques cristaux octaédriques. La structure observée fait apparaître beaucoup de nucléation secondaire, révélatrice d'une trop faible densité de puissance. En effet, à partir d'une estimation grossière des volumes de plasma, cette configuration correspond à une densité de puissance de $0,4 \text{ W.cm}^{-3}$. À titre de comparaison, la densité de puissance du procédé MPECVD décrit en début de chapitre est d'environ 22 W.cm^{-3} . La vitesse de croissance du film est seulement d'une dizaine de nanomètres par heure à mettre en comparaison des 210 W utilisés pour cette croissance.

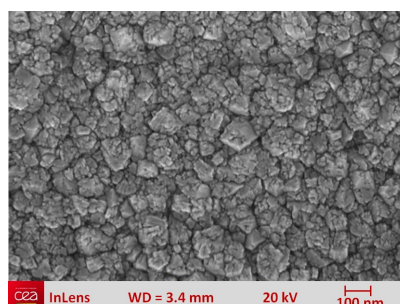


FIGURE III.51 – Morphologie du dépôt de diamant polycristallin obtenu à 352 MHz.

Ces tout premiers tests montrent donc la possibilité de faire croître du diamant polycristallin à 352 MHz. Un paramètre critique a été identifié : la gravure des applicateurs à haute puissance. Afin d'augmenter la puissance injectée, il faut s'affranchir de ce phénomène parasite. Une attention particulière doit donc être portée à l'agencement spatial des sources. Un nouveau design d'applicateur doit être conçu pour s'affranchir de ces phénomènes capacitifs de gravure. Bien que le volume du plasma reste ici confiné à 2", le design d'un réacteur à large chambre et l'utilisation d'un réseau de N applicateurs permettrait d'envisager le dépôt de diamant sur de grandes surfaces et donc la synthèse simultanée d'une grande quantité de smart-windows.

III.7 Conclusion du chapitre

Ce chapitre nous a permis d'aborder le processus de fabrication des smart-windows dans sa globalité. Deux designs sont retenus : "sandwich" et "smart-window". Ce dernier est réalisé en diamant polycristallin et monocristallin. La mise en forme de ces dispositifs depuis le dépôt de la cible en tungstène jusqu'à l'intégration d'un détecteur a été présentée.

Afin de préparer une éventuelle industrialisation du procédé, le synthèse a été optimisée et permet la fabrication simultanée de cinq smart-windows avec une vitesse de croissance allant jusqu'à 2 $\mu\text{m}/\text{h}$. La texture obtenue sur les films de diamant permet le dépôt d'une cible en tungstène sur une surface peu rugueuse. Une croissance séquentielle a permis de mieux comprendre la formation de cette texture. De nouveaux outils ont été développés pour le suivi *in situ* et en temps réel de la synthèse permettant l'étude de la texturation. Ils permettent un meilleur contrôle et un meilleur suivi du procédé de croissance.

La dernière étape permettant le montage des dispositifs dans un tube à rayons X est le brasage des smart-windows. À l'aide d'un procédé d'assemblage du diamant sur cuivre, plusieurs prototypes de smart-windows ont été brasés et montés dans un tube X expérimental fonctionnel. Ces dispositifs assurent l'étanchéité du système à l'UHV, la dissipation thermique et la mesure du flux de photons.

Finalement, nous avons exploré une nouvelle méthode de synthèse du diamant par PECVD pour la croissance sur de grandes surfaces. Les premiers tests de croissance démontrent la possibilité de synthétiser du diamant polycristallin à l'aide de sources matricielles à 352 MHz. Nous pouvons donc envisager la fabrication simultanée d'un grand

nombre de smart-windows. Le chapitre suivant décrira les différentes caractérisations réalisées sur les dispositifs fabriqués.

Chapitre IV

Caractérisations expérimentales des smart-windows

Sommaire

IV.1 Introduction	153
IV.2 Évaluation des performances standard d'une fenêtre polycristalline	153
IV.2.1 Tenue mécanique des smart-windows	153
IV.2.1.1 Développement d'un banc expérimental	153
IV.2.1.2 Mesure de la contrainte à rupture du matériau synthétisé	155
IV.2.2 Résistance à la fatigue	158
IV.2.3 Mesure de la déflexion	159
IV.2.4 Transparence des fenêtres fabriquées	160
IV.2.4.1 Source monochromatique SOLEX pour la mesure de la transmission	160
IV.2.4.2 Spectre d'une smart-window polycristalline	161
IV.3 Caractérisations électriques sous flux de rayonnement X	163
IV.3.1 Dispositif expérimental	163
IV.3.1.1 Montage du détecteur	163
IV.3.1.2 Environnement de mesure	163
IV.3.2 Étude des caractéristiques I(V)	164
IV.3.2.1 Test de chaque configuration	164
IV.3.2.2 Influence de la température	166
IV.3.3 Réponse temporelle	169
IV.3.4 Linéarité de la réponse	172
IV.3.5 Discussion	173
IV.4 Caractérisation sous flux électronique à basse énergie	175
IV.4.1 Développement d'un EBIC expérimental	175
IV.4.1.1 Montage expérimental	175
IV.4.1.2 Contribution des électrons secondaires	176
IV.4.2 Analyse des résultats	178
IV.4.2.1 Réponse temporelle du détecteur	178

IV.4.2.2	Variation de la tension d'accélération du faisceau . . .	180
IV.4.3	Cartographie 2D en courant	181
IV.5	Caractérisation des smart-windows dans un tube X expérimental	183
IV.5.1	Fonctionnement en environnement représentatif	183
IV.5.1.1	Montage expérimental "Gated diode"	183
IV.5.1.2	Dispositifs étudiés	185
IV.5.2	Analyse des résultats	185
IV.5.2.1	Caractéristique I(V)	185
IV.5.2.2	Linéarité de la réponse	186
IV.5.2.3	Variation de la tension d'accélération	187
IV.5.2.4	Étude de la zone d'émission	187
IV.5.2.5	Calibration de la réponse du diamant	188
IV.5.3	Mise en place d'une régulation du débit de dose délivré	190
IV.6	Conclusion du chapitre	195

IV.1 Introduction

Dans le précédent chapitre, la synthèse de fenêtres innovantes en diamant a été optimisée afin d'augmenter la vitesse de croissance et de réaliser des films texturés. Le développement de nouveaux outils de suivi ont permis de contrôler en temps réel l'évolution de la morphologie des films synthétisés. Ce chapitre présente la caractérisation des fenêtres fabriquées du point de vue de leur résistance mécanique, de leur transparence optique et de leurs performances de détection.

Dans la première partie, les performances des smart-windows polycristallines sont étudiées du point de vue des critères d'une fenêtre classique. Pour ce faire, un montage mécanique est développé pour caractériser leur résistance à une pression différentielle de 1 bar. La transmission des fenêtres est ensuite étudiée à l'aide d'une source monochromatique de rayons X.

Dans la deuxième partie, nous étudions les performances de la fonction de détection. En premier lieu, nous étudions le cas des smart-windows monocristallines et polycristallines placées dans un flux de rayons X. Les performances électroniques de chaque configuration sont présentées.

La réponse des détecteurs dans un environnement plus proche du tube à rayons X est ensuite caractérisée. Pour ce faire, un faisceau d'électrons impactant la cible est utilisé pour générer le flux de rayons X à travers la fenêtre.

Enfin, la dernière partie est consacrée à l'intégration de dispositifs monocristallins dans un tube à rayons X expérimental. Cette étape sera l'occasion de nous intéresser à l'asservissement du courant du tube sur le signal de la smart-window afin de contrôler le débit de dose du tube.

IV.2 Évaluation des performances standard d'une fenêtre polycristalline

IV.2.1 Tenue mécanique des smart-windows

IV.2.1.1 Développement d'un banc expérimental

Afin d'éviter les phénomènes d'interception du faisceau électronique, la pression à l'intérieur d'un tube à rayons X est de 10^{-8} - 10^{-10} mbar. La fenêtre est donc soumise à une

IV.2 Évaluation des performances standard d'une fenêtre polycristalline

pression différentielle de 1 bar. Un montage de tests en gonflement (*bulging* en anglais) a été développé afin de qualifier la résistance mécanique des fenêtres. Il permet de soumettre des films de diamant à une pression différentielle de 1 bar de manière répétée et de mesurer leur déformation. La sollicitation mécanique répétée permet de simuler les conditions mécaniques du montage du tube (étuvage, mise sous vide progressive et périodique). Les fenêtres sont collées sur une pièce métallique percée afin de simuler le brasage des pièces. Cette pièce est montée sur une enceinte qui possède une jauge de pression de type *Baratron*[®]. L'étanchéité est assurée par un joint *Viton*[®]. Une pompe à membrane permet de faire le vide dans l'enceinte et d'atteindre une pression de 10^{-2} mbar. Ce niveau de vide permet d'évaluer les performances mécaniques des smart-windows. Un système de vannes pneumatiques commandées par un automate *Crouzet*[®] permet de répéter la mise sous pression de la membrane.

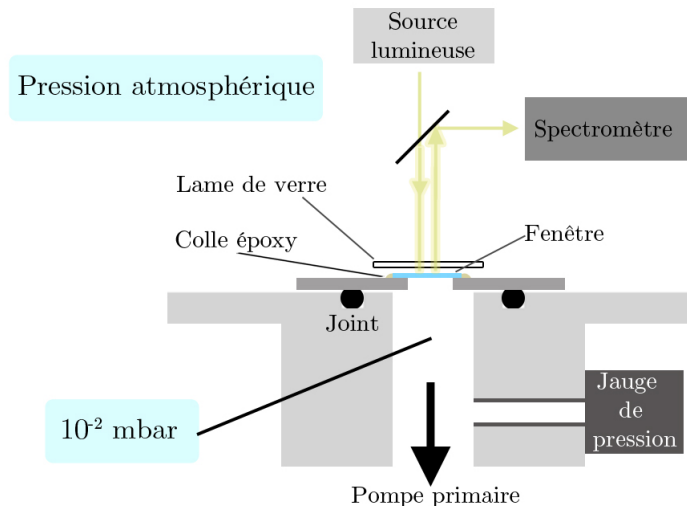


FIGURE IV.1 – Schéma du montage mécanique réalisé afin de caractériser la résistance mécanique des fenêtres fabriquées.

Les montages de *bulging* utilisent généralement un interféromètre laser pour mesurer la déflexion des membranes mais cela n'est pas adapté à la mesure de larges fenêtres [23]. Afin de mesurer la déflexion de la fenêtre en fonction de la pression, nous utilisons un montage d'interférométrie fabriqué pour l'occasion. Il est composé d'une source de lumière blanche, d'une fibre optique, d'une lame de verre et d'un spectromètre à réseau. Une lame d'air est créée en approchant la lame de verre au contact de la fenêtre et certaines longueurs d'ondes sont éteintes par phénomène d'interférence. Le spectromètre permet d'obtenir un spectre caractéristique de l'épaisseur de la lame d'air. Lorsque la fenêtre se déforme, l'épaisseur de la lame d'air augmente et la figure d'interférence est modifiée. La déflexion

D se calcule alors à partir de la mesure de deux minimaux successifs du spectre obtenu (cf. figure IV.2) :

$$D = 0,25 \left(\frac{1}{1/\lambda_{min}^{n+1} - 1/\lambda_{min}^n} \right) - e_0 \quad (4.1)$$

L'épaisseur initiale de la lame d'air se note e_0 . Elle est mesurée lorsque aucune pression différentielle n'est appliquée. La fibre optique permet de mesurer cette déflexion au centre de la membrane sur un disque d'environ $500 \mu m$ de diamètre.

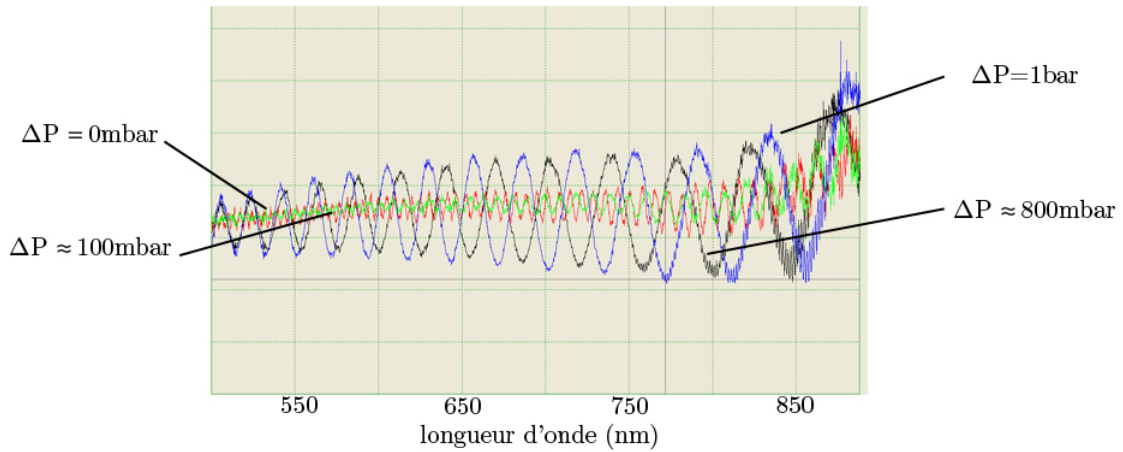


FIGURE IV.2 – Interférences obtenues pour différentes pressions différentielles.

IV.2.1.2 Mesure de la contrainte à rupture du matériau synthétisé

Pour mesurer la contrainte à rupture du diamant, nous utilisons des membranes de diamant suffisamment fines pour qu'elles ne résistent pas à la pression imposée. La pression différentielle à laquelle la membrane rompt est mesurée. La relation du Chapitre 2 permettant le calcul de la contrainte à rupture à partir des hypothèses equi-biaxiales est rappelée :

$$\sigma_{rupt}^3 = \frac{E}{(1 - \nu)} \frac{P_{rupt}^2 R^2}{24t^2} \quad (4.2)$$

Cette relation est valide dans un régime de forte déformation qui est celui de la rupture. Une fois la pression à rupture P_{rupt} mesurée, nous calculons σ_{rupt} à partir des données géométriques R (rayon d'ouverture de la pièce métallique) et t (épaisseur de la membrane). Pour vérifier la fiabilité de cette méthode, nous utilisons un matériau dont la contrainte à rupture est connue.

Évaluation de la contrainte à rupture de l'aluminium

Des feuilles d'aluminium calibrées de 0,8 et 2 μm d'épaisseur sont utilisées. La contrainte à rupture donnée par le fabricant est de 130-195 MPa. Des brides métalliques d'ouverture 1, 2, 3 et 4 mm sont réalisées afin de tester ce montage avec plusieurs rapport R/t . Le module de Young de l'aluminium est pris égal à 70,6 GPa et le coefficient de Poisson utilisé est de 0,35 [298]. La contrainte à rupture est calculée pour différents ratios R/t . Nos résultats sont donnés sur la figure IV.3.

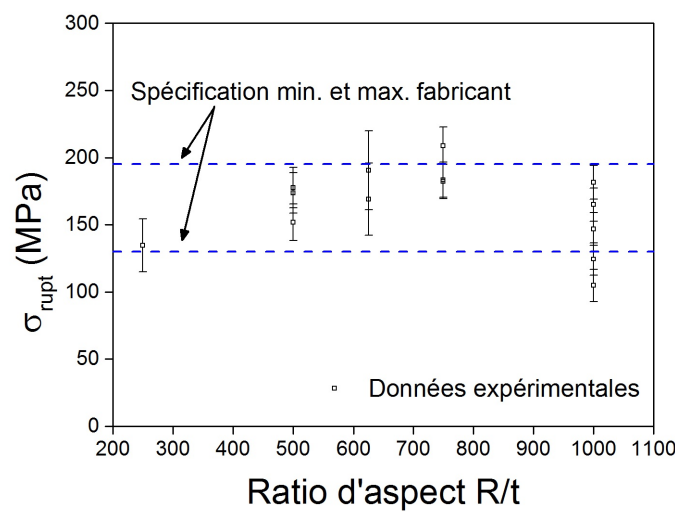


FIGURE IV.3 – Contrainte à rupture de l'aluminium mesurée sur treize échantillons de différentes dimensions.

Les barres d'erreurs correspondent à l'erreur cumulée sur le rayon d'ouverture et sur la pression différentielle. Pour la mesure du rayon, elle est estimée à 0,1 mm et pour la pression différentielle à 20 mbar. Les valeurs de contrainte à rupture mesurées sont en accord avec les données du fournisseur.

Contrainte à rupture de membranes en diamant

Afin de caractériser la résistance des fenêtres fabriquées nous utilisons des membranes de diamant de synthèse de 1,5 μm d'épaisseur. Un film de diamant de l'épaisseur désirée est déposé sur un substrat en silicium. Ce dernier est ensuite gravé par RIE pour libérer une membrane de 2 mm de diamètre.

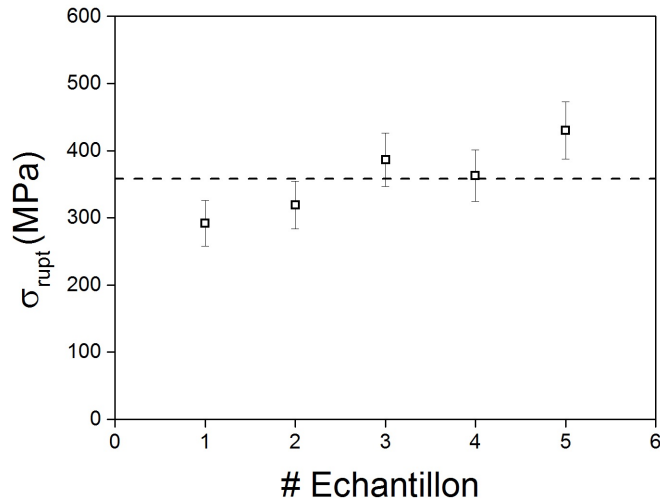


FIGURE IV.4 – Contrainte à rupture mesurée sur cinq membranes de diamant de 2 mm de diamètres et $1,5\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. Ces fenêtres sont issues de la même synthèse.

Ces membranes sont utilisées pour mesurer la contrainte à rupture du matériau. Pour les calculs, le module de Young est pris égal à 1050 GPa et le coefficient de Poisson à $0,07$ [115]. La figure IV.4 présente la contrainte à rupture mesurée sur cinq membranes de diamant issues d'une même synthèse. Les barres d'erreurs correspondent à l'incertitude cumulée de 7% sur l'épaisseur, de 5% sur le rayon et de $3,2\%$ à $5,8\%$ sur la pression. Une approche différentielle est utilisée pour le calcul de ces incertitudes. Sur les cinq mesures, une dispersion de près de 150 mbar est observée. Elle provient d'une part de l'incertitude expérimentale et d'autre part de la rupture des membranes qui est un phénomène stochastique. Malgré cette dispersion, la contrainte à rupture du matériau synthétisé est prise égale à la moyenne des cinq mesures, soit 358 MPa . Cette valeur est dans la gamme des valeurs relevées dans la littérature [24, 25]. Elle est utilisée au Chapitre 2 pour dimensionner les fenêtres et trouver le rapport d'aspect maximum. Cette étude ne tient cependant pas compte de la précontrainte du film qui est légèrement compressive. La résistance d'un film non contraint doit donc être légèrement inférieure.

Pour tenir compte des résultats du chapitre 2 et afin d'assurer la résilience mécanique des fenêtres, nous synthétisons des fenêtres de 8 mm de diamètre et de $100\ \mu\text{m}$ d'épaisseur. Ces fenêtres possèdent un rapport d'aspect de 40 et résistent à une différence de pression de 1 bar . Cependant, il arrive qu'une fenêtre de $100\ \mu\text{m}$ d'épaisseur présente un défaut et qu'elle cède prématurément. La figure IV.5 présente un cliché MEB de la tranche d'une fenêtre de $100\ \mu\text{m}$ après fracture.

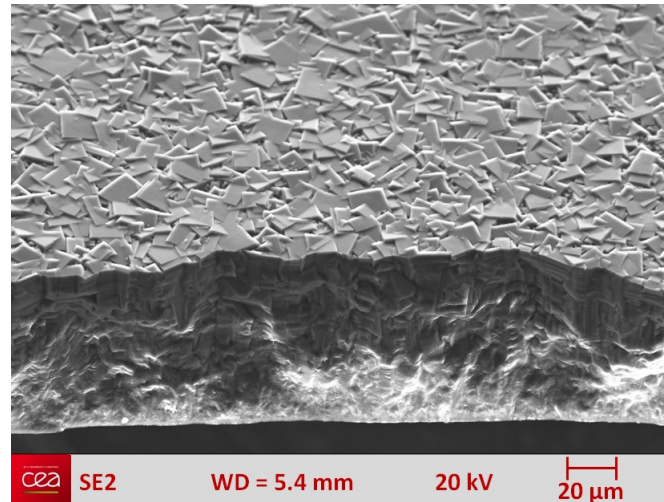


FIGURE IV.5 – Cliché MEB de la tranche d'une fenêtre en diamant texturée de $100\ \mu\text{m}$ d'épaisseur après fracture.

Ainsi, les fenêtres fabriquées résistent au différentiel de pression imposé mais la présence de défauts localisés sur les bords peut fragiliser les films. Afin de tester leur fiabilité, un test de fatigue mécanique est développé.

IV.2.2 Résistance à la fatigue

Une déformation ou une contrainte variable dans le temps peut entraîner l'apparition de fissures même si la contrainte est inférieure à σ_{rupt} : il s'agit du phénomène de fatigue mécanique. En théorie, la pression d'un tube à rayons X en fonctionnement ne varie pas. Donc la contrainte mécanique sur une fenêtre ne doit pas évoluer. Cependant, le montage et l'étuvage d'un tube est un procédé cyclique de dégazage à quelques centaines de degrés. Cette étape est donc susceptible d'induire des contraintes dans la fenêtre.

Pour évaluer la robustesse des fenêtres fabriquées, nous les soumettons à des cycles de pression différentielle de 1 bar grâce à l'automatisation du montage (voir figure IV.6). Trois fenêtres fabriquées ont été testées et présentent une résistance au-delà de 10^4 cycles de pression. Ce résultat est au-delà du nombre de cycles effectués lors du montage. Les fenêtres doivent donc résister facilement à la fatigue mécanique imposé par le montage du tube. Un plus grand nombre de cycle est atteignable mais demande de monopoliser le banc de test pendant plusieurs semaines et n'est pas nécessaire pour conclure que les fenêtres résisteront au montage et à l'étuvage du tube.

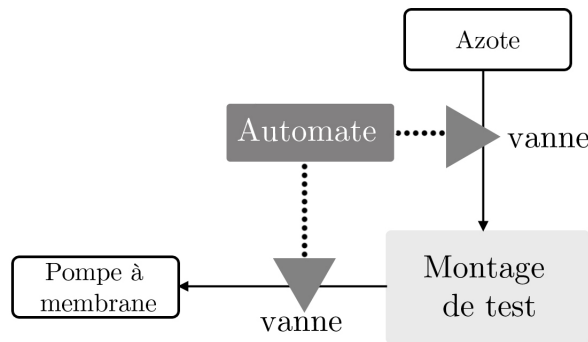


FIGURE IV.6 – Schéma du montage de test en fatigue des fenêtres.

Par ailleurs, une fenêtre de 8 mm de diamètre, brasée sur une pièce de cuivre a été testée avec ce dispositif afin de vérifier si le brasage n'induisait pas de contraintes locales. Cet échantillon présente également une résistance au-delà de 10^4 cycles. De plus, il a été utilisé pour tester l'étanchéité de la fenêtre sur une enceinte UHV. Un vide de 10^{-9} mbar est atteint.

IV.2.3 Mesure de la déflexion

Afin d'évaluer la déformation des fenêtres, la déflexion au centre d'une membrane de $32\ \mu\text{m}$ d'épaisseur et de 8 mm de diamètre est mesurée à différentes pressions à l'aide des figures d'interférences de la figure IV.2. Cette fenêtre est issue d'une seule croissance. Elle possède donc une face de nucléation lisse et une face de croissance rugueuse. Du fait de la diffusion de la lumière, seule la face lisse peut être utilisée pour la mesure de déflexion. La fenêtre est donc caractérisée en position concave.

La déflexion mesurée à 1 bar est d'environ $4\ \mu\text{m}$ (cf. figure IV.7). Cette valeur est inférieure à la déflexion calculée lors du dimensionnement du Chapitre 2. Ceci s'explique par la présence d'une déflexion initiale positive (car position concave). Un ajustement des données au modèle de Timoshenko est également représenté sur la figure IV.7. Cet ajustement réalisé pour $E=1050\text{ GPa}$, $R=4\text{ mm}$, $t=32\ \mu\text{m}$ et $\nu=0,07$ nous permet de déterminer la contrainte initiale $\sigma_0=20\text{ MPa}$.

Les fenêtres synthétisées résistent à la pression différentielle de 1 bar. Leur étanchéité est compatible avec une utilisation comme fenêtre d'enceinte UHV. Elles résistent à des cycles de pression répétés et se déforment de quelques micromètres seulement. Nous souhaitons maintenant évaluer les performances optiques de ces fenêtres.

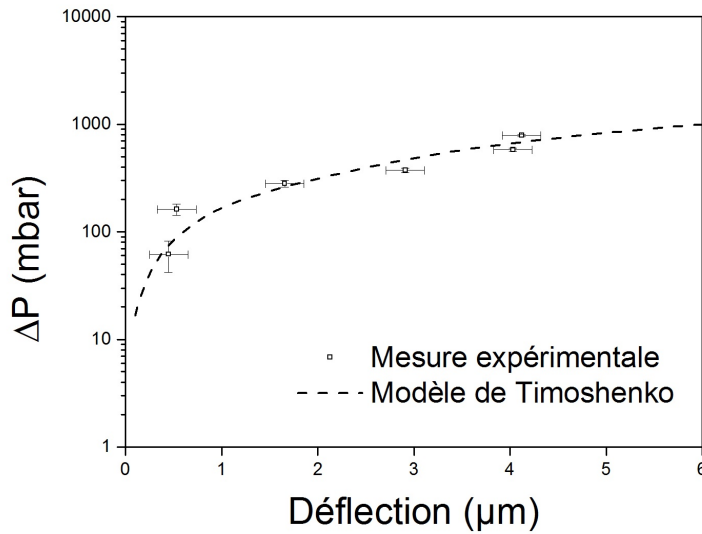


FIGURE IV.7 – Mesure de la déflexion d'une fenêtre de $32 \mu m$ d'épaisseur soumise à une pression différentielle croissante (points). Le modèle de Timoshenko est tracé pour comparaison (ligne). Les paramètres utilisés sont $E=155 \text{ GPa}$, $\nu=0,07$, $t=32 \mu m$ et $R=4 mm$.

IV.2.4 Transparence des fenêtres fabriquées

Bien que plus absorbant que le béryllium, le diamant présente une bonne transmission dans la gamme d'énergie [20-400 keV] utilisée pour des applications d'imagerie par rayons X [299]. Cependant, il est davantage absorbant en dessous de 10 keV. C'est pourquoi nous souhaitons mesurer le spectre de transmission d'une smart-window en diamant aux basses énergies et vérifier la transparence des smart-windows synthétisées.

IV.2.4.1 Source monochromatique SOLEX pour la mesure de la transmission

Afin de mesurer la transmission d'une fenêtre, nous utilisons une source monochromatique de rayons X appelée SOLEX [300, 301]. Comme le présente la photo IV.8, cette source est munie d'un monochromateur $\theta - 2\theta$ et d'une chambre à ionisation permettant la mesure du flux. Le tube à rayons X et le monochromateur sont montés sur un système rotatif qui permet d'obtenir une radiation monochromatique dans une direction fixe.

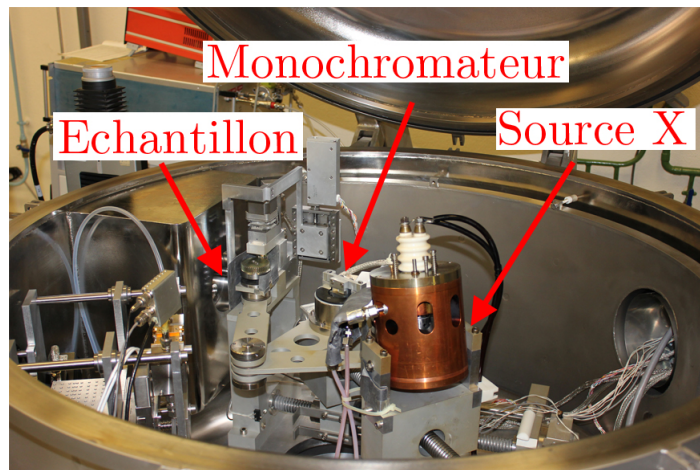


FIGURE IV.8 – Photo du dispositif SOLEX utilisé pour les mesures de transmission. Une faisceau de rayons X est monochromatisé à une longueur d’onde donnée avant de frapper l’échantillon. Un détecteur collecte l’intensité transmise derrière l’échantillon.

IV.2.4.2 Spectre d’une smart-window polycristalline

Une smart-window polycristalline est placée dans cet ensemble expérimental. Elle comporte un buffer de $170\ \mu\text{m}$ d’épaisseur, une électrode enterrée en diamant dopé de $200\ \text{nm}$ d’épaisseur, une couche de diamant intrinsèque de $30\ \mu\text{m}$ d’épaisseur et un contact supérieur en DLC de $200\ \text{nm}$ d’épaisseur. Son épaisseur totale, mesurée au pied à coulisse, est de $200\ \mu\text{m} \pm 20\ \mu\text{m}$.

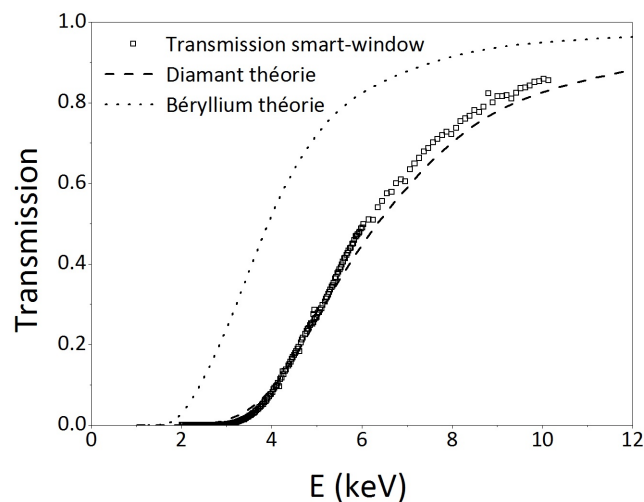


FIGURE IV.9 – Spectre de transmission d’une fenêtre polycristalline. Les spectres théoriques du diamant (ép. $200\ \mu\text{m}$) et du béryllium (ép. $200\ \mu\text{m}$) sont représentés en pointillés noirs.

IV.2 Évaluation des performances standard d'une fenêtre polycristalline

Tous les éléments de cette smart-window sont constitués de carbone. L'angle d'incidence du faisceau sur le monochromateur est modifié afin de faire varier l'énergie du faisceau incident avec un pas de 25,1 eV. L'intensité mesurée par la chambre à ionisation est alors enregistrée en fonction de l'énergie du faisceau (voir figure IV.9).

La transmission théorique de ce film peut être calculée à partir de la loi de Beer-Lambert et des coefficients d'atténuation massiques du diamant [69]. Elle est également représentée sur la figure IV.9 avec la transmission théorique d'une fenêtre en béryllium de la même épaisseur. Cependant, le module élastique du béryllium est environ trois fois plus faible que celui du diamant. Une épaisseur plus importante doit donc être utilisée pour obtenir la même résistance mécanique. Cet aspect doit être pris en compte pour comparer les transmissions du béryllium et du diamant [302].

Les mesures expérimentales correspondent au spectre théorique du diamant, à l'erreur de mesure d'épaisseur près. Nous observons que la transmission atteint 80 % dès 8,8 keV. Bien qu'elle n'ait pas été vérifiée au-dessus de 10 keV, la différence de transmission entre diamant et béryllium s'estompe dès que l'énergie augmente. Cette différence de transmission théorique est inférieure à 1 % au-delà de 20 keV pour une épaisseur de 200 μm . En imagerie, un filtre en aluminium est très souvent utilisé en plus de la fenêtre en béryllium afin d'éliminer les basses énergies qui peuvent entraîner une perte de contraste. La différence de transmission entre diamant et béryllium aux basses énergies pourrait, en ce sens, être considérée comme un avantage.

Nous avons pu voir grâce à cette partie que la transparence au rayonnement et les performances mécaniques des smart-windows permettent de répondre à la fonction standard d'une fenêtre de tube à rayons X. La contrainte à rupture des fenêtres fabriquées est de 358 MPa et dépend de la qualité cristalline des films. Ceux-ci ont montré une bonne résistance à la fatigue avant et après brasage. À épaisseur égale, la transmission d'une smart-window est similaire à celle d'une fenêtre en béryllium au-delà de 20 keV. Par ailleurs, les meilleures propriétés mécaniques du diamant permettent d'utiliser des fenêtres plus fines, donc moins absorbantes. L'efficacité thermique des fenêtres n'a pas été évaluée durant cette thèse car les résultats sont fortement dépendants de la qualité cristalline du matériau fabriqué et de la méthode expérimentale employée. Une modélisation approfondie réalisée au Chapitre 2 a tout de même permis de mettre en évidence l'avantage de ce matériau par rapport au béryllium. Les smart-windows en diamant représentent une innovation technologique grâce à l'intégration de la fonction de détection du

flux de photons en ligne. Afin de caractériser plus en profondeur les dispositifs fabriqués, nous nous intéressons dans la partie suivante à la réponse du détecteur sous irradiation X.

IV.3 Caractérisations électriques sous flux de rayonnement X

IV.3.1 Dispositif expérimental

IV.3.1.1 Montage du détecteur

Dans un premier temps, les électrodes des smart-windows sont connectées électriquement à l'âme centrale d'un câble SMA. Cette étape permet de relier le dispositif à un électromètre de type *Keithley*[®] 6517A. Cet appareil est utilisé pour polariser le détecteur et mesurer le courant traversant les deux électrodes. Les fils utilisés pour relier l'échantillon et le SMA sont en alliage d'aluminium et mesurent $100\ \mu m$ de diamètre. Ils permettent de minimiser l'effet photoélectrique des câbles soumis au rayonnement. Ils sont collés à la colle graphite sur les électrodes et le SMA. La colle graphite, composée principalement de carbone, possède un faible numéro atomique et permet de minimiser les perturbations sur la mesure de débit de dose (notamment par rapport à la laque d'argent). Comme le montre la figure IV.10, l'ensemble est ensuite moulé dans une matrice polymère de PDMS afin d'éviter les courants d'ionisation autour des fils [183].

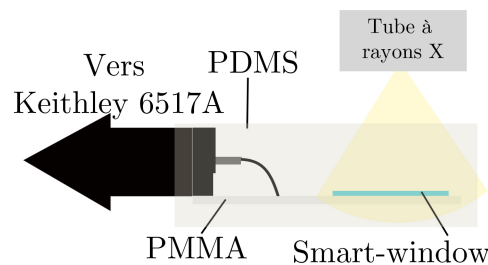


FIGURE IV.10 – Schéma du montage d'une smart-window pour les tests sous irradiation.

IV.3.1.2 Environnement de mesure

Les mesures sous irradiation X sont réalisées avec deux tubes à rayons X différents. Le premier est un tube *KEVEX* 50 kV-1 mA équipé d'un obturateur mécanique. Il est utilisé pour mesurer le rapport signal sur bruit (S/N) de chaque configuration et leur temps de réponse. Le second est un tube microfocus *Thales Hawkeye130* fabriqué par TED.

IV.3 Caractérisations électriques sous flux de rayonnement X

Il fonctionne jusqu'à $400\mu A$ et $130 kV$. Ce tube est placé dans une cage plombée et son environnement permet de placer un système de chauffage pour les mesures de détection en température. Les échantillons sont placés à $2 cm$ de la fenêtre des tubes à rayons X.



FIGURE IV.11 – Photo des deux tubes à rayons X utilisés pour caractériser les smart-windows.

IV.3.2 Étude des caractéristiques I(V)

Dans un premier temps nous souhaitons tester les caractéristiques I(V) en température des trois configurations. Les contacts utilisés sont résumés dans le tableau IV.1.

Échantillon	Configuration	Nature des contacts	Épaisseur du détecteur
@1152	mono sandwich	Aluminium-Aluminium	$500 \mu m$
@1793	poly smart-window	Diamant dopé-Aluminium	$30 \mu m$
@2289	mono smart-window	Diamant dopé-Aluminium	$\simeq 30 \mu m$

TABLE IV.1 – Résumé des trois configurations testées sous irradiation X.

IV.3.2.1 Test de chaque configuration

Pour chaque configuration, la caractéristique I(V) du détecteur est enregistrée pour une ou plusieurs fenêtres. Les irradiations sont réalisées à $50 kV$ et $1 mA$. La polarisation est appliquée sur l'électrode supérieure.

Configuration monocristalline sandwich

Les échantillons en configurations monocristallines "sandwich" sont constitués d'un diamant monocristallin de qualité électronique et de deux électrodes en aluminium de $200 nm$

d'épaisseur. L'aluminium est choisi pour son faible numéro atomique et donc sa faible absorption du rayonnement.

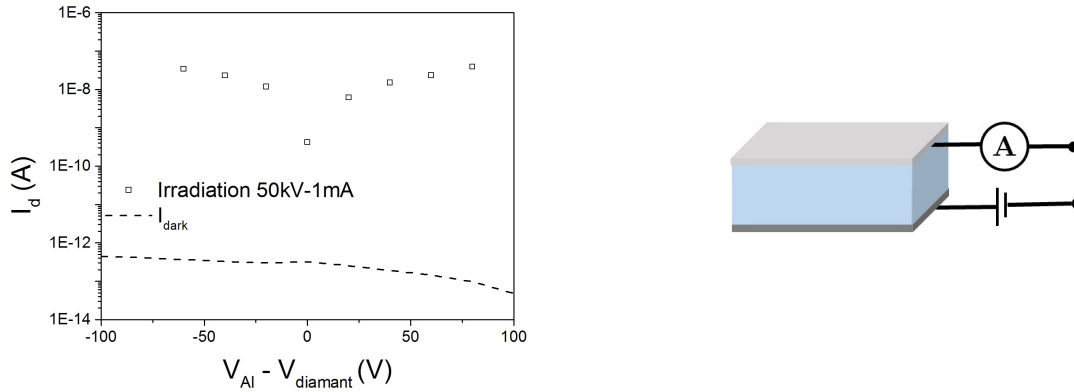


FIGURE IV.12 – Caractéristique $I(V)$ du détecteur “sandwich” monocristallin.

Afin de réaliser un contact ohmique, le diamant est oxydé chimiquement avant le dépôt des contacts [114]. Comme le montre la figure IV.12, le courant d’obscurité du détecteur est très faible ($< 10^{-12}$ A) et ne varie quasiment pas avec la tension. Lors de l’irradiation, les porteurs générés dans le volume du diamant peuvent être collectés sur l’une ou l’autre des électrodes selon le sens de la polarisation. Le rapport signal/bruit à 0 V est de 1300 et augmente avec la tension appliquée. Il atteint 4.10^5 à 80 V.

Configuration polycristalline “smart-window”

Pour les configurations “smart-window”, l’électrode enterrée est en diamant dopé tandis que le contact supérieur est en aluminium. Le niveau élevé de dopage de l’électrode enterrée ($> 5.10^{20} \text{ cm}^{-3}$) permet la création d’un contact quasi-métallique.

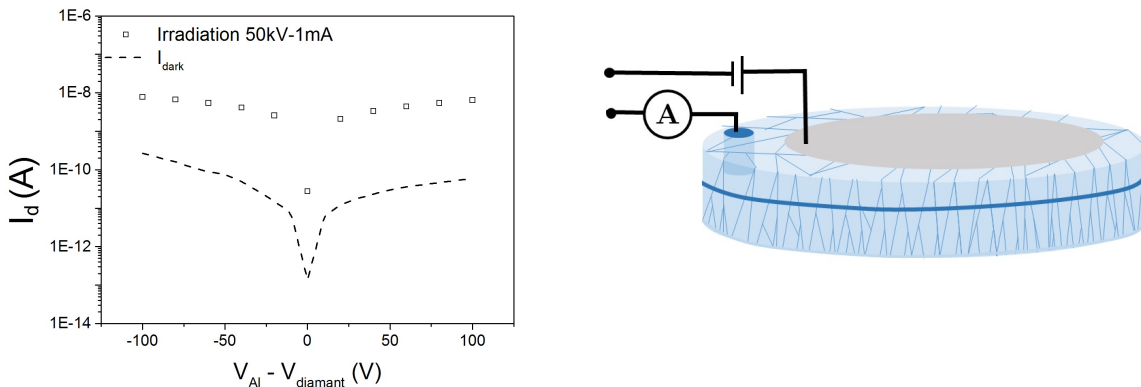


FIGURE IV.13 – Caractéristique $I(V)$ du détecteur en configuration “smart-window” polycristalline.

Comme le montre la figure IV.13, le courant d’obscurité de ce dispositif est bien plus élevé que pour la configuration précédente. Cet effet peut s’expliquer par la présence des joints de grains qui perturbent les phénomènes de transport [303]. Le courant sous irradiation est supérieur au courant d’obscurité de près de deux ordres de grandeur lorsque la polarisation est faible. Le rapport S/N diminue lorsque la polarisation augmente.

Configuration monocristalline “smart-window”

Deux échantillons en configuration monocristalline “smart-window” ont été réalisés. La caractéristique $I(V)$ est présentée sur la figure IV.14. Un fort courant de fuite est présent aux tensions positives et négatives. Nous pensons que ce courant de fuite est dû à un ou plusieurs défauts dans la couche de diamant intrinsèque. Ce dispositif n’est donc pas utilisable sous polarisation.

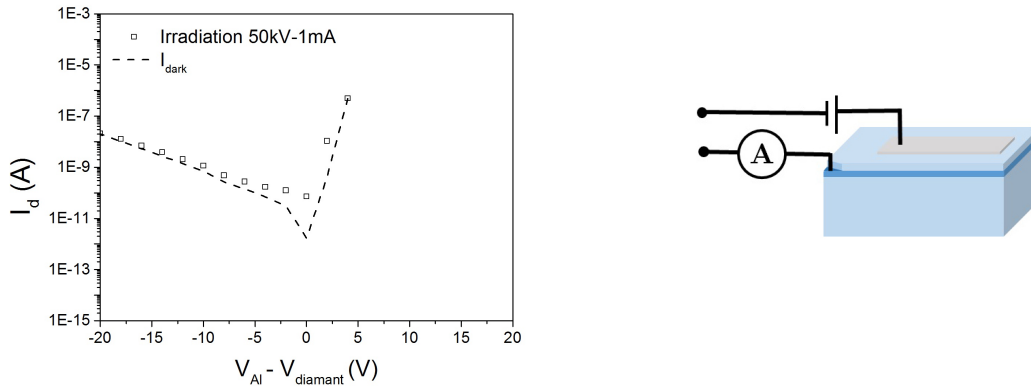


FIGURE IV.14 – Caractéristique $I(V)$ du détecteur en configuration “smart-window” monocristalline.

Les caractéristiques $I(V)$ des dispositifs fabriqués ont permis de mettre en évidence que la première configuration présente le meilleur rapport signal/bruit et que le détecteur peut-être polarisé entre -100 V et $+100\text{ V}$. Son rapport signal/bruit augmente avec la polarisation appliquée. La deuxième configuration présente un courant d’obscurité plus important et le rapport signal/bruit diminue avec la polarisation. La dernière configuration présente un fort courant de fuite et doit donc être utilisée à 0 V uniquement. Nous nous intéressons maintenant à l’évolution de cette réponse en fonction de la température.

IV.3.2.2 Influence de la température

La puissance thermique dissipée dans la cible et dans la fenêtre génère de fortes températures localisées près de la source. La modélisation thermique a montré que le diamant

au contact de la cible pouvait atteindre jusqu'à 300-400°C pour des conditions de fonctionnement de 2-4 W et un spot de 2 μm . Les configurations "smart-window" possèdent un buffer qui absorbe cette charge thermique et isole le détecteur de ces fortes températures. Cet effet est donc prédominant dans la configuration "sandwich".

Une augmentation locale de température peut donner lieu à plusieurs effets :

- Diminution de la mobilité des porteurs ;
- Génération thermique de porteurs ;
- Activation des phénomènes de piégeage/dépiégeage.

La densité de porteurs dans un matériau semiconducteur intrinsèque comme le diamant est décrit par une distribution de Boltzmann :

$$n_i = \sqrt{N_C N_V} e^{-\frac{E_g}{2kT}} \quad (4.3)$$

Les densités d'états dans les bandes de conduction et de valence sont notées N_C et N_V . E_g représente l'énergie du gap, T la température en Kelvin et k la constante de Boltzmann. Le gap du diamant étant élevé, la génération thermique de porteurs est très faible à température ambiante.

La mobilité des porteurs varie, elle, avec la température à cause des interactions électrons-phonons dans le réseau. La mobilité des électrons et des trous chute d'environ 80% entre 25°C et 200°C dans le diamant monocristallin [114, 304].

Le piégeage des porteurs par une impureté du réseau cristallin est un phénomène qui est activé thermiquement. En effet, certains défauts structuraux, ponctuels ou certaines impuretés induisent un niveau supplémentaire dans le schéma de bande du diamant. Le bore, par exemple, induit un niveau énergétique peu profond à 0,37 eV de la bande de valence. L'azote induit quant à lui un niveau profond à 2 eV de la bande de valence et les lacunes un niveau proche à 1,7 eV. Alors que la conduction par les porteurs intrinsèques est quasiment impossible dans le diamant, la conduction par remplissage des niveaux pièges est possible à température ambiante. Les densités d'occupation de ces niveaux augmentent rapidement avec la température et peuvent donner lieu à un courant d'obscurité important. Ce phénomène donne également lieu à des artefacts dans la réponse temporelle du détecteur : overshoot, pumping, etc. [103, 305, 306]. Les joints de grains jouent un rôle important dans ce mécanisme de conduction activé thermiquement [303]

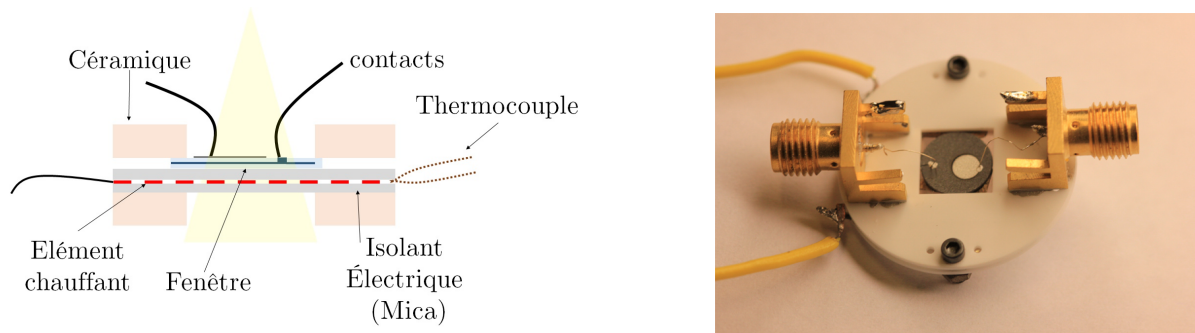


FIGURE IV.15 – Schéma de principe du montage chauffant (vue de côté) et photo (vue de face) du dispositif.

Afin de caractériser l'évolution du courant d'obscurité en fonction de la température, un montage chauffant est développé. Il comprend une connectique sur céramique, un thermocouple et un élément chauffant isolé du détecteur par une fine feuille de mica (voir figure IV.15). Ce montage permet de thermaliser l'ensemble d'un détecteur à une température comprise entre 25°C et 100°C. À cause de leurs faibles dimensions, les échantillons monocristallins ne peuvent être testés avec ce montage. La réponse du détecteur de la même fenêtre "smart-window" polycristalline est caractérisée afin d'obtenir une évolution qualitative du niveau de courant d'obscurité en fonction de la température. Les caractéristiques $I(V)$ présentées sur la figure IV.16.a ont été enregistrées sous obscurité et sous irradiation (70 kV et 400 μA) à 25°C, 40°C, 60°C et 80°C .

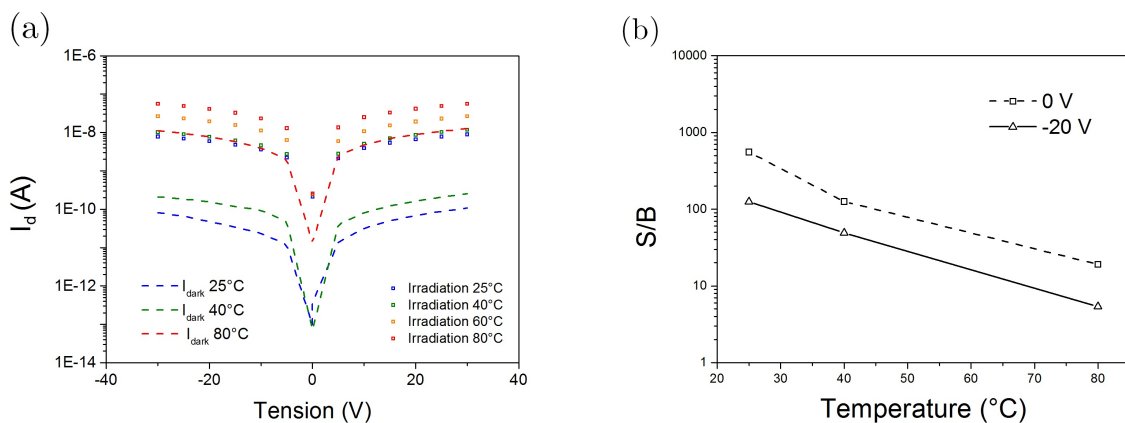


FIGURE IV.16 – *Figure a* : évolution de la caractéristique $I(V)$ d'une fenêtre "smart-window" polycristalline à différentes températures. *Figure b* : évolution du rapport signal/bruit en fonction de la température.

La caractéristique $I(V)$ sous obscurité est décalée vers le haut pour une température de 80°C. Ce phénomène est également observé pour les courbes sous irradiation mais dans

une moindre mesure. Cela entraîne une diminution du rapport S/N. La figure IV.16 démontre une augmentation conséquente de la conductivité du diamant à une température proche de 80°C. Des études de TSC ont montré que le diamant CVD possède des pièges profonds (activés autour de 270°C) et des pièges peu profonds (activés à la température ambiante et autour de 80°C) [103, 307]. C'est donc l'activation thermique des pièges qui est ici responsable de l'augmentation du courant.

Cet effet est préjudiciable au rapport S/N du détecteur (*cf.* figure IV.16.b). Ce rapport diminue avec la température à 0 V comme à -20 V. Une relation linéaire entre le logarithme du rapport S/N et la température peut être observée. Les pentes des deux courbes semblent identiques. Cela caractérise une même énergie d'activation pour les défauts quelle que soit la polarisation. Cette énergie dépend des défauts présents et donc du procédé de fabrication [103, 307, 308]. La dynamique de piégeage des porteurs se répercute également sur la réponse temporelle des détecteurs en diamant.

IV.3.3 Réponse temporelle

La dynamique du détecteur est un paramètre important puisqu'elle détermine si le signal mesuré est une image représentative du débit de dose émis par le tube. Elle est également importante pour la mise en place d'un asservissement entre le courant d'émission du tube et le courant du détecteur. L'étude des détecteurs de rayonnement en diamant a montré que cette dynamique est contrôlée par les défauts cristallins ou chimiques [82, 309]. Nous étudions la réponse d'un détecteur soumis à des échelons de rayons X pour chaque configuration. Les dispositifs sont soumis à 1h de pré-irradiation avant chaque mesure.

Configuration monocristalline “sandwich”

Les diamants monocristallins de qualité électronique sont utilisés pour la réalisation de dosimètres. Leur temps de réponse est généralement inférieur à la nanoseconde [310, 311]. Cependant, la présence de défauts entraîne l'apparition de plusieurs phénomènes largement décrits dans la littérature [103, 307, 312, 313, 314, 315, 316] :

- Le remplissage des défauts profonds entraîne l'augmentation progressive du courant jusqu'à ce que tous les pièges soient remplis (pompage ou *priming*).
- Dès les premiers instants d'une irradiation, le remplissage inhomogène des pièges peu profonds dans l'épaisseur du dispositif entraîne un effet de “polarisation” donnant lieu à un *overshoot* sur le signal. Celui-ci s'apparente à une décroissance de la réponse.

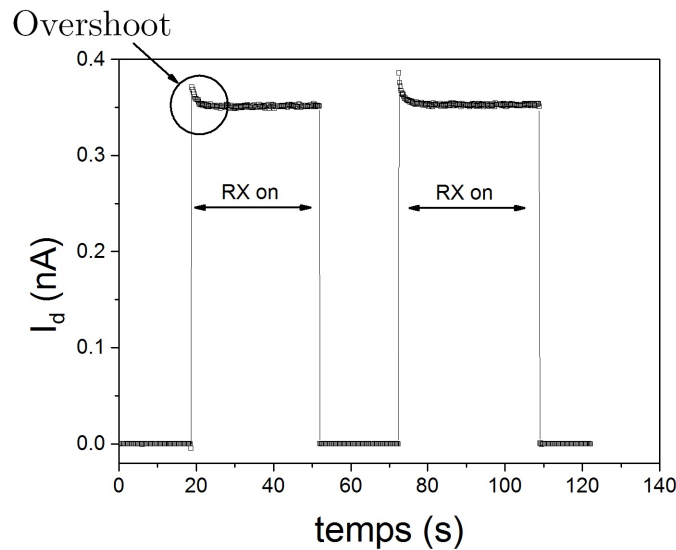


FIGURE IV.17 – Réponse temporelle à 25°C d’une fenêtre monocristalline “sandwich” polarisée à 0 V et soumise à des créneaux de rayons X (50 kV-1 mA).

Ces phénomènes dynamiques altèrent la réponse du détecteur. La figure IV.17 présente la réponse d’un échantillon monocristallin sur lequel un léger *overshoot* est visible. Le temps de réponse est inférieur à la période d’acquisition du système de mesure (200 ms). Il a été montré que la stabilité des détecteurs en diamant monocristallin pouvait atteindre 0,1 % sur une période d’étude de 15h [183].

Configuration polycristalline “smart-window”

Les phénomènes de piégeage présents dans le diamant monocristallin se retrouvent dans le diamant polycristallin. Les joints de grains jouent un rôle important dans la forme de la réponse temporelle. Le temps de montée à 95 % de la valeur stationnaire est cette fois de 21 s. C’est le temps qu’il faut pour atteindre l’équilibre électronique du détecteur.

La figure IV.18 présente cette réponse pour une polarisation de 0 V. Le courant atteint au bout de quelques dizaines de secondes est environ huit fois plus faible que dans la configuration monocristalline précédente. Le volume du détecteur est, quant à lui, trois fois plus faible. Ce phénomène est donc le résultat du piégeage des porteurs et également d’un plus petit volume de détection. La stabilité du signal a été étudiée pendant 4h30 à 0 V. L’écart-type des mesures divisé par la valeur moyenne du signal nous donne une valeur de stabilité de $4,4 \cdot 10^{-5}$.

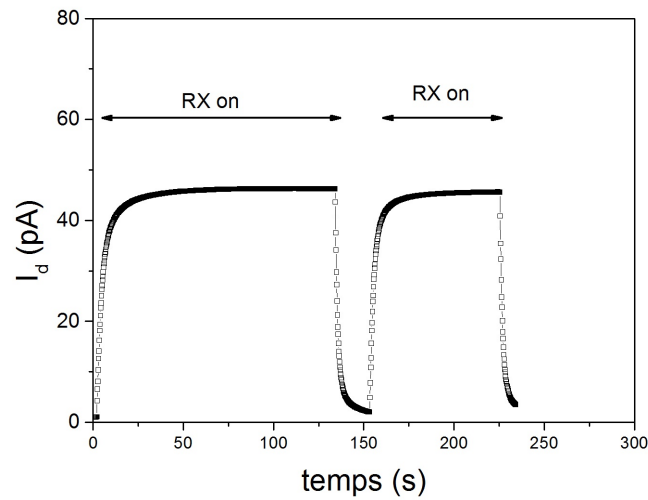


FIGURE IV.18 – Réponse temporelle d’une fenêtre polycristalline “smart-window” polarisée à 0 V et soumise à des échelons de rayons X (50 kV-1 mA).

La dynamique de réponse du détecteur dépend du champ électrique appliqué [103, 317]. La réponse à un créneau de rayons X est enregistrée et normalisée pour trois polarisations différentes (*cf.* figure IV.19). L’équilibre électronique est plus long à s’établir lorsque la polarisation est de +30 V ou de -5 V. La réponse la plus rapide est donc obtenue à 0 V.

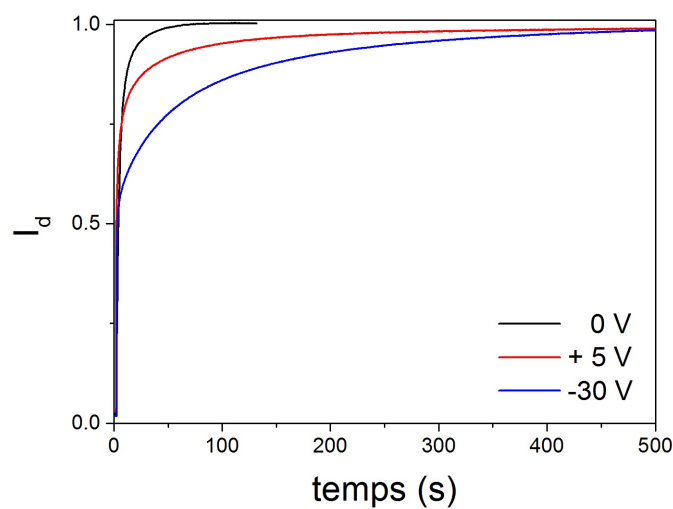


FIGURE IV.19 – Réponse temporelle normalisée d’une fenêtre polycristalline “smart-window” polarisée à 0 V, +5 V et -30 V pour une irradiation de 50 kV et 1 mA.

Configuration monocristalline “smart-window”

La dernière configuration étant monocristalline, elle doit présenter des caractéristiques similaires à celles de la configuration “sandwich”. Avec un temps de montée à 95% de 4,4 s (second créneau), les performances temporelles à 25°C sont intermédiaires entre les deux précédentes configurations.

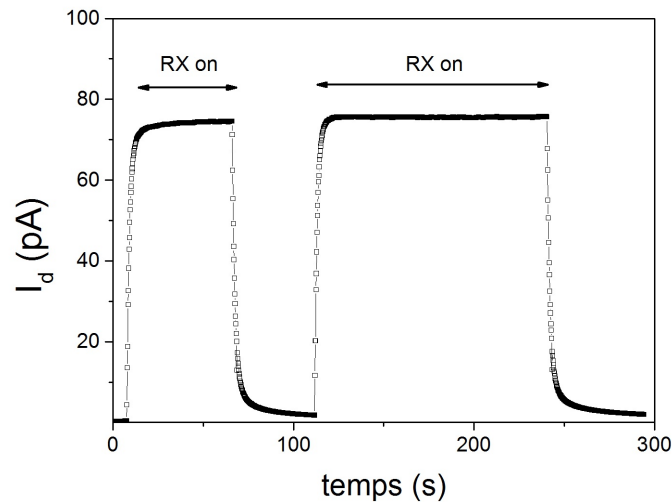


FIGURE IV.20 – Réponse temporelle d’une fenêtre monocristalline “smart-window” polarisée à 0 V et soumise à des échelons de rayons X (50 kV-1 mA).

La qualité du matériau fabriqué, notamment la présence de défauts structuraux liés à la reprise de croissance influe sur la réponse temporelle du détecteur. Le second créneau (figure IV.20) est plus rapide et plus stable que le premier à cause du remplissage progressif des pièges. Les caractéristiques $I(V)$ nous renseignent sur la réaction du dispositif à un champ électrique et les créneaux temporels nous renseignent sur le comportement du détecteur dans ses régimes transitoires. Afin de pouvoir mesurer le flux d’un tube avec un tel dispositif, celui-ci doit délivrer un courant proportionnel au flux de photons. Nous complétons donc l’étude des performances de ces smart-windows par une étude sous flux.

IV.3.4 Linéarité de la réponse

Comme le détaille la formule du Chapitre 2, le courant dans le diamant est proportionnel au flux de photons X. Celui-ci étant également proportionnel au courant du tube, la linéarité du détecteur peut être étudiée en traçant la réponse du détecteur en fonction du courant du tube (voir figure IV.21). Un indicateur de la linéarité de la réponse est

obtenu avec la relation de Fowler [318].

$$I_d = I_{dark} + K \cdot (I_{tube})^\Delta \quad (4.4)$$

Le coefficient de linéarité Δ dépend de la distribution des pièges dans le diamant [318]. Ce coefficient est de un pour une distribution homogène de pièges à travers le matériau. La linéarité de la réponse a été mesurée sur un échantillon monocristallin “sandwich” et sur l’échantillon polycristallin “smart-window”. Les deux configurations possèdent des coefficients de linéarité de 1,006 pour le monocristallin et de 1,239 sur le polycristallin. L’écart observé sur ce dernier est lié à la nature, à la quantité et à la distribution spatiale des défauts dans l’échantillon. Cette dernière pouvant être modifiée par les différentes reprises de croissance.

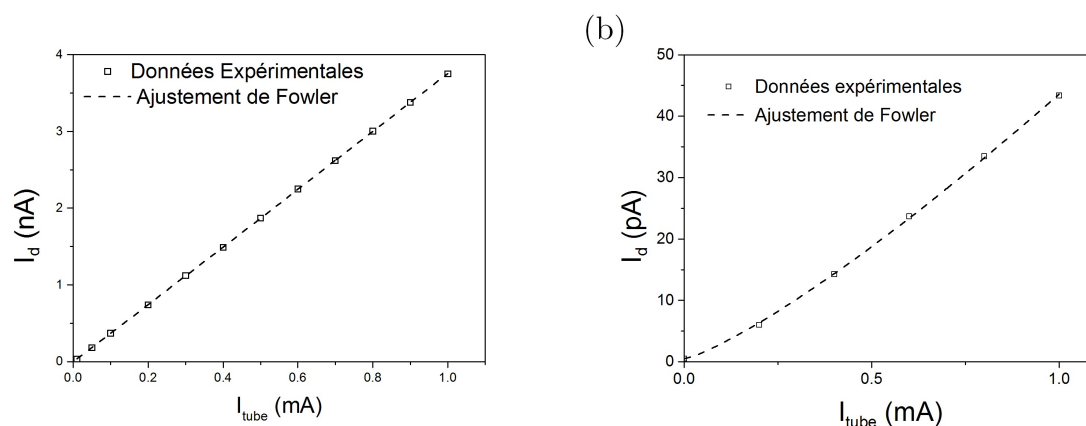


FIGURE IV.21 – *Figure a* : réponse du détecteur monocristallin “sandwich” en fonction du courant du tube. L’ajustement des données expérimentales avec le modèle de Fowler est représenté. *Figure b* : réponse du détecteur polycristallin “smart-window” en fonction du courant du tube.

IV.3.5 Discussion

Nous avons étudié les performances des détecteurs de trois configurations de smart-windows. Au vu des résultats précédents, chacune de ces configurations peut être utilisée pour évaluer le flux de photon émis par le tube. Les caractéristiques $I(V)$ permettent de voir que le courant d’obscurité est très faible dans le diamant monocristallin ce qui lui procure un très bon rapport S/N. Ce rapport augmente d’ailleurs avec la polarisation puisque la collecte des charges est plus efficace lorsque le champ augmente. Le courant d’obscurité est plus fort dans le diamant polycristallin et augmente avec la polarisation. Le meilleur rapport signal sur/bruit est donc atteint à 0 V. La configuration monocris-

talline “smart-window” présente un fort courant de fuite probablement dû à des défauts dans la couche synthétisée. Elle n’est utilisable qu’à 0 V. Le tableau IV.2 récapitule les différentes performances des détecteurs caractérisés.

L’influence de la température sur le courant a été étudié sur l’échantillon polycristallin. Une température de 80°C provoque une augmentation du courant d’obscurité de plus de deux ordres de grandeur. Le rapport signal sur bruit est donc dégradé par la température mais cet effet peut être limité par une polarisation plus faible.

La dynamique de ces dispositifs est différente selon la qualité cristalline et chimique du matériau. Le temps de réponse d’un détecteur monocristallin de 500 μm d’épaisseur est inférieur à 200 ms alors que l’équilibre électronique s’établit au bout de quelques secondes dans un détecteur polycristallin. Étant donné l’importance des phénomènes de piégeage, la réponse temporelle d’un détecteur est également dépendante de son histoire (pré-irradiation, chauffage, etc.).

La réponse d’une fenêtre monocristalline “sandwich” présente une bonne linéarité avec le courant du tube à rayons X. Celle d’une fenêtre polycristalline “smart-window” est légèrement moins bonne à cause de la distribution des pièges. Ces dispositifs devraient cependant présenter une bonne proportionnalité entre le courant mesuré et le débit de photon du tube.

Nous pouvons conclure que ces smart-windows permettent d’obtenir une évaluation du flux de rayons X. Le contrôle de la polarisation du détecteur permet d’ajuster les performances de chaque dispositif. Il est évident que pour arriver à contrôler des instabilités de flux avec une smart-window, le temps de réponse doit être plus faible que la dynamique de ces instabilités. Ces dynamiques dépendent de la nature de la perturbation (instabilité de la source de tension, détérioration de la pointe émissive, vieillissement de l’alimentation et de la cathode, etc.) et varient entre des durées inférieures à la microseconde et supérieures à la seconde.

Les performances des smart-windows sous irradiation X sont des paramètres déterminants pour prédire le comportement final d’un prototype. Notons que dans leur forme finale les smart-windows comportent une cible en tungstène qui convertit l’énergie du faisceau électronique en flux de photons X. Aussi, afin de se rapprocher de cette situation, nous devons caractériser les détecteurs lorsque la cible est soumise à un flux électronique.

Échantillon	Configuration	Rapport S/N @50 kV-1 mA	temps de réponse
@1152	monocristallin sandwich	1312 (0 V) 4.10 ⁵ (80 V)	<200 ms
@1793	polycristallin smart-window	1984 (0 V) 1080 (100 V)	≈ 21s
@2289	monocristallin smart-window	42 (0 V) 1 (5 V)	≈ 4,4s

TABLE IV.2 – Tableau récapitulatif des performances de détection de chaque configuration

IV.4 Caractérisation sous flux électronique à basse énergie

L’objectif de cette partie est de caractériser la fonction de détection de chaque configuration lorsque la génération de rayons X se fait dans une cible déposée directement sur les smart-windows. Un faisceau électronique est utilisé pour impacter la cible et produire ce flux de photon. La réponse du détecteur est alors enregistrée. Une cible de 120 nm est déposée sur chacun des dispositifs afin de s’adapter à la gamme d’énergie 1-30 keV.

IV.4.1 Développement d’un EBIC expérimental

La technique EBIC (Electron Beam Induced Current) permet de concevoir une expérience se rapprochant des conditions de fonctionnement d’un tube à rayons X. Un faisceau électronique de 1 keV à 30 keV impacte une cible en tungstène déposée sur la fenêtre.

IV.4.1.1 Montage expérimental

Le faisceau électronique d’un MEB-FEG *ZEISS* supra40[®] est focalisé sur la surface d’une cible en tungstène. Le spot électronique est de quelques nanomètres (minimum 5 nm) ce qui permet de simuler le comportement d’un émetteur nanofoyer dans un tube. Un flux de rayons X est alors généré à travers la fenêtre. Un montage électrique a été développé et adapté afin de pouvoir mesurer indépendamment le courant reçu par la cible et le courant traversant le détecteur d’une smart-window.

Un boîtier d’aluminium est utilisé pour positionner l’échantillon (*cf.* figure IV.22). Il comporte plusieurs connections SMA permettant la récupération des signaux ainsi qu’une *Faraday cup* pour mesurer le courant du faisceau du MEB. En focalisant le faisceau dans la cavité de cet élément dont l’ouverture est de quelques micromètres, les électrons se-

secondaires et rétrodiffusés sont collectés. Le courant net mesuré correspond alors bien au courant primaire du faisceau délivré par le MEB. Un électromètre *Keithley*[®] 2636 comportant deux voies indépendantes est utilisé pour la mesure des courants et l'application des tensions.

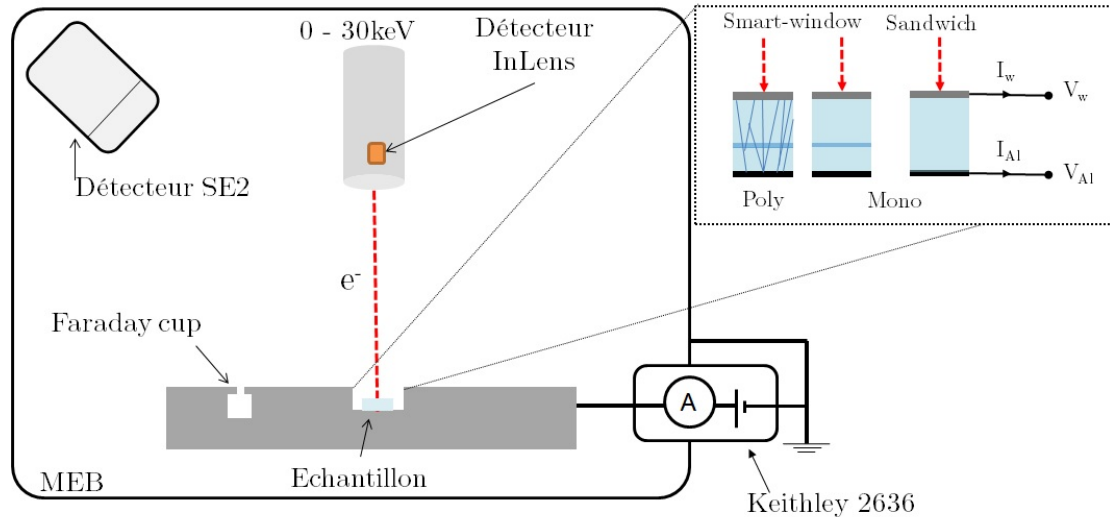


FIGURE IV.22 – Schéma du montage pour le test des smart-windows sous flux d'électrons.

La chambre du MEB est équipée de deux détecteurs d'électrons secondaires. Le premier (InLens) est placé dans la colonne et capte une très grande partie des électrons. Le second (SE2) est placé contre la paroi et possède une grille polarisée à 300 V. Les trois configurations de smart-windows testées dans ce montage sont représentées sur la figure IV.22. À un instant t , le courant issu du faisceau (noté I_b) peut être mesuré ainsi que le courant traversant le détecteur (noté I_d).

IV.4.1.2 Contribution des électrons secondaires

Dans un premier temps, seul le courant de faisceau est étudié. Nous souhaitons connaître l'influence de la polarisation de la cible en tungstène sur ce courant. Comme le montre la figure IV.23, le courant est relevé en fonction de la polarisation du boîtier lorsque le faisceau est focalisé dans la *Faraday cup* (traits pointillés) et sur la surface du boîtier (traits pleins). Cette expérience est répétée à 7 keV et 20 keV.

Le courant dans la *Faraday cup* varie très peu avec la polarisation puisque les électrons ne peuvent en ressortir que difficilement. Cette mesure correspond donc au véritable courant faisceau qui est de $6,2 nA$ à 20 keV et $3,4 nA$ à 7 keV. Par contre, le courant I_b

mesuré en dehors de la *Faraday cup* diminue lorsque la tension appliquée est négative et augmente lorsqu'elle est positive. C'est une mesure de la contribution des électrons secondaires et rétrodiffusés. En effet, une polarisation positive permet de collecter les électrons qui s'échappent de la surface tandis qu'une polarisation négative les repousse. Une tension positive de 200V suffit à collecter ces électrons lorsque l'énergie du faisceau est de 7 keV mais ce n'est plus le cas à 20 keV. Les particules fuyant la surface possèdent une plus grande énergie cinétique. Il faut donc appliquer un plus grand champ électrique pour réussir à les collecter.

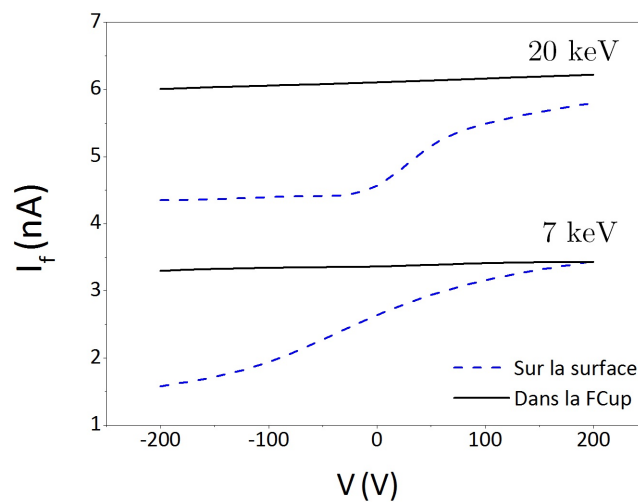


FIGURE IV.23 – Contribution des électrons secondaires au courant I_b du montage EBIC à 7 keV et 20 keV.

Ce phénomène se répercute directement sur l'image obtenue au MEB. Plus la polarisation augmente, plus le nombre d'électrons secondaires repoussés de la surface diminue. Comme le montre la figure IV.24, le nombre d'électrons captés par les détecteurs diminue lorsque la tension augmente et l'image s'assombrit (à contraste et brillance fixe). À l'inverse, l'image du détecteur InLens s'éclaircit lorsque la polarisation diminue puisque les électrons sont repoussés de la surface. Ce n'est pas le cas du second détecteur SE2 dont les images s'assombrissent à nouveau. Cet effet est alors dû au champ électrique existant entre les parois du MEB et la surface de l'échantillon. Les électrons secondaires sont plus facilement collectés par les parois du MEB que par la grille du détecteur SE2.

Afin de récupérer un courant correspondant à celui du faisceau primaire sur la cible en tungstène, la cible doit donc être polarisée positivement à plus de 100 V.

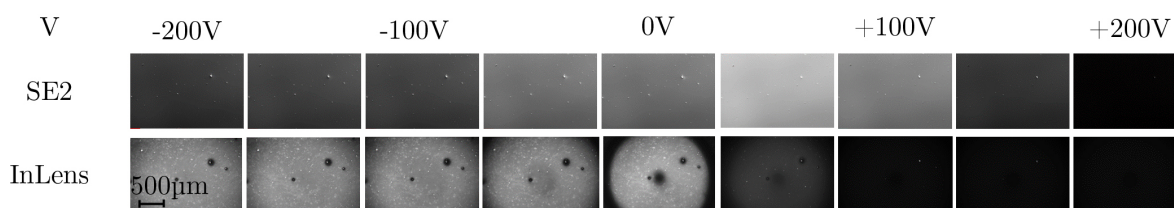


FIGURE IV.24 – Variation de l’image obtenue au MEB en fonction de la polarisation appliquée.

IV.4.2 Analyse des résultats

IV.4.2.1 Réponse temporelle du détecteur

Le faisceau électronique peut maintenant être focalisé sur la surface de la cible en tungstène. Les notations suivantes s’appliquent :

- I_w représente le courant mesuré sur l’électrode en tungstène (cible) ;
- I_{Al} représente le courant mesuré sur l’électrode en aluminium ;
- V représente la polarisation du détecteur

Seules deux fenêtres ont pu être testées dans ce montage. Il s’agit des configurations polycristalline “smart-window” et monocristalline “sandwich”.

Configuration monocristalline “sandwich”

Dans cette configuration, une des électrodes du détecteur est la cible en tungstène. Elle reçoit donc à la fois le courant de faisceau (I_b) et le photocourant du détecteur (I_d). C’est pourquoi le courant de faisceau est calculé comme suit :

$$\bar{I}_b = \bar{I}_w + \bar{I}_d \quad (4.5)$$

Les traits au-dessus des courants signifient qu’ils sont pris en valeur algébrique. Le courant dans le détecteur est simplement mesuré :

$$\bar{I}_d = \bar{I}_{Al} \quad (4.6)$$

De plus, la polarisation du détecteur est appliquée sur l’électrode en aluminium :

$$V = V_{Al} - V_w \quad (4.7)$$

Comme le montre la figure IV.22, I_{Al} et I_w sont mesurés simultanément. Cela nous permet de tracer la réponse temporelle du détecteur pour un créneau de I_b . La figure IV.25 présente les résultats sur la smart-window monocristalline en configuration “sandwich”. La polarisation du détecteur est fixée à $V=-100$ V avec $V_w=+100$ V. L’énergie du faisceau est de 7 keV, assurant une pénétration moyenne de 145 nm des électrons dans la cible en tungstène. Comme le montre la figure, cette cible reçoit un courant de faisceau de près de 3 nA. Le courant algébrique du détecteur est d’environ $\bar{I}_{Al}=-177$ pA.

Comme $V=-100$ V, les trous créés par le passage d’un flux de photons sont récupérés sur l’électrode en aluminium. C’est pourquoi le courant mesuré est négatif. Celui-ci est représenté en valeur absolue sur la figure pour simplifier la comparaison. Un *overshoot* caractéristique des phénomènes de piégeage est visible sur le courant de détection. La dérive progressive du signal I_d est elle-aussi probablement due aux phénomènes de piégeage.

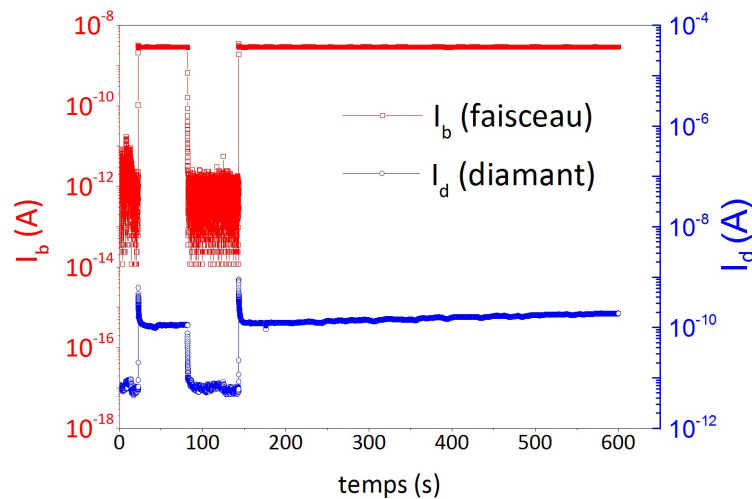


FIGURE IV.25 – Réponse temporelle d’une smart-window monocristalline “sandwich” sous un faisceau de 7 keV et polarisée à -100 V.

Le courant théorique attendu dans le détecteur peut être calculé à partir des résultats des simulations MC du Chapitre 2. À 7 keV, le courant est principalement dû aux électrons parasites et il doit être de 4,35 nA pour un courant cible de 3 nA. La différence entre le courant mesuré et cette valeur théorique peut s’expliquer par une mauvaise collection des charges.

Configuration polycristalline “smart-window”

Pour plus de simplicité, l’électrode intermédiaire en diamant dopé est connectée à la cible.

IV.4 Caractérisation sous flux électronique à basse énergie

Les notations précédentes s'appliquent donc toujours. L'échantillon polycristallin ne peut être testé à 7 keV car l'absorption du buffer est importante et par conséquent le flux vu par le détecteur est trop faible. L'énergie du faisceau est donc fixée à 30 keV et le courant I_b est de 5 nA. À cette énergie, la profondeur de pénétration des électrons dans la cible est bien supérieure à l'épaisseur de la cible ce qui signifie qu'une partie du faisceau primaire pénètre dans le buffer en diamant de 100 μm . La polarisation est fixée à $V=-30\text{ V}$ avec $V_{Al}=-30\text{ V}$.

Encore une fois le courant algébrique I_d est bien négatif, comme l'avait mis en évidence les caractérisations sous irradiation X, la réponse est plus lente et le courant plus faible (17,3 pA). Les fluctuations du courant I_b se répercutent sur I_d et des pics parasites apparaissent à certains endroits. Le courant théorique attendu dans le détecteur peut être calculé à l'aide des simulations MC pour cette structure particulière. Pour un courant I_b de 5 nA, le courant du détecteur est de 98 pA et il s'agit principalement de la contribution des photons X (pas d'électrons parasites). Le courant I_d mesuré est plus faible que la valeur attendue possiblement à cause d'une mauvaise collecte des charges.

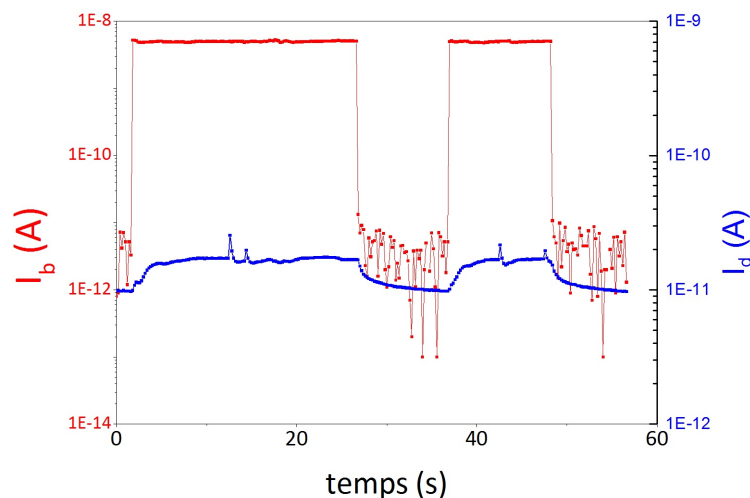


FIGURE IV.26 – Réponse temporelle d'une smart-window polycristalline sous un faisceau de 30 keV.

IV.4.2.2 Variation de la tension d'accélération du faisceau

En reprenant la smart-window monocristalline en configuration sandwich, la réponse énergétique du dispositif peut être étudiée. Pour cela on enregistre I_b et I_d en changeant l'énergie du faisceau (voir figure IV.27). La profondeur de pénétration des électrons dans

le tungstène est représentée sur une seconde échelle horizontale. Il s'agit d'un indicateur qualitatif (hypothèse d'une variation linéaire avec l'énergie) permettant de situer l'énergie à laquelle les électrons pénètrent dans le diamant.

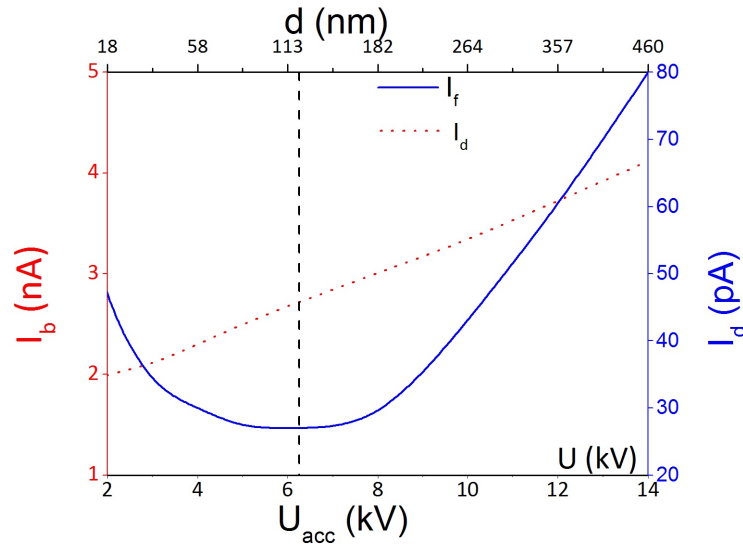


FIGURE IV.27 – Variation des courants I_d et I_b en fonction de la HT du montage.

Comme le montre la figure IV.27, le courant de faisceau ne peut être réglé indépendamment de l'énergie. Il augmente linéairement avec la HT du MEB. Le courant I_d , quant à lui, diminue jusqu'à un minimum autour de 6 keV puis réaugmente. Ce minimum correspond à une profondeur de pénétration égale à l'épaisseur de la cible (120 nm). Cet effet peut s'expliquer par l'évolution du volume de pénétration des électrons. À basse énergie, celui-ci est situé entièrement dans la cible et le courant mesuré est celui généré par les rayons X. Lorsque l'énergie augmente, le volume se déplace en dehors de la cible et pénètre dans le détecteur. Une plus petite portion du faisceau primaire est alors utilisée pour produire des rayons X. Lorsque l'énergie augmente, le volume se déplace entièrement dans le détecteur et des paires électrons/trous sont créées dans le diamant directement par interaction du faisceau primaire. On peut noter également que la variation du coefficient de rétrodiffusion (non pris en compte ici) peut également expliquer ce comportement.

IV.4.3 Cartographie 2D en courant

La résolution du MEB-FEG permet de localiser très précisément le spot électronique sur la surface de la cible. L'acquisition d'une image, couplée avec la mesure du courant I_b et I_d permet de réaliser des cartographies 2D en courant de ces dispositifs. La fréquence

de balayage du faisceau est fixée à son minimum et le courant I_b est enregistré tout au long de l'acquisition d'une image de 512x384 pixels. Le signal est ensuite découpé en 384 segments chacun redécoupés en 512 points permettant de reconstruire l'image en courant.

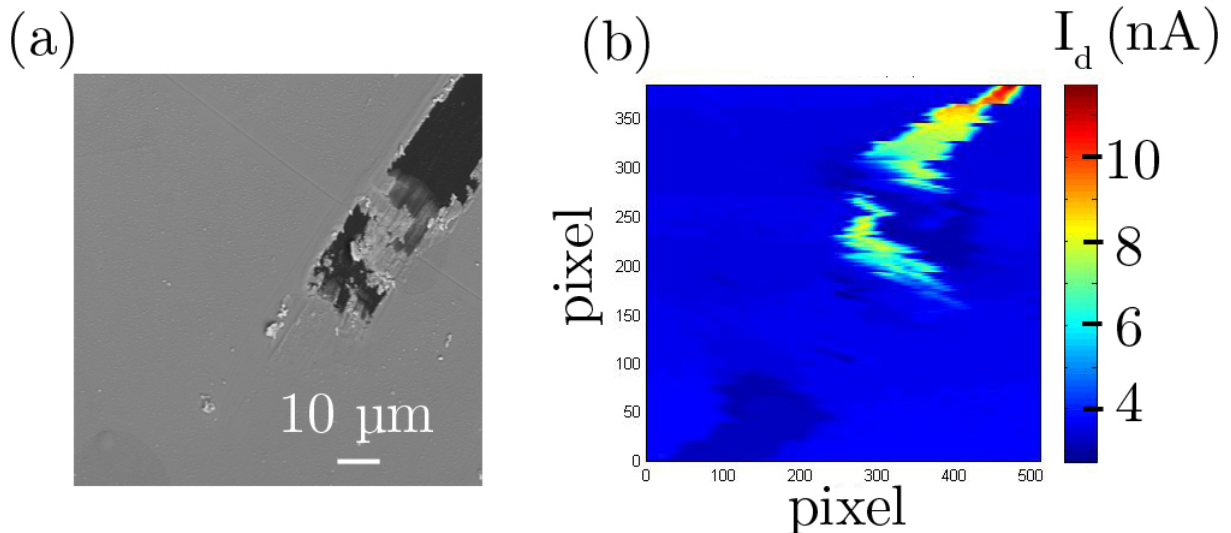


FIGURE IV.28 – Cartographie 2D du courant I_d d'un échantillon monocristallin "sandwich" sous un faisceau de 7 keV.

La zone étudiée correspond à une partie de la cible sur laquelle une rayure a été faite, laissant apparaître la surface du diamant sous le tungstène (zone sombre sur la figure IV.28.a). La cartographie en courant obtenue (figure IV.28.b) présente une augmentation locale du courant I_d à l'endroit de la rayure. Elle s'explique par la pénétration dans le diamant du faisceau de 7 keV non atténué par la cible. La cartographie en courant n'est pas aussi bien définie que l'image MEB à cause d'une part de la dynamique du signal mesuré et d'autre part de la fréquence d'échantillonnage du courant qui est plus faible que la fréquence de balayage du faisceau électronique.

Le développement d'un montage EBIC permet donc de caractériser les smart-windows dans un environnement de mesure proche d'un tube à rayons X. Cette étude nous permet de démontrer pour la première fois le fonctionnement de deux smart-windows alliant production de rayons X et détection du flux. Dans le cas de la configuration sandwich, la pénétration des électrons primaires dans le volume de détection doit être prise en compte à partir d'une énergie seuil. Dans ce montage, le faisceau électronique utilisé ne peut

délivrer un courant supérieur à quelques nanoampères. Afin de tester les dispositifs avec un courant plus important, un nouveau bâti de test a été développé.

IV.5 Caractérisation des smart-windows dans un tube X expérimental

IV.5.1 Fonctionnement en environnement représentatif

IV.5.1.1 Montage expérimental “Gated diode”

Ce montage est développé en partenariat avec les équipes de TED. Il comporte une enceinte de tube à rayons X sur laquelle est montée une cathode à CNTs de type “gated”. Il s’agit d’une cathode dans laquelle la grille est incorporée à la puce comme le présente le schéma de la figure IV.29. L’émission du courant d’émission de la cathode est alors régulé optiquement. Pour cela, un phototransistor est monté en série avec la cathode. Une diode IR est utilisée pour éclairer le phototransistor. Le contrôle optique de ces cathodes permet de stabiliser le courant d’émission. Cette régulation est possible sur une plage d’énergie de 25keV à 55 keV.

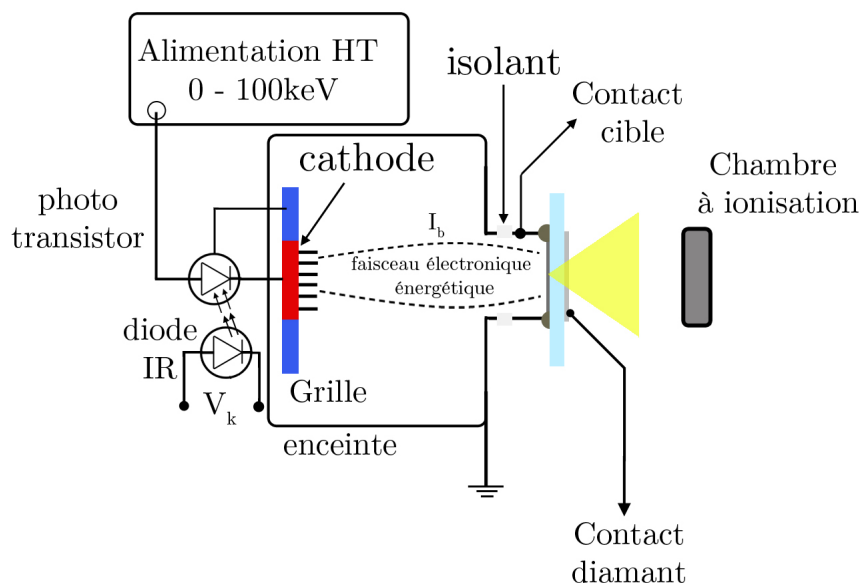


FIGURE IV.29 – Schéma de fonctionnement du montage “Gated diode”.

La fenêtre est brasée sur une pièce en cuivre (voir figure IV.30) qui est isolée de l’enceinte à l’aide de céramiques. Cette isolation permet de mesurer le courant sur la cible. La figure IV.30 présente une photo de l’enceinte sur laquelle est brasée une fenêtre monocristalline de type “sandwich”. Le courant I_w est mesuré en reliant la pièce en cuivre à l’électromètre.

IV.5 Caractérisation des smart-windows dans un tube X expérimental

Le contact de l'électrode supérieure est repris à l'aide d'une pointe conductrice montée sur un micropositionneur.

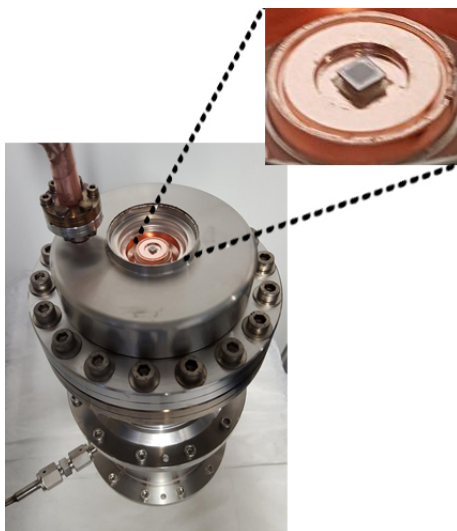


FIGURE IV.30 – Photo de la fenêtre de sortie (de type smart-window monocristalline “sandwich”) du montage “Gated diode”.

Les caractéristiques d'émission du montage dépendent principalement de la cathode utilisée. Dans cette configuration, les spécifications sont les suivantes :

- HT maximale : 60 kV ;
- Courant maximal : $I_b \simeq 100 \mu A$;
- Pression du tube : $< 10^{-9}$ mbar ;
- Polarisation indépendante de la cible et des deux électrodes de smart-windows ;
- Régulation optique : entre 25 keV et 55 keV ;
- Temps d'acquisition du système : entre 1s et 5s.

Comme le montre la figure IV.29, une chambre à ionisation *PTW* de type TM23342 est utilisée en face de la fenêtre pour mesurer en temps réel le flux de rayons X émis par le système. Cette chambre, d'un volume sensible de $0,02 \text{ cm}^3$ est polarisée à 300V à l'aide d'un électromètre. Elle permet la mesure du débit de dose jusqu'à 100 keV. Elle a fait l'objet d'une calibration aux basses énergies par le laboratoire LNHB. Le coefficient de calibration est de $1,1688.10^9 \text{ Gy.s}^{-1} . A^{-1}$.

IV.5.1.2 Dispositifs étudiés

Afin de pouvoir braser les fenêtres à haute température, l'électrode en aluminium (point de fusion $\simeq 660^{\circ}\text{C}$) est remplacée par une électrode en DLC de 200 nm d'épaisseur qui résiste aux traitements thermiques liés au montage. La cible en tungstène est déposée à travers un masque de 3 mm de diamètre et mesure $5\text{ }\mu\text{m}$ d'épaisseur.

Les trois configurations étudiées peuvent être utilisées sur ce montage. Les difficultés de brasage de certains échantillons nous ont conduites à ne sélectionner que deux smart-windows pour cette étude. La figure IV.31 présente les photos des fenêtres utilisées. Les premiers tests sont réalisés sur une smart-window monocristalline en configuration "sandwich" dont les deux faces sont visibles sur la figure IV.31.a. La dernière partie concernant la mise en place de l'asservissement est réalisée avec la fenêtre monocristalline en configuration "smart-window" (cf. figure IV.31.b). Sur cet échantillon, l'électrode intermédiaire est reliée à la cible pour simplifier les mesures.



FIGURE IV.31 – Photo des deux faces de chaque smart-window monocristalline étudiée. *Figure a* : configuration "sandwich". *Figure b* : configuration "smart-window".

IV.5.2 Analyse des résultats

IV.5.2.1 Caractéristique I(V)

Dans un premier temps, la fenêtre monocristalline "sandwich" est étudiée. Le temps d'acquisition du système ($>1\text{ s}$) est trop long pour étudier la dynamique de la réponse du détecteur. Cependant, la caractéristique I(V) est enregistrée sous obscurité et sous irradiation lorsque le montage "Gated diode" est polarisé à 45 kV (voir figure IV.32). La courbe sous obscurité est relativement symétrique et présente un courant de fuite maximal d'environ 200 pA à $\pm 100\text{ V}$. La courbe sous irradiation est moins symétrique et les courants se situent entre $1\text{ }\mu\text{A}$ et $10\text{ }\mu\text{A}$.

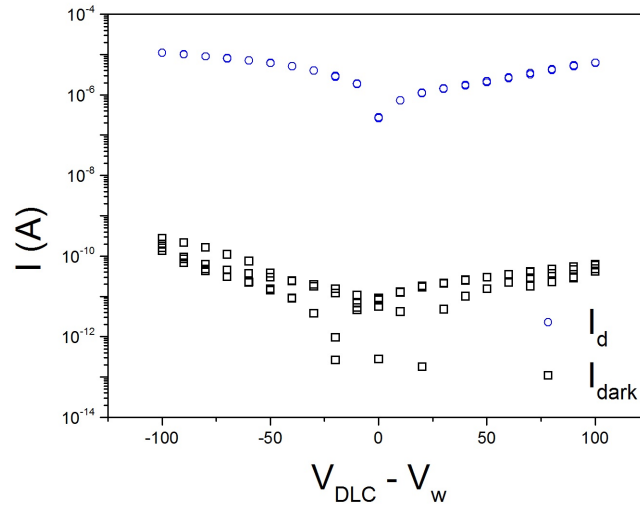


FIGURE IV.32 – Caractéristique $I(V)$ sous obscurité avec une HT de 45 kV. La tension appliquée à la cible est maintenue constante à +100 V.

Le courant parasite lié à l'ionisation de l'air est évalué en reculant progressivement la pointe de contact de l'électrode supérieure jusqu'à ce qu'elle sorte du flux de rayons X. À 25 keV, la contribution maximale de ces courants parasites est de 1 nA. Compte tenu du courant I_d mesuré, cette contribution sera négligée dans la suite des mesures.

IV.5.2.2 Linéarité de la réponse

Le courant délivré par la smart-window peut être tracé en fonction du débit de dose mesuré par la chambre à ionisation calibrée afin de vérifier la linéarité de la mesure. Cette chambre est placée à 4 cm de la fenêtre.

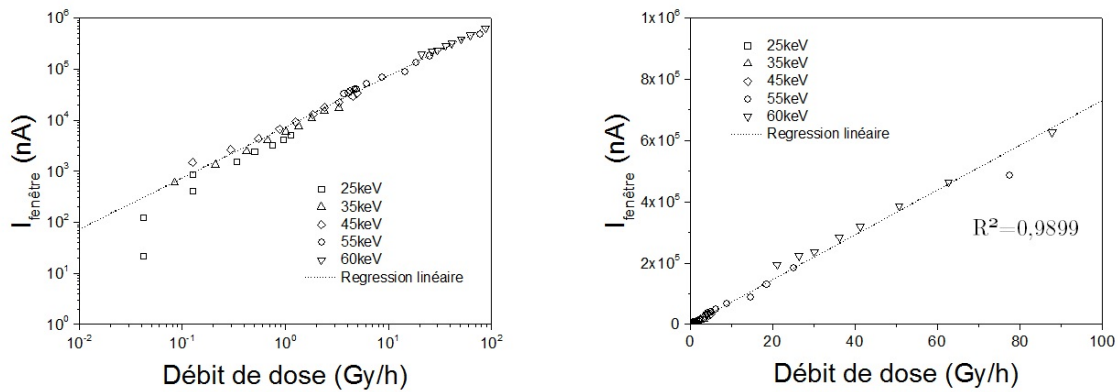


FIGURE IV.33 – Relation de linéarité entre le courant de la fenêtre et le débit de dose.

La figure IV.33 montre que le courant I_d mesuré est bien proportionnel au débit de

dose du tube. Le coefficient de régression linéaire mesuré en échelle linéaire est de 0,99. L'écart à la linéarité à 25 keV peut s'expliquer par l'atténuation du flux à travers l'air situé entre la chambre et la fenêtre. **Cette étude démontre la possibilité d'utiliser une smart-windows en diamant pour mesurer en continu le débit de dose.** Notons, que la réponse temporelle de la fenêtre peut, selon les cas, entraîner des limitations à la mesure du débit de dose en temps réel.

IV.5.2.3 Variation de la tension d'accélération

Afin d'étudier l'influence de la HT sur la réponse de la fenêtre, les différents courants mesurés doivent être normalisés pour conserver un courant de faisceau constant. Le courant de faisceau est normalisé à $1 \mu A$ et les autres courants sont donc multipliés par $I_b(\mu A)$. La réponse de la fenêtre et de la chambre ont une allure similaire entre 25 keV et 55 keV (*cf.* figure IV.34). Les courbes peuvent être ajustées à une expression en U^2 puisque l'énergie rayonnée par la source est proportionnelle au carré de la HT.

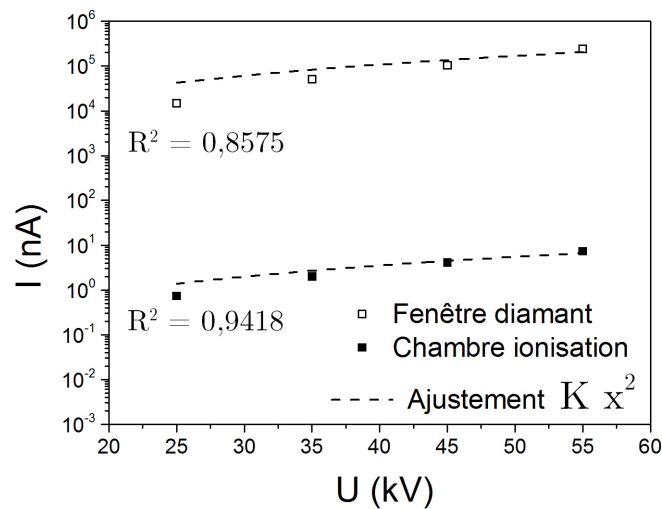


FIGURE IV.34 – Variation du courant mesuré dans la fenêtre et dans la chambre à ionisation pour différentes tensions d'accélération.

IV.5.2.4 Étude de la zone d'émission

La chambre à ionisation peut être enlevée pour positionner un détecteur de type PDT25-DE fabriqué par *XCounter* avec un sténopé permettant d'imager le foyer de production des rayons X. Un grandissement de 2,8 est calculé à partir des dimensions géométriques du montage. Le spot mesure alors entre 2,8 et 3,1 mm de diamètre. Ces valeurs

IV.5 Caractérisation des smart-windows dans un tube X expérimental

correspondent bien au diamètre de la cible en tungstène. La figure IV.35 met en évidence l'hétérogénéité spatiale du flux de rayons X.

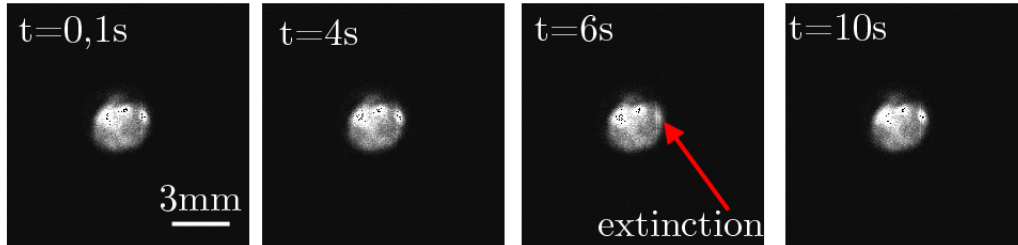


FIGURE IV.35 – Radiographie du foyer de production des rayons X.

Des zones plus claires où le flux est le plus intense se distinguent facilement sur la figure IV.35. Cette hétérogénéité peut être due à deux phénomènes :

- Hétérogénéité de l'émission électronique ;
- Hétérogénéité potentielle de la cible en tungstène.

Une prise de vue temporelle permet de mettre en évidence la disparition de certaines zones claires au cours du temps. Cet effet est dû à certains CNTs dont l'émission est variable au cours du temps. La flèche rouge de la figure IV.35 met en évidence l'extinction d'une telle zone à $t = 6 s$.

IV.5.2.5 Calibration de la réponse du diamant

Le signal mesuré par la fenêtre ne donne pas le même débit de dose que la chambre à ionisation à cause de la distance qui sépare le point de mesure du foyer. Cette distance est de $4 cm$ dans le cas de la chambre. La fenêtre, quant à elle, est très proche du foyer (quelques dizaines de micromètres).

Afin de vérifier la loi de variation du flux de photons avec la distance, le courant de la chambre à ionisation est enregistré en fonction de sa position (voir figure IV.36). Les barres d'erreur représentées sont calculées à partir des incertitudes de lecture du *Keithley*[®] 2636. Les résultats sont normalisés numériquement pour conserver un courant I_b constant. Le flux de photons varie bien en $1/r^2$ comme le montre l'ajustement des données expérimentales.

Nous pouvons utiliser le courant mesuré dans la smart-window pour calculer le débit de dose à r cm de la fenêtre. Celui-ci s'écrit :

$$\dot{D}_{r\text{ cm}} = \frac{6,50 \cdot 10^{-4} \cdot 13}{r^2} \frac{1}{\rho V} I_d \quad (4.8)$$

La distance r est alors exprimée en centimètres. Les paramètres ρ et V correspondent respectivement à la densité du diamant et au volume du détecteur.

La valeur numérique utilisée dans l'expression 4.8 correspond au carré de la distance (en centimètres) entre le milieu du détecteur et le foyer situé à la surface de la cible en tungstène. Cette expression s'appuie sur plusieurs hypothèses :

- Le flux de rayons X est généré dans 4π str ;
- Le foyer est situé à la surface de la cible de $5\mu\text{m}$ d'épaisseur.

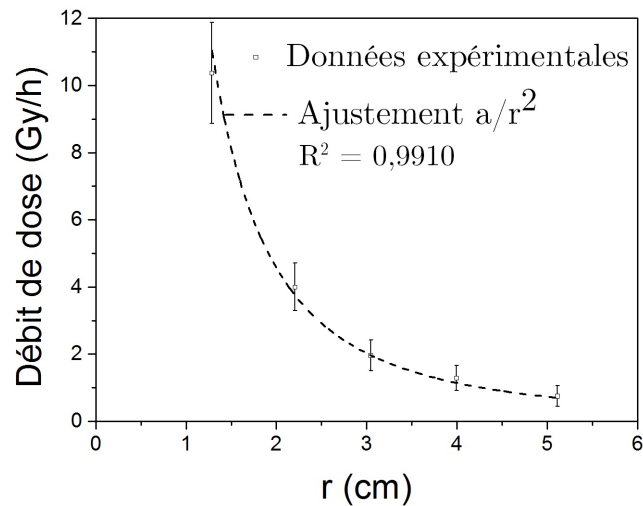


FIGURE IV.36 – Loi de variation du flux de rayons X en fonction de la position de la chambre.

En utilisant l'expression 4.8, il est possible de comparer le débit de dose à 4 cm mesuré par la chambre à ionisation d'une part, et la smart-window d'autre part. L'idéalité entre ces deux mesures s'exprime par le rapport K_i :

$$K_i = \frac{\dot{D}_{\text{chambre}}}{\dot{D}_{\text{sw}}} \quad (4.9)$$

IV.5 Caractérisation des smart-windows dans un tube X expérimental

Comme le montre la figure IV.37, le rapport d'idéalité K_i tend vers 1 à mesure que l'énergie augmente. Ce rapport n'est pas égal à un à cause, d'une part, des incertitudes sur la mesure des distances dans l'expression 4.8 et de l'atténuation de la couche d'air entre les deux détecteurs d'autre part.

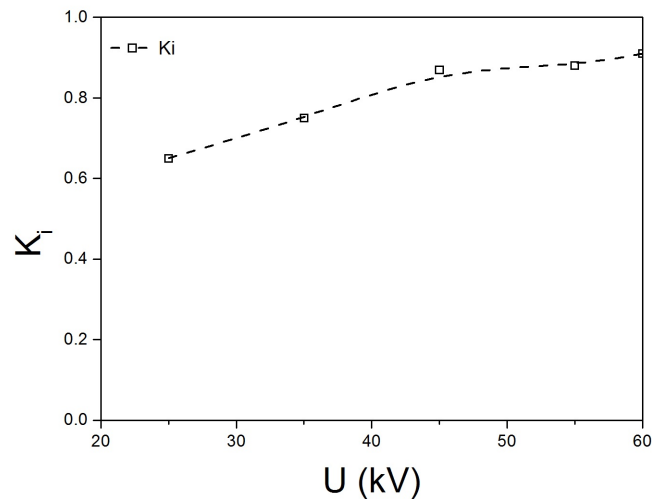


FIGURE IV.37 – Variation du rapport d'idéalité entre la mesure de la fenêtre et celle de la chambre calibrée.

Cette étude nous permet de démontrer la possibilité de mesurer le débit de dose du tube à l'aide d'une smart-window et de calibrer ce signal pour connaître le débit de dose délivré à une certaine distance de la fenêtre. Le gain en courant par rapport à une mesure avec la chambre à ionisation permet d'utiliser une électronique de mesure plus simple et de rendre l'intégration industrielle plus aisée. Afin de tester le fonctionnement d'une seconde fenêtre et d'étudier la régulation de la dose, la fenêtre monocristalline "sandwich" est remplacée par une fenêtre monocristalline en configuration "smart-window".

IV.5.3 Mise en place d'une régulation du débit de dose délivré

La fenêtre monocristalline de type "smart-window" est montée sur le montage "Gated diode" et nous l'utilisons sans polarisation. L'objectif de cette partie est de démontrer la possibilité de réguler le débit de dose d'un tube à rayons X grâce aux smart-windows. Pour cela, la réponse du détecteur en diamant est utilisée pour effectuer une régulation proportionnelle sur la tension de la diode IR (notée V_{IR}) servant à ajuster le courant du tube. Dans un premier temps, la réponse du diamant à une modification de V_{IR} doit être calibrée.

Grâce à l'étude des détecteurs sous irradiations X et à la courbe IV.33, nous avons démontré que le débit de dose du tube est proportionnel au courant dans la smart-window. Le courant de la smart-window dépend linéairement du courant d'émission du tube I_b et de l'énergie du faisceau E . De plus le courant du faisceau dépend exponentiellement de la tension de la diode IR. Nous faisons l'hypothèse que si $V_{IR} > V_{seuil}$, cette dépendance peut être approximée par une relation linéaire. Un système d'équations reliant le courant de la smart-window (I_d), le courant de faisceau (I_b) et la tension de la diode IR (V_{IR}) est alors obtenu :

$$I_d = a_E I_b + I_{dark} \quad (4.10)$$

$$I_b = b V_{IR} + c_E \quad (4.11)$$

Dans cette expression, I_{dark} représente le courant d'obscurité dans le détecteur. Les coefficients a_E , b et c_E sont à calibrer sur le montage sachant que a_E et c_E dépendent de l'énergie. En combinant les équations 4.10 et 4.11, la relation de rétroaction entre la tension de la diode IR et le courant dans le diamant s'écrit :

$$V_{IR} = \frac{1}{b} \left(\frac{I_d - I_{dark}}{a_E} - c_E \right) \quad (4.12)$$

Pour calculer les coefficients de l'expression 4.12, le courant de faisceau est enregistré à différentes tensions V_{IR} (*cf.* figure IV.38).

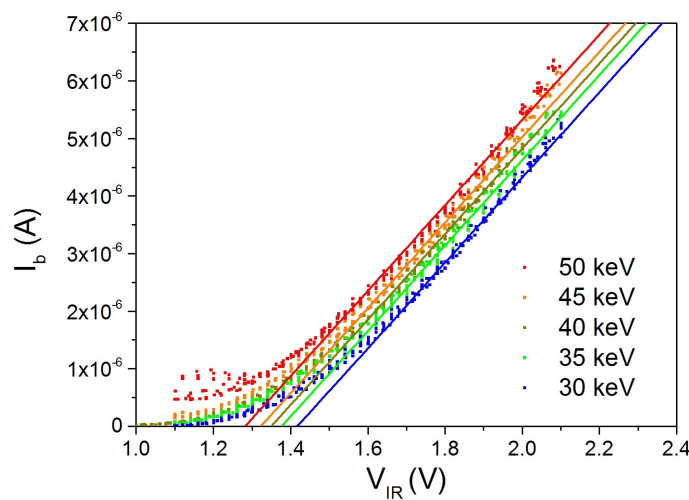


FIGURE IV.38 – Calibration de la réponse du faisceau en fonction de la tension de la diode IR à plusieurs énergies. Un ajustement linéaire est représenté en trait continu.

IV.5 Caractérisation des smart-windows dans un tube X expérimental

Un ajustement de la partie linéaire avec la méthode des moindres carrés nous permet de déterminer b et c_E à 30, 35, 40, 45 et 50 keV. L'évolution de I_d en fonction de I_b pour ces mêmes énergies nous permet d'obtenir les coefficients a_E et I_{dark} . Le tableau IV.3 récapitule les valeurs trouvées lors de cette étape de calibration. Les variations de a_E avec l'énergie sont relativement faibles mais ne semblent pas cohérentes avec la variation énergétique. Ce phénomène peut probablement être expliqué par la variation du courant I_b lorsque l'énergie est modifiée. Les variations de c_E sont, quant à elles, cohérentes avec la variation énergétique. Les coefficients sont interpolés linéairement entre ces valeurs d'énergies.

E (keV)	a_E	I_{dark} (A)	b (A/V)	c_E (A)
30	0,0213	$179 \cdot 10^{-9}$	$7,41 \cdot 10^{-6}$	$-10,5 \cdot 10^{-6}$
35	0,0216	$179 \cdot 10^{-9}$	$7,41 \cdot 10^{-6}$	$-10,2 \cdot 10^{-6}$
40	0,0250	$179 \cdot 10^{-9}$	$7,41 \cdot 10^{-6}$	$-10,0 \cdot 10^{-6}$
45	0,0146	$179 \cdot 10^{-9}$	$7,41 \cdot 10^{-6}$	$-9,8 \cdot 10^{-6}$
50	0,0193	$179 \cdot 10^{-9}$	$7,41 \cdot 10^{-6}$	$-9,5 \cdot 10^{-6}$

TABLE IV.3 – Coefficients de calibration de la régulation PID.

Afin de démontrer la possibilité de régulation, la HT du montage "Gated diode" est modifiée à partir d'un état stable. Cette modification entraîne une modification du débit de dose (*cf.* figure IV.39). La régulation implique de conserver un courant dans le diamant (I_d) constant et égal à I_{set} correspondant à un débit de dose donné. L'erreur de la mesure (I_d) par rapport à la consigne (I_{set}) s'écrit :

$$\varepsilon = I_d - I_{set} \quad (4.13)$$

L'erreur de tension (V_{IR}) équivalente est traduite par l'équation 4.12 :

$$\tilde{\varepsilon} = \frac{I_d - I_{set}}{b a_E} \quad (4.14)$$

Pour des raisons de simplicité, le gain intégral ou dérivé généralement utilisé dans une régulation PID n'est pas utilisé. Nous définissons seulement K_p , le gain proportionnel. La commande de la tension de la diode IR tenant compte de la rétroaction est donc :

$$V_{IR}(i+1) = V_{IR}(i) - K_p |\tilde{\varepsilon}| \operatorname{sgn}(\tilde{\varepsilon}) \quad (4.15)$$

La cathode est sensible aux fortes variations de courant. Par mesure de sécurité on imposera donc les conditions suivantes :

$$\begin{cases} V_{min} < V_{IR} < V_{max} \\ K_p |\tilde{\varepsilon}| \leq \delta \text{ ("pas" de la régulation)} \end{cases} \quad (4.16)$$

L'erreur $\tilde{\varepsilon}$ est calculée en temps réel et la tension de la diode laser (V_{IR}) est modifiée à chaque instant à l'aide de la relation 4.15. La figure IV.39.b présente la variation de HT imposée au tube et IV.39.b la variation du débit de dose lorsque l'algorithme de régulation n'est pas activé.

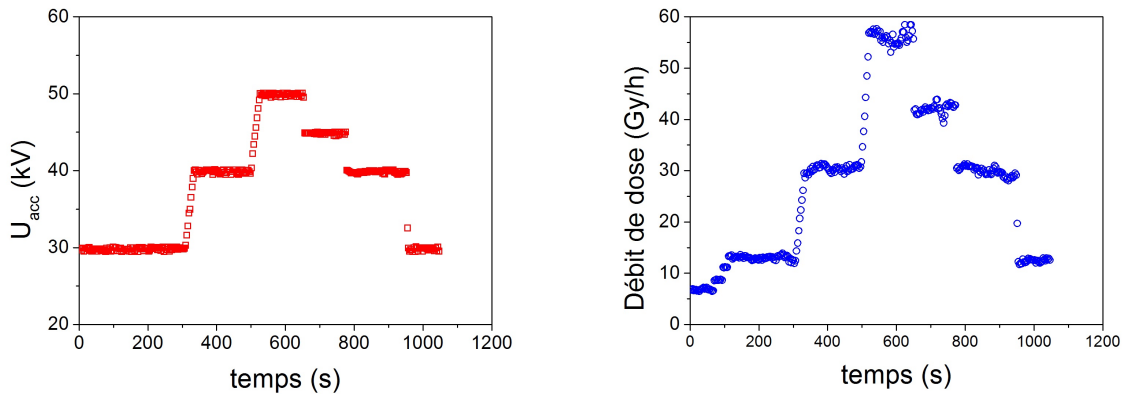


FIGURE IV.39 – *Figure a* : variation imposée de la HT du tube. *Figure b* : mesure du débit de dose à l'aide de la chambre à ionisation sans régulation.

Grâce à la régulation optique du système, le courant de faisceau varie relativement peu lorsque la HT est modifiée. La même expérience est répétée en utilisant l'algorithme de régulation précédent. Le courant de consigne est fixé arbitrairement à $I_{set}=250 \text{ nA}$. Le gain (K_p) est pris égal à 1 et le pas (δ) égal à 0,05 V. Comme le montre la figure IV.40.a, la variation de HT imposée au tube est identique à la précédente mais cette fois le courant du faisceau est ajusté par l'algorithme pour contrebalancer la modification du débit de dose. Le débit de dose mesuré à l'aide de la chambre à ionisation est alors beaucoup plus stable (*cf.* figure IV.40.b).

Afin de démontrer l'intérêt de cette étude, l'expérience est répétée en acquérant une image d'une ampoule à filament à différentes énergies. Les images sont réalisées à l'aide d'un détecteur CMOS matriciel de type SIX 650 fabriqué par CMT. Les radiographies de la figure IV.41 sont réalisées à 30 keV, 40 keV et 50 keV. Le contraste et la résolution de l'image sont modifiées en fonction de l'énergie mais le débit de dose du tube est maintenue

IV.5 Caractérisation des smart-windows dans un tube X expérimental

constante grâce à la rétro-action exercée par la smart-window. Cette régulation permet de modifier l'énergie d'un tube en temps réel sans modifier la dose reçue par un objet durant l'exposition.

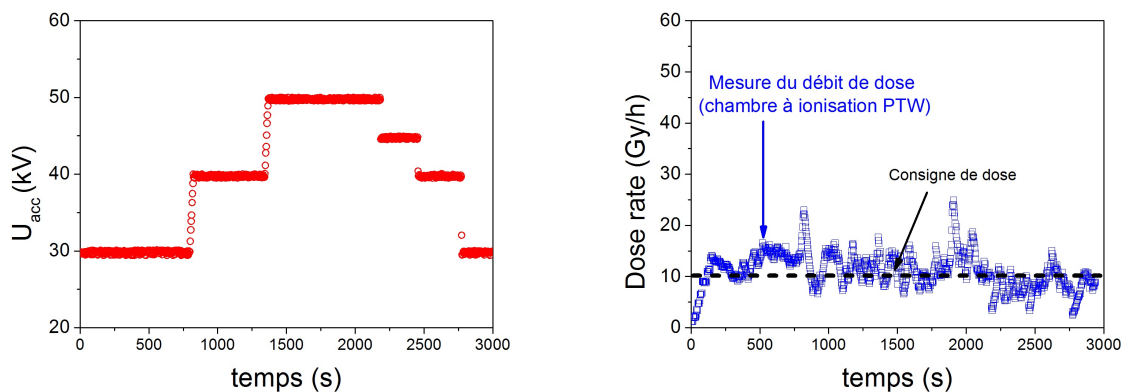


FIGURE IV.40 – *Figure a* : variation imposée à la HT du tube. *Figure b* : mesure du débit de dose à l'aide de la chambre à ionisation lorsque la régulation est activée.

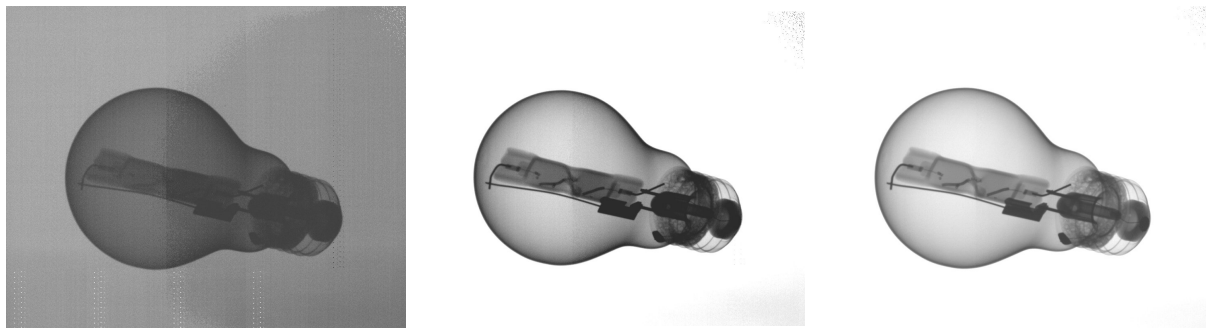


FIGURE IV.41 – Radiographies d'un ampoule à filament prises à 30 keV, 40 keV et 50 keV (de gauche à droite).

Cette partie nous a permis de caractériser deux fenêtres monocristallines dans un tube à rayons X expérimental. Dans un premier temps, la réponse du détecteur a été comparée à la mesure d'une chambre à ionisation calibrée. La bonne linéarité du signal délivré par la fenêtre nous a permis de démontrer la faisabilité d'une mesure de débit de dose en ligne. Dans une seconde partie, nous avons démontré la possibilité d'asservir le débit de dose du tube sur ce signal. Ce processus permet de garantir une stabilité du flux émis même lorsqu'une variation de la HT est imposée.

IV.6 Conclusion du chapitre

Ce dernier chapitre nous a permis de qualifier les fenêtres que nous avons modélisées et fabriquées dans les chapitres précédents. La contrainte à rupture du matériau synthétisé est évaluée à 358 MPa. Sans tenir compte de la précontrainte, le rapport d'aspect maximal pour une fenêtre est de 312. Pour assurer la résilience des fenêtres, l'épaisseur doit être de 100 μm pour un diamètre de 8 mm. Ces fenêtres ont pu être testées lors de cycles de pression entre 0 bar et 1 bar. Elles ont montré une excellente résistance à la fatigue avant et après brasage. La transparence des fenêtres a été étudiée à l'aide d'une source monochromatique de rayons X. La transmission d'une fenêtre smart-window polycristalline atteint 80 % dès 8,8 keV et correspond aux résultats théoriques de transmission. Les meilleures propriétés du diamant par rapport au béryllium lui permet de compenser sa plus forte absorption aux basses énergies.

Nous avons testé la réponse en détection de trois dispositifs fabriqués. Dans un premier temps, les performances de détection sous irradiation X ont été étudiées. Toutes les configurations étudiées peuvent être utilisées pour mesurer un flux de photon X. Une attention particulière doit être portée à la polarisation de la configuration monocristalline "sandwich" pour obtenir un rapport signal sur bruit maximal. Les dispositifs polycristallins "smart-window" et monocristallins "smart-window" sont utilisés à 0 V pour améliorer leur temps de réponse.

Deux de ces structures ont été testées dans un montage EBIC. C'est à dire lorsque le flux de rayons X est généré dans une cible en tungstène déposée sur la face inférieure de la fenêtre. Les résultats obtenus démontrent bien la possibilité d'utiliser ces dispositifs pour une mesure en ligne du flux de photon. Dans la configuration "sandwich", une attention particulière doit être portée à la profondeur de pénétration du faisceau primaire.

Finalement, le développement d'une contre-réaction du signal de la smart-window sur le courant d'émission nous a permis de montrer la possibilité d'un asservissement. Cette action de régulation pourrait permettre, par exemple, de maintenir un débit de dose fixe à énergie variable ou de contrôler le vieillissement d'un tube à rayons X.

Conclusion générale

Paris, janvier 2016.

Au cours de cette étude, nous avons développé les premiers prototypes de smart-windows en diamant. D'une part, ils permettent d'améliorer les performances thermiques des tubes à rayons X actuels. Cela ouvre la voie à la miniaturisation du faisceau et à l'imagerie à haute résolution, notamment grâce aux X-ray Emitting Diodes (XED). D'autre part, ces fenêtres innovantes permettent un contrôle précis du débit de dose du tube en temps réel. Cette fonction pourrait, par exemple, être utilisée pour stabiliser les fluctuations de la source électronique. Ces différents aspects démontrent la place incontournable des fenêtres en diamant pour l'imagerie de demain.

Ce travail de thèse s'inscrit dans une collaboration entre le Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives (CEA), Thales Electron Devices (TED) et Thales Research & Technology (TRT). Cette étude se place dans le cadre de la fabrication de tubes à rayons X de nouvelle génération pour l'imagerie haute résolution. Ce travail de thèse est axé sur la fabrication de fenêtre innovantes pour cette application.

Dans les tubes micro/nanofoyers, la densité de puissance thermique à dissiper est importante. Les fenêtres actuellement utilisées, en béryllium, ne peuvent supporter les températures mises en jeu. Des problèmes de toxicité se posent également lors de leur fabrication. Nous avons montré durant cette thèse que le diamant de synthèse est un candidat idéal pour la réalisation de fenêtres de tube micro/nanofoyer. Ce matériau possède des propriétés thermiques, mécaniques et de transparence lui permettant de remplacer avantageusement le béryllium.

Les tubes de nouvelles générations sont basés sur l'utilisation de cathodes à nanotubes de carbones (CNTs). Les fluctuations de l'alimentation HT et de la source électronique

(selon le type de cathode) peuvent induire une instabilité du flux de rayons X. Cette instabilité n'est que de l'ordre de quelques pourcents mais elle est problématique pour de nombreuses applications (imagerie, mesure de densité, tomographie, etc.). Une mesure instantanée du flux de photons permet de mettre en place une boucle de régulation et d'améliorer sa stabilité.

Le concept de smart-window va bien plus loin que la réalisation d'une simple fenêtre de tube à rayons X. Un brevet, déposé conjointement en 2012, détaille la spécificité de ces dispositifs. Il s'agit d'utiliser les propriétés semiconductrices du diamant pour transformer une infime fraction du flux de photons en un signal électrique directement proportionnel au débit de dose du tube.

Dans une première partie, nous présentons l'évolution des tubes à rayons X depuis les premiers tubes de Coolidge jusqu'aux dispositifs nanofoyers les plus récents, en passant par les nouvelles technologies XED. Un état de l'art des propriétés du diamant monocristallin et polycristallin nous permet de comprendre l'intérêt de ces deux matériaux pour cette application. Afin de répondre à la problématique, le concept de smart-window est introduit. Il fusionne en un seul objet les fonctions d'une fenêtre standard à celui d'un détecteur de rayons X.

Dans un deuxième temps, les phénomènes thermiques, mécaniques et d'interaction rayonnement-matière sont modélisés. Une modélisation analytique nous permet de proposer un dimensionnement théorique de la fenêtre. Cependant, plusieurs facteurs doivent également être pris en compte, comme les contraintes initiales dans le film de diamant ou la brasure de la fenêtre sur le tube. Ces considérations nous amènent à retenir une épaisseur de $100\ \mu\text{m}$ pour un diamètre de $8\ \text{mm}$. Nous développons ensuite un modèle thermique analytique pour les smart-windows. Il permet de calculer un gain en puissance de 40%, à température constante, en utilisant une fenêtre en diamant plutôt qu'une fenêtre en béryllium. Enfin, deux types de détecteurs : "sandwich" et "smart-window" sont modélisés à l'aide de simulations Monte-Carlo. La configuration "smart-window", semble la plus prometteuse car la présence d'un buffer permet de minimiser le bruit thermique et d'éviter les courants parasites.

Le troisième chapitre porte sur la synthèse MPECVD du diamant polycristallin. Afin de pouvoir réaliser de petites séries, le procédé de croissance est optimisé. Le meilleur compromis entre vitesse et qualité cristalline est défini en étudiant différents paramètres

expérimentaux. Les conditions retenues permettent de synthétiser simultanément cinq fenêtres avec une bonne qualité cristalline et une vitesse de croissance élevée de près de $2\mu\text{m}/\text{h}$. Ce processus est long et demande la réalisation d'un grand nombre d'expériences. C'est pourquoi nous développons de nouveaux outils pour suivre en temps réel l'évolution de la vitesse et de la morphologie du film. Cette technique permet notamment de contrôler la formation d'une texture $\{100\}\{111\}\langle 100\rangle$ lorsque de l'azote est ajouté dans la phase gazeuse. Le suivi de cette texture spécifique permet d'obtenir une face suffisamment lisse pour pouvoir y déposer une cible en tungstène.

Le dernier chapitre présente la caractérisation mécanique, en transmission et en détection de plusieurs dispositifs fabriqués. Les fenêtres polycristallines présentent une résistance à la rupture de 358 MPa et une excellente tenue à la fatigue après brasage. Elles possèdent une transmission aux rayons X de 80 % dès 8,8 keV. La stratégie adoptée pour la caractérisation de la fonction de détection consiste à tester les smart-windows fabriquées en laboratoire, sous irradiation X à 50 keV puis sous faisceau d'électrons lorsqu'une cible en tungstène est déposée sur la fenêtre. Trois configurations différentes sont sélectionnées pour ces tests : monocristalline "sandwich", polycristalline "smart-window" et monocristalline "smart-window". Afin d'intégrer la technologie dans un tube à rayons X, différentes fenêtres sont ensuite brasées. Elles sont montées dans un tube à rayon X expérimental qui permet d'évaluer leur réponse entre 25 keV et 60 keV dans un environnement réel. Ces dispositifs permettent d'obtenir une mesure proportionnelle au flux de photons. Les smart-windows fabriquées démontrent la possibilité de contrôler le débit de dose du tube sur une large plage de tension d'accélération et d'asservir le courant d'émission sur cette mesure. L'ensemble de cette étude a donc permis de développer un concept technologique pour l'amener à une plus grande maturité. Le niveau de développement de cette technologie est estimé à 5 sur l'échelle TRL (*Technology Readiness Level*).

De futurs développements devraient permettre de caractériser plus en détail les performances de ces smart-windows dans un environnement contraint. L'influence de la thermique sur les propriétés de détection pourra être étudiée, notamment dans une application nanofoyer où l'échauffement est très localisé. La dynamique de réponse de la fenêtre face aux régimes transitoires du tube doit aussi être estimée afin de déterminer si la smart-window peut servir à stabiliser la phase d'allumage ou à contrôler le débit des sources X pulsées utilisées dans le domaine médical. À moyen terme, plusieurs défis doivent être relevés comme l'intégration de cette technologie au processus de fabrication des XED, ou la reproductibilité des mesures sur un lot de plusieurs smart-windows. Ces dispositifs

peuvent être fabriqués sur mesure pour une application donnée. C'est pourquoi, dans une perspective plus lointaine, nous pouvons imaginer l'intégration d'autres fonctions dans une fenêtre. L'utilisation des plans cristallins du diamant pourrait servir à monochromatiser le faisceau ou à apporter une information sur l'énergie des photons produits (spectroscopie). La pixelisation du détecteur pourrait être avantageusement utilisée dans des applications d'imagerie par contraste de phase ou de positionnement du faisceau.

Bibliographie

- [1] P. Bergonzo and R. Jackman, “Diamond-based radiation and photon detectors,” in *Thin-Film Diamond*, pp. 197–263. ISBN 978-0-12-752186-0, 2004.
- [2] W. Crookes, *Radiant matter, a resume of the principal lectures and papers of Pr. William Crookes, on the ‘fourth state of matter’*. Royal Society of London and British Association for the Advancement of Science, 1879.
- [3] J. J. Thomson, “Cathode rays,” *Philosophical Magazine Series 5*, vol. 44, no. 269, pp. 293–316, 1897.
- [4] W. C. Röntgen, “Aus den sitzungsberichten der würzburg physik-medic,” *Gesellschaft*, vol. 137, no. 41, pp. 293–316, 1895.
- [5] J. T. Bushberg and J. M. Boone, *The Essential Physics of Medical Imaging*. Lippincott Williams & Wilkins, 2011. ISBN 978-0-7817-8057-5.
- [6] R. Behling, *Modern Diagnostic X-Ray Sources : Technology, Manufacturing, Reliability*. CRC Press, 2015. ISBN 978-1-4822-4133-4.
- [7] A. C. Christie, *A manual of X-ray technic*. Philadelphia : Lippincott, 1913. ISBN 978-1-1791-0734-9.
- [8] W. D. Coolidge, “Vacuum-tube,” patent no. US 1203495 A, 1916.
- [9] A. Bouwers and G. Holst, “X-ray tube,” patent no. US 1962275 A, 1929.
- [10] C. Strupp, “Beryllium metal II. A review of the available toxicity data,” *Annals of Occupational Hygiene*, vol. 55, no. 1, pp. 43–56, 2011.
- [11] Site web de GE : www.ge.com.
- [12] L. Hudanski, E. Minoux, L. Gangloff, K. B. K. Teo, J.-P. Schnell, Stephane Xavier, J. Robertson, W. I. Milne, D. Pribat, and P. Legagneux, “Carbon nanotube based photocathodes,” *Nanotechnology*, vol. 19, no. 10, p. 105201, 2008.
- [13] K. B. K. Teo, E. Minoux, L. Hudanski, F. Peauger, J.-P. Schnell, L. Gangloff, P. Legagneux, D. Dieumegard, G. A. J. Amaratunga, and W. I. Milne, “Microwave

- devices : Carbon nanotubes as cold cathodes,” *Nature*, vol. 437, no. 7061, pp. 968–968, 2005.
- [14] F. Andrianiazy, J.-P. Mazellier, L. Sabaut, L. Gangloff, P. Legagneux, and O. Gröning, “Quantitative characterization of field emission parameters : Application to statistical analysis of individual carbon nanotubes/nanofibers,” *Journal of Vacuum Science & Technology B*, vol. 33, no. 1, p. 012201, 2015.
- [15] C. Li, Y. Zhang, M. T. Cole, S. G. Shivareddy, J. S. Barnard, W. Lei, B. Wang, D. Pribat, G. A. J. Amaratunga, and W. I. Milne, “Hot Electron Field Emission via Individually Transistor-Ballasted Carbon Nanotube Arrays,” *ACS Nano*, vol. 6, no. 4, pp. 3236–3242, 2012.
- [16] A. Reinhold, “Fine focus X-ray tube and method of forming a microfocus of the electron emission of an X-ray tube hot cathode,” patent no. US4573186, 1986.
- [17] M. Bavdaz, A. Peacock, D. Fuchs, T. Lederer, P. Müller, F. Scholze, G. Ulm, V.-P. Vittanen, and R. Mutikainen, “The soft X-ray transmission properties of thin polyimide windows and their application to future detectors,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 66, no. 3, pp. 2570–2573, 1995.
- [18] S. Huebner, N. Miyakawa, S. Kapser, A. Pahlke, and F. Kreupl, “High performance X-ray transmission windows based on graphenic carbon,” *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 62, no. 2, pp. 588–593, 2015.
- [19] P. Torma, J. Kostamo, H. Sipila, M. Mattila, P. Kostamo, E. Kostamo, H. Lipsanen, C. Laubis, F. Scholze, N. Nelms, B. Shortt, and M. Bavdaz, “Performance and properties of ultra-thin silicon nitride X-ray windows,” *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 61, no. 1, pp. 695–699, 2014.
- [20] Z. Sun, J. R. Shi, B. K. Tay, and S. P. Lau, “UV Raman characteristics of nanocrystalline diamond films with different grain size,” *Diamond and Related Materials*, vol. 9, no. 12, pp. 1979–1983, 2000.
- [21] P. J. Fallon and L. M. Brown, “Analysis of chemical-vapour-deposited diamond grain boundaries using transmission electron microscopy and parallel electron energy loss spectroscopy in a scanning transmission electron microscope,” *Diamond and Related Materials*, vol. 2, no. 5-7, pp. 1004–1011, 1993.
- [22] X. Jiang, J. V. Harzer, B. Hillebrands, C. Wild, and P. Koidl, “Brillouin light scattering on chemical vapor deposited polycrystalline diamond : Evaluation of the elastic moduli,” *Applied Physics Letters*, vol. 59, no. 9, pp. 1055–1057, 1991.

-
- [23] A. Kriele, O. A. Williams, M. Wolfer, D. Brink, W. Müller-Sebert, and C. E. Nebel, "Tuneable optical lenses from diamond thin films," *Applied Physics Letters*, vol. 95, no. 3, p. 031905, 2009.
- [24] J. Field and C. Pickles, "Strength, fracture and friction properties of diamond," *Diamond and Related Materials*, vol. 5, no. 6-8, pp. 625–634, 1996.
- [25] G. Cardinale and C. Robinson, "Fracture strength measurement of filament assisted CVD polycrystalline diamond films," *Journal of Materials Research*, vol. 7, no. 06, pp. 1432–1437, 1992.
- [26] A. Bongrain, *Nouvelles technologies de capteurs MEMS en diamant pour des applications de transduction*. Thèse, Université Paris-Est, 2011.
- [27] L. Bruno, L. Pagnotta, and A. Poggialini, "Elastic characterization of CVD diamond by static and dynamic measurements," *Journal of the European Ceramic Society*, vol. 26, no. 12, pp. 2419–2425, 2006.
- [28] N. Savvides and T. J. Bell, "Hardness and elastic modulus of diamond and diamond-like carbon films," *Thin Solid Films*, vol. 228, no. 1, pp. 289–292, 1993.
- [29] M. Mohr, A. Caron, P. Herbeck-Engel, R. Bennowitz, P. Gluche, K. Brühne, and H.-J. Fecht, "Young's modulus, fracture strength, and Poisson's ratio of nanocrystalline diamond films," *Journal of Applied Physics*, vol. 116, no. 12, p. 124308, 2014.
- [30] C. A. Klein and G. F. Cardinale, "Young's modulus and Poisson's ratio of CVD diamond," *Diamond and Related Materials*, vol. 2, no. 5-7, pp. 918–923, 1993.
- [31] T. Irifune, A. Kurio, S. Sakamoto, T. Inoue, and H. Sumiya, "Materials : Ultrahard polycrystalline diamond from graphite," *Nature*, vol. 421, no. 6923, pp. 599–600, 2003.
- [32] Site web de E6 : www.e6.com.
- [33] H. Sumiya and T. Irifune, "Indentation hardness of nano-polycrystalline diamond prepared from graphite by direct conversion," *Diamond and Related Materials*, vol. 13, no. 10, pp. 1771–1776, 2004.
- [34] H. Windischmann and G. F. Epps, "Free-standing diamond membranes : optical, morphological and mechanical properties," *Diamond and Related Materials*, vol. 1, no. 506, pp. 656–664, 1992.
- [35] C. A. Klein, "Diamond windows and domes : flexural strength and thermal shock," *Diamond and Related Materials*, vol. 11, no. 2, pp. 218–227, 2002.

-
- [36] J. Fields, *The properties of diamond*. Academic Press, 1 ed., 1979. ISBN 0-12-255350-0.
- [37] G. B. Erdakos and S.-F. Ren, “Poisson’s ratios in diamond/zincblende crystals,” *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, vol. 59, no. 1, pp. 21–26, 1998.
- [38] A. L. Ruoff, “On the yield strength of diamond,” *Journal of Applied Physics*, vol. 50, no. 5, pp. 3354–3356, 1979.
- [39] V. Blank, M. Popov, G. Pivovarov, N. Lvova, K. Gogolinsky, and V. Reshetov, “Ultrahard and superhard phases of fullerite C60 : Comparison with diamond on hardness and wear,” *Diamond and Related Materials*, vol. 7, no. 2-5, pp. 427–431, 1998.
- [40] E. Wörner, “Thermal Properties and Applications of CVD Diamond,” in *Low-Pressure Synthetic Diamond*, springer series in materials processing ed. ISBN 978-3-642-71992-9, 1998.
- [41] J.-P. Mazellier, M. Mermoux, F. Andrieu, J. Widiez, J. Dechamp, S. Saada, M. Lions, M. Hasegawa, K. Tsugawa, P. Bergonzo, and O. Faynot, “Enhanced thermal performances of silicon-on-diamond wafers incorporating ultrathin nanocrystalline diamond and silicon layers : Raman and micro-Raman analysis,” *Journal of Applied Physics*, vol. 110, no. 8, p. 084901, 2011.
- [42] J.-P. Mazellier, O. Faynot, S. Cristoloveanu, S. Deleonibus, and P. Bergonzo, “Integration of diamond in fully-depleted silicon-on-insulator technology as buried insulator : A theoretical analysis,” *Diamond and Related Materials*, vol. 17, no. 7-10, pp. 1248–1251, 2008.
- [43] J. E. Graebner, S. Jin, G. W. Kammlott, J. A. Herb, and C. F. Gardinier, “Unusually high thermal conductivity in diamond films,” *Applied Physics Letters*, vol. 60, no. 13, pp. 1576–1578, 1992.
- [44] J. E. Graebner, H. Altmann, N. M. Balzaretti, R. Campbell, H. B. Chae, A. Degiovanni, R. Enck, A. Feldman, D. Fournier, J. Fricke, J. S. Goela, K. J. Gray, Y. Q. Gu, I. Hatta, T. M. Hartnett, R. E. Imhof, R. Kato, P. Koidl, P. K. Kuo, T. K. Lee, D. Maillet, B. Remy, J. P. Roger, D. J. Seong, R. P. Tye, H. Verhoeven, E. Wörner, J. E. Yehoda, R. Zachai, and B. Zhang, “Report on a second round robin measurement of the thermal conductivity of CVD diamond,” *Diamond and Related Materials*, vol. 7, no. 11-12, pp. 1589–1604, 1998.
- [45] M. Lions, *Synthèse et caractérisation de films ultraminces de diamant polycristallin*

- pour les applications Silicon-On-Diamond*. Thèse, Université Paris VI, 2011.
- [46] J. E. Graebner, S. Jin, G. W. Kammlott, J. A. Herb, and C. F. Gardinier, “Large anisotropic thermal conductivity in synthetic diamond films,” *Nature*, vol. 359, no. 6394, pp. 401–403, 1992.
- [47] E. V. Ivakin, A. V. Sukhodolov, V. G. Ralchenko, A. V. Vlasov, and A. V. Khomich, “Measurement of thermal conductivity of polycrystalline CVD diamond by laser-induced transient grating technique,” *Quantum Electronics*, vol. 32, no. 4, p. 367, 2002.
- [48] A. Sood, J. Cho, K. Hobart, T. Feygelson, B. Pate, M. Asheghi, and K. Goodson, “Anisotropic and nonhomogeneous thermal conduction in $1\mu\text{m}$ thick CVD diamond,” in *2014 IEEE Intersociety Conference on Thermal and Thermomechanical Phenomena in Electronic Systems (ITherm)*, pp. 1192–1198, 2014.
- [49] Y. Yamamoto, T. Imai, K. Tanabe, T. Tsuno, Y. Kumazawa, and N. Fujimori, “The measurement of thermal properties of diamond,” *Diamond and Related Materials*, vol. 6, no. 8, pp. 1057–1061, 1997.
- [50] A. J. Neves and M. H. Nazaré, *Properties, Growth and Applications of Diamond*. IET, 2001. ISBN 978-0-866-341781-8.
- [51] C. Moelle, M. Werner, F. Szücs, D. Wittorf, M. Sellschopp, J. von Borany, H. J. Fecht, and C. Johnston, “Specific heat of single-, poly- and nanocrystalline diamond,” *Diamond and Related Materials*, vol. 7, no. 2-5, pp. 499–503, 1998.
- [52] C. Moelle, S. Klose, F. Szcs, H. J. Fecht, C. Johnston, P. R. Chalker, and M. Werner, “Measurement and calculation of the thermal expansion coefficient of diamond,” *Diamond and Related Materials*, vol. 6, no. 5-7, pp. 839–842, 1997.
- [53] Krishnan, “Thermal Expansion of Diamond,” *Proceedings of the Indian Academy of Sciences - Section A*, vol. 24, no. 1, 1946.
- [54] D. J. Pickrell, K. A. Kline, and R. E. Taylor, “Thermal expansion of polycrystalline diamond produced by chemical vapor deposition,” *Applied Physics Letters*, vol. 64, no. 18, pp. 2353–2355, 1994.
- [55] P. W. May, “CVD diamond : a new technology for the future?,” *Endeavour*, vol. 19, no. 3, p. 101, 1995.
- [56] S. B. Qadri, C. Kim, E. F. Skelton, T. Hahn, and J. E. Butler, “Thermal expansion of chemical vapor deposition grown diamond films,” *Thin Solid Films*, vol. 236,

- no. 1, pp. 103–105, 1993.
- [57] Y. S. Touloukian, R. W. Powell, C. Y. Ho, and P. G. Klemens, *Thermophysical Properties of Matter - The TPRC Data Series. Volume 1. Thermal Conductivity - Metallic Elements and Alloys*. IFI/Plenum, 1970. ISBN 978-1-4615-9600-4.
- [58] R. Berman, P. R. W. Hudson, and M. Martinez, “Nitrogen in diamond : evidence from thermal conductivity,” *Journal of Physics C : Solid State Physics*, vol. 8, no. 21, p. L430, 1975.
- [59] M. J. Weber, *Handbook of Optical Materials*. CRC Press ed., 2002. ISBN 0-8493-3512-4.
- [60] G. A. Slack and S. F. Bartram, “Thermal expansion of some diamondlike crystals,” *Journal of Applied Physics*, vol. 46, no. 1, pp. 89–98, 1975.
- [61] A. M. Zaitsev, *Optical Properties of Diamond : A Data Handbook*. springer ed., 2001. ISBN 978-3-662-04548-0.
- [62] C. Wild, “CVD diamond for optical windows,” in *Low-Pressure Synthetic Diamond*, Springer Series in Materials Processing, 1998.
- [63] M. G. Peters, J. L. Knowles, M. Breen, and J. McCarthy, “Ultra-Thin Diamond Films For X-Ray Window Applications,” vol. 1146, pp. 217–224, 1990.
- [64] P. K. Bachmann and D. U. Wiechert, “CVD diamond for X-ray windows and lithography mask membranes,” in *Low-Pressure Synthetic Diamond*, springer series in materials processing ed. ISBN 978-3-642-71992-9, 1998.
- [65] E. I. Lipatov, S. M. Avdeev, and V. F. Tarasenko, “Photoluminescence and optical transmission of diamond and its imitators,” *Journal of Luminescence*, vol. 130, no. 11, pp. 2106–2112, 2010.
- [66] J. Walker, “Optical absorption and luminescence in diamond,” *Reports on Progress in Physics*, vol. 42, no. 10, p. 1605, 1979.
- [67] Z. Yin, Z. Akkerman, B. X. Yang, and F. W. Smith, “Optical properties and microstructure of CVD diamond films,” *Diamond and Related Materials*, vol. 6, no. 1, pp. 153–158, 1997.
- [68] R. Bogdanowicz, M. Śmietana, M. Gnyba, L. Gołunski, J. Ryl, and M. Gardas, “Optical and structural properties of polycrystalline CVD diamond films grown on fused silica optical fibres pre-treated by high-power sonication seeding,” *Applied Physics A*, vol. 116, no. 4, pp. 1927–1937, 2014.

- [69] J. H. Hubbel and S. S. M, “NIST X-Ray Mass Attenuation Coefficients.” Site web du NIST : www.nist.gov.
- [70] X. Ying and X. Xu, “CVD diamond thin film for IR optics and X-ray optics,” *Thin Solid Films*, vol. 368, no. 2, pp. 297–299, 2000.
- [71] C. Ribbing, *Microfabrication of miniature X-ray source and X-ray refractive lens*. Thèse, University of Uppsala, 2002.
- [72] M. F. Ravet and F. Rousseaux, “Status of diamond as membrane material for X-ray lithography masks,” *Diamond and Related Materials*, vol. 5, no. 6-8, pp. 812–818, 1996.
- [73] S. Tsuboi, H. Okuyama, K. Ashikaga, and Y. Yamashita, “High synchrotron radiation durability microwave plasma chemical vapor deposition diamond X-ray mask membrane,” *Journal of Vacuum Science & Technology B*, vol. 13, no. 6, pp. 3099–3102, 1995.
- [74] H. Blumer, S. Zelenika, and J. Ulrich, “CVD diamond vacuum windows for synchrotron radiation beamlines,” *Proceedings of the 4th international workshop on mechanical engineering design of synchrotron equipment and instrumentation (MEDSI 2006)*, 2006.
- [75] A. M. Khounsary and W. Phillips, “Thermal, Structural, and Fabrication Aspects of Diamond Windows for High Power Synchrotron X-Ray Beamlines,” *SPIE Proceedings*, vol. 1739, 1992.
- [76] R. A. Campos, V. J. Trava-Airoldi, O. R. Bagnato, J. R. Moro, and E. J. Corat, “Development of nanocrystalline diamond windows for application in synchrotron beamlines,” *Vacuum*, vol. 89, pp. 21–25, 2013.
- [77] W. Schildkamp and L. Nikitina, “Manufacturing of diamond windows for synchrotron radiation,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 83, no. 9, p. 095104, 2012.
- [78] L. E. Berman, J. B. Hastings, D. Peter Siddons, M. Koike, V. Stojanoff, and M. Hart, “Diamond crystal X-ray optics for high-power-density synchrotron radiation beams,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 329, no. 3, pp. 555–563, 1993.
- [79] K. V. Ravi, L. S. Plano, M. Pinneo, M. Peters, and Y. S, “Controlled microstructure diamond film synthesis and selected applications,” in *Science and Technology of New Diamond*, ktk scientific publishers / terra scientific publishing company ed. ISBN

- 978-4-876-77104-2, 1990.
- [80] W. de Boer, J. Bol, A. Furgeri, S. M^uller, C. Sander, E. Berdermann, M. Pomorski, and M. Huhtinen, "Radiation hardness of diamond and silicon sensors compared," *physica status solidi (a)*, vol. 204, no. 9, pp. 3004–3010, 2007.
- [81] S. Kozlov, E. Konorova, Y. Kuznetsov, Y. Salikov, V. Redko, V. Grinberg, and M. Meilman, "Diamond dosimeter for x-ray and gamma-radiation," *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 24, no. 1, pp. 235–237, 1977.
- [82] P. Bergonzo, D. Tromson, and C. Mer, "Radiation detection devices made from CVD diamond," *Semiconductor Science and Technology*, vol. 18, no. 3, p. S105, 2003.
- [83] N. Tranchant, M. Nesladek, D. Tromson, Z. Remes, A. Bogdan, and P. Bergonzo, "Time of flight study of high performance CVD diamond detector devices," *physica status solidi (a)*, vol. 204, no. 9, pp. 3023–3029, 2007.
- [84] R. Hessmer, M. Schreck, S. Geier, and B. Stritzker, "Correlation between breakdown voltage and structural properties of polycrystalline and heteroepitaxial CVD diamond films," *Diamond and Related Materials*, vol. 3, no. 4-6, pp. 951–956, 1994.
- [85] J. D. Shovlin and M. E. Kordesch, "Electron emission from chemical vapor deposited diamond and dielectric breakdown," *Applied Physics Letters*, vol. 65, no. 7, pp. 863–865, 1994.
- [86] E. Boettger, A. Bluhm, X. Jiang, L. Sch^ufer, and C.-P. Klages, "Investigation of the high-field conductivity and dielectric strength of nitrogen containing polycrystalline diamond films," *Journal of Applied Physics*, vol. 77, no. 12, pp. 6332–6337, 1995.
- [87] M. Lions, S. Saada, J.-P. Mazellier, F. Andrieu, O. Faynot, and P. Bergonzo, "Ultra-thin nanocrystalline diamond films (<100 nm) with high electrical resistivity," *physica status solidi (RRL) - Rapid Research Letters*, vol. 3, no. 6, pp. 205–207, 2009.
- [88] R. Ramesham, T. Roppel, C. Ellis, and B. H. Loo, "Electrical characterization of undoped and boron-doped polycrystalline diamond thin films," *Journal of The Electrochemical Society*, vol. 138, no. 10, pp. 2981–2984, 1991.
- [89] M. I. Landstrass and K. V. Ravi, "Resistivity of chemical vapor deposited diamond films," *Applied Physics Letters*, vol. 55, no. 10, pp. 975–977, 1989.
- [90] C. E. Nebel, "Electronic properties of CVD diamond," *Semiconductor Science and Technology*, vol. 18, no. 3, p. S1, 2003.

-
- [91] H. J. Looi, R. B. Jackman, and J. S. Foord, "High carrier mobility in polycrystalline thin film diamond," *Applied Physics Letters*, vol. 72, no. 3, pp. 353–355, 1998.
- [92] M. I. Landstrass, M. A. Plano, M. A. Moreno, S. McWilliams, L. S. Pan, D. R. Kania, and S. Han, "Device properties of homoepitaxially grown diamond," *Diamond and Related Materials*, vol. 2, no. 5-7, pp. 1033–1037, 1993.
- [93] M. Geis, "Diamond transistor performance and fabrication," *Proceedings of the IEEE*, vol. 79, no. 5, pp. 669–676, 1991.
- [94] P. Liu, R. Yen, and N. Bloembergen, "Dielectric breakdown threshold, two-photon absorption, and other optical damage mechanisms in diamond," *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 14, no. 8, pp. 574–576, 1978.
- [95] J. W. Vandersande and L. D. Zoltan, "Using high-temperature electrical resistivity measurements to determine the quality of diamond films," *Diamond and Related Materials*, vol. 4, no. 5-6, pp. 641–644, 1995.
- [96] J. Isberg, J. Hammersberg, E. Johansson, T. Wikström, D. J. Twitchen, A. J. Whitehead, S. E. Coe, and G. A. Scarsbrook, "High carrier mobility in single-crystal plasma-deposited diamond," *Science*, vol. 297, no. 5587, pp. 1670–1672, 2002.
- [97] J. Pernot, C. Tavares, E. Gheeraert, E. Bustarret, M. Katagiri, and S. Koizumi, "Hall electron mobility in diamond," *Applied Physics Letters*, vol. 89, no. 12, p. 122111, 2006.
- [98] F. Nava, C. Canali, C. Jacoboni, L. Reggiani, and S. F. Kozlov, "Electron effective masses and lattice scattering in natural diamond," *Solid State Communications*, vol. 33, no. 4, pp. 475–477, 1980.
- [99] N. Tranchant, D. Tromson, C. Descamps, A. Isambert, H. Hamrita, P. Bergonzo, and M. Nesladek, "High mobility single crystal diamond detectors for dosimetry : Application to radiotherapy," *Diamond and Related Materials*, vol. 17, no. 7-10, pp. 1297–1301, 2008.
- [100] D. Tromson, C. Descamps, N. Tranchant, P. Bergonzo, M. Nesladek, and A. Isambert, "Investigations of high mobility single crystal chemical vapor deposition diamond for radiotherapy photon beam monitoring," *Journal of Applied Physics*, vol. 103, no. 5, p. 054512, 2008.
- [101] F. Marsolat, D. Tromson, N. Tranchant, M. Pomorski, M. L. Roy, M. Donois, F. Moignau, A. Ostrowsky, L. D. Carlan, C. Bassinet, C. Huet, S. Derreumaux, M. Chea, K. Cristina, G. Boisserie, and P. Bergonzo, "A new single crystal diamond dosimeter

- for small beam : comparison with different commercial active detectors,” *Physics in Medicine and Biology*, vol. 58, no. 21, p. 7647, 2013.
- [102] P. Bergonzo, R. Barrett, O. Hainaut, D. Tromson, C. Mer, and B. Guizard, “Imaging of the sensitivity in detector grade polycrystalline diamonds using micro-focused X-ray beams,” *Diamond and Related Materials*, vol. 11, no. 3-6, pp. 418–422, 2002.
- [103] P. Bergonzo, D. Tromson, C. Descamps, H. Hamrita, C. Mer, N. Tranchant, and M. Nesladek, “Improving diamond detectors : A device case,” *Diamond and Related Materials*, vol. 16, no. 4-7, pp. 1038–1043, 2007.
- [104] K. Desjardins, M. Pomorski, and J. Morse, “Ultra-thin optical grade scCVD diamond as X-ray beam position monitor,” *Journal of Synchrotron Radiation*, vol. 21, no. Pt 6, pp. 1217–1223, 2014.
- [105] J. Morse, M. Salomé, E. Berdermann, M. Pomorski, W. Cunningham, and J. Grant, “Single crystal CVD diamond as an X-ray beam monitor,” *Diamond and Related Materials*, vol. 16, no. 4-7, pp. 1049–1052, 2007.
- [106] P. Bergonzo, A. Brambilla, D. Tromson, R. D. Marshall, C. Jany, F. Foulon, C. Gauthier, V. A. Solà, A. Rogalev, and J. Goulon, “Semitransparent CVD diamond detectors for in situ synchrotron radiation beam monitoring,” *Diamond and Related Materials*, vol. 8, no. 2-5, pp. 920–926, 1999.
- [107] W. G. Eversole, “Synthesis of diamond,” patent no. US 3030187 A, 1962.
- [108] B. V. Spitsyn, L. L. Bouilov, and B. V. Derjaguin, “Vapor growth of diamond on diamond and other surfaces,” *Journal of Crystal Growth*, vol. 52, pp. 219–226, 1981.
- [109] A. Chavanne, J. C. Arnault, J. Barjon, and J. Arabski, “Bias-enhanced nucleation of diamond on iridium : A comprehensive study of the first stages by sequential surface analysis,” *Surface Science*, vol. 605, no. 5-6, pp. 564–569, 2011.
- [110] S. Barrat, S. Saada, I. Dieguez, and E. Bauer-Grosse, “Diamond deposition by chemical vapor deposition process : Study of the bias enhanced nucleation step,” *Journal of Applied Physics*, vol. 84, no. 4, pp. 1870–1880, 1998.
- [111] M. Schreck, H. Roll, and B. Stritzker, “Diamond/Ir/SrTiO₃ : A material combination for improved heteroepitaxial diamond films,” *Applied Physics Letters*, vol. 74, no. 5, pp. 650–652, 1999.
- [112] M. Schreck, J. Asmussen, S. Shikata, J.-C. Arnault, and N. Fujimori, “Large-area high-quality single crystal diamond,” *MRS Bulletin*, vol. 39, no. 06, pp. 504–510,

- 2014.
- [113] N. Vaissiere, S. Saada, M. Bouttemy, A. Etcheberry, P. Bergonzo, and J. C. Arnault, “Heteroepitaxial diamond on iridium : New insights on domain formation,” *Diamond and Related Materials*, vol. 36, pp. 16–25, 2013.
- [114] N. Tranchant, *Synthèse et caractérisation de diamants monocristallins pour applications de détecteur de rayonnements*. Thèse, Rennes, INSA, 2008.
- [115] A. Bongrain, E. Scorsone, L. Rousseau, G. Lissorgues, C. Gesset, S. Saada, and P. Bergonzo, “Selective nucleation in silicon moulds for diamond MEMS fabrication,” *Journal of Micromechanics and Microengineering*, vol. 19, no. 7, p. 074015, 2009.
- [116] E. Scorsone, S. Saada, J. C. Arnault, and P. Bergonzo, “Enhanced control of diamond nanoparticle seeding using a polymer matrix,” *Journal of Applied Physics*, vol. 106, no. 1, p. 014908, 2009.
- [117] H. A. Girard, S. Perruchas, C. Gesset, M. Chaigneau, L. Vieille, J.-C. Arnault, P. Bergonzo, J.-P. Boilot, and T. Gacoin, “Electrostatic grafting of diamond nanoparticles : A versatile route to nanocrystalline diamond thin films,” *ACS Applied Materials & Interfaces*, vol. 1, no. 12, pp. 2738–2746, 2009.
- [118] H. A. Girard, E. Scorsone, S. Saada, C. Gesset, J. C. Arnault, S. Perruchas, L. Rousseau, S. David, V. Pichot, D. Spitzer, and P. Bergonzo, “Electrostatic grafting of diamond nanoparticles towards 3d diamond nanostructures,” *Diamond and Related Materials*, vol. 23, pp. 83–87, 2012.
- [119] D. R. Gilbert, M. L. Carasso, P. A. Demkowicz, R. K. Singh, and J. H. Adair, “Deposition of diamond from alcohol precursors in an electron cyclotron resonance plasma system,” *Journal of Electronic Materials*, vol. 26, no. 11, pp. 1326–1330, 1997.
- [120] M. Couty, H. A. Girard, and S. Saada, “Nanoparticle adhesion and mobility in thin layers : Nanodiamonds as a model,” *ACS Applied Materials & Interfaces*, vol. 7, no. 29, pp. 15752–15764, 2015.
- [121] A. Van der Drift, “Evolutionary selection, a principle governing growth orientation in vapour-deposited layers,” *Philipp's Research Repository*, 1967.
- [122] Site web de Diamond Material : www.diamond-material.com.
- [123] A. T. Collins and A. W. S. Williams, “The nature of the acceptor centre in semi-

- conducting diamond,” *Journal of Physics C : Solid State Physics*, vol. 4, no. 13, p. 1789, 1971.
- [124] C. Mer-Calfati, N. Tranchant, P. N. Volpe, F. Jomard, S. Weber, P. Bergonzo, and J. C. Arnault, “Sharp interfaces for diamond delta-doping and SIMS profile modelling,” *Materials Letters*, vol. 115, pp. 283–286, 2014.
- [125] P. Legagneux, L. Hudanski, P. Ponard, C. Bourat, and J.-P. Schnell, “X-Ray source comprising at least one electron source combined with a photoelectric control device,” 2009.
- [126] P. Legagneux, L. Hudanski, J.-P. Schnell, D. Dieumegard, P. Guiset, and A. De Rossi, “Optically controlled cold-cathode electron tube,” 2007.
- [127] J. Turley and G. Sines, “The anisotropy of Young’s modulus, shear modulus and Poisson’s ratio in cubic materials,” *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 4, no. 2, p. 264, 1971.
- [128] J. E. Field, “The mechanical and strength properties of diamond,” *Reports on Progress in Physics*, vol. 75, no. 12, p. 126505, 2012.
- [129] V. P. Adiga, A. V. Sumant, S. Suresh, C. Gudeman, O. Auciello, J. A. Carlisle, and R. W. Carpick, “Mechanical stiffness and dissipation in ultrananocrystalline diamond microresonators,” *Physical Review B*, vol. 79, no. 24, p. 245403, 2009.
- [130] S. Timoshenko and S. Woinowsky-Krieger, *Theory of plates and shells*. New York : McGraw-Hill, 1959. ISBN 978-0-07-085820-6.
- [131] J. Case and A. Chilver, “Thin shells under internal pressure,” in *Strength of Materials : An Introduction to the Analysis of Stress and Strain*, the Universities Press ed. ISBN 978-1-48-20829-9, 1959.
- [132] R. J. Jaccodine and W. A. Schlegel, “Measurement of strains at Si-SiO₂ interface,” *Journal of Applied Physics*, vol. 37, no. 6, pp. 2429–2434, 1966.
- [133] M. K. Small and W. Nix, “Analysis of the accuracy of the bulge test in determining the mechanical properties of thin films,” *Journal of Materials Research*, vol. 7, no. 06, pp. 1553–1563, 1992.
- [134] G. Cardinale and C. Robinson, “Fracture strength measurement of filament assisted cvd polycrystalline diamond films,” *Journal of Materials Research*, vol. 7, no. 06, pp. 1432–1437, 1992.
- [135] A. Kriele, O. A. Williams, M. Wolfer, D. Brink, W. Müller-Sebert, and C. E. Nebel,

- “Tuneable optical lenses from diamond thin films,” *Applied Physics Letters*, vol. 95, no. 3, p. 031905, 2009.
- [136] E. I. Bromley, J. N. Randall, D. C. Flanders, and R. W. Mountain, “A technique for the determination of stress in thin films,” *Journal of Vacuum Science AND Technology B*, vol. 1, no. 4, pp. 1364–1366, 1983.
- [137] H. Youssef, *Développement d un banc de test par gonflement de membranes destiné à la caractérisation mécanique de matériaux déposés en films minces*. Thèse, Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2011.
- [138] A. Catlin and W. P. Walker, “Mechanical properties of thin single-crystal gold films,” *Journal of Applied Physics*, vol. 31, no. 12, pp. 2135–2139, 1960.
- [139] V. Y. Pickhardt and D. L. Smith, “Fabrication of high-strength unsupported metal membrane,” *Journal of Vacuum Science And Technology*, vol. 14, no. 3, pp. 823–825, 1977.
- [140] Y. Xiang, X. Chen, and J. Vlassak, “Plane-strain bulge test for thin films,” *Journal of Materials Research*, vol. 20, no. 09, pp. 2360–2370, 2005.
- [141] X. Yu, P. Raterron, J. Zhang, Z. Lin, L. Wang, and Y. Zhao, “Constitutive Law and Flow Mechanism in Diamond Deformation,” *Scientific Reports*, vol. 2, Nov. 2012.
- [142] H. Windischmann, G. F. Epps, Y. Cong, and R. W. Collins, “Intrinsic stress in diamond films prepared by microwave plasma CVD,” *Journal of Applied Physics*, vol. 69, no. 4, pp. 2231–2237, 1991.
- [143] N. G. Ferreira, E. Abramof, N. F. Leite, E. J. Corat, and V. J. Trava-Airoldi, “Analysis of residual stress in diamond films by x-ray diffraction and micro-Raman spectroscopy,” *Journal of Applied Physics*, vol. 91, no. 4, pp. 2466–2472, 2002.
- [144] S. K. Choi, D. Y. Jung, and H. M. Choi, “Intrinsic stress and its relaxation in diamond film deposited by hot filament chemical vapor deposition,” *Journal of Vacuum Science & Technology A*, vol. 14, no. 1, pp. 165–169, 1996.
- [145] G. G. Stoney, “The Tension of Metallic Films Deposited by Electrolysis,” *Proceedings of the royal society of London*, vol. 82, pp. 172–175, 1909.
- [146] J. J. Wortman and R. A. Evans, “Young’s Modulus, Shear Modulus, and Poisson’s Ratio in Silicon and Germanium,” *Journal of Applied Physics*, vol. 36, no. 1, pp. 153–156, 1965.
- [147] J. Menčík, *Mechanics of Components with Treated or Coated Surfaces*. Springer

- Science & Business Media, 2013. ISBN 978-9-40-15869-0.
- [148] J. Michler, M. Mermoux, Y. von Kaenel, A. Haouni, G. Lucazeau, and E. Blank, “Residual stress in diamond films : origins and modelling,” *Thin Solid Films*, vol. 357, no. 2, pp. 189–201, 1999.
- [149] F. A. Doljack and R. W. Hoffman, “The origins of stress in thin nickel films,” *Thin Solid Films*, vol. 12, no. 1, pp. 71–74, 1972.
- [150] T. Brown, H. LeMay Jr, and B. Bursten, *Chemistry, the central science*. PH, 2009.
- [151] V. Ziebart, O. Paul, U. Munch, J. Schwizer, and H. Baltes, “Mechanical properties of thin films from the load deflection of long clamped plates,” *Journal of Microelectromechanical Systems*, vol. 7, no. 3, pp. 320–328, 1998.
- [152] E. Orowan, “Fracture and strength of solids,” *Reports on Progress in Physics*, vol. 12, no. 1, pp. 185–232, 1949.
- [153] A. A. Griffith, “The Phenomena of Rupture and Flow in Solids,” *Royal Society of London Philosophical Transactions Series A*, vol. 221, pp. 163–198, 1921.
- [154] K. J. Gray and H. Windischmann, “Free-standing CVD diamond wafers for thermal management by d.c. arc jet technology,” *Diamond and Related Materials*, vol. 8, pp. 903–908, Mar. 1999.
- [155] V. E. Cosslett and W. C. Nixon, “X-Ray Shadow Microscopy,” *Nature*, vol. 170, no. 4324, pp. 436–438, 1952.
- [156] C. S. Cojocaru, D. Kim, D. Pribat, J.-E. Bourée, E. Minoux, L. Gangloff, and P. Legagneux, “Study of electron field emission from arrays of multi-walled carbon nanotubes synthesized by hot-wire dc plasma-enhanced chemical vapor deposition,” *Journal of Non-Crystalline Solids*, vol. 352, no. 9-2, pp. 1352–1356, 2006.
- [157] D. R. Lide, *CRC Handbook of Chemistry and Physics, 85th Edition*. CRC Press, 2004. ISBN 978-0-84-93048-59.
- [158] A. Muller, “On the Input Limit of an X-Ray Tube with Circular Focus,” *Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, vol. 117, no. 776, pp. 30–42, 1927.
- [159] D. C. Stickler, “The thermal response of a metal slab to a class of radially dependent heat inputs,” *Applied Scientific Research, Section A*, vol. 14, no. 1, pp. 279–293, 1965.
- [160] D. E. Grider, A. Wright, and P. K. Ausburn, “Electron beam melting in microfocus

- X-ray tubes,” *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 19, no. 12, p. 2281, 1986.
- [161] M. Bhattacharyya and D. T. Tuma, “Heating of solid targets by electron beams,” *Electron Devices, IEEE Transactions on*, vol. 30, no. 6, pp. 602–608, 1983.
- [162] J. Vine and P. Einstein, “Heating effect of an electron beam impinging on a solid surface, allowing for penetration,” *Electrical Engineers, Proceedings of the Institution of*, vol. 11, no. 5, pp. 921–930, 1964.
- [163] C. Delfaure, J. P. Mazellier, N. Tranchant, P. Bergonzo, P. Ponard, and S. Saada, “Nanofocus diamond X-ray windows : Thermal modeling of nano-sized heat source systems,” *Diamond and Related Materials*, vol. 59, pp. 104–115, Oct. 2015.
- [164] H. S. Carslaw and J. C. Jaeger, *conduction of heat in solids*. Oxford University Press, second ed., 1959. ISBN 978-0-19-85336-89.
- [165] Y. Menesguen and R. Kuszelewicz, “Thermal modeling of large-area VCSELs under optical pumping,” *IEEE Journal of quantum electronics*, vol. 41, no. 7, pp. 901–908, 2005.
- [166] D. Possa and J. A. Nogueira, “Alguns Problemas de Eletromagnetismo Envolvendo Series Infinitas,” *Revista Brasileira de Ensino de Fisica*,, vol. 25, no. 4, p. 384, 2003.
- [167] D. X. Macedo and I. Guedes, “Potencial eletrico para distribuicoes de cargas puntiformes : sobre a convergencia de series infinitas,” *Revista Brasileira de Ensino de Fisica*,, vol. 32, no. 3, p. 3309, 2010.
- [168] K. Kanaya and S. Okanaya, “Penetration and energy loss theory of electrons in solid target,” *Journal of physics D : Applied Physics*, vol. 5, p. 43, 1972.
- [169] G. D. Archard, “Back Scattering of Electrons,” *Journal of Applied Physics*, vol. 32, no. 8, pp. 1505–1509, 1961.
- [170] E. T. Swartz and R. O. Pohl, “Thermal boundary resistance,” *Reviews of Modern Physics*, vol. 61, no. 3, pp. 605–668, 1989.
- [171] C. Monachon and L. Weber, “Thermal boundary conductance between refractory metal carbides and diamond,” *Acta Materialia*, vol. 73, pp. 337–346, 2014.
- [172] C. Monachon and L. Weber, “Thermal boundary conductance of transition metals on diamond,” *Emerging Materials Research*, vol. 1, no. 2, pp. 89–98, 2012.
- [173] T. I. Galkina, A. Y. Klokov, A. I. Sharkov, V. S. Bagaev, E. E. Onishchenko, V. V. Zaitsev, V. G. Ralchenko, V. A. Dravin, R. A. Khmel’nitskii, and A. A. Gippius, “Propagation of acoustic phonons across the interfaces in CdTe and Si/CVD-

- diamond and quasi-two-dimensional phonon wind in CdTe/ZnTe quantum wells,” *Physica B : Condensed Matter*, vol. 316-317, pp. 243–246, 2002.
- [174] A. Klokov, D. Aminev, A. Sharkov, V. Ral’chenko, and T. Galkina, “Thermal parameters of layers and interfaces in silicon-on-diamond structures,” *Physics of the Solid State*, vol. 50, no. 12, pp. 2263–2269, 2008.
- [175] H. Verhoeven, E. Boettger, A. e. R. H. Flöter, and R. Zachai, “Thermal resistance and electrical insulation of thin low-temperature-deposited diamond films,” *Diamond and Related Materials*, vol. 6, no. 2-4, pp. 298–302, 1997.
- [176] P. Vadasz, “Analytical Solution to Nonlinear Thermal Diffusion : Kirchhoff Versus Cole Hopf Transformations,” *Journal of Heat Transfer*, vol. 132, no. 12, pp. 121302–121302, 2010.
- [177] E. A. Burgemeister, “Thermal conductivity of natural diamond between 320 and 450 K,” *Physica B+C*, vol. 93, no. 2, pp. 165–179, 1978.
- [178] J. W. Vandersande, C. B. Vining, and A. Zoltan, “Thermal conductivity of natural type IIa diamond between 500k and 1250k,” 1991.
- [179] H.-K. Lyeo and D. G. Cahill, “Thermal conductance of interfaces between highly dissimilar materials,” *Physical Review B*, vol. 73, no. 14, p. 144301, 2006.
- [180] R. W. Powell, C. Y. Ho, and P. E. Liley, *Thermal conductivity of selected material*, vol. 1 of *national standard reference data series*. United States department of commerce, nsrds ed., 1966.
- [181] R. Lowrie and A. M. Gonas, “Dynamic Elastic Properties of Polycrystalline Tungsten, 14°c-1800°c,” *Journal of Applied Physics*, vol. 36, no. 7, pp. 2189–2192, 1965.
- [182] P. Hidnert, W. T. Sweeney, and United States., “Thermal expansion of tungsten,” in *Standard Yearbook*, Scientific Papers of the Bureau of Standards ;no. 515, U.S. Dept. of Commerce, Bureau of Standards, 1927.
- [183] F. Marsolat, *Développement d’un dosimètre diamant pour une mesure de la dose absorbée dans les mini-faisceaux utilisés en radiothérapie stéréotaxique*. Thèse, Université Paris VI, 2014.
- [184] C. Y. Fong and B. M. Klein, *Diamond : Electronic properties and applications*. The Kluwer International Series in Engineering and Computer Science, Springer US, 1995. ISBN 978-1-4615-2257-7.
- [185] J. Kaneko and M. Katagiri, “Diamond radiation detector using a synthetic IIa type

- mono-crystal,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 383, no. 2-3, pp. 547–548, 1996.
- [186] J. H. Kaneko, T. Tanaka, T. Imai, Y. Tanimura, M. Katagiri, T. Nishitani, H. Takeuchi, T. Sawamura, and T. Iida, “Radiation detector made of a diamond single crystal grown by a chemical vapor deposition method,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 505, no. 1-2, pp. 187–190, 2003.
- [187] M. Pomorski, *Electronic properties of single crystal CVD diamond and its suitability for particle detection in hadron physics experiments*. Thèse, Université de Francfort, 2008.
- [188] H. A. Kramers, “On the theory of X-ray absorption and of the continuous X-ray spectrum,” *Philosophical Magazine Series 6*, vol. 46, no. 275, pp. 836–871, 1923.
- [189] G. H. McCall, “Calculation of X-ray bremsstrahlung and characteristic line emission produced by a Maxwellian electron distribution,” *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 15, no. 5, p. 823, 1982.
- [190] S. Saada, S. Pochet, L. Rocha, J. C. Arnault, and P. Bergonzo, “Real time investigation of diamond nucleation by laser scattering,” *Diamond and Related Materials*, vol. 18, no. 5-8, pp. 707–712, 2009.
- [191] P.-N. Volpe, J.-C. Arnault, N. Tranchant, G. Chicot, J. Pernot, F. Jomard, and P. Bergonzo, “Boron incorporation issues in diamond when TMB is used as precursor : Toward extreme doping levels,” *Diamond and Related Materials*, vol. 22, pp. 136–141, 2012.
- [192] M. Pomorski, E. Berdermann, A. Caragheorghopol, M. Ciobanu, M. Kiš, A. Martemiyarov, C. Nebel, and P. Moritz, “Development of single-crystal CVD-diamond detectors for spectroscopy and timing,” *physica status solidi (a)*, vol. 203, no. 12, pp. 3152–3160, 2006.
- [193] T. Tachibana and J. T. Glass, “Effects of argon presputtering on the formation of aluminum contacts on polycrystalline diamond,” *Journal of Applied Physics*, vol. 72, no. 12, pp. 5912–5918, 1992.
- [194] S. S. M. Chan, C. Peucheret, R. D. McKeag, R. B. Jackman, C. Johnston, and P. R. Chalker, “Aluminum and nickel contact metallizations on thin film diamond,” *Journal of Applied Physics*, vol. 78, no. 4, pp. 2877–2879, 1995.

-
- [195] D. Takeuchi, S. Yamanaka, H. Watanabe, H. Okushi, and K. Kajimura, "Spatial uniformity of Schottky contacts between aluminum and hydrogenated homoepitaxial diamond films," *Applied Surface Science*, vol. 159-160, pp. 572–577, 2000.
- [196] A. Galbiati, S. Lynn, K. Oliver, F. Schirru, T. Nowak, B. Marczewska, J. Dueas, R. Berjillos, I. Martel, and L. Lavergne, "Performance of monocrystalline diamond radiation detectors fabricated using TiW, Cr/Au and a novel ohmic DLC/Pt/Au electrical contact," *IEEE Transactions on Nuclear Science*, vol. 56, no. 4, pp. 1863–1874, 2009.
- [197] A. Galbiati, "Contacts on diamond," patent no. EP2178108 A1, 2010.
- [198] V. Liechtenstein, "Diamond-like carbon (DLC)-based radiation hard contacts for diamond detectors," 2008. 4th NoRHDia Workshop.
- [199] B. Caylar, M. Pomorski, and P. Bergonzo, "Laser-processed three dimensional graphitic electrodes for diamond radiation detectors," *Applied Physics Letters*, vol. 103, no. 4, p. 043504, 2013.
- [200] A. Oh, B. Caylar, M. Pomorski, and T. Wengler, "A novel detector with graphitic electrodes in CVD diamond," *Diamond and Related Materials*, vol. 38, pp. 9–13, 2013.
- [201] L. M. N. Távora, E. J. Morton, and W. B. Gilboy, "Design considerations for transmission x-ray tubes operated at diagnostic energies," *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 33, no. 19, p. 2497, 2000.
- [202] H. J. Kim, S. H. Heo, J. M. Ha, and S. O. Cho, "An optimization of super-miniature X-ray target," *Transaction of the Korean Nuclear Society Spring Meeting*, pp. 711–712, 2011.
- [203] A. Sofienko, C. Jarvis, and A. Voll, "Electron range evaluation and X-ray conversion optimization in tungsten transmission-type targets with the aid of wide electron beam Monte Carlo simulations," pp. 1–15, 2014.
- [204] R. Polini, F. Le Normand, G. Marcheselli, and E. Traversa, "Early stages of diamond-film formation on cobalt-cemented tungsten carbide," *Journal of the American Ceramic Society*, vol. 82, no. 6, pp. 1429–1435, 1999.
- [205] H. Yin, K. Eguchi, and T. Yoshida, "Diamond deposition on tungsten wires by cyclic thermal plasma chemical vapor deposition," *Journal of Applied Physics*, vol. 78, no. 5, pp. 3540–3542, 1995.

-
- [206] S. Amirhaghi, H. S. Reehal, R. J. K. Wood, and D. W. Wheeler, "Diamond coatings on tungsten carbide and their erosive wear properties," *Surface and Coatings Technology*, vol. 135, no. 2-3, pp. 126–138, 2001.
- [207] R. Polini, D. Gazzoli, E. Molinari, V. Sessa, M. L. Terranova, P. Ascarelli, and S. Fontana, "Diamond crystallites nucleation on sintered tungsten : temperature and thermal treatment effects," *Diamond and Related Materials*, vol. 1, no. 2-3, pp. 205–210, 1992.
- [208] J. Yeh, R. Pfeffer, M. Cole, M. Ohring, and J. Yehoda, "Reactions between tungsten and molybdenum thin films and polycrystalline diamond substrates," *Diamond and Related Materials*, vol. 5, no. 10, pp. 1195–1203, 1996.
- [209] S. E. Mrabet, M. D. Abad, C. Lopez-Cartes, D. Martinez-Martinez, and J. C. Sanchez-Lopez, "Thermal evolution of WC/C nanostructured coatings by raman and in situ XRD analysis," *Plasma Processes and Polymers*, vol. 6, no. S1, pp. S444–S449, 2009.
- [210] F. H. Sun, Z. M. Zhang, M. Chen, and H. S. Shen, "Improvement of adhesive strength and surface roughness of diamond films on Co-cemented tungsten carbide tools," *Diamond and Related Materials*, vol. 12, no. 3-7, pp. 711–718, 2003.
- [211] W. C. Lai, Y.-S. Wu, H.-C. Chang, and Y.-H. Lee, "Enhancing the adhesion of diamond films on cobalt-cemented tungsten carbide substrate using tungsten particles via MPCVD system," *Journal of Alloys and Compounds*, vol. 509, no. 12, pp. 4433–4438, 2011.
- [212] J. Luthin and C. Linsmeier, "Carbon films and carbide formation on tungsten," *Surface Science*, vol. 454-456, pp. 78–82, 2000.
- [213] Y. Fu, B. Yan, and N. L. Loh, "Effects of pre-treatments and interlayers on the nucleation and growth of diamond coatings on titanium substrates," *Surface and Coatings Technology*, vol. 130, no. 2-3, pp. 173–185, 2000.
- [214] Q. H. Fan, A. Fernandes, E. Pereira, and J. Gracio, "Adhesion of diamond coatings on steel and copper with a titanium interlayer," *Diamond and Related Materials*, vol. 8, no. 8-9, pp. 1549–1554, 1999.
- [215] F. J. G. Silva, A. J. S. Fernandes, F. M. Costa, A. P. M. Baptista, and E. Pereira, "A new interlayer approach for CVD diamond coating of steel substrates," *Diamond and Related Materials*, vol. 13, no. 488, pp. 828–833, 2004.
- [216] Q. H. Fan, A. Fernandes, and J. Gracio, "Diamond coating on steel with a titanium

- interlayer,” *Diamond and Related Materials*, vol. 7, no. 2-5, pp. 603–606, 1998.
- [217] J. Matějček, M. Vilémová, R. Mušálek, P. Sachr, and J. Horník, “The Influence of Interface Characteristics on the Adhesion/Cohesion of Plasma Sprayed Tungsten,” *Coatings*, vol. 3, no. 2, pp. 108–125, 2013.
- [218] A. P. Malshe, B. S. Park, W. D. Brown, and H. A. Naseem, “A review of techniques for polishing and planarizing chemically vapor-deposited (CVD) diamond films and substrates,” *Diamond and Related Materials*, vol. 8, no. 7, pp. 1198–1213, 1999.
- [219] T. Schuelke and T. A. Grotjohn, “Diamond polishing,” *Diamond and Related Materials*, vol. 32, pp. 17–26, 2013.
- [220] H. Y. Tsai, C. J. Ting, and C. P. Chou, “Evaluation research of polishing methods for large area diamond films produced by chemical vapor deposition,” *Diamond and Related Materials*, vol. 16, no. 2, pp. 253–261, 2007.
- [221] M. Rabarot, J. Widiez, S. Saada, J. P. Mazellier, C. Lecouvey, J. C. Roussin, J. Dechamp, P. Bergonzo, F. Andrieu, O. Faynot, S. Deleonibus, L. Clavelier, and J. P. Roger, “Silicon-On-Diamond layer integration by wafer bonding technology,” *Diamond and Related Materials*, vol. 19, no. 7-9, pp. 796–805, 2010.
- [222] C. Vivensang, L. Ferlazzo-Manin, M. F. Ravet, G. Turban, F. Rousseaux, and A. Gicquel, “Surface smoothing of diamond membranes by reactive ion etching process,” *Diamond and Related Materials*, vol. 5, no. 6-8, pp. 840–844, 1996.
- [223] C. Blin, *Développement de cristaux photoniques en diamant : modélisation, technologie et application à la biodétection*. Thèse, Université Paris VI, 2015.
- [224] C. Blin, X. Checoury, H. A. Girard, C. Gesset, S. Saada, P. Boucaud, and P. Bergonzo, “Optical Analysis of p-Type Surface Conductivity in Diamond with Slotted Photonic Crystals,” *Advanced Optical Material*, vol. 1, pp. 963–970, 2013.
- [225] A. L. Vikharev, A. M. Gorbachev, M. P. Dukhnovsky, A. B. Muchnikov, A. K. Ratnikova, and Y. Y. Fedorov, “Combined single-crystalline and polycrystalline CVD diamond substrates for diamond electronics,” *Semiconductors*, vol. 46, no. 2, pp. 263–266, 2012.
- [226] A. B. Muchnikov, A. L. Vikharev, D. B. Radishev, V. A. Isaev, O. A. Ivanov, and A. M. Gorbachev, “A wafer of combined single-crystalline and polycrystalline CVD diamond,” *Materials Letters*, vol. 139, pp. 1–3, 2015.
- [227] C. J. Tang, A. J. S. Fernandes, J. G. Buijnsters, I. Abe, M. F. F. Domingues,

- and J. L. Pinto, "Formation of {100} facet-terminated nanocrystalline diamond by microwave plasma chemical vapor deposition : Edge effect," *physica status solidi (a)*, vol. 207, no. 9, pp. 2029–2034, 2010.
- [228] H. Yamada, A. Chayahara, Y. Mokuno, Y. Horino, and S. Shikata, "Numerical analyses of a microwave plasma chemical vapor deposition reactor for thick diamond syntheses," *Diamond and Related Materials*, vol. 15, no. 9, pp. 1389–1394, 2006.
- [229] F. Silva, A. Gicquel, A. Tardieu, P. Cledat, and T. Chauveau, "Control of an MPACVD reactor for polycrystalline textured diamond films synthesis : role of microwave power density," *Diamond and Related Materials*, vol. 5, no. 3-5, pp. 338–344, 1996.
- [230] C. J. Tang, A. J. S. Fernandes, M. Granada, J. P. Leitão, S. Pereira, X. F. Jiang, J. L. Pinto, and H. Ye, "High rate growth of nanocrystalline diamond films using high microwave power and pure nitrogen/methane/hydrogen plasma," *Vacuum*, pp. 1–5, 2015.
- [231] X. Li, J. Perkins, R. Collazo, R. J. Nemanich, and Z. Sitar, "Investigation of the effect of the total pressure and methane concentration on the growth rate and quality of diamond thin films grown by MPCVD," *Diamond and Related Materials*, vol. 15, no. 11-12, pp. 1784–1788, 2006.
- [232] K. A. Snail and C. M. Marks, "In situ diamond growth rate measurement using emission interferometry," *Applied Physics Letters*, vol. 60, no. 25, p. 3135, 1992.
- [233] F. Bénédic, P. Bruno, and P. Pigeat, "Real-time optical monitoring of thin film growth by in situ pyrometry through multiple layers and effective media approximation modeling," *Applied Physics Letters*, vol. 90, no. 13, p. 134104, 2007.
- [234] S. Barrat, P. Pigeat, I. Dieguez, E. Bauer-Grosse, and B. Weber, "Initial growth phase of diamond thin films observed by thermal emission spectrometry," *Thin Solid Films*, vol. 304, no. 1-2, pp. 98–105, 1997.
- [235] A. M. Beers, H. T. J. M. Hintzen, and J. Bloem, "Time-Resolved Optical Reflectivity and Emissivity during and after Chemical Vapor Deposition of Amorphous and Crystalline Silicon," *Journal of The Electrochemical Society*, vol. 130, no. 6, pp. 1426–1433, 1983.
- [236] A. Bonnot, B. Mathis, and S. Moulin, "Growth kinetic analysis of diamond films by in-situ elastic scattering of light and reflectivity," *Diamond and Related Materials*, vol. 3, no. 4-6, pp. 426–430, 1994.

- [237] A. M. Bonnot, B. S. Mathis, and S. Moulin, "Investigation of the growth kinetics of low pressure diamond films by in situ elastic scattering of light and reflectivity," *Applied Physics Letters*, vol. 63, no. 13, pp. 1754–1756, 1993.
- [238] A. Bonnot, T. Lopez-Rios, B. Mathis, and J. Leroy, "In-situ investigation of low-pressure diamond growth by elastic scattering of light and reflectance spectroscopy," *Diamond and Related Materials*, vol. 1, no. 2-4, pp. 161–163, 1992.
- [239] C. D. Zuiker, D. M. Gruen, and A. R. Krauss, "In situ laser reflectance interferometry measurement of diamond film growth," *Journal of Applied Physics*, vol. 79, p. 3541, 1996.
- [240] C. Wild, P. Koidl, W. Müller-Sebert, H. Walcher, R. Kohl, N. Herres, R. Locher, R. Samlenski, and R. Brenn, "Chemical vapour deposition and characterization of smooth {100}-faceted diamond films," *Diamond and Related Materials*, vol. 2, no. 2-4, 1993.
- [241] M. A. Green and M. J. Keevers, "Optical properties of intrinsic silicon at 300 K," *Progress in Photovoltaics : Research and Applications*, vol. 3, no. 3, pp. 189–192, 1995.
- [242] C. Wild, W. Müller-Sebert, T. Eckermann, and P. Koidl, "Polycrystalline diamond films for optical applications," pp. 197–205, Elsevier, 1991.
- [243] K. Hassouni, O. Leroy, S. Farhat, and A. Gicquel, "Modeling of H₂ and H₂/CH₄ Moderate-Pressure Microwave Plasma Used for Diamond Deposition," *Plasma Chemistry and Plasma Processing*, vol. 18, no. 3, pp. 325–362, 1998.
- [244] T.-H. Chein, J. Wei, and Y. Tzeng, "Synthesis of diamond in high power-density microwave methane/hydrogen/oxygen plasmas at elevated substrate temperatures," *Diamond and Related Materials*, vol. 8, pp. 1686–1696, 1999.
- [245] S. Dunst, H. Sternschulte, and M. Schreck, "Growth rate enhancement by nitrogen in diamond chemical vapor deposition : a catalytic effect," *Applied Physics Letters*, vol. 94, no. 22, pp. 224101–224101–3, 2009.
- [246] H. Sternschulte, T. Bauer, M. Schreck, and B. Stritzker, "Comparison of MWPCVD diamond growth at low and high process gas pressures," *Diamond and Related Materials*, vol. 15, no. 4-8, pp. 542–547, 2006.
- [247] Q. Yang, S. Yang, Y. S. Li, X. Lu, and A. Hirose, "NEXAFS characterization of nanocrystalline diamond thin films synthesized with high methane concentrations," *Diamond and Related Material*, vol. 16, no. 4-7, pp. 730–734, 2007.

- [248] P. W. May and Y. A. Mankelevich, “From ultrananocrystalline diamond to single crystal diamond growth in hot filament and microwave plasma-enhanced CVD reactors : a unified model for growth rates and grain sizes,” *The Journal of Physical Chemistry C*, vol. 112, no. 32, pp. 12432–12441, 2008.
- [249] P. W. May, J. N. Harvey, J. A. Smith, and Y. A. Mankelevich, “Reevaluation of the mechanism for ultrananocrystalline diamond deposition from Ar/ CH_4 / H_2 gas mixtures,” *Journal of applied physics*, vol. 99, no. 10, p. 104907, 2006.
- [250] J. A. Mucha, D. L. Flamm, and D. E. Ibbotson, “On the role of oxygen and hydrogen in diamond-forming discharges,” *Journal of Applied Physics*, vol. 65, no. 9, pp. 3448–3452, 1989.
- [251] S. Kapoor, M. A. Kelly, and S. B. Hagström, “Synthesis of diamond films using sequential chemistry : Enhanced growth rate by atomic oxygen,” *Journal of Applied Physics*, vol. 77, no. 12, pp. 6267–6272, 1995.
- [252] Z. Yu, U. Karlsson, and A. Flodström, “Influence of oxygen and nitrogen on the growth of hot-filament chemical vapor deposited diamond films,” *Thin Solid Films*, vol. 342, no. 1-2, pp. 74–82, 1999.
- [253] R. E. Rawles, W. G. Morris, and M. P. D’evelyn, “Effect of growth-rate ratio on surface morphology of homoepitaxial diamond (100) and (111),” *Applied Physics Letters*, vol. 69, no. 26, pp. 4032–4034, 1996.
- [254] F. de Theije, J. Schermer, and W. van Enckevort, “Effects of nitrogen impurities on the CVD growth of diamond : step bunching in theory and experiment,” *Diamond and Related Materials*, vol. 9, no. 8, pp. 1439–1449, 2000.
- [255] J. Achard, F. Silva, O. Brinza, A. Tallaire, and A. Gicquel, “Coupled effect of nitrogen addition and surface temperature on the morphology and the kinetics of thick CVD diamond single crystals,” *Diamond and Related Materials*, vol. 16, no. 4, pp. 685–689, 2007.
- [256] C.-S. Yan and Y. K. Vohra, “Multiple twinning and nitrogen defect center in chemical vapor deposited homoepitaxial diamond,” *Diamond and Related Materials*, vol. 8, no. 11, pp. 2022–2031, 1999.
- [257] W. Müller-Sebert, E. Wörner, F. Fuchs, C. Wild, and P. Koidl, “Nitrogen induced increase of growth rate in chemical vapor deposition of diamond,” *Applied Physics Letters*, vol. 68, no. 6, p. 759, 1996.
- [258] T. Van Regemorter and K. Larsson, “A theoretical study of nitrogen-induced effects

- on initial steps of diamond CVD growth,” *Chemical Vapor Deposition*, vol. 14, no. 7-8, pp. 224–231, 2008.
- [259] C. Wild, N. Herres, and P. Koidl, “Texture formation in polycrystalline diamond films,” *Journal of Applied Physics*, vol. 68, no. 3, pp. 973–978, 1990.
- [260] P. Smereka, X. Li, G. Russo, and D. J. Srolovitz, “Simulation of faceted film growth in three dimensions : microstructure, morphology and texture,” *Acta Materialia*, vol. 53, no. 4, pp. 1191–1204, 2005.
- [261] C. Wild, R. Kohl, N. Herres, W. Müller-Sebert, and P. Koidl, “Oriented CVD diamond films : twin formation, structure and morphology,” *Diamond and Related Materials*, vol. 3, no. 4-6, pp. 373–381, 1994.
- [262] O. Brinza, J. Achard, F. Silva, X. Bonnin, P. Barroy, K. D. Corte, and A. Gicquel, “Dependence of CVD diamond growth rate on substrate orientation as a function of process parameters in the high microwave power density regime,” *physica status solidi (a)*, vol. 205, no. 9, pp. 2114–2120, 2008.
- [263] F. Silva, A. Gicquel, A. Chiron, and J. Achard, “Low roughness diamond films produced at temperatures less than 600°C,” *Diamond and Related Materials*, vol. 9, no. 12, pp. 1965–1970, 2000.
- [264] C. J. Chu, R. H. Hauge, J. L. Margrave, and M. P. D’Evelyn, “Growth kinetics of (100), (110), and (111) homoepitaxial diamond films,” *Applied Physics Letters*, vol. 61, no. 12, pp. 1393–1395, 1992.
- [265] G. Z. Cao, J. J. Schermer, W. J. P. van Enckevort, W. A. L. M. Elst, and L. J. Giling, “Growth of {100} textured diamond films by the addition of nitrogen,” *Journal of Applied Physics*, vol. 79, no. 3, pp. 1357–1364, 1996.
- [266] C. Nørgård and A. Matthews, “Two-step diamond growth for reduced surface roughness,” *Diamond and Related Materials*, vol. 5, no. 3-5, pp. 332–337, 1996.
- [267] C. Nørgård, S. S. Eskildsen, and A. Matthews, “The influence of oriented growth on the surface roughness of CVD diamond films,” *Surface and Coatings Technology*, vol. 74-75, Part 1, pp. 358–361, 1995.
- [268] C.-H. Wu, W. H. Weber, T. J. Potter, and M. A. Tamor, “Laser reflective interferometry for in situ monitoring of diamond film growth by chemical vapor deposition,” *Journal of Applied Physics*, vol. 73, no. 6, p. 2977, 1993.
- [269] C. K. Carniglia, “Scalar scattering theory for multilayer optical coatings,” *Optical*

- Engineering*, vol. 18, no. 2, pp. 104–115, 1979.
- [270] J. Bajaj, S. J. C. Irvine, H. O. Sankur, and S. A. Svoronos, “Modeling of in situ monitored laser reflectance during MOCVD growth of HgCdTe,” *Journal of Electronic Materials*, vol. 22, no. 8, pp. 899–906, 1993.
- [271] S. Barrat, P. Pigeat, and E. Bauer-Grosse, “Three-dimensional simulation of CVD diamond film growth,” *Diamond and Related Materials*, vol. 5, no. 3-5, pp. 276–280, 1996.
- [272] A. Bogatskiy and J. E. Butler, “A geometric model of growth for cubic crystals : Diamond,” *Diamond and Related Materials*, pp. 58–65, 2014.
- [273] X. Jiang, G. Yu, and S. T. Lee, “Simulation of polycrystalline 3d film growth : An investigation of the evolution of grain size and texture in diamond films,” *Applied Physics A*, vol. 74, no. 2, pp. 217–224, 2002.
- [274] P. W. May, N. L. Allan, M. N. R. Ashfold, J. C. Richley, and Y. A. Mankelevich, “Simulations of polycrystalline CVD diamond film growth using a simplified Monte Carlo model,” *Diamond and Related Materials*, vol. 19, no. 5-6, pp. 389–396, 2010.
- [275] C. Ophus, E. Luber, and D. Mitlin, “Simulations of faceted polycrystalline thin films : Asymptotic analysis,” *Acta Materialia*, vol. 57, no. 5, pp. 1327–1336, 2009.
- [276] A. B. Rodriguez-Navarro, “Model of texture development in polycrystalline films growing on amorphous substrates with different topographies,” *Thin Solid Films*, vol. 389, no. 1-2, pp. 288–295, 2001.
- [277] Y. von Kaenel, J. Stiegler, E. Blank, O. Chauvet, C. Hellwig, and K. Plamann, “Microstructure Evolution and Defect Incorporation in Highly Oriented and Textured CVD Diamond Films,” *physica status solidi (a)*, vol. 154, no. 1, pp. 219–238, 1996.
- [278] I. Rehor and P. Cigler, “Precise estimation of HPHT nanodiamond size distribution based on transmission electron microscopy image analysis,” *Diamond and Related Materials*, vol. 46, pp. 21–24, 2014.
- [279] S. D. Rigby, K. A. Cherian, J. D. Litster, V. Rudolph, and E. T. White, “Quantifying CVD diamond growth and morphology : a useful technique for studying growth kinetics,” *Diamond and Related Materials*, vol. 9, no. 3-6, pp. 328–332, 2000.
- [280] U. E. Klotz, C. Liu, F. A. Khalid, and H.-R. Elsener, “Influence of brazing parameters and alloy composition on interface morphology of brazed diamond,” *Materials Science and Engineering A*, vol. 495, no. 12, pp. 265–270, 2008.

- [281] F. Sun, J. Feng, and D. Li, “Bonding of CVD diamond thick films using an ag-cu-ti brazing alloy,” *Journal of Materials Processing Technology*, vol. 115, no. 3, pp. 333–337, 2001.
- [282] J. C. Sung and M. Sung, “The brazing of diamond,” *International Journal of Refractory Metals and Hard Materials*, vol. 27, no. 2, pp. 382–393, 2009.
- [283] C. M. Sung, “Brazed diamond grid : a revolutionary design for diamond saws,” *Diamond and Related Materials*, vol. 8, pp. 1540–1543, 1999.
- [284] M. Kohzaki, K. Higuchi, S. Noda, and K. Uchida, “Large-area diamond deposition and brazing of the diamond films on steel substrates for tribological applications,” *Diamond and Related Materials*, vol. 2, no. 5-7, pp. 612–616, 1992.
- [285] M. A. Lodes, S. Sailer, S. M. Rosiwal, and R. F. Singer, “Adhesive bonding and brazing of nanocrystalline diamond foil onto different substrate materials,” *Applied Surface Science*, pp. 335–341, 2013.
- [286] T. A. Hahn, “Thermal Expansion of Copper from 20 to 800 k - Standard Reference Material 736,” *Journal of Applied Physics*, vol. 41, no. 13, pp. 5096–5101, 1970.
- [287] S. Matsumoto, Y. Sato, M. Kamo, and N. Setaka, “Vapor Deposition of Diamond Particles from Methane,” *Japanese Journal of Applied Physics*, vol. 21, no. 4A, p. L183, 1982.
- [288] D. K. Smith, E. Sevillano, M. Besen, V. Berkman, and L. Bourget, “Large area diamond reactor using a high flow velocity microwave plasma jet,” *Diamond and Related Materials*, vol. 1, no. 7, pp. 814–817, 1992.
- [289] C. Mueller, W. Haenni, M. Binggeli, and H. E. Hinterman, “Uniform diamond coatings on 4 in si wafers,” *Diamond and Related Materials*, vol. 2, no. 8, pp. 1211–1214, 1993.
- [290] S. Schelz, C. Campillo, and M. Moisan, “Characterization of diamond films deposited with a 915-MHz scaled-up surface-wave-sustained plasma,” *Diamond and Related Materials*, vol. 7, no. 11-12, pp. 1675–1683, 1998.
- [291] M. Fünér, C. Wild, and P. Koidl, “Novel microwave plasma reactor for diamond synthesis,” *Applied Physics Letters*, vol. 72, no. 10, pp. 1149–1151, 1998.
- [292] F. Silva, K. Hassouni, X. Bonnin, and A. Gicquel, “Microwave engineering of plasma-assisted CVD reactors for diamond deposition,” *Journal of physics condensed matter*, vol. 21, p. 364202, 2009.

- [293] Site web de Cyrannus : www.cyrannus.com.
- [294] A. Kromka, O. Babchenko, T. Izak, K. Hruska, and B. Rezek, “Linear antenna microwave plasma CVD deposition of diamond films over large areas,” *Vacuum*, vol. 86, no. 6, pp. 776–779, 2012.
- [295] A. Taylor, L. Fekete, P. Hubík, A. Jäger, P. Janíček, V. Mortet, J. Mistrík, and J. Vacík, “Large area deposition of boron doped nano-crystalline diamond films at low temperatures using microwave plasma enhanced chemical vapour deposition with linear antenna delivery,” *Diamond and Related Materials*, vol. 47, pp. 27–34, 2014.
- [296] K. Tsugawa, M. Ishihara, J. Kim, M. Hasegawa, and Y. Koga, “Large Area and Low Temperature Nanodiamond Coating by Microwave Plasma Chemical Vapor Deposition,” *New diamond and carbon frontier technology*, vol. 6, no. 16, pp. 337–347, 2006.
- [297] H. A. Mehedi, J. Achard, D. Rats, O. Brinza, A. Tallaire, V. Mille, F. Silva, C. Provent, and A. Gicquel, “Low temperature and large area deposition of nanocrystalline diamond films with distributed antenna array microwave-plasma reactor,” *Diamond and Related Materials*, vol. 47, pp. 58–65, 2014.
- [298] Site web de Goodfellow :<http://www.goodfellow.com>.
- [299] H. Windischmann and G. F. Epps, “Properties of diamond membranes for X-ray lithography,” *Journal of Applied Physics*, vol. 68, no. 11, pp. 5665–5673, 1990.
- [300] Y. Ménesguen and M. C. Lépy, “Efficiency calibration and surface mapping of an energy-dispersive detector with SOLEX : A compact tunable monochromatic X-ray source,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 695, pp. 193–196, 2012.
- [301] C. Bonnelle, P. Jonnard, J. M. André, A. Avila, D. Laporte, H. Ringuenet, M. C. Lépy, J. Plagnard, L. Ferreux, and J. C. Protas, “SOLEX : a tunable monochromatic X-ray source in the 1-20 keV energy range for metrology,” *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 516, no. 2-3, pp. 594–601, 2004.
- [302] X. Ying, J. Luo, P. Wang, M. Cui, Y. Zhao, G. Li, and P. Zhu, “Ultra-thin freestanding diamond window for soft X-ray optics,” *Diamond and Related Materials*, vol. 12, no. 3-7, pp. 719–722, 2003.

- [303] G. Conte, M. C. Rossi, S. Salvatori, F. Fabbri, S. Loreti, P. Ascarelli, E. Cappelli, and D. Trucchi, “Grain boundary transport in x-ray irradiated polycrystalline diamond,” *Journal of Applied Physics*, vol. 93, no. 10, pp. 6078–6083, 2003.
- [304] P. Volpe, J. Pernot, P. Muret, and F. Omnès, “High hole mobility in boron doped diamond for power device applications,” *Applied physics letters*, vol. 94, p. 092102, 2009.
- [305] R. H. Bube, *Photoconductivity of solids*. Wiley, 1960. ISBN 978-0-47-11148-40.
- [306] A. Rose, *Concepts in photoconductivity and allied problems*. Interscience Publishers, rev. ed., with corrections and new material edition ed., 1963. ISBN 978-0-88-27556-87.
- [307] D. Tromson, P. Bergonzo, A. Brambilla, C. Mer, F. Foulon, and V. N. Amosov, “Thermally stimulated current investigations on diamond x-ray detectors,” *Journal of Applied Physics*, vol. 87, no. 7, pp. 3360–3364, 2000.
- [308] J. Alvarez, J. Kleider, E. Snidero, P. Bergonzo, D. Tromson, and C. Mer, “On the metastability of the surface conductivity in hydrogen-terminated polycrystalline cvd diamond,” *Diamond and related material*, vol. 13, no. 4-8, pp. 751–754, 2004.
- [309] P. Bergonzo, A. Brambilla, D. Tromson, C. Mer, B. Guizard, F. Foulon, and V. Amosov, “CVD diamond for radiation detection devices,” *Diamond and Related Materials*, vol. 10, no. 3-7, pp. 631–638, 2001.
- [310] M. Pomorski, E. Berdermann, M. Ciobanu, A. Martemyanov, P. Moritz, M. Rebisz, and B. Marczevska, “Characterisation of single crystal CVD diamond particle detectors for hadron physics experiments,” *physica status solidi (a)*, vol. 202, no. 11, pp. 2199–2205, 2005.
- [311] M. Pomorski, E. Berdermann, W. de Boer, A. Furgeri, C. Sander, and J. Morse, “Charge transport properties of single crystal CVD-diamond particle detectors,” *Diamond and Related Materials*, vol. 16, no. 4-7, pp. 1066–1069, 2007.
- [312] C. Descamps, D. Tromson, N. Tranchant, A. Isambert, A. Bridier, C. De Angelis, S. Onori, M. Bucciolini, and P. Bergonzo, “Clinical studies of optimised single crystal and polycrystalline diamonds for radiotherapy dosimetry,” *Radiation Measurements*, vol. 43, no. 2-6, pp. 933–938, 2008.
- [313] F. Schirru, A. Lohstroh, K. D. G. I. Jayawardena, S. J. Henley, and P. J. Sellin, “X-ray induced photocurrent characteristics of CVD diamond detectors with different carbon electrodes,” *Journal of Instrumentation*, vol. 8, no. 12, p. C12046, 2013.

- [314] M. A. E. Abdel-Rahman, A. Lohstroh, I. Jayawardena, and S. J. Henley, “The X-ray detection performance of polycrystalline CVD diamond with pulsed laser deposited carbon electrodes,” *Diamond and Related Materials*, vol. 22, pp. 70–76, 2012.
- [315] H. Hamrita, D. Tromson, C. Descamps, C. Mer, M. Nesladek, and P. Bergonzo, “Improving Diamond Device Performances for Pulsed Mode Detection,” in *Symposium J -Diamond Electronics-Fundamentals to Applications*, vol. 956 of *MRS Online Proceedings Library*, pp. 183–188, 2006.
- [316] P. Bergonzo, H. Hamrita, D. Tromson, C. Descamps, C. Mer, and M. Nesladek, “Probing The Transient Response To Improve The Stability Of Diamond Devices Under Pulsed Periodic Excitation,” in *Symposium P -Diamond Fundamentals to Applications II*, vol. 1039 of *MRS Online Proceedings Library*, pp. 163–171, 2008.
- [317] M. A. E. Abdel-Rahman, A. Lohstroh, and P. J. Sellin, “The effect of annealing on the X-ray induced photocurrent characteristics of CVD diamond radiation detectors with different electrical contacts,” *physica status solidi (a)*, vol. 208, no. 9, pp. 2079–2086, 2011.
- [318] J. F. Fowler, *Radiation dosimetry*. F.H. Attix, W.C. Roesch, New York ed., 1966.

Annexes : Modélisation thermique

Convergence de la fonction ξ

La fonction ξ est définie comme une double série de terme général U_n

$$\xi = \sum_{n=-\infty}^{\infty} U_n$$

Ce terme général peut être représenté par une fonction décroissante sur l'intervalle considéré :

$$f : \mathbb{R}^+ \rightarrow \mathbb{R}^+$$

$$t \rightarrow \frac{1}{\sqrt{r^{*2} + (2t - z^*)^2}} - \frac{1}{\sqrt{R^{*2} + (2t - z'^*)^2}}$$

Cette série peut être découpée en deux sous-séries :

$$\xi = \sum_{n=0}^{\infty} f(n) + \sum_{n=0}^{\infty} f(-n) - f(0)$$

Pour prouver la convergence, la série peut être encadrée grâce à une comparaison intégrale. Pour le terme général, il vient :

$$\int_n^{n+1} f(t)dt < U_n < \int_{n-1}^n f(t)dt$$

Et en sommant terme à terme, il vient :

$$A_N < \sum_{n=0}^N U_n < U_0 + B_N$$

A_N et B_N sont définis comme des primitives de f et des fonction de N . Pour $r \neq 0$, elle s'écrivent :

$$A_N = \frac{1}{2} \operatorname{argsh} \left(\frac{(2N+1)H}{r} + \frac{z}{r} \right) - \frac{1}{2} \operatorname{argsh} \left(\frac{(2N+1)H}{R} + \frac{z}{R} \right) + \frac{1}{2} \operatorname{argsh} \left(\frac{z}{R} \right) - \frac{1}{2} \operatorname{argsh} \left(\frac{z}{r} \right)$$

$$B_N = \frac{1}{2} \operatorname{argsh} \left(\frac{(2N)H}{r} + \frac{z}{r} \right) - \frac{1}{2} \operatorname{argsh} \left(\frac{(2N)H}{R} + \frac{z}{R} \right) + \frac{1}{2} \operatorname{argsh} \left(\frac{z}{R} \right) - \frac{1}{2} \operatorname{argsh} \left(\frac{z}{r} \right)$$

Par ailleurs, la limite de A_N et B_N est finie :

$$\lim_{N \rightarrow +\infty} A_N = \lim_{N \rightarrow +\infty} B_N = \frac{1}{2} \ln \left(\frac{\frac{z}{r} + \sqrt{\left(\frac{z}{r}\right)^2 + \left(\frac{R}{r}\right)^2}}{\frac{z}{r} + \sqrt{\left(\frac{z}{r}\right)^2 + 1}} \right)$$

De manière analogue, un encadrement peut être trouvé pour la seconde partie de ξ . En additionnant les bornes, un encadrement de la double série globale est obtenu. Cette série ξ a des bornes finies. Elle est donc nécessairement convergente. Nous pouvons écrire l'encadrement total :

$$\ln \left(\frac{R}{r} \right) < \xi < U_0 + \ln \left(\frac{R}{r} \right)$$

Lorsque $r \gg H$, $U_0 \rightarrow 0$ et donc l'expression exacte de ξ est connue. Celle-ci correspond à l'expression la température autour d'une source de chaleur linéique équivalente. De manière analogue, la comparaison intégrale peut être reprise pour le cas où $r = 0$. L'expression des bornes change alors légèrement sans modifier la conclusion de cette analyse.

Evaluation de l'erreur

Une troncature de la double série à l'ordre P correspond à $2P + 1$ sources virtuelles. Cherchons à exprimer l'erreur faite sur cette troncature. Soit R_P le reste de la troncature :

$$R_P = \sum_{P+1}^{+\infty} U_n$$

Une majoration par comparaison intégrale de cette série partielle donne :

$$\sum_{P+1}^M U_n < \int_P^M f(t) dt$$

Et si $r \neq 0$:

$$R_P < \frac{1}{2} \ln \left[\frac{C_1 + \sqrt{(C_1)^2 + \left(\frac{R}{r}\right)^2}}{C_1 + \sqrt{(C_1)^2 + 1}} \cdot \frac{C_2 + \sqrt{(C_2)^2 + \left(\frac{R}{r}\right)^2}}{C_2 + \sqrt{(C_2)^2 + 1}} \right]$$

Avec

$$C_1 = \frac{2Pt}{r} + \frac{z}{r}$$

$$C_2 = \frac{2Pt}{r} - \frac{z}{r}$$

Dans le cas particulier où $r = 0$, l'intégration du majorant n'est pas valable et une autre expression peut-être calculée.

$$R_P < \frac{1}{2} \ln \left[\frac{\left(C_3 + \sqrt{(C_3)^2 + \left(\frac{R}{2t}\right)^2} \right) \cdot \left(C_4 + \sqrt{(C_4)^2 + \left(\frac{R}{2t}\right)^2} \right)}{4P^2 - \frac{z}{t}} \right]$$

Avec

$$C_1 = P + \frac{z}{2t}$$

$$C_2 = P - \frac{z}{2t}$$

Ainsi, le majorant de R_P , peut être utilisé pour calculer la valeur de P . C'est-à-dire le nombre minimum de sources virtuelles nécessaires pour atteindre une précision donnée.

Rayon critique et puissance maximale

Dans la zone de génération de chaleur la température s'écrit comme la somme de la résistance thermique de la fenêtre, de la zone de conduction et du terme source. Dans la zone de conduction, il suffit de soustraire le terme source.

$$\Delta T = \begin{cases} \frac{Q}{2\pi t} \left[\frac{\xi(r_t^*, R^*, 0)}{\lambda_w} + \frac{t}{2r_s^3 \lambda_t} (r_s^2 - r^2) + \frac{t}{\lambda_t} \left(\frac{1}{r_s} - \frac{1}{r_t} \right) \right] & \text{si } r < r_s \\ \frac{Q}{2\pi t} \left[\frac{\xi(r_t^*, R^*, 0)}{\lambda_w} + \frac{t}{\lambda_t} \left(\frac{1}{r_s} - \frac{1}{r_t} \right) \right] & \text{si } r > r_s \end{cases}$$

En remplaçant ΔT par $T_f - T_{th}$ dans les expressions ci-dessus, le rayon critique de fusion peut être calculée. Notons r_c ce rayon :

$$r_c = \begin{cases} 0 & r_c < 0 \\ \sqrt{6\lambda_t \theta_f \left(\frac{1}{P_{max}} - \frac{1}{P} \right)} & \text{si } r < r_s \\ \left[\frac{1}{r_t} - \frac{\lambda_t \xi(r_t^*, R^*, 0)}{t \lambda_w} + \frac{2\pi \lambda_t \theta_f}{Q} \right]^{-1} & \text{si } r > r_s \end{cases}$$

P_{max} est alors la densité de puissance seuil à partir de laquelle la cible va commencer à fondre.

Table des figures

1	Schéma de principe d'une smart-window.	2
I.1	Schéma des interactions d'un électron incident avec un atome de la cible. <i>Figure a</i> : fluorescence d'un atome de la cible. L'électron incident est rétrodiffusé après avoir éjecté un électron d'une couche interne. La réorganisation du nuage électronique donne lieu à une émission caractéristique. <i>Figure b</i> : émission d'un rayonnement de freinage par interaction entre un électron et le noyau. La force de l'interaction définit l'énergie du photon produit [5].	9
I.2	Schéma explicatif de la production de rayons X par un tube.	10
I.3	Schéma mettant en évidence les différents éléments d'un tube de Crookes. 1 : cathode, 2 : anode, 3 : anticathode, 4 : régulateur de pression, 5 : câble ajustable, 6 : rayons X, [7].	11
I.4	<i>Figure a</i> : photo d'un tube de Coolidge fabriqué par GE dans les années 1920 [8]. <i>Figure b</i> : schéma d'un tube médical à anode tournante actuel [5].	11
I.5	Schéma d'un tube en réflexion (figure a) et en transmission (figure b). . .	12
I.6	<i>Figure a</i> : phénomène d'ombrage obtenu avec une source étendue d'un tube classique. <i>Figure b</i> : image obtenue avec une source ponctuelle. . . .	13
I.7	<i>Figure a</i> : photo d'un tube microfoyer de TED. <i>Figure b</i> : image obtenue avec ce tube des connections BGA (<i>Ball Grid Array</i>) d'une puce électronique.	14
I.8	Schéma de la focalisation du faisceau électronique sur la cible d'un tube en transmission [11].	14
I.9	Cliché MEB d'un nanotube utilisé comme cathode à effet de champ [14].	15
I.10	<i>Figure a</i> : photo d'un tube nanofoyer commercialisé par GE. <i>Figure b</i> : photo d'un système d'imagerie 3D utilisant un tube nanofoyer commercialisé par YXLON.	16
I.11	<i>Figure a</i> : vue en coupe de la structure colonnaire d'un film de diamant polycristallin de 40 μm d'épaisseur. <i>Figure b</i> : cliché MEB de la surface d'un film de 0,6 μm d'épaisseur qui présente des grains de dimension $< 1\mu\text{m}$. .	17
I.12	<i>Figure a</i> : fenêtre en diamant pour les détecteurs de rayons X commercialisée par <i>Crystallume</i> [®] [79]. <i>Figure b</i> : fenêtre de synchrotron en diamant [74].	21
I.13	Positionneur de faisceau synchrotron en diamant monocristallin CVD [104].	22
I.14	Schéma de principe de la croissance CVD. La dissociation des espèces H_2 et CH_4 produit des radicaux méthyles et de l'hydrogène atomique.	23

I.15	Synthèse MPECVD homoépitaxique d'un diamant monocristallin sur substrat HPHT commercial de $4 \times 4 \text{ mm}^2$	24
I.16	Monocristaux de diamant de synthèse produits par CVD [32].	25
I.17	Cliché MEB de la surface du substrat en silicium nanoséché par accroche électrostatique avec une solution de PDDAC diluée cent fois et une solution de NDs de taille $\sim 30 \text{ nm}$ issus du broyage de diamants HPHT.	26
I.18	<i>Figure a</i> : Clichés MEB de cristaux cubo-octahédriques. <i>Figure b</i> : film nanocristallin de diamant.	27
I.19	Wafers de diamant polycristallin de synthèse de différentes tailles réalisés par CVD [122].	27
I.20	Densité surfacique de puissance à dissiper dans le système cible-fenêtre en fonction du rayon du faisceau.	29
I.21	Schéma de principe d'une smart-window regroupant : la cible, la fenêtre et une fonction de comptage du flux de photons.	30
II.1	Schéma des différentes contraintes technologiques qui s'appliquent à une fenêtre de tube	35
II.2	Schéma représentatif du problème. La ligne de pointillés rouges représente l'axe de symétrie et de révolution de la fenêtre. Celle-ci est soumise à une pression différentielle $P_{ext} - P_{int}$ qui entraîne une déflexion maximale D au centre de la fenêtre.	37
II.3	Schéma des contraintes equi-biaxiales, notées σ dans une coquille de matière d'épaisseur t et soumise à une pression interne P [130]. Le rayon de courbure de cette coquille est ici noté R_c	37
II.4	Comparaison des relations pression-déflexion pour une simulation FEM et les modèles analytiques présentés. Une fenêtre de 8 mm de diamètre et de $9 \mu\text{m}$ d'épaisseur est soumise à une pression différentielle de 1 bar. La déformation du centre de la membrane est également présentée	39
II.5	Contrainte et déformation équi-biaxiale dans une smart-window de 8 mm de diamètre en fonction de son rapport d'aspect pour une pression différentielle de 1 bar.	41
II.6	Contribution des différentes précontraintes moyennes. Contrainte intrinsèque tensile calculée à partir du modèle de relaxation des joints de grains 2.8. Contrainte thermique compressive pour un film synthétisé à 500°C, 700°C et 900°C en fonction de son épaisseur. Épaisseur du substrat de silicium : $400 \mu\text{m}$	44
II.7	<i>Figure a</i> : membrane de diamant avec une précontrainte tensile (déformation convexe). Le substrat a été gravé sur la totalité du film. <i>Figure b</i> : membrane de diamant avec une précontrainte compressive (déformation concave). Le substrat a été gravé sur un disque de 2mm de diamètre.	44
II.8	Flèche normalisée par rapport au rayon en fonction de la précontrainte d'une smart-window.	45
II.9	Simulation FEM de la contrainte principale et du déplacement d'une fenêtre de $9 \mu\text{m}$ d'épaisseur et de 8 mm de diamètre. La pression différentielle est de 1 bar.	47

II.10	Modélisation de la contrainte principale et de la déflexion d'une smart-window de 8 mm de diamètre, 9 μm d'épaisseur, brasée sur un collet en cuivre et soumise à une pression différentielle de 1 bar	48
II.11	Modélisation de la contrainte principale sur la surface supérieure d'une fenêtre de 8mm de diamètre pour différentes épaisseurs.	49
II.12	Simulation FEM 3D d'une fenêtre en diamant brasée sur un collet en cuivre. Un disque de tungstène déposé sous la fenêtre modélise la cible et les contraintes qu'elle implique dans la fenêtre.	50
II.13	Illustration du phénomène de flambage en présence d'une forte précontrainte.	50
II.14	Dégâts thermiques provoqués par l'impact du faisceau électronique sur une cible en tungstène d'un tube microfoyer de TED.	52
II.15	Schéma analogue du problème. Sur la gauche sont représentés le système réel et son thermostat. Sur la droite est représenté un système de sources virtuelles donnant une distribution de température identique.	54
II.16	Nombre minimal de sources virtuelles à utiliser pour obtenir une précision de 0,1 °C sur la température pour une source de 8,5W et avec $\lambda = 2000 W.m^{-1}.K^{-1}$	57
II.17	Tabulation de la fonction ξ dans une fenêtre de diamant pour plusieurs rapports d'aspect R/t de 40 (<i>figure a</i>) et 50 (<i>figure b</i>).	57
II.18	Forme du volume d'interaction entre un faisceau d'électrons et une cible en carbone, aluminium, cuivre, argent, or et uranium [168]. Le numéro atomique du tungstène étant de 74, le volume d'interaction se rapproche d'une demi-sphère.	59
II.19	Modèle géométrique représentatif de la cible. Le système réel (en haut) est modélisé par une zone de conductivité λ_t sans source de chaleur et de rayon r_t (en bas)	61
II.20	Élévation maximale de température du système, au centre de la zone de génération de chaleur, pour une puissance dissipée de 8,5W et une conductivité de $2000 W.m^{-1}.K^{-1}$ en fonction du rapport d'aspect R/t et pour plusieurs épaisseurs de tungstène.	62
II.21	Évolution de la conductivité thermique des matériaux utilisés en fonction de la température. Les marqueurs représentent les données expérimentales et les traits continus, les ajustements réalisés avec l'expression 2.27.	63
II.22	<i>Figure a</i> : élévation de température au centre de la zone de génération de chaleur. <i>Figure b</i> : élévation de température à l'aplomb de la source, sur la face supérieure. Les modèles linéaire (trait pointillé) et non-linéaire (trait continu) sont représentés. Les résultats d'une simulation FEM sont présentés pour comparaison (points).	65
II.23	Élévation de la température dans la smart-window (100 μm d'épaisseur et 4 mm de rayon) le long de lignes de coupe horizontales. La puissance dissipée est de 8,5 W. Les lignes représentent les résultats du modèle analytique et les points les résultats obtenus par simulation FEM.	66

II.24	Élévation de température dans la source de chaleur le long de l'axe vertical pour une puissance nominale dissipée de 8,5 W et pour différents profils de faisceau. La fenêtre fait 100 μm d'épaisseur et 4 mm de rayon. Les lignes représentent les résultats du modèle analytique et les points les résultats obtenus par simulation FEM.	66
II.25	Évolution du rayon critique en fonction de la puissance pour une fenêtre en réflexion en tungstène et un spot de 7 μm de rayon. La ligne continue correspond au modèle de Grider <i>et al.</i> , la ligne pointillée au modèle présenté ici et les points aux données expérimentales mesurées par Grider <i>et al.</i>	68
II.26	Variations des principaux flux surfaciques sur les faces inférieures et supérieures d'une smart-window calculées à partir de la simulation FEM.	69
II.27	<i>Figure a</i> : cartographie 2D de l'élévation de température sur la face inférieure d'une fenêtre en béryllium avec une cible de 4 μm d'épaisseur et une puissance de 5 W. <i>Figure b</i> : idem pour une fenêtre en diamant.	70
II.28	Cartographie 2D de l'élévation de température dans un système pseudo-aléatoire de 9x11 sources de chaleur, chacune dissipant 2 W. Ici la température à l'intérieure de chaque source n'est pas représentée pour pouvoir visualiser le motif d'échauffement autour des sources.	71
II.29	Représentation du champ de contraintes 2D dans la cible à l'aide d'une simulation FEM. Une membrane de 8 mm de diamètre et 20 μm d'épaisseur est représentée. Elle est soumise à une pression différentielle de 1 bar et à une puissance thermique de 0 W, 5 W et 8,5 W.	72
II.30	<i>Figure a</i> : configuration "sandwich", diamant de 3x3x0.5 mm ³ , pas de buffer. <i>Figure b</i> : configuration "smart-window", fenêtre de 1 cm de diamètre, buffer layer de 100 μm d'épaisseur et détecteur de 30 μm d'épaisseur.	72
II.31	Interactions intervenant dans la gamme d'énergie considérée [183]. <i>Figure a</i> : effet photoélectrique. <i>Figure b</i> : diffusion Compton. <i>Figure c</i> : diffusion Rayleigh.	74
II.32	Section efficace des différentes interactions rayonnement-matière dans le diamant entre 1 keV et 1 MeV. Informations issues de la base de donnée XCOM du NIST [69].	74
II.33	Coefficients de transmission de la cible (T_t) pour deux épaisseurs (120 nm et 5 μm) et coefficient de transmission de la fenêtre de 100 μm (T_w). Le coefficient d'absorption (A_d), du détecteur de la smart-window est également représenté.	76
II.34	Distribution énergétique normalisée après filtrage des différents éléments. Le buffer mesure 100 μm d'épaisseur. <i>Figure a</i> : la cible mesure 120 nm d'épaisseur (U=5 kV). <i>Figure b</i> : cible de 5 μm (U=60 kV).	77
II.35	Traits pointillés : distribution énergétique normalisée arrivant jusqu'au détecteur. Traits pleins : spectre absorbé par le détecteur. <i>Figure a</i> : cible de 120 nm d'épaisseur (U=5 kV). <i>Figure b</i> : cible de 5 μm (U=60 kV).	77
II.36	Courant théorique mesurable dans une fenêtre en configuration "smart-window" pour deux épaisseurs de buffer et deux courant de faisceaux électroniques.	79

II.37	<i>Figure a</i> : Photocourants théoriques mesurables dans le détecteur d'une smart-window en configuration "sandwich" (pointillés) et "smart-window" (ligne) pour une cibles de 120nm d'épaisseur. <i>Figure b</i> : idem pour une cible de $5\mu m$	82
II.38	Coefficient d'absorption effective énergétique (AEE) du détecteur d'une smart-window en configuration "sandwich" (figure a) et "smart-window" (figure b). Le rapport entre photocourant théorique mesurable et courant du faisceau électronique est également représenté. Cible en tungstène de $5\mu m$	83
II.39	<i>Figure a</i> : Photocourant mesurable I_p (trait continu) et courant parasite I_e (trait pointillé) pour une smart-window en configuration "sandwich". <i>Figure b</i> : idem pour une fenêtre en configuration "smart-window".	85
II.40	Schéma des différents dépôts d'énergie parasites (en rouge) et non parasites (en vert). A : photon absorbé dans le détecteur. B : électron issu d'une diffusion inélastique. C : photon non absorbé. D : dépôt partiel d'énergie dans le diamant par un photon. E : absorption du photon dans la cible et génération d'un électron qui peut déposer son énergie dans le diamant.	85
II.41	Photocourants théoriques mesurables et courants parasites pour une smart-window en configuration "sandwich" (figure a) et "smart-window" (figure b). Cible en tungstène de $5\mu m$	86
II.42	Densité de puissance maximale admissible dans une smart-window en fonction de la conductivité du matériau utilisé.	89
II.43	<i>Figure a</i> : FDM d'une fenêtre en configuration "sandwich" d'une épaisseur de $500\mu m$. <i>Figure b</i> : FDM d'une fenêtre en configuration "smart-window". L'épaisseur du détecteur est de $30\mu m$ et celle du buffer de $100\mu m$. Ces deux dispositifs comportent une cible de $5\mu m$	90
III.1	Photographie de l'ensemble DIADEME utilisé pour la synthèse de diamant polycristallin.	96
III.2	Vue de face de la chambre de synthèse de l'ensemble DIADEME.	97
III.3	Photographie du réacteur NABOO utilisé pour la croissance de diamant monocristallin.	98
III.4	Réacteur BAOBAB utilisé pour les croissances de diamant dopé au bore.	99
III.5	Photo d'un mauvais mouillage lors de la brasure d'une fenêtre courbée.	101
III.6	Photos de la courbure d'une fenêtre en diamant polycristallin. (a) fenêtre libérée de son substrat avec courbure naturelle. (b) Vue de dessus après découpe laser et croissance double-face. (c) Vue de côté après croissance double-face.	102
III.7	Schéma de principe de la synthèse d'un détecteur pour le design "smart-window".	103
III.8	Clichés MEB de la surface de deux fenêtres en diamant avec des morphologies contrôlées et différentes et un axe de fibre également différent.	104
III.9	Différents designs de détecteurs envisagés pour une fenêtre en configuration "sandwich".	105

III.10	Face supérieure d'une fenêtre monocristalline (a) et polycristalline (b) en configuration "smart-window".	106
III.11	Photo d'une fenêtre en diamant polycristallin avant et après le dépôt d'une cible de tungstène de $5\mu\text{m}$ d'épaisseur. Après dépôt, la fenêtre est plongée 15min dans un bain à ultrasons et dans l'isopropanol.	107
III.12	Clichés MEB d'une cible en tungstène de $5\mu\text{m}$ d'épaisseur avec une sous-couche en titane, avec et sans recuit thermique.	108
III.13	Schéma du dépôt conforme d'une cible sur une surface rugueuse.	109
III.14	Clichés MEB de la surface de l'échantillon avant lissage (a), et après un (b), deux (c) et trois (d) lissages successifs.	110
III.15	<i>Figure a</i> : cliché MEB de la surface d'un film de $2,5\mu\text{m}$ d'épaisseur après trois lissages successifs. <i>Figure b</i> : cartographie de la rugosité de la surface du même échantillon obtenue par profilométrie optique.	110
III.16	Cartographie de la rugosité d'un film texturé de $100\mu\text{m}$ d'épaisseur obtenue par profilométrie optique.	111
III.17	Photo d'une fenêtre "monopoly" après gravure du substrat silicium et croissance double face. Le monocristal HPHT de $3\times 3\text{mm}^2$ et de $200\mu\text{m}$ d'épaisseur est visible au centre de la matrice polycristalline de $10\times 10\text{mm}^2$ et de $100\mu\text{m}$ d'épaisseur.	112
III.18	Cliché MEB mettant en évidence l'évolution de la morphologie du film polycristallin en se rapprochant de la jonction entre le monocristal et la matrice.	113
III.19	Schéma du système d'acquisition du signal LRI.	115
III.20	<i>Figure a</i> : signal LRI mesuré au cours de la croissance avec 0,6 % de CH_4 , 99,4 % de H_2 , 35 mbar et 0,9 kW. <i>Figure b</i> : évolution temporelle de la vitesse déduite du signal LRI et de la température au cours de la synthèse.	117
III.21	Évolution de la vitesse de croissance avec le taux de méthane.	118
III.22	Diminution de la vitesse de croissance du film avec l'augmentation de la proportion d'oxygène dans le plasma.	119
III.23	Évolution caractéristique de la vitesse de croissance avec le taux de méthane pour une croissance sans oxygène (carrés) et avec 1 % d'oxygène (triangles). Les conditions retenues sont encadrées en vert.	120
III.24	Évolution temporelle de la vitesse de croissance du film en présence d'azote.	121
III.25	Cliché MEB de la surface d'un échantillon synthétisé dans les conditions du tableau III.8 pendant 50h. Epaisseur estimée : $80\mu\text{m}$	122
III.26	Schéma représentant l'évolution du paramètre de croissance α et la morphologie d'un cristal de diamant associé [261]. La flèche représente l'axe de fibre.	122
III.27	Schéma du montage optique utilisé pour le suivi <i>in situ</i>	124
III.28	<i>Figure a</i> : signal LRI mesuré sur l'échantillon au cours des dix étapes. <i>Figure b</i> : évolution de la vitesse mesurée par LRI (triangles noirs), par pesée (carrés bleus) et par interférométrie (losanges rouges).	126
III.29	Évolution de la rugosité du film lors du phénomène de texturation. La rugosité est mesurée par LRI (carrés verts), par DR (ligne noire), par AFM (triangles bleus) et par ellispométrie (losanges rouges).	127

III.30	Clichés MEB de la même zone de l'échantillon pris au cours des neuf étapes de la croissance séquentielle.	128
III.31	<i>Figure a</i> : évolution temporelle du taux de couverture des faces $\{100\}$. Trois mesures expérimentales (points) sont superposées à une moyenne lissée (trait pointillé). <i>Figure b</i> : densité surfacique de cristaux.	129
III.32	Schéma de principe de la reconstruction 3D des grains (de type "tomographie") à l'aide de la croissance séquentielle.	130
III.33	Reconstruction 3D "tomographique" sous <i>Blender</i> de quatre cristaux voisins lors d'une synthèse avec formation d'une texture $\{100\}\{111\}\langle 100 \rangle$	130
III.34	Évaluation géométrique de l'expansion des faces $\{100\}$	132
III.35	Schéma de principe de la croissance sélective de deux cristaux voisins.	133
III.36	<i>Figure a</i> : cliché MEB du nanoseeding avant croissance. <i>Figure b</i> : distribution de NND relevée par analyse d'image et ajustement Gaussien.	135
III.37	Ajustement du taux de couverture R_{100} mesuré expérimentalement avec l'expression 3.19.	136
III.38	Ajustement de la vitesse mesurée par LRI avec l'expression 3.22.	137
III.39	Ajustement de la vitesse de croissance mesurée par LRI avec l'expression 3.22 pour deux croissances successives dans les mêmes conditions.	138
III.40	Clichés MEB post-croissance de la surface des deux échantillons synthétisés dans les mêmes conditions.	138
III.41	Signaux LRI mesurés sur les deux échantillons pour les mêmes conditions expérimentales.	139
III.42	Signaux DR obtenus pour les deux échantillons (rouge). Le taux de couverture analytique est représenté en noir.	139
III.43	Apparition de contraintes différentielles lors de la brasure. Une fissure est apparue lors du refroidissement (flèche).	141
III.44	Brasage d'une fenêtre en diamant sur un collet en cuivre. Ce nouveau design génère moins de contraintes.	142
III.45	<i>Figure a</i> : schéma de la géométrie utilisée pour le brasage des prototypes. <i>Figure b</i> : photo d'une smart-window polycristalline brasée.	142
III.46	<i>Figure a et b</i> : smart-windows brasées par TED sur un disque en cuivre qui permet de finaliser le montage d'une fenêtre innovante en diamant sur un tube à rayons X. <i>Figure c</i> : soudage laser du disque en cuivre sur la tête du tube.	143
III.47	Photo du réacteur DIADEME avant et après adaptation du système de sources matricielles à 352 MHz.	145
III.48	Photo du plasma généré par trois applicateurs RF à 352 MHz.	146
III.49	Morphologie du dépôt obtenu. Insert : analyse EDX du dépôt.	146
III.50	Clichés MEB de la morphologie du dépôt à 70 W/applicateur. Évolution de la quantité d'aluminium contaminant en fonction de la position de l'applicateur.	147
III.51	Morphologie du dépôt de diamant polycristallin obtenu à 352 MHz.	147
IV.1	Schéma du montage mécanique réalisé afin de caractériser la résistance mécanique des fenêtres fabriquées.	154
IV.2	Interférences obtenues pour différentes pressions différentielles.	155

IV.3	Contrainte à rupture de l'aluminium mesurée sur treize échantillons de différentes dimensions.	156
IV.4	Contrainte à rupture mesurée sur cinq membranes de diamant de 2 mm de diamètres et 1,5 μm d'épaisseur. Ces fenêtres sont issues de la même synthèse.	157
IV.5	Cliché MEB de la tranche d'une fenêtre en diamant texturée de 100 μm d'épaisseur après fracture.	158
IV.6	Schéma du montage de test en fatigue des fenêtres.	159
IV.7	Mesure de la déflexion d'une fenêtre de 32 μm d'épaisseur soumise à une pression différentielle croissante (points). Le modèle de Timoshenko est tracé pour comparaison (ligne). Les paramètres utilisés sont $E=155$ GPa, $\nu=0,07$, $t=32\mu m$ et $R=4mm$	160
IV.8	Photo du dispositif SOLEX utilisé pour les mesures de transmission. Une faisceau de rayons X est monochromatisé à une longueur d'onde donnée avant de frapper l'échantillon. Un détecteur collecte l'intensité transmise derrière l'échantillon.	161
IV.9	Spectre de transmission d'une fenêtre polycristalline. Les spectres théoriques du diamant (ép. 200 μm) et du béryllium (ép. 200 μm) sont représentés en pointillés noirs.	161
IV.10	Schéma du montage d'une smart-window pour les tests sous irradiation.	163
IV.11	Photo des deux tubes à rayons X utilisés pour caractériser les smart-windows.	164
IV.12	Caractéristique I(V) du détecteur "sandwich" monocristallin.	165
IV.13	Caractéristique I(V) du détecteur en configuration "smart-window" polycristalline.	165
IV.14	Caractéristique I(V) du détecteur en configuration "smart-window" monocristalline.	166
IV.15	Schéma de principe du montage chauffant (vue de côté) et photo (vue de face) du dispositif.	168
IV.16	<i>Figure a</i> : évolution de la caractéristique I(V) d'une fenêtre "smart-window" polycristalline à différentes températures. <i>Figure b</i> : évolution du rapport signal/bruit en fonction de la température.	168
IV.17	Réponse temporelle à 25°C d'une fenêtre monocristalline "sandwich" polarisée à 0 V et soumise à des créneaux de rayons X (50 kV-1 mA).	170
IV.18	Réponse temporelle d'une fenêtre polycristalline "smart-window" polarisée à 0 V et soumise à des échelons de rayons X (50 kV-1 mA).	171
IV.19	Réponse temporelle normalisée d'une fenêtre polycristalline "smart-window" polarisée à 0 V, +5 V et -30 V pour une irradiation de 50 kV et 1 mA.	171
IV.20	Réponse temporelle d'une fenêtre monocristalline "smart-window" polarisée à 0 V et soumise à des échelons de rayons X (50 kV-1 mA).	172
IV.21	<i>Figure a</i> : réponse du détecteur monocristallin "sandwich" en fonction du courant du tube. L'ajustement des données expérimentales avec le modèle de Fowler est représenté. <i>Figure b</i> : réponse du détecteur polycristallin "smart-window" en fonction du courant du tube.	173
IV.22	Schéma du montage pour le test des smart-windows sous flux d'électrons.	176

IV.23	Contribution des électrons secondaires au courant I_b du montage EBIC à 7 keV et 20 keV.	177
IV.24	Variation de l'image obtenue au MEB en fonction de la polarisation appliquée.	178
IV.25	Réponse temporelle d'une smart-window monocristalline "sandwich" sous un faisceau de 7 keV et polarisée à -100 V.	179
IV.26	Réponse temporelle d'une smart-window polycristalline sous un faisceau de 30 keV.	180
IV.27	Variation des courants I_d et I_b en fonction de la HT du montage.	181
IV.28	Cartographie 2D du courant I_d d'un échantillon monocristallin "sandwich" sous un faisceau de 7 keV.	182
IV.29	Schéma de fonctionnement du montage "Gated diode".	183
IV.30	Photo de la fenêtre de sortie (de type smart-window monocristalline "sandwich") du montage "Gated diode".	184
IV.31	Photo des deux faces de chaque smart-window monocristalline étudiée. <i>Figure a</i> : configuration "sandwich". <i>Figure b</i> : configuration "smart-window".	185
IV.32	Caractéristique I(V) sous obscurité avec une HT de 45 kV. La tension appliquée à la cible est maintenue constante à +100 V.	186
IV.33	Relation de linéarité entre le courant de la fenêtre et le débit de dose.	186
IV.34	Variation du courant mesuré dans la fenêtre et dans la chambre à ionisation pour différentes tensions d'accélération.	187
IV.35	Radiographie du foyer de production des rayons X.	188
IV.36	Loi de variation du flux de rayons X en fonction de la position de la chambre.	189
IV.37	Variation du rapport d'idéalité entre la mesure de la fenêtre et celle de la chambre calibrée.	190
IV.38	Calibration de la réponse du faisceau en fonction de la tension de la diode IR à plusieurs énergies. Un ajustement linéaire est représenté en trait continu.	191
IV.39	<i>Figure a</i> : variation imposée de la HT du tube. <i>Figure b</i> : mesure du débit de dose à l'aide de la chambre à ionisation sans régulation.	193
IV.40	<i>Figure a</i> : variation imposée à la HT du tube. <i>Figure b</i> : mesure du débit de dose à l'aide de la chambre à ionisation lorsque la régulation est activée.	194
IV.41	Radiographies d'une ampoule à filament prises à 30 keV, 40 keV et 50 keV (de gauche à droite).	194

Liste des tableaux

I.1	Propriétés mécaniques du diamant polycristallin et monocristallin	18
I.2	Propriété thermiques du diamant polycristallin et monocristallin	19
I.3	Propriété optiques du diamant polycristallin et monocristallin	20
I.4	Propriété électroniques du diamant polycristallin et monocristallin.	21
II.1	tableau des coefficients du polynôme descriptif de la distribution de puissance dans la zone de génération de chaleur.	60
II.2	Tableau des paramètres de l’ajustement pour les conductivités des différents matériaux utilisés.	64
III.1	Tableau récapitulatif des trois réacteurs utilisés et de leurs caractéristiques.	99
III.2	Tableau récapitulatif des configurations de smart-window réalisées.	100
III.3	Conditions de croissance pour les deux synthèses d’une “smart-window”. .	104
III.4	Conditions de dépôt de l’anode des smart-windows.	107
III.5	Conditions de croissance utilisées pour vérifier l’acquisition du signal LRI.	117
III.6	Conditions de croissance utilisées pour étudier l’influence du taux de méthane. Mesures réalisées sur quatre échantillons différents.	118
III.7	Conditions de croissance utilisées pour étudier l’influence du taux d’oxygène	119
III.8	Conditions de croissance avec azote pour étudier la stabilité de la vitesse.	121
III.9	Conditions de croissance utilisées pour la croissance séquentielle.	125
III.10	Paramètres obtenus en ajustant la courbe III.39.	138
III.11	Conditions de croissance utilisées pour la synthèse à 352 MHz.	146
IV.1	Résumé des trois configurations testées sous irradiation X.	164
IV.2	Tableau récapitulatif des performances de détection de chaque configuration	175
IV.3	Coefficients de calibration de la régulation PID.	192

Résumé

Dans le domaine de l'imagerie par rayons X, la course à la haute résolution mets aujourd'hui en évidence les limites des tubes actuels. Le béryllium utilisé pour fabriquer les fenêtres des tubes à rayons X ne permet pas de dissiper les densités de puissance mises en jeux. Cette thèse est le fruit d'une collaboration entre Thales et le Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives. Elle vise à étudier, concevoir et synthétiser des fenêtres innovantes en diamant pour les tubes à rayons X. Les propriétés de photoconduction du diamant sont utilisées pour intégrer une fonction de détection en ligne. Les fenêtres en transmission conçus dans le cadre de cette thèse sont appelées smart-windows. En utilisant une approche multi-domaines, nous avons modélisé les phénomènes thermiques, mécaniques et de détection. Deux dispositifs différents en diamant polycristallin et monocristallin ont ainsi été conçus et dimensionnés. Pour intégrer ces fenêtres en situation expérimentale, une petite série doit être fabriquée. Ainsi, les conditions de synthèse ont été optimisées afin d'augmenter la vitesse de croissance du diamant. De nouveaux outils ont également été développés afin de suivre *in situ* la vitesse et la morphologie du film pendant cette croissance. Finalement, la résistance mécaniques et la transparence des fenêtres ont été caractérisées. Plusieurs bancs de test ont été développés pour tester leur fonction de détection en laboratoire. Différents prototypes de smart-windows ont été intégrés dans un tube expérimental. Ce prototype de fenêtre innovante en diamant délivre une mesure proportionnelle au débit de dose généré par le tube sans perturber son utilisation.

Mots-clés : Diamant, Rayons X, Fenêtre, Modélisation, Synthèse, Détection

Abstract

In the race towards high resolution X-ray imaging, the current X-ray windows have shown thermal limitations. The beryllium used in those windows does not provide an efficient spreading of the heat generated in the target. This thesis results from a collaboration between Thales and the french Atomic and Alternative Energies Commission (CEA). It aims at studying, designing and synthesizing innovative diamond for X-Ray tubes. The semi-conducting properties of diamond are used to integrate a built-in flow sensor and to monitor in-line the dose rate of the tube. The transmission windows fabricated in the context of this work are called "smart-windows". The thermal, mechanical and sensing properties of such windows have been modeled by using a multi-domain approach. Two devices made either of polycrystalline or single crystal diamond were designed. In order to integrate those windows experimentally, a small series must be realized. Hence the experimental conditions have been optimized to increase the growth rate of the film. A new tools has also been developed to monitor in real time and *in situ* the growth rate and the morphology of the films. Finally the mechanical resistance and the transparency of the devices have been characterized. Several experimental set-ups have been developed to test the detection properties in a tube-like design. Some prototypes of smart-windows have been integrated in an experimental X-Ray tube. This prototype delivers a signal proportional to the dose rate of the tube without disturbing its operation.

Key words : Diamond, X-rays, Window, Modelling, Synthesis, Sensor