



HAL
open science

Diffraction X in-situ sous sollicitation dynamique : caractérisation cristallographique des transformations polymorphiques de l'étain

David Palma de Barros

► **To cite this version:**

David Palma de Barros. Diffraction X in-situ sous sollicitation dynamique : caractérisation cristallographique des transformations polymorphiques de l'étain. Autre. ISAE-ENSMA Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique - Poitiers, 2021. Français. NNT : 2021ESMA0015 . tel-03613080

HAL Id: tel-03613080

<https://theses.hal.science/tel-03613080>

Submitted on 18 Mar 2022

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.

THESE

Pour l'obtention du Grade de
DOCTEUR DE L'ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DE MECANIQUE ET
D'AEROTECHNIQUE

(Diplôme National – Arrêté du 25 mai 2016)

Ecole Doctorale :
Sciences et Ingénierie en Matériaux, Mécanique, Energétique

Secteur de Recherche : Mécanique, génie mécanique, génie civil

Présentée par :

PALMA DE BARROS David

Diffraction X in-situ sous sollicitation dynamique : caractérisation cristallographique
des transformations polymorphiques de l'étain

Directeur(s) de thèse : DE RESSEGUIER Thibaut, DRAGON André
Co-encadrant : CHAUVIN Camille

Soutenue le 17 décembre 2021

devant la Commission d'Examen

JURY

Président :

BERTHE Laurent, DR CNRS, ENSAM

Rapporteurs :

BENUZZI-MOUNAIX Alessandra, DR CNRS, Ecole Polytechnique

FORQUIN Pascal, Professeur, Université Grenoble Alpes

Membres du jury :

BERTHE Laurent, DR CNRS, ENSAM

TORCHIO Raffaella, Chercheur, ESRF

KNUDSON Marcus, Chercheur, SNL

SOLLIER Arnaud, Ingénieur CEA, CEA

CHAUVIN Camille, Ingénieur CEA, CEA

DE RESSEGUIER Thibaut, DR CNRS, ENSMA

Invité.e.s :

DAVIS Jean-Paul, Chercheur, SNL

DRAGON André, DR CNRS, ENSMA

Remerciements

Ce travail de thèse a été effectué au sein de l'école doctorale des Sciences et Ingénierie des Matériaux, Mécanique et Energétique par le biais d'une collaboration entre l'Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique (ENSMA) de Poitiers et le centre de Gramat du Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives (CEA). Les travaux ont été menés au laboratoire MSA dirigé par Marie Roudot. Je les remercie pour l'accueil chaleureux qui m'a été réservé et pour avoir mis à disposition les différents moyens m'ayant permis de mener mes travaux.

Je souhaite remercier Thibaut De Ressaiguiet et André Dragon de l'ENSMA Poitiers d'avoir accepté de diriger cette thèse, pour leur soutien, les échanges fructueux que nous avons pu avoir et pour la relecture de ce manuscrit. Merci pour l'intérêt porté à mon travail tout au long de ces trois années.

Je remercie sincèrement Alessandra Benuzzi-Mounaix de l'Ecole Polytechnique et Pascal Forquin de l'Université Grenoble-Alpes d'avoir accepté de s'acquitter du rôle de rapporteur et d'examiner mon travail. J'associe également à ces remerciements Laurent Berthe de l'ENSAM qui m'a fait l'honneur de présider le jury de thèse ainsi que tous les membres ayant accepté d'y siéger.

Je souhaite témoigner ma gratitude à mon encadrante Camille Chauvin du CEA Gramat avec qui j'ai eu le privilège de collaborer au cours de cette aventure. J'ai pu bénéficier de ses conseils avisés et de son expertise pour mener à bien les travaux de thèse. Je la remercie pour son dynamisme, sa bonne humeur au quotidien et sa disponibilité aussi bien dans les moments de doute que pour mener à bien les différents essais. Nous avons eu l'occasion d'échanger dans des discussions passionnantes afin d'essayer de percer les mystères de l'étain (même s'il garde encore beaucoup de secrets!). Elle fut également une aide précieuse à l'élaboration de ce manuscrit.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à l'équipe de l'atelier DM : Olivier Chaumeil (Le Pyrène Master), Lionel Renault, Sébastien Bergey, Ophélie Lassalle, Pierrick Violle et Frédéric Sinatti pour m'avoir apporté leur support et leur savoir-faire dans la mise en place expérimentale des différents essais, la mise en œuvre des différents moyens et pour m'avoir fait découvrir l'odeur de la science!

Mes sincères remerciements à Frédéric Zucchini du laboratoire E2R, pour qui le générateur X-Pinch n'a pas de secrets, pour m'avoir enseigné ses spécificités et pour ses conseils de mise en œuvre.

Je remercie également Christophe Voltz du CEA Valduc, Jacques Petit et Franck Montheillet pour avoir apporté leur vision sur l'étude de l'étain et dont les discussions ont été primordiales pour l'interprétation des résultats et proposer des hypothèses. Je remercie également Arnaud Sollier et Charles Pépin du CEA DIF ainsi que Thierry d'Almeida du CEA Gramat pour leur aide dans l'interprétation des figures de diffraction.

Je souhaite remercier par la même occasion le laboratoire Argonne qui nous a permis de pouvoir accéder au synchrotron de l'Advanced Photon Source par le biais du Dynamic Compression Sector. Je remercie toute l'équipe de s'être rendue disponible et de nous avoir aidé à concevoir le dispositif expérimental afin de pouvoir procéder aux essais sous choc.

Un grand merci au laboratoire PL qui a eu l'audace de m'accueillir dans leurs locaux pendant plus d'un an dans la bonne humeur mais aussi pour m'avoir permis de me joindre à certaines de leurs expérimentations.

Je souhaite un bon courage ainsi que mes vœux de réussite à mes homologues Jérémy, Fanny et Etienne à qui ce sera bientôt le tour. Mes plus fervents encouragements à Léopold, avec qui j'ai eu le privilège de partager mon bureau pendant plus d'une année, et Julianne, toujours enclins à échanger sur des sujets aussi bien techniques que farfelus. Mes amitiés aux différents stagiaires que j'ai pu côtoyer, toujours empreints de bonne humeur de de sympathie.

Je dédie également ce travail de thèse à ma famille, mes parents et à mon frère qui ont su me soutenir et m'encourager dans la voie que j'ai choisi tout au long de ces vingt-sept dernières années. Une pensée également pour Thomas, Gaël, Audran et Sophie (sans oublier Doudus!) pour leur amitié et leur sympathie sans faille après mon départ de la ville rose, mais aussi pour mon compère de jeunesse Alexis avec qui j'ai eu la joie de découvrir le monde de la physique.

Je tiens à remercier l'ensemble des personnes qui ont contribué, de près ou de loin à l'aboutissement de ce travail et à mettre en application l'adage "Plus j'apprends, moins j'en sais!".

Table des matières

Introduction	8
I Etude bibliographique	11
I.1 Données générales	11
I.2 Etude du comportement en chargement statique	12
I.2.A Types de mesure	12
I.2.A.a Mesure de résistance électrique	12
I.2.A.b Mesure de la température	13
I.2.A.c Variation du volume	14
I.2.A.d Diffraction X	14
I.2.A.e Analyse thermique	17
I.2.A.f Méthode Optique	18
I.2.A.g Mesure sonique	18
I.2.B Base de données matériaux	18
I.2.C Etudes portant sur la modélisation	19
I.2.D Rassemblement des données expérimentales	20
I.2.D.a Points remarquables	20
I.2.D.b Proposition de frontières	21
I.2.D.c Construction du diagramme de phase	23
I.3 Etude du comportement en chargement dynamique	29
I.3.A Explosifs	32
I.3.B Impact de plaques	33
I.3.C Choc laser	37
I.3.D Compression isentropique	38
I.3.E Etudes portant sur la modélisation sous sollicitation dynamique	39
I.3.F Récapitulatif des points de transition	40
I.3.F.a Limite élastique d'Hugoniot	40
I.3.F.b Transition β - γ	41
I.3.F.c Fusion	42
I.3.F.d Analyse des résultats	42
I.3.G Comportement sous choc	46
I.3.G.a Courbe d'Hugoniot	46
I.3.G.b Polaire de choc	47
I.3.G.c Vitesse de l'onde de choc	49
I.3.H Hypothèse de relation d'orientation entre les phases β et γ	50
I.4 Bilan de l'étude bibliographique	52

II	Moyens expérimentaux utilisés	55
II.1	Moyens utilisés au CEA Gramat	55
II.1.A	Lanceur Pyrène	55
II.1.B	Générateur X-Pinch	56
II.1.B.a	Principe de fonctionnement	56
II.1.B.b	Analyse spectrale	58
II.1.B.c	Taille de source	66
II.1.C	Configuration expérimentale	81
II.1.C.a	Géométrie du montage	82
II.1.C.b	Configuration de l'impact	83
II.1.C.c	Système de synchronisation	87
II.1.C.d	Chronologie de l'essai	90
II.2	Dynamic Compression Sector	92
II.2.A	Moyens utilisés	92
II.2.A.a	Génération de chocs	92
II.2.A.b	Rayonnement synchrotron	93
II.2.B	Configuration expérimentale	95
II.2.B.a	Géométrie du montage	95
II.3	Bilan des moyens expérimentaux	96
III	Conception d'un outil de simulation des figures de diffraction	97
III.1	Revue des logiciels de simulation existants	97
III.2	Configuration du montage expérimental considéré	98
III.3	Outil de dépouillement des figures pour matériaux monocristallins	99
III.3.A	Détermination des plans diffractant	99
III.3.A.a	Facteur de forme	100
III.3.A.b	Facteur de structure	100
III.3.B	Détermination des coordonnées des normales cristallines dans le repère du laboratoire	102
III.3.B.a	Calcul des coordonnées des axes cristallographiques dans un repère orthonormé	102
III.3.B.b	Orientation du cristal dans le laboratoire	105
III.3.C	Détermination des coordonnées des axes du détecteur dans le repère du laboratoire	107
III.3.D	Construction des matrices de passage	108
III.3.E	Etapes de calcul	110
III.3.E.a	Initialisation du cristal	110
III.3.E.b	Tracé des rayons diffractés	110
III.3.E.c	Détermination de l'intersection des rayons diffractés avec le détecteur	112
III.3.F	Fonctionnalités supplémentaires	113
III.3.F.a	Maillage du matériau	113
III.3.F.b	Texturation du matériau	115
III.3.F.c	Mouvement de l'échantillon	117
III.3.G	Comparaison des résultats	118
III.3.G.a	Figure de diffraction du monocristal	118
III.3.G.b	Figure de diffraction du maillage et de la texturation	120
III.4	Outil de dépouillement des figures pour matériaux polycristallins	122
III.4.A	Calcul de l'intensité	122
III.4.A.a	Influence de la multiplicité	122
III.4.A.b	Facteurs supplémentaires	123

III.4.B	Calcul des coordonnées des axes cristallographiques dans le repère du laboratoire	124
III.4.C	Détermination de l'intersection des rayons diffractés avec le détecteur	125
III.4.D	Comparaison des résultats	126
III.5	Bilan sur l'élaboration de l'outil de simulation	128
IV	Résultats expérimentaux	129
IV.1	Laboratoire CEA Gramat	130
IV.1.A	Figures de diffraction attendues	132
IV.1.B	Essais au-dessus de la transition	134
IV.1.B.a	Orientation (110)	134
IV.1.B.b	Orientation (100)	139
IV.1.B.c	Orientation (001)	143
IV.1.B.d	Orientation (111)	146
IV.1.B.e	Bilan des essais à haute pression	147
IV.1.C	Essais à pression croissante sous la transition pour l'orientation (110)	150
IV.1.C.a	Bilan des essais à pression croissante	154
IV.1.D	Conclusion des essais menés au CEA Gramat	155
IV.2	Dynamic Compression Sector	156
IV.2.A	Essais au-dessus de la transition	158
IV.2.A.a	Bilan des essais à haute pression	165
IV.2.B	Essais à pression croissante sous la transition	166
IV.2.B.a	Bilan des essais à basse pression	176
IV.2.C	Essais de retour en détente (fenêtres en PMMA)	177
IV.2.C.a	Bilan des essais de transition inverse	180
IV.2.D	Conclusion des essais menés au DCS	180
IV.3	Hypothèses de comportement	182
IV.3.A	Essais à bas niveau	182
IV.3.B	Essais à haut niveau	183
IV.4	Perspectives	185
	Conclusion générale	187
	Bibliographie	190
	Annexes	196
A.1	Profil d'atténuation des filtres utilisés dans la caractérisation de source	197
A.2	Calcul de la taille de source à partir des paramètres expérimentaux	198
A.2.a	Calcul à partir de la zone pleinement éclairée	198
A.2.b	Calcul à partir de la zone de flou	198
A.2.c	Calcul à partir de la largeur totale	198
A.3	Outil de simulation du profil d'éclairement des sources	200
A.3.a	Profil des sources	200
A.3.b	Construction du profil	201
A.4	Proposition d'une méthode de mesure d'une source gaussienne	203
A.5	Calcul de la zone de l'échantillon éclairée par la source à travers la fente lors de la diffraction	206
A.6	Caractérisation des fenêtres enclume en B ₄ C	208
A.6.a	Etude bibliographique	208
A.6.b	Mesure de la porosité des fenêtres enclume	210
A.6.c	Caractérisation dynamique	211

A.7	Rappels sur les calculs de changement de base	213
A.8	Exemple de fichier de configuration de l'outil de simulation des figures de diffraction	215
A.9	Détermination du symétrique d'un vecteur par rapport à un autre dans l'espace	216
A.10	Présentation de l'interface graphique pour l'outil d'indexation de figures de monocristaux	217
A.11	Présentation de l'interface graphique pour l'outil d'indexation de figures de polycristaux	218
A.12	Facteurs expérimentaux pouvant influencer les figures de diffraction	219
A.12.a	Collimation du faisceau	219
A.12.b	Pénétration du faisceau	220
A.12.c	Mouvement de l'échantillon	220
A.12.d	Sollicitation du cristal	221
A.12.d.a	Modification du paramètre de maille	221
A.12.d.b	Texturation	222
A.13	Synchronisation des essais menés au CEA Gramat	223
A.14	Explication de l'anomalie du profil de vitesse observée pour les essais DCS	224

Introduction

Les travaux de cette thèse sont destinés à collecter et apporter des données expérimentales permettant de mieux caractériser l'état des matériaux soumis à une sollicitation dynamique. L'association de ces nouvelles informations avec celles préexistantes a pour vocation finale d'aider à améliorer les codes de simulation numérique modélisant leur comportement lors de tels régimes. Ce type de d'expérimentation va reposer sur l'application d'une brusque contrainte dans le matériau générant la propagation d'ondes de compression, voire d'une onde de choc dans le cas le plus extrême. Un facteur supplémentaire jusqu'alors peu considéré dans l'étude des matériaux est à prendre en compte : le temps. Dans ce type d'expérience, le temps d'application de la sollicitation sur le matériau étudié se rapproche de l'ordre de grandeur des mécanismes physiques menant à sa déformation, voire à sa transformation. Le temps de sollicitation du matériau est alors inférieur à la microseconde et peut atteindre la nanoseconde. Il est par ailleurs possible d'introduire la notion de vitesse de déformation traduisant la vitesse de mise en pression du matériau. Par opposition, on qualifiera de statique ou quasi-statique des sollicitations appliquées pour des échelles de temps supérieures. La forte anisotropie de l'application de la contrainte va impliquer l'adoption de comportements spécifiques. Le matériau peut ainsi présenter un comportement élastique pour de faibles sollicitations, puis, un comportement plastique à partir d'un certain seuil. Ces comportements peuvent aussi dépendre du caractère temporel de la sollicitation introduisant la notion de viscosité. D'autres phénomènes supplémentaires peuvent survenir à partir d'un certain seuil de sollicitation tel qu'un changement de phase et éventuellement de l'écaillage.

Les modèles utilisés pour simuler la réponse dynamique du matériau doivent prendre en compte ces différents régimes et simuler au mieux ces phénomènes pour reproduire leur comportement. Ceux-ci vont utiliser différentes lois de comportement élastiques ou plastiques pouvant introduire la viscosité mais aussi des équations d'état permettant de relier les grandeurs physiques entre elles. Enfin, des modèles d'endommagement et de rupture sont aussi implémentés afin de compléter le modèle. Les relations utilisées sont élaborées via des calculs théoriques à partir de constantes thermodynamiques propres au matériau mais aussi à partir de lois empiriques.

La détermination de phase adoptée par les matériaux s'effectue à travers l'utilisation du diagramme de phase. Cet outil relie ses différentes phases observées pour un état thermodynamique donné obtenu lors de sollicitations lentes. Ces données sont alors intégrées dans des bases de données servant à la simulation. Cependant, lorsque l'on s'intéresse au changement de phase des matériaux sous sollicitation dynamique, on observe expérimentalement un écart significatif entre les paramètres physiques mesurés et ceux attendus dans le diagramme de phase : par exemple un écart de pression de changement de phase sous choc avec la pression attendue pour des conditions de température équivalentes. Il semble donc évident que le comportement diffère de celui des sollicitations dites quasi-statiques en introduisant une évolution différente lors de la transition, impliquant des mécanismes particuliers. Pour prendre en compte les transformations dans les modèles, il est nécessaire d'inclure des cinétiques de transition représentatives selon le type de sollicitation. Les facteurs responsables des différences doivent alors être identifiés afin de les intégrer dans les équations d'état existantes. Les systèmes de mesure spécifiques utilisés jusque maintenant n'ont pas permis d'expliquer ce phénomène ni de confirmer les hypothèses existantes.

Actuellement, la prise en compte de ces écarts s'effectue par la mise en place d'une cinétique de transition empirique propre au matériau et ne repose pas sur une explication physique. Il est primordial d'identifier et d'expliquer l'effet des mécanismes agissant sur ces transitions afin de proposer une cinétique générale pouvant s'appliquer à plusieurs matériaux.

Cette étude va s'intéresser plus particulièrement au changement de phase de l'étain sous choc entre les phases solides β et γ . Cette transition possède l'avantage de se produire pour de basses pressions de choc comparé à d'autres métaux. Elle fut par ailleurs utilisée comme point de calibration pour les systèmes de mesure de pression. Les expériences en régime dynamique ont cependant révélé que la pression déterminée lors de la détection du changement de phase sous choc était significativement supérieure à celle normalement attendue en considérant l'échauffement du matériau. Afin de reproduire correctement ce phénomène, l'équation d'état de l'étain a dû être ajustée à partir des données expérimentales en introduisant une cinétique de transition empirique. Il serait préférable de proposer une modélisation des mécanismes physiques responsables de cet écart, néanmoins, les moyens de mesure employés n'ont pas permis à ce jour de les identifier clairement.

La diffraction X est une technique particulièrement adaptée pour étudier l'état cristallin des matériaux ainsi que leur microstructure. L'interaction entre le matériau et un faisceau de rayons X va engendrer la formation de figures de diffraction. A partir de l'analyse de ces figures, il va être possible de caractériser l'arrangement atomique au sein du matériau, les paramètres physiques d'intérêt ainsi que l'évolution de sa microstructure. La modification de la figure de diffraction lors d'une sollicitation va ainsi pouvoir permettre d'identifier l'occurrence d'un changement de phase. Cette technique est généralement utilisée lors d'expériences se déroulant sur des temps longs, de quelques minutes à plusieurs heures. Les progrès effectués dans la génération de rayonnements X ont permis de développer des sources suffisamment brèves et intenses pouvant être implémentées lors d'expériences sous sollicitations dynamiques.

Le CEA Gramat s'est doté d'une source de rayonnement X permettant d'implémenter la diffraction X sous choc. Cette source repose sur l'utilisation d'un générateur X-Pinch généralement utilisé pour imager des phénomènes rapides. Des tests préliminaires ont aussi montré sa capacité à pouvoir être implémentée pour la diffraction X. En couplant cette technique à un moyen de sollicitation rapide du matériau, tel que l'impact de plaques, il va être possible de caractériser l'étain au niveau cristallographique lors du changement de phase et d'identifier les mécanismes influant sur la cinétique de transition. Il existe par ailleurs des installations sur synchrotron permettant également de sonder les matériaux en couplant des moyens de sollicitation dynamique et des rayonnements X. Au travers de cette étude, des expériences ont été menées à la fois au CEA Gramat ainsi que sur le synchrotron de l'Advanced Photon Source (APS) afin de caractériser la transition de phase β - γ de l'étain sous choc.

La majeure difficulté de ce type d'expérience réside dans la synchronisation entre la propagation des ondes de choc et l'émission du rayonnement. Afin de bien caractériser le matériau, celui-ci doit atteindre un état homogène et connu dans tout le volume sondé par le rayonnement. Il existe de nombreux phénomènes pouvant introduire une incertitude temporelle nuisant à la synchronisation. D'une part, on peut citer le temps de propagation de l'onde de choc jusqu'à la zone d'intérêt, dépendant directement de la vitesse de l'onde de choc et de l'épaisseur de matière à traverser. D'autre part le temps de propagation du signal de déclenchement du rayonnement est aussi soumis à des incertitudes non négligeables. Lors de ce type d'expérience, une synchronisation de l'ordre de la nanoseconde va être nécessaire afin de pouvoir étudier le phénomène considéré. Une configuration spécifique doit alors être conçue afin de réduire au maximum les incertitudes et atteindre un niveau de fiabilité suffisant.

Le premier chapitre présente un état de l'art de l'ensemble des données disponibles sur l'étain, en particulier sur la transition β - γ . Une première partie traite les données issues des sollicitations quasi-statiques. L'ensemble des données a permis de dresser l'évolution des différents paramètres physique et de construire un diagramme de phase expérimental incluant, en particulier, la transition β - γ . Une seconde traite des données obtenues sous sollicitations dynamiques. Ce type de sollicitation porte le matériau à un état thermodynamique spécifique. Les données collectées permettent de mettre en évidence des différences entre les régimes statique et dynamique ainsi que de proposer de premières hypothèses sur les facteurs pouvant les expliquer. Elles ont aussi servi à dimensionner les différents essais effectués par la suite.

Le second chapitre présente les configurations expérimentales des essais menés tout d'abord au CEA Gramat combinant l'impact de plaques, par le biais d'un lanceur à gaz, avec un générateur. La caractérisation de la source X utilisée a été effectuée afin d'identifier ses différentes caractéristiques en termes de spectre, de taille et d'intensité et leur influence sur la diffraction. Un dispositif expérimental spécifique a été conçu pour permettre d'effectuer la diffraction X au moment correspondant à l'état de choc du matériau. Celui-ci repose sur l'utilisation d'un système spécialement développé pour coupler la source avec un lanceur à gaz simple étage. Une seconde partie présente le dispositif expérimental utilisé au Dynamic Compression Sector (DCS) combinant le rayonnement synchrotron avec un lanceur à gaz. Les essais menés sur les deux installations présentent des configurations similaires de sorte qu'il est possible de mener des essais complémentaires.

Le troisième chapitre présente la méthode de calcul utilisée pour élaborer un outil permettant de simuler les figures de diffraction de matériaux monocristallins et polycristallins. En effet, les possibilités proposées par les outils existants ne se sont pas révélées satisfaisantes et le développement d'un outil en langage Python a été effectué. Les calculs se basent sur la théorie de la diffraction des rayons X des matériaux afin de tracer la propagation des rayons diffractés dans l'espace. Cet outil permet aussi de prendre en compte divers paramètres expérimentaux afin de reproduire les figures de diffraction obtenues lors des essais. L'import des figures expérimentales au sein de l'outil permet une indexation plus aisée des figures et une identification de la structure des différentes phases. Des fonctionnalités supplémentaires ont été ajoutées au gré de besoins pour vérifier certaines hypothèses de comportement.

Le quatrième et dernier chapitre présente les différents résultats expérimentaux obtenus sur les deux installations. Les expériences du CEA Gramat ont permis d'appliquer des chocs à des pressions permettant d'étudier la transition de phase de monocristaux de différentes orientations. Une étude plus particulière sur une orientation a été menée afin de caractériser le changement de phase pour des valeurs de pression inférieures à celle de la transition. Les expériences au DCS se sont concentrées sur une seule orientation de monocristal afin de caractériser la transformation là aussi pour des pressions de choc inférieures et supérieures à la pression de transition.

Cette étude a permis de proposer de premières hypothèses de l'évolution de la structure cristallographique de l'étain pour différents niveaux de sollicitation. Pour confirmer ces hypothèses, de nombreuses perspectives d'études ont été identifiées sur les installations utilisées. Des essais supplémentaires seront requis afin d'approfondir des mécanismes de transition et de complètement caractériser les transformations.

Chapitre I

Etude bibliographique

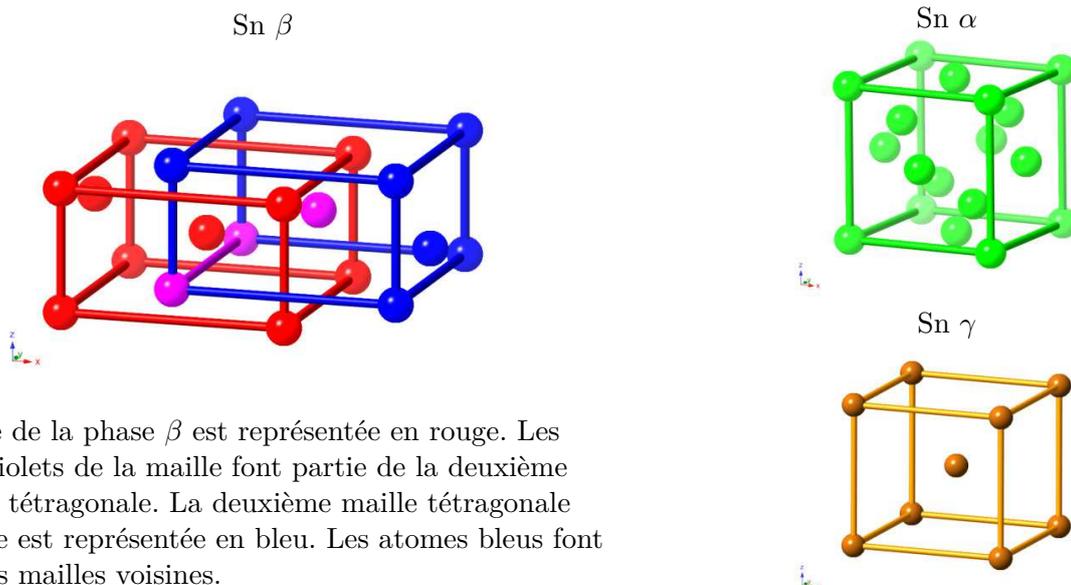
L'étude bibliographique s'est principalement axée sur l'analyse des transformations de phase de l'étain, en particulier la transition β - γ . Une partie de cette étude a porté sur les caractéristiques physiques de l'étain sous des sollicitations dites statiques (ou quasi-statiques). Une seconde partie a été destinée à l'étude de l'étain en sollicitations dynamiques.

I.1 Données générales

L'étain (Sn) est l'élément 50 du tableau périodique des éléments. C'est un métal pauvre qui appartient à la colonne 14 au même titre que le carbone (C), le silicium (Si), le germanium (Ge) et le plomb (Pb). Il est communément observé qu'au sein d'un même groupe, les éléments lourds présentent à basse pression la structure cristallographique des éléments légers à haute pression. Il est ainsi possible d'émettre des hypothèses sur les phases pouvant être adoptés par certains éléments du groupe.

Selon les contraintes de pression-température entrant dans le cadre de cette étude, l'étain peut adopter plusieurs formes (Figure I.1) :

- Phase α : phase basse température à pression ambiante adoptant une structure cubique diamant ($Fd\bar{3}m$).
- Phase β : phase présente dans les conditions ambiantes adoptant une structure double tétragonale centrée ($I4_1/amd$).
- Phase γ : phase haute pression à température ambiante adoptant une structure tétragonale centrée ($I4/mmm$).
- Phase liquide : phase haute température, la température de fusion variant selon la pression et la phase solide.



La maille de la phase β est représentée en rouge. Les atomes violets de la maille font partie de la deuxième structure tétragonale. La deuxième maille tétragonale imbriquée est représentée en bleu. Les atomes bleus font partie des mailles voisines.

FIGURE I.1 – Structure cristallographique des trois phases de l'étain

I.2 Etude du comportement en chargement statique

Les caractéristiques de l'étain en régime quasi-statique ont été tout d'abord étudiées afin de pouvoir construire un diagramme de phase expérimental et collecter des données de référence qui seront ensuite comparées aux données en sollicitations dynamiques.

I.2.A Types de mesure

L'étude de l'étain la plus ancienne trouvée date de 1941 par B.W. Bridgman. [1] Il étudie alors la variation de volume et les éventuelles transitions de divers matériaux, dont l'étain, en compression entre $10\,000\text{ kg/cm}^2$ ($0,98\text{ GPa}$) et $100\,000\text{ kg/cm}^2$ ($9,8\text{ GPa}$). L'auteur cependant ne fait pas mention de la transition β - γ . Par la suite, plusieurs techniques de mesure ont été utilisées pour étudier l'étain. Le rassemblement des données à travers toutes ces études a permis de construire un diagramme de phase expérimental.

I.2.A.a Mesure de résistance électrique

La fusion peut être détectée par une importante variation de la résistance électrique d'un échantillon résultant d'une différence de résistivité entre solide et liquide. Une telle technique a été employée par Dudley et al. [2] qui ont mesuré le liquidus de l'étain et de l'indium entre $6,5$ et 105 katm ($0,65 - 10,5\text{ GPa}$). Les échantillons sont alors portés à la pression d'étude puis chauffés. Un point triple est identifié à $38\,000\text{ atm}$ ($3,8\text{ GPa}$) et $318\text{ }^\circ\text{C}$ ($591,15\text{ K}$) en plus des liquidus des phases β et γ . Les valeurs obtenues sont indiquées à la fin de cette section, dans la figure I.2. L'auteur propose par ailleurs des paramètres d'ajustement de la frontière de chaque phase par une équation de Simon¹ (Table I.5). Une tentative de détecter le changement de phase β - γ a aussi été faite sans succès.

1. L'équation de Simon est une relation empirique décrivant la frontière de transition entre un solide et un liquide. Elle permet donc de suivre l'évolution du point de fusion en fonction de la pression. L'expression générale de cette équation est donnée en I.2.D.b

La transition β - γ a été observée via la variation de résistance par Stager et al. [3]. Les mesures effectuées jusqu'à 200 kbar (20 GPa) ont permis de fixer la transition entre 113 et 115 kbar (11,3 - 11,5 GPa) à travers 13 essais. Ces données concordent avec les extrapolations des différentes études amont à partir du point triple jusqu'à température ambiante. Une phase cubique est alors pressentie pour la phase γ .

Une étude similaire a été menée par Stromberg et al. [4]. Plusieurs matériaux sont alors à l'étude (terres rares et métaux) dont l'étain. A partir des résultats issus de deux essais, la transition β - γ est observée à 107 kbar (10,7 GPa).

La mesure de la variation de la résistance électrique d'un échantillon a aussi été menée par Weir et al. pour déterminer la courbe de fusion de l'étain entre 10 et 45 GPa sur enclume diamant. [5] Les auteurs expliquent que l'étain est à la frontière entre les éléments les plus légers du groupe (C, Si, Ge) et le plus lourd (Pb) qui adopte une configuration électronique différente induisant des liaisons atomiques et donc des structures différentes. L'étude utilise une cellule à enclume diamant avec un système de chauffage résistif. Celui-ci permettra aussi de détecter la fusion en observant la variation de puissance injectée avec la température en plus de la mesure de résistance. Lors d'une mesure, les échantillons sont d'abord comprimés puis chauffés. Les résultats obtenus sont indiqués à la fin de cette section, dans la figure I.2. Une anomalie de résistance laisse alors penser que la transition vers la phase bcc est franchie aux alentours de 44,8 GPa et 1242 K.

La résistance électrique d'un matériau est dépendante de divers paramètres physiques pouvant nuire à la mesure. On peut par exemple citer le volume ($R = \rho \cdot \frac{L}{S}$), la présence de défauts ou de grains. Par ailleurs, le passage du courant peut lui aussi provoquer un chauffage par effet Joule. Il faut donc que la variation de la résistance lors de la transformation soit importante pour pallier à ces perturbations. Cependant, si on considère une phase de mélange sur la frontière, le taux de phase induira une augmentation graduelle de la résistance. Un critère de détermination de la frontière du changement de phase sur le profil de mesure doit alors être choisi. Cette mesure ne permet que d'obtenir des données macroscopiques et n'est pas suffisante pour étudier le matériau en profondeur.

I.2.A.b Mesure de la température

La détection d'une transition peut s'effectuer par l'observation d'un plateau de température caractéristique d'une transformation lors d'un chauffage. Cette méthode a été utilisée par McDaniel et al. [6] pour mesurer la fusion de plusieurs métaux, dont l'étain jusqu'à 5 kbar (0,5 GPa). Les valeurs mesurées sont indiquées en fin de section dans la figure I.2. L'auteur propose aussi un jeu de paramètres d'ajustement pour une droite de Simon une fois les valeurs expérimentales corrigées (Table I.5).

La mesure de la température permet en effet de détecter une transformation par le biais de la présence d'un plateau sur le profil de mesure correspondant à un état de mélange. Cette technique nécessite une isolation du matériau étudié de son environnement pour éviter les éventuelles fuites thermiques pouvant induire un écart entre la température du matériau et celle mesurée. Les deux phases seront alors en équilibre thermodynamique pendant la transformation. La température sera unique pour des conditions de pression et de volume correspondants. L'apport de chaleur du système sera alors converti en énergie latente de transformation inhibant la montée en température. On peut dès lors se poser une interrogation quant au temps de transformation. En effet, celle-ci sera achevée lorsqu'une énergie suffisante sera délivrée au système pour lui permettre de se transformer. Cette énergie peut donc être ramenée à un terme de puissance. Dès lors, il est possible de se demander si l'apport d'une énergie suffisante sur un temps très court engendrerait une transformation tout aussi courte ou si une limite temporelle existe. La notion de temps prend tout son sens lors d'expériences de très courte durée, comme les chocs par exemple. La mesure de température ne permet pas non plus d'étudier la cinétique de transformation lors de la phase de mélange.

I.2.A.c Variation du volume

Babb a utilisé la mesure de la variation du volume pour déterminer la courbe de fusion de l'étain jusqu'à 10 kbar (1 GPa). [7] Il propose alors des constantes pour l'équation de Simon du liquidus.

La mesure du volume ne semble pas la plus adaptée pour détecter une transformation du fait de la forte influence de la pression et de la température sur l'installation et les matériaux qui la constituent, en particulier pour des transformations impliquant de faibles variations de volume où l'instrumentation utilisée doit permettre la détection d'une discontinuité.

I.2.A.d Diffraction X

La diffraction X permet d'effectuer une analyse de l'arrangement atomique d'un échantillon, grâce à cette technique, plusieurs paramètres peuvent être déduits tels que la structure cristallographique, les paramètres de maille, la variation de volume, la présence d'une phase de mélange. La mesure peut s'effectuer soit en dispersion d'angle (Angle Dispersive X-Ray diffraction : ADXRD) ou en énergie (Energy Dispersive X-Ray Diffraction : EDXRD).

Barnett et al. ont employé la dispersion angulaire [8] pour déterminer, d'une part, la structure cristallographique de la phase γ et, d'autre part, construire le diagramme de phase de l'étain. Concernant la phase γ , ils proposent une structure tétragonale centrée (contrairement à une phase cubique auparavant proposée) de paramètre $a = 3,81 \text{ \AA}$ et $c = 3,48 \text{ \AA}$ à 39 kbar (3,9 GPa) et entre 308 et 320°C (581,15 - 593,15 K). La phase β , quant à elle, possède une structure double tétragonale centrée. Le liquidus a été étudié jusque 45 kbar (4,5 GPa) et la frontière β - γ jusque 70 kbar (7,0 GPa) par la disparition de figures de diffraction caractéristiques de la phase β . Le point triple a quant à lui été déterminé à 34 kbar (3,4 GPa) et 318 °C (591,15 K). Les résultats obtenus sont indiqués à la fin de cette section (Figure I.2).

Cette étude a été approfondie par Barnett et al. [9] où la frontière β - γ a été suivie entre 250 °C et la température ambiante. L'apparition successive des figures de diffraction des deux phases a permis de construire la frontière β - γ sans que l'observation d'une phase de mélange soit constatée. La transition à température ambiante a été établie à 92 kbar (9,2 GPa). Les mesures par diffraction X ont permis de suivre l'évolution des paramètres de maille avec la pression et donc la variation de volume induite dans la phase β . Les auteurs remarquent que la cinétique de la transition est fortement dépendante de la température. Celle-ci est plutôt lente aux conditions ambiantes et devient très rapide à partir de 150 °C. Ce phénomène pourrait alors indiquer une transformation diffusives par la germination de grains de la nouvelle phase, les transformations displacives étant athermiques et quasiment instantanée (vitesse des ondes élastiques). Une pente de -170 bar/°C pour la frontière β - γ à T_{amb} et 9,2 GPa ainsi qu'une compression de volume de 1,1% sont indiqués à la transition. Ils proposent deux équations de variation pour a et c pour la phase β .

Olijnyk et al. ont étudié la phase γ entre 10 et 50 GPa par EDXRD à température ambiante. Celle-ci semble apparaître à 9,5 GPa et reste stable jusqu'à 35 GPa avant l'apparition de la phase bcc en mélange jusqu'à 50 GPa. [10]

Une autre étude a été menée par Liu et al. sur l'étain à température ambiante jusqu'à 534 kbar (53,4 GPa) à 23°C (296,15 K) en enclume diamant (CED) par ADXRD [11]. Les résultats obtenus sont indiqués à la fin de la section, dans la figure I.2. Le suivi de l'évolution de la compression de la maille a pu être effectué en plus de l'identification de la phase. Le rapport c/a de la phase β semble rester constant indiquant une variation linéaire de chaque paramètre de maille avec la pression. Des paramètres d'une équation d'état (P,V) du type Birch sont alors proposés. La phase γ a été observée à partir de 9,8 GPa (apparition entre 9,6 et 9,8 GPa) au sein d'un mélange β - γ se poursuivant jusque 10,3 GPa au moins (disparition de la phase β entre 10,3 et 11,8 GPa). En faisant le parallèle avec l'observation d'un plateau de température observé lors du chauffage pour un changement de phase, on pourrait s'attendre à observer un plateau de pression correspondant à la phase de mélange correspondant à la frontière. La compression serait alors transformée en énergie de transformation. L'observation de la variation de pression pourrait alors correspondre à la variation d'une autre variable d'état du système comme le volume par exemple. Cette phase γ est encore observée jusqu'à la pression finale de l'étude, avec l'apparition d'une phase cubique centrée entre 42 et 46 GPa. Une équation de type Birch est aussi proposée pour cette phase. Il est important de remarquer que le rapport c/a évolue continuellement vers la valeur 1 (correspondant à une phase cubique) et saturant à 0.95 à la transition vers la phase bcc. Un changement abrupt du ratio ainsi que du volume a lieu lors de la transition γ -bcc tout comme pour la transition β - γ . Les données expérimentales recueillies sont présentées dans le récapitulatif en fin de section (Figure I.2) Les travaux conjoints de Cavaleri et al. [12] et de Plymate et al. [13] ont permis de dresser une cartographie du diagramme de phase β - γ . Pour cela, la technique EDXRD en enclume diamant chauffée a été utilisée.

Les travaux de Cavaleri et al. se sont concentrés sur l'étude de la compressibilité de la phase β à différentes conditions de pression-température entre 25 et 256°C (298,15 - 529,5 K) et entre 2 et 8,5 GPa par EDXRD. Des régressions sur équations de type Murnaghan ont été utilisées pour construire une équation d'état. La variation du paramètre de maille comparée à l'évolution du volume spécifique semble indiquer que la déformation de la maille est anisotrope avec une plus grande compressibilité selon l'axe c contrairement aux résultats de Liu et al. Les points de mesure où la phase β a été identifiée sont indiqués dans la figure récapitulative en fin de section. Cette étude a été prolongée par les travaux complémentaires de Plymate et al. [13] concernant l'équation d'état de phase γ par EDXRD. Une cartographie de la phase γ à des pressions allant jusqu'à environ 17 GPa et une température atteignant les 440°C (713,15 K). La transition β - γ a été déterminée à 9,4 GPa à température ambiante. Les données de compressibilité semblent avoir une bonne correspondance avec le travail et Liu et al. Cependant, les données cristallographiques reportées semblent incertaines, en effet, le paramètre de maille a et le volume de la maille de la phase γ sont normalisés aux paramètres de la phase β et ne permettent pas de retrouver les valeurs normalement attendues. Les données obtenues en diffraction en énergie à partir des données extraites par lecture graphique permettent cependant de retrouver des valeurs appropriées. En combinant les deux études, la phase β semble être légèrement plus compressible mais moins sujette à la dilatation thermique. L'analyse de l'anisotropie de la compression de la phase γ révèle que la direction a est plus compressible que c contrairement à la phase β . La variation de volume semble être constante tout au long de la frontière β - γ .

L'étude de la courbe de fusion a été reconduite sur la phase γ via EDXRD par Kiefer et al. [14]. L'échantillon est alors mis sous pression à température ambiante puis chauffé à des conditions allant jusqu'à 14 GPa et 700°C (973,15 K). La phase γ est directement observée dès les premières images acquises au-delà de 10,7 GPa à température ambiante, indiquant une limite haute de la pression de transformation. Trois chemins thermiques ont été suivis induisant en trois points de fusion. Les auteurs ont comparé leurs résultats avec ceux obtenus en détente depuis un choc [15] ou avec des simulations [16]. Des différences sont obtenues dans les deux cas, allant jusqu'à 20%.

Une étude menée par Rambert et al. [17] va proposer d'établir une équation d'état multiphase de l'étain pour les phases β , γ et liquide entre 0 et 35 GPa en utilisant des cellules à enclume diamant. La mise en place d'expériences isochores avec chauffage ont permis d'établir le diagramme de phase de l'étain jusqu'à une température proche de 1000 K en suivant les frontières. Ce système permet alors de contraindre à la fois le volume et la température par chauffage. Seule la pression est alors libre de varier. Les variables permettant de définir un système thermodynamique à travers un potentiel sont le volume, la pression et la température. Lors d'une transition de phase, en considérant l'égalité des enthalpies libres, la coexistence ne peut donc s'observer que sur la frontière. En fixant à la fois le volume et la température, seule la pression va varier. Lors de la transition, on observe alors une variation de pression induite par les autres variables contraintes. En poursuivant ce raisonnement, l'observation d'une phase de mélange doit alors correspondre à l'atteinte d'une frontière de phase dans l'espace (P, V, T). On peut alors comprendre que la présence d'un mélange pour une gamme de pression dans d'autres études pourrait alors provenir de la variation d'un autre paramètre thermodynamique à savoir le volume. On peut imaginer que dans ce type d'expérience, l'étain ne remplit pas entièrement la cavité, laquelle peut aussi voir son volume varier du fait de la pression ou de l'échauffement. Pour l'étude des matériaux, il semble alors plus judicieux d'utiliser un diagramme de phase en trois dimensions, considérant à la fois la pression, la température mais aussi le volume de l'échantillon (que l'on peut réduire en volume spécifique pour obtenir une variable intensive). Des équations de Simon ou polynomiales du second ordre ont été proposées pour les frontières β -liquide, γ -liquide et β - γ . Un phénomène de surfusion est observé lors du refroidissement du liquide lors du retour en phase β mais aussi γ de manière moins prononcée. L'écart de température observé ne semble pas dépendre de la pression. L'étude de la frontière β - γ fait aussi apparaître un phénomène de métastabilité de quelques dizaines de degrés lors du retour en phase β , la transition directe connaissant un écart très faible en température de l'ordre du degré. A cette étude, en plus des différentes frontières sont proposées les frontières de métastabilité de chacune des phases pour les transitions directes et inverses. On constate donc un hystérésis lors des différentes transformations qui n'est pas symétrique. En effet, lors de ces expériences, comme il est possible d'observer directement la frontière, on constate des écarts différents lors de l'initiation de la transformation selon le sens de traversée de la frontière. Dans une seconde partie de l'étude, la diffraction X est utilisée pour déterminer les paramètres d'intérêt à intégrer dans l'équation d'état. Tout comme dans les études de Cavaleri et Plymate, l'axe c est plus compressible que l'axe a concernant la phase β et inversement dans la phase γ .

La thèse de Briggs s'est concentrée sur la détermination de la structure de l'étain à température ambiante jusqu'à 137 GPa sur enclume diamant par ADXRD. [18] Concernant les phases β et γ , une coexistence est observée entre 9,7 et 15,7 GPa. Pour chaque phase sont calculés les paramètres d'ajustement pour une équation de Birch-Murnaghan ainsi que le suivi de la variation du volume. Tout comme Liu, le ratio c/a de la phase β semble rester constant. La phase γ semble exister jusqu'à une pression de 32 GPa où des variations des pics de diffraction laissent à penser qu'une phase orthorhombique centrée (bco) se forme. Le ratio c/a de la phase γ suit aussi la même tendance que Liu avec une augmentation du rapport en pression. La fusion a aussi été déterminée par la première apparition de diffraction d'un liquide lors de la montée en température (mesures entre 20 et 105 GPa). Un aplatissement de la courbe de fusion est détecté à partir de 40 GPa avant une brusque montée autour de 70 GPa pouvant indiquer des points triples de transition. Une étude du diagramme de phase en température a aussi été effectuée entre 20 et 100 GPa sur des points approchant la courbe de fusion. La phase γ semble se conserver en température aux environs de 40 GPa. Tous les points mesurés sont présentés en fin de section, dans la figure I.2.

Ces résultats sont repris par Salamat et al. [19] où l'apparition de la phase γ est située à 10,8 GPa et la disparition de la phase β est déterminée à 15,7 GPa. De légères déviations des pics de diffraction ainsi que de leur intensité semble indiquer une phase de plus basse symétrie associée à la phase bco aux environs de 32 GPa.

L'étude de l'étain s'est poursuivie à des pressions initiales dépassant le cadre de l'étude. Desgreniers et al. ont étudié les phases haute pression de l'étain entre 52,1 et 120 GPa où la phase bcc persiste. [20] Salamat et al. [21] ont étudié les différentes phases en présence entre 100 et 200 GPa où une transition bcc-hcp est observée à 157 GPa.

Briggs et al. [22] qui ont étudié la fusion entre 20 et 105 GPa et donne une équation de Simon pour la frontière γ -liquide. La gamme de pression étudiée sort alors du cadre de l'étude.

Les nombreuses études menées témoignent du réel intérêt de l'utilisation de la diffraction X pour étudier les matériaux. En effet, à travers l'analyse des figures de diffraction, l'organisation atomique du matériau ainsi que sa microstructure peuvent être étudiés. A partir de la valeur paramètres de maille et leur variation il est possible de déterminer la variation du volume cristallin et de déceler une anisotropie de compression, c'est à dire une compressibilité différente selon la direction cristalline sollicitée. Grâce à une calibration, cette technique peut aussi servir de moyen de mesure de pression et de température sur des matériaux connus. Concernant les matériaux solides, elle peut être utilisée pour étudier aussi bien des polycristaux que des monocristaux en utilisant un rayonnement adapté. Une grande variété de matériaux peut être testée qu'ils soient absorbants ou non via les configurations en réflexion ou en transmission. Les configurations ADXRD et EDXRD permettent également d'élaborer une multitude de configurations expérimentales. Différents types de phénomènes peuvent être mis en exergue tels que la texturation, le maclage, la recristallisation mais aussi les changements de phase. Cette technique non intrusive va permettre de ne pas perturber le système en y implémentant une instrumentation. Cependant, elle nécessite des moyens plus importants que pour d'autres méthodes pour la génération et la détection des rayons X et leur analyse. En couplant cette technique à des mesures de pression et de température, les changements de phase peuvent être approfondis en étudiant la cinétique de transition par l'identification de mécanismes particuliers : transformation displacive ou diffusive, transformation graduelle, présence d'un hystérésis. Là encore la notion de temps est primordiale dans ce type d'expérience. En effet, moins la source sera intense, plus le temps d'exposition devra être conséquent pour obtenir une image exploitable. Cela va contraindre à adapter la configuration pour maintenir un état stable durant l'exposition. Dans le cas contraire, la figure de diffraction sera la superposition de plusieurs états successifs. Pour caractériser au mieux ces réactions, la durée d'exposition doit être le plus courte possible en regard de la cinétique de transition. Elle ne sera pas la même si on considère une transformation lente de type diffusif ou une transformation rapide de type displacif.

I.2.A.e Analyse thermique

L'analyse thermique différentielle² a été utilisée par Kingon et al. [23] pour déterminer la fusion de l'étain jusque 3,7 GPa. La fusion a été déterminée de part et d'autre à des pressions proches du point triple. Ses coordonnées ont pu être déterminées et la transition β - γ étudiée. La fusion à pression ambiante a été déterminée par DSC³ (analyse calorimétrique différentielle) à 232°C (505,15 K). Une bonne correspondance a été trouvée avec les études précédentes jusqu'à 1 GPa, une déviation plus importante étant rapportée au delà. Les résultats obtenus sont indiqués en fin de section (Figure I.2). Les auteurs proposent des équations d'ajustement pour les frontières entre les trois phases dont les expressions sont données en I.2.D.b.

2. Cette technique souvent abrégée sous le terme ATD (ou DTA en anglais) consiste à suivre la température d'un échantillon d'étude par rapport à un échantillon témoin. La différence de température entre les deux échantillons lors d'un chauffage ou d'un refroidissement va permettre de mettre en évidence une réaction au sein du matériau d'étude.

3. Le principe de cette méthode est similaire à celle de l'analyse thermique différentielle. On mesure alors la quantité de chaleur échangée avec les échantillons.

L'analyse thermique permet de suivre l'évolution de certains paramètres thermodynamiques d'intérêt permettant, entre autres, de déterminer des constantes propres à un matériau ou bien de déterminer l'ordre d'une transition⁴. Cependant, là encore, seules des données macroscopiques peuvent être déterminées.

I.2.A.f Méthode Optique

Schwager et al. ont proposé de détecter la fusion de l'étain sous enclume diamant par chauffage laser. [24] Le changement de phase est déduit en observant la modification de l'éclairement d'un laser réfléchi en surface mais aussi par le changement de texture observé sur la surface de l'échantillon. L'auteur précise que la détection de la fusion est difficile à observer pour toutes les pressions (20-70 GPa) (faible mouvement du laser probablement dû à un faible changement de volume). Un gradient de température étant présent sur les bordures des zones chauffées, plusieurs mesures ont été réalisées pour des mêmes pressions (incertitude allant de 60 à 100K). Le liquidus semble avoir une tendance à s'aplatir à partir de 40 GPa jusqu'à la plus haute pression de l'étude à 68 GPa pouvant indiquer le passage à la phase bcc. Un diagramme de phase dans la région d'étude est alors proposé.

I.2.A.g Mesure sonique

Xu et al. ont proposé d'utiliser la mesure de la vitesse du son dans l'étain sous pression pour déterminer sa courbe de fusion jusqu'à 5 GPa. [25] En effet, la propagation des ondes soniques étant reliée aux propriétés mécaniques du matériau, un changement de ces propriétés fera apparaître une variation de la vitesse du son. Afin de mesurer cette variation, la distance de propagation doit rester la même, ainsi l'écart temporel entre les réflexions issues des interfaces renseignera sur la vitesse. Selon la pression imposée par rapport au point triple, une transition (fusion de β) ou deux (fusion de β et transition β - γ) sont observées à pression constante par augmentation de la température. La vitesse du son ne semble pas constante en pression et température mais cette variation est très faible devant celle du changement de phase. Cette brusque variation a permis de déterminer les changements de phases ainsi que de proposer un point triple à 562 K et 3,02 GPa. Un ajustement sur une courbe de Simon est proposé pour la phase γ (Table I.5).

Cette technique propose une alternative intéressante pour étudier les paramètres mécaniques du matériau, en particulier pour déterminer une transition de phase solide/solide via la discontinuité des paramètres ou solide/liquide via la perte de certaines propriétés mécaniques. Cependant, là encore les données recueillies ne sont pas suffisantes pour caractériser suffisamment le matériau.

I.2.B Base de données matériaux

Certaines études ont proposé une compilation de données existantes pour construire les frontières du diagramme de phase de matériaux, dont l'étain, avec une partie des résultats déjà présentés précédemment. Cannon [26] a proposé, au regard des transitions prenant place entre 93 et 95 kbar (9,3-9,5 GPa) et à partir de diverses corrections, une pression de 94 ± 4 kbar (9,4 GPa) pour la transition β - γ à température ambiante. Les paramètres de maille de la phase β sont proposés : $a = 5,8315$ Å et $c = 3,1814$ Å ainsi que ceux de la phase γ avec $a = 3,81$ Å et $c = 3,48$ Å. Malheureusement, aucune donnée chiffrée n'est indiquée pour pouvoir tracer le diagramme de phase et le comparer aux autres.

Un autre diagramme de phase de l'étain est proposé par Young [27] à partir de données bibliographiques. Malheureusement ici non plus, aucune donnée chiffrée n'est indiquée pour pouvoir tracer le diagramme de phase.

4. En thermodynamique, il est possible de caractériser une transition par l'observation de la discontinuité du potentiel thermodynamique par rapport aux variables qui lui sont associées. Une transition du premier ordre verra une discontinuité de la dérivée du potentiel par rapport à une de ses variables (induisant un changement de pente). Une transition du second ordre fera apparaître une discontinuité au sein de la dérivée seconde.

Tonkov et al. ont proposé à leur tour un panorama des données expérimentales existantes sur l'étain. [28]. La phase β ($a = 5,8317 \text{ \AA}$ et $c = 3,1813 \text{ \AA}$) passe à l'état liquide à 232°C ($505,15 \text{ K}$) à pression ambiante et passe en phase γ ($a = 3,81 \text{ \AA}$ et $c = 3,48 \text{ \AA}$) à $9,4 \text{ GPa}$. Le triple point étant placé à 3 GPa et $580,15 \text{ K}$.

A travers l'ensemble de ces études, seule la diffraction X semble à même de permettre un étude approfondie des matériaux. Afin de pouvoir en tirer pleinement le potentiel, elle doit être couplé à des mesures permettant de corréler l'état du matériau observé à des variables d'état. A travers l'ensemble de ces études, on remarque également l'absence de la prise en compte rigoureuse du temps de sollicitation sur les transformations observées. Ce facteur va être déterminant lors de l'application de sollicitations brèves et jouer un rôle clef dans le comportement des matériaux.

I.2.C Etudes portant sur la modélisation

Cheong et al. ont proposé un modèle théorique à partir de l'observation du comportement cristallin des éléments plus légers du groupe IV (C, Si, Ge). [29] Celui-ci s'inscrit dans le cadre de la dynamique moléculaire et se base sur des calculs de potentiels pour décrire l'évolution de la structure de l'étain sous pression. La stabilité de nombreuses phases (α -Sn, β -Sn, sh, bct, bcc, hcp et fcc) est testée afin de déterminer laquelle est la plus favorisée. Le cadre de l'étude est contraint au zéro absolu par variation de la pression. La succession des structures cristallographiques ainsi que les variations de volume modélisées sont cohérentes avec les mesures effectuées. La seule incertitude réside dans la formation d'une phase hcp à haute pression qui n'a pas été observée aux pressions indiquées par les auteurs. Ceux-ci l'expliquent par un modèle qui ne prend pas en compte assez de facteurs à cause de la proche stabilité énergétique entre les phases bcc et hcp.

La dynamique moléculaire a été utilisée (potentiel MEAM) par Ravelo et al. pour modéliser les propriétés thermodynamiques de l'étain entre les phases α , β et liquide. [30] La plupart des grandeurs thermodynamiques reproduisent les mesures (propriétés mécaniques, transition α - β , fusion).

Une équation d'état (EOS) de l'étain multiphase a été proposée par Cox afin de modéliser les différentes propriétés des phases β, γ et liquide. [31] Selon l'auteur, cette équation d'état permet de modéliser à la fois une compression quasi-statique mais aussi une compression dynamique. Chaque phase possède sa propre EOS, la phase la plus stable aux conditions (P,T) est celle ayant l'enthalpie libre la plus basse, avec une égalité pour les deux phases lors de la transition. Les constantes nécessaires dans les équations ont été obtenues à partir de la collection de données bibliographiques. A travers l'établissement du diagramme de phase, le liquidus de la phase γ ne semble pas correspondre aux données expérimentales. Cependant les données en compression dans l'espace (P,V) reproduisent fidèlement les données à la fois en compression isotherme et en sollicitation dynamique.

Un autre modèle a été proposé par Feng et al. pour modéliser la fusion de l'étain (Dislocation-mediated melting model) et essayer de réduire certains écarts constatés avec d'autres modèles. [32] Les propriétés de chaque phase sont modélisées puis combinées à partir du point triple pour obtenir le liquidus. La comparaison du liquidus avec les données expérimentales semblent mieux reproduire la frontière que les résultats obtenus par Cox.

I.2.D Rassemblement des données expérimentales

I.2.D.a Points remarquables

Paramètres de maille à température ambiante

Les paramètres de maille des phases β et γ déterminés dans les différentes études sont rassemblés dans la table I.1. Les paramètres sont donnés à température ambiante. Les deux phases étant tétragonales, seuls les paramètres a et c de la maille sont à connaître. Certaines valeurs ont pu être calculées à partir des données présentes dans les études. Les valeurs de pressions sont celles auxquelles les paramètres de maille de la phase ont été déterminés suite à la transition ou à la valeur la plus basse de l'étude.

Phase	Pression (GPa)	a (Å)	c (Å)	Ref.
β	P_{amb}	5,8315	3,1814	[26]
β	P_{amb}	5,8332	3,1820	[11]
β	P_{amb}	5,8316	3,1814	[12]
β	P_{amb}	5,830	3,181	[17]
β	0,2	5,82259	3,1776	[19]
β	0,215	5,8259	3,1776	[18]
γ	9,8	3,7	3,37	[9]
γ	9,84	3,689	3,388	[11]
γ	9,65	5,2339	3,3879	[13]
γ	10	3,709	3,377	[17]
γ	10,8	3,694	3,370	[19]

TABLE I.1 – Valeurs des paramètres de maille des phases β et γ à température ambiante

On remarque une bonne concordance entre les mesures pour chaque phase. Les valeurs issues de Plymate et al. (cadre) diffèrent sensiblement des autres données concernant la phase γ . Néanmoins, les valeurs en énergie reportés dans les profils de diffraction de leur étude correspondent à des valeurs de paramètre de maille se rapprochant de celles attendues : $a \approx 3,65$ Å et $c \approx 3,65$ Å à 12,9 GPa et à température ambiante.

Fusion de la phase β à pression ambiante

Les températures de fusion de la phase β fournies dans la littérature sont rassemblées dans la table I.2.

T (K)	Ref.
505	[2]
505	[7]
509	[6]
510	[33]

TABLE I.2 – Valeurs de la température de fusion de la phase β à pression ambiante

Transition β - γ à température ambiante

La valeur de la pression de transition entre les phases β et γ à température ambiante a été déterminée lors de diverses études. Cette pression va pouvoir servir de premier indicateur pour estimer la pression de choc à imposer au matériau pour le faire changer de phase en considérant son échauffement. Les valeurs données dans la littérature sont rassemblées dans la table I.3.

P (GPa)	Ref.
11,3 - 11,5	[3]
10,7	[4]
9,2	[9]
9,4	[26]
9,5	[27]
9,5	[10]
9,7	[11]
9,4	[13]
10	[17]
9,7	[18]
10,8	[19]

TABLE I.3 – Valeurs de la pression de transition β - γ à température ambiante

Point triple

Le point triple β - γ -liquide a été recensé à partir de plusieurs études. Certaines d'entre elles ont repris des résultats antérieurs en les corrigeant de certains biais expérimentaux. Les résultats sont recensés dans la Table I.4.

P (GPa)	T (K)	Ref.
3,85	591,15	[2]
3,4	591,15	[8]
3,01	586,15	[23]*
3,3	577,15	[23]*
3,01	581,15	[23]*
3,3	583,15	[23]*
2,95	580,15	[23]*
2,87	581,65	[23]
2,86	581	[17]
3	580,15	[28]
3,02	562	[25]
3,3	583	[22]

*valeurs reportées d'autres études

TABLE I.4 – Valeurs des paramètres du point triple entre les phases β - γ -liquide

I.2.D.b Proposition de frontières

Equation de Simon

L'équation de Simon est une relation empirique décrivant l'évolution du point de fusion en pression et température dans le diagramme de phase. Son expression générale est de la forme :

$$P - P_0 = a[(T/T_0)^c - 1] \quad (\text{I.1})$$

Avec P et T les valeurs de pression considérées, P_0 et T_0 les valeurs de référence. a et c sont des coefficients caractéristiques pour la transformation considérée.

Le rassemblement des paramètres pour les équations de Simon concernant le liquidus de l'étain est présenté dans la Table I.5. Les valeurs ont été corrigées pour se rapporter à l'équation I.1. Certains coefficients obtenus lors de la régression présentent cependant des incertitudes non négligeables.

Phase β -liquide					
a (GPa)	c	P ₀ (GPa)	T ₀ (K)	Pression (GPa)	Ref.
0,75	11,3	0	505	0 - 3,8	[2]
3,42	4,30	0	NA	0 - 0,5	[6]
3,1	4,7	NA	NA	0 - 0,9	[7]
Phase γ -liquide					
a (GPa)	c	P _{ref} (GPa)	T _{ref} (K)	Pression (GPa)	Ref.
2,2	5,25	3,9	591	3,8 - 10,5	[2]
5,437	1,63	2,86	581	2,86 - 10	[17]
3,44	2,57	3,3	583	3,3 - 80	[34]
3,90	1,66	3,02	562	3,02 - 4,6	[25]
1,4	2,56	3,3	583	3,3 - 40	[22]

TABLE I.5 – Valeurs des paramètres a et c pour les courbes de Simon des liquidus des phases β et γ sur les gammes de pression considérées

Equation Polynomiale

D'autres études ont proposé des équations du second degré pour modéliser le diagramme de phase : Kingon et al. :

$$\beta - \text{liquide} : T(^{\circ}C) = 232 + 32,1.P(GPa) - 1,77.P(GPa)^2 \quad (0 - 2,87 GPa) \quad (I.2)$$

$$\gamma - \text{liquide} : T(^{\circ}C) = 308,5 + 59,1.(P(GPa) - 2,87) \quad (2,87 - 4 GPa) \quad (I.3)$$

$$\beta - \gamma : T(^{\circ}C) = 308,5 - 22,9.(P(GPa) - 2,87) \quad (2,87 - 3,4 GPa) \quad (I.4)$$

Rambert et al. :

$$\beta - \text{liquide} : T(K) = 505 + 32,05.P(GPa) - 1,893.P(GPa)^2 \quad (0 - 2,86 GPa) \quad (I.5)$$

$$\beta - \gamma : T(K) = 620,9 - 7,13.P(GPa) - 2,500.P(GPa)^2 \quad (2,87 - 10 GPa) \quad (I.6)$$

Plymate et al. ont utilisé les équations de Kingon et al. pour modéliser les liquidus des phases β et γ . Une frontière β - γ est référencée à partir de la collection des données disponibles :

$$T(^{\circ}C) = 348,36 - 4,88.P(GPa) - 3,14.P(GPa)^2 \quad (2,87 - 9,8 GPa) \quad (I.7)$$

Molodets et al. ont proposé des coefficients d'équation polynomiale d'ordre 6 pour le diagramme de phase dans leur étude de l'étain sous choc (voir paragraphe I.3.E plus loin) :

$$T(K) = \sum \alpha_i \cdot P^i(GPa) \quad (I.8)$$

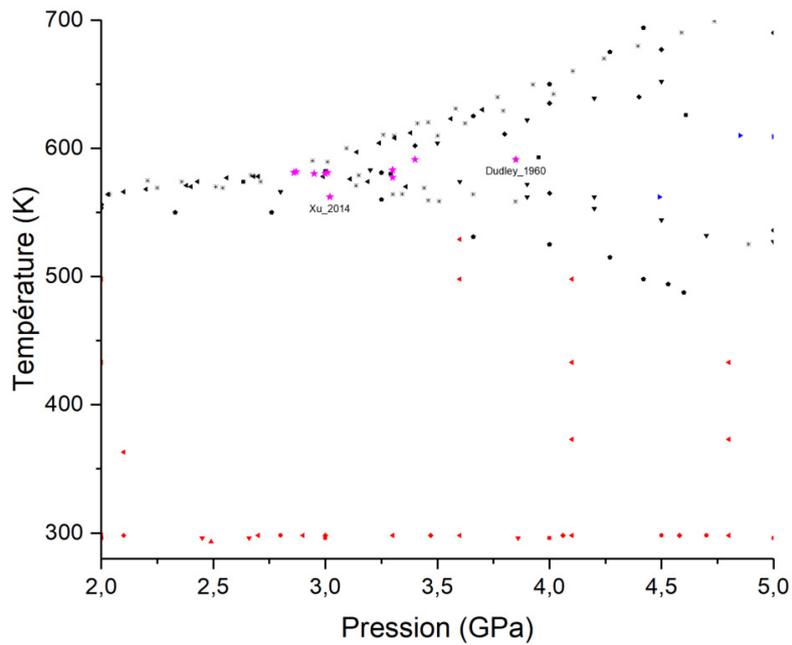
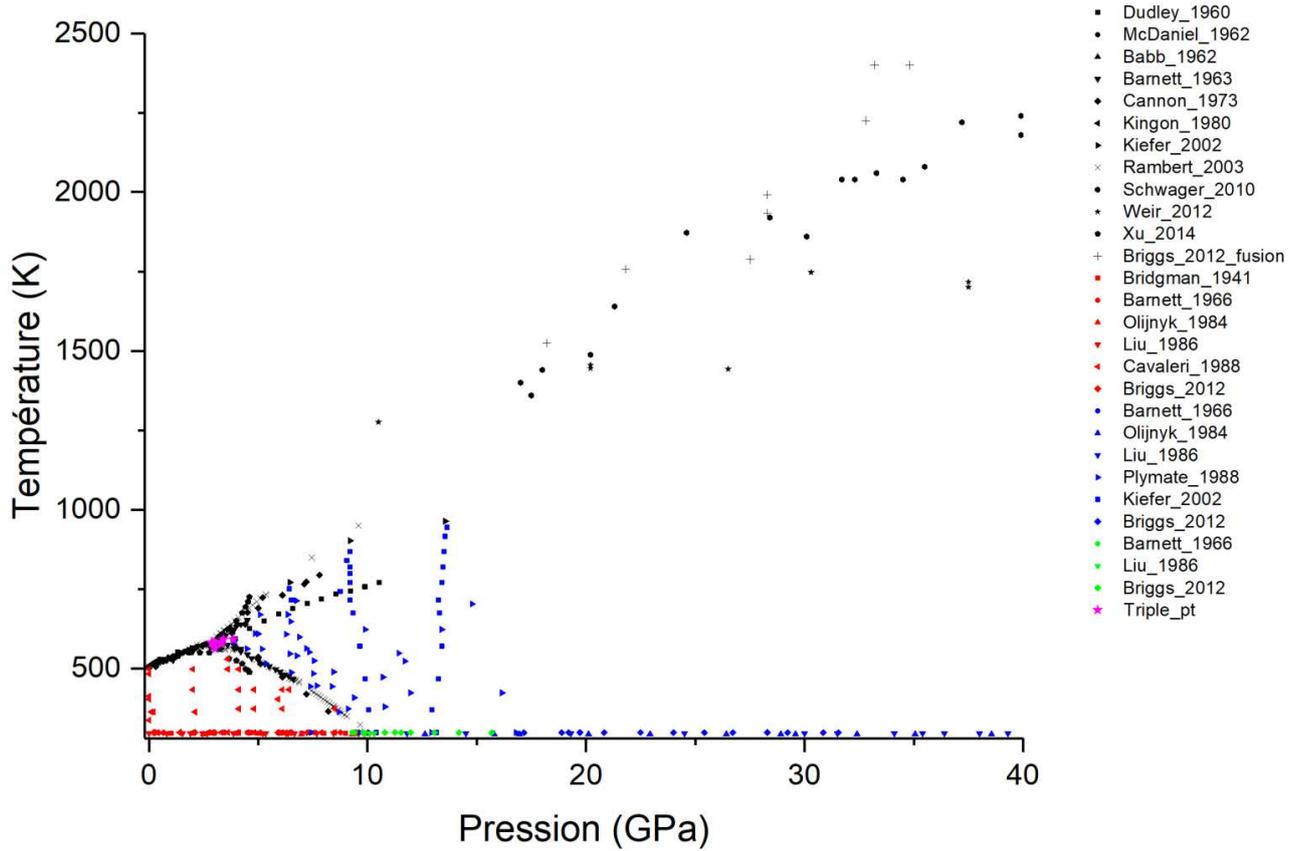
Frontière	α_0	α_1	α_2	α_3	α_4	α_5	α_6	Pression (GPa)
β -liq	505,27	29,594	$-869,96 \cdot 10^{-3}$	$262,42 \cdot 10^{-4}$	$-406,08 \cdot 10^{-6}$	$314,35 \cdot 10^{-8}$	$-959,53 \cdot 10^{-11}$	0 - 100
β - γ	647,87	-16,599	-1,9748	0	0	0	0	2,9 - 14
γ - liq	469,32	23,055	$617,88 \cdot 10^{-2}$	$-262,40 \cdot 10^{-3}$	$351,99 \cdot 10^{-5}$	0	0	2,9 - 21
γ - bcc	12050,4*	-1066,9	41,814	$-775,62 \cdot 10^{-3}$	$53,337 \cdot 10^{-4}$	0	0	21 - 43
bcc - liq	-99,533	113,29	$-92,786 \cdot 10^{-2}$	$564,97 \cdot 10^{-5}$	$-132,72 \cdot 10^{-7}$	0	0	21 - 150

*La valeur indiquée dans l'étude est négative mais ne permet pas de retrouver la valeur du point triple γ -bcc-liq. La valeur positive permet de retrouver une valeur cohérente.

TABLE I.6 – Coefficients polynomiaux du diagramme de phase données par [35]

I.2.D.c Construction du diagramme de phase

Le diagramme de phase empirique de l'étain issu des différentes études en présenté en figure I.2.



Rouge : phase β , Bleu : phase γ , Vert : mélange β - γ , Violet : Point triple, Noir : Frontière

FIGURE I.2 – Graphique récapitulatif des points mesurés dans l'étude bibliographique et de la phase associée (couleur des points). La figure du bas est un zoom sur la zone du point triple.

En comparant les résultats, il est possible de déceler une tendance générale du diagramme de phase et des différentes frontières.

Fusion de la phase β

Les diverses déterminations des courbes de fusion de la phase β sont en adéquation jusqu'aux pressions avoisinant le point triple à 3 GPa. On remarque cependant un écart sensible des données de Xu et al. qui divergent de la tendance générale à partir de 2 GPa. Le critère de fusion est grandement dépendant du type de mesure utilisé et peut provoquer une disparité sur les résultats. Cela semble être d'autant plus prépondérant que l'on s'approche du point triple. Les études concernant la fusion de la phase β présentées ici sont antérieures aux années 1980 excepté celle de Xu et al. Il serait intéressant de reconduire ce type d'étude avec les instruments actuels afin de re-déterminer avec précision la courbe de fusion jusqu'au point triple.

Fusion de la phase γ

On observe une grande disparité des données concernant la fusion de la phase γ . Il n'y a pas eu d'étude couvrant l'ensemble du liquidus de cette phase. La transition γ -bcc est inférée par un aplatissement de la courbe de fusion pour des pressions avoisinant 40 GPa. En première approche, il est possible de considérer que le liquidus de la phase γ s'étend en pression du point triple à environ 40 GPa. On remarque qu'il existe peu de mesures de ce liquidus entre 10 et 20 GPa. En extrapolant les mesures à plus haute pression issues des études de Briggs, Weir et al. ainsi que de Schwager et al., il semble que les mesures à plus basse pression déterminées par Cannon et al., Kiefer et al., Rambert et al. ainsi que par Xu et al. aient une tendance similaire. Les mesures du liquidus à haute pression par Weir et al. semblent sous-estimer les températures comparées à celles estimées par Briggs et Schwager et al., cet écart étant expliqué par l'auteur par une méthode de mesure de température indirecte. Les mesures réalisées par Dudley et al. diffèrent de la tendance générale pour des pressions proches du point triple. Leurs mesures du liquidus de la phase β sont cohérentes avec les autres études. Les plus faibles valeurs en température du liquidus de la phase γ pourraient être expliquées par une calibration des instruments moins précise aux plus hautes conditions de pression/température. Des études supplémentaires sur toute la gamme de pression seraient utiles pour mieux caractériser le liquidus de cette phase.

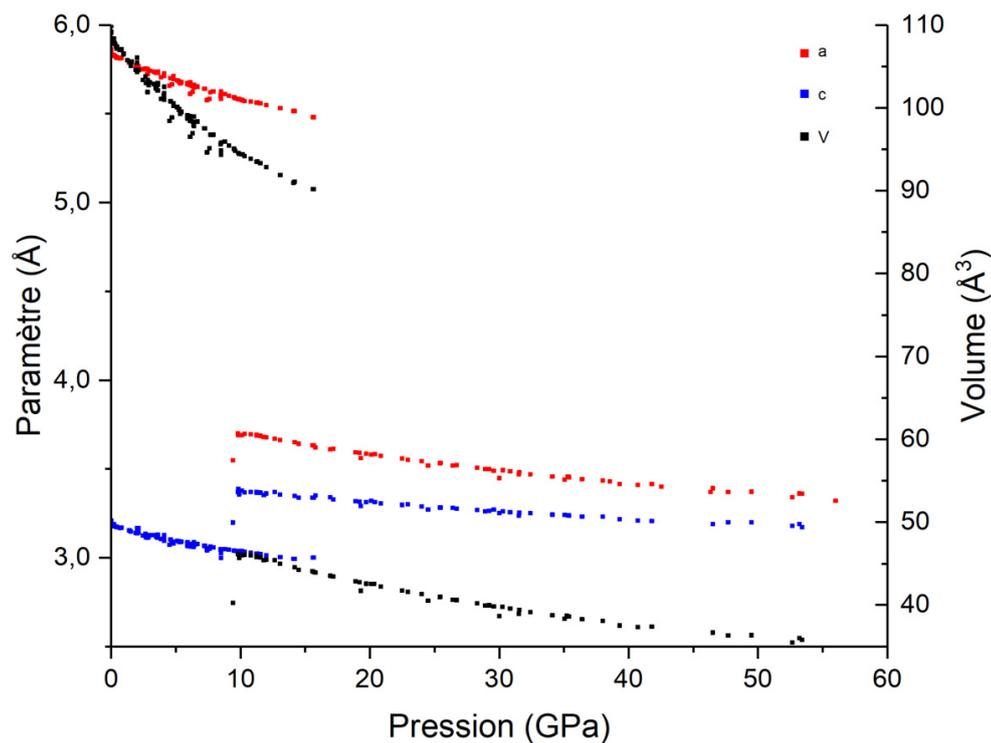
Transition β - γ

La transition β - γ a majoritairement été déterminée au cours d'expériences isothermes à température ambiante, la pression de cette transition étant un point de calibration pour les systèmes à haute pression. La frontière de transition en température a néanmoins été déterminée à travers quatre études. Les frontières en température reportées par Cannon, Barnett et al. et Rambert et al. sont proches et semblent converger vers les pressions de transition communément admises lors d'études à température ambiante. A l'inverse, l'étude menée par Xu et al. indique une frontière plus basse en température menant à une pression de transition à température ambiante inférieure. Les études à température ambiante principalement menées sur cellule à enclume diamant révèlent une incertitude quant à la détermination de la pression du changement de phase β - γ . En effet, on peut constater la présence d'un mélange de phases sur une gamme de pressions allant de 9,3 GPa dans l'étude de Barnett et al. à 15,7 GPa dans l'étude et Briggs. La présence d'une phase de mélange indique cependant que l'étain se situe sur une frontière d'égalité des enthalpies libres. La pression et la température étant connus, il est possible d'expliquer ce mélange par la variation du volume du système comprimé. Il serait alors intéressant d'ajouter une troisième dimension au diagramme de phase pour prendre en compte la variation du volume ou du volume spécifique.

Il est aussi possible de se demander quel serait le critère de détermination du changement de phase à savoir l'apparition du premier germe de la phase γ ou l'atteinte d'un certain pourcentage de transformation. Les conditions d'hydrostasticité lors des diverses compressions ont une grande influence sur la détection des changements de phase : l'application d'une pression non-homogène sur tout l'échantillon peut induire des erreurs sur l'identification de la phase.

L'influence du facteur temporel de la transformation est aussi à prendre en compte (vitesse de sollicitation et temps d'application de la pression). La transition étant du premier ordre du fait de la discontinuité des paramètres observés, la phase de mélange ne peut être observée que sur une frontière. La transformation peut alors être rapide dans le cas d'une transformation dispersive ou lente dans le cas diffusif. Dans l'étude bibliographique, celle-ci est considérée comme "lente", ce qui pourrait induire la présence d'une phase de germination croissance.

La présence d'une phase métastable est aussi envisageable en considérant un phénomène d'hystérésis, un retard à la transformation pourrait alors être identifié. Il est fort probable qu'un phénomène d'hystérésis apparaisse avec une amplitude variant selon des vitesses de sollicitation comme l'explique Rambert et al. Cette hystérésis peut elle aussi ne pas être symétrique de sorte que la frontière réelle ne soit pas à mi-chemin entre les deux transitions. Le rassemblement des mesures des paramètres de maille de part et d'autre de la transformation est présenté dans la figure I.3. La discontinuité des paramètres de maille observée confirme une transition du premier ordre.



Noir : volume, Rouge : a, Bleu : c

FIGURE I.3 – Evolution des paramètres cristallins lors de la transition β - γ d'après [9][10][11][12][18][19]

L'importante diminution du volume est portée par la forte réduction du paramètre a . On remarque alors que le rapport c/a augmente fortement lors de la transition pour tendre vers la valeur 1 en se rapprochant d'une maille cubique atteinte aux environs de 40 GPa. Le caractère diffusif ou displacif de la transformation n'est pas connu. Ce type de transformation pourrait être caractérisé par diffraction X en étudiant la figure de diffraction de la phase γ . En effet, une transformation displacive impliquerait une relation d'orientation et un nombre limité de figures possible de la phase fille à partir d'un monocristal de la phase mère tandis que l'on pourrait s'attendre à des germes d'orientation aléatoire dans le cadre d'une transformation diffusive. Une exploration plus poussée de cette transition pourrait être envisagée afin de déterminer la frontière en pression-température et un éventuel domaine de coexistence dans le plan (P, V, T) . La prise en compte du facteur temporel pourrait être un élément clef qui pourrait directement être comparé à la sollicitation sous choc.

La prise en compte des défauts présents dans le matériau pourrait également grandement influencer la transition. On peut par exemple citer la présence d'impuretés déformant la maille cristalline, la densité des dislocations mais également la présence de joints de grains. La présence d'impuretés pourraient par exemple favoriser une transition en constituant un site favorable à la germination de la nouvelle phase. Il est également connu que la présence de joints de grains freine la propagation des dislocations a sein du matériau. Cet ensemble de paramètres pourrait être également pris en compte pour caractériser la transformation.

Point triple

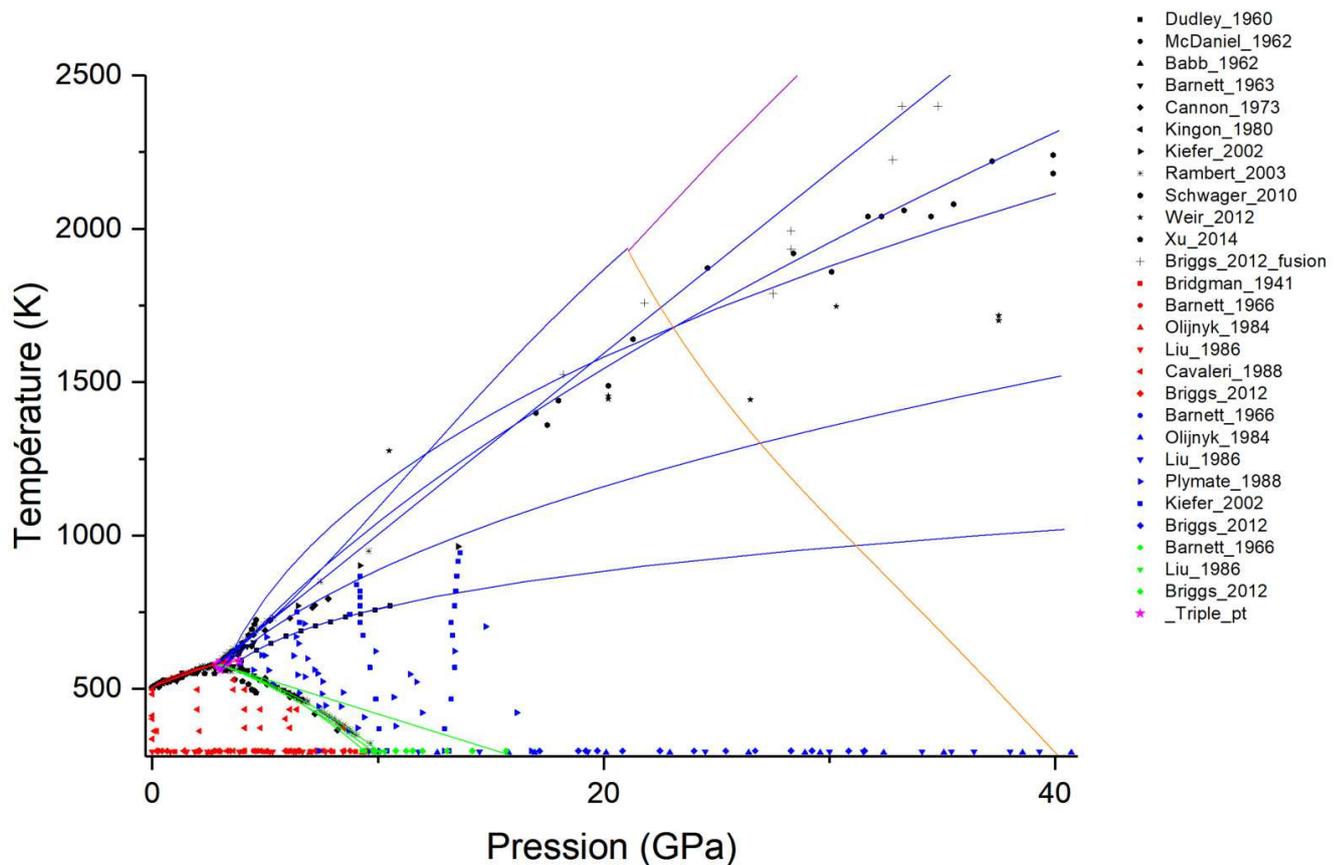
Les valeurs du point triple déterminés pour les phases β - γ -liquide sont reportées dans la table I.4. Les valeurs de ce point sont proches de 580 K et 3 GPa. On remarque une disparité plus importante sur les valeurs de pression que sur la température, cela pouvant être traduit par une plus grande difficulté à déterminer la pression au sein du matériau. La valeur de température obtenue par Xu et al. semble être inférieure à la tendance générale, la pression restant cohérente avec les autres valeurs. Au contraire, les données de Barnett et al. ainsi que de Dudley et al. ont une température et une pression supérieure à la tendance. La majorité des mesures sont les valeurs reportées par Kingon et al. qui concordent avec celles déterminées dans des études plus récentes de Tonkov et al. ou Briggs et al. Le point triple étant à la jonction entre trois phases, il est intéressant de comparer sa position en regard des trois frontières. On remarque ainsi que les valeurs proposées par Briggs et al., Barnett et al. ainsi que celles répertoriées par Kingon sont les plus proches de l'intersection des trois frontières avec des coordonnées avoisinant 3,3 GPa et 580K.

Frontières de transition empiriques proposées

Les frontières empiriques proposées pour le diagramme de phase sont présentées en figure I.4.

- Liquidus β : la faible dispersion des mesures effectuées sur cette frontière ont permis d'établir des régressions équivalentes. Seule la régression proposée par Dudley et al. diffère pour des pressions intermédiaires voisines de 1 GPa et se prolongeant jusqu'au point triple à une pression supérieure proche de 4 GPa.
- Liquidus γ : les régressions proposées concernant cette frontière sont très éparées tout comme les différentes données expérimentales. Certaines de ces régressions se basent seulement sur des pressions proches du point triple, en effet, parmi les données trouvées antérieures aux années 2010, aucune n'a dépassé 14 GPa. Trois régressions parviennent à approximer les mesures à haute pression. La régression proposée par Kingon et al. est en accord avec les mesures de Briggs. Quant aux régressions proposées par Xu et al. ainsi que Briggs et al., elles parviennent à approcher les mesures de Schwager et al. Les deux jeux de mesures montrant une divergence à des pressions supérieures à 28 GPa. Des mesures supplémentaires permettraient de mieux caractériser cette frontière, en particulier entre 9 et 17 GPa où quasiment aucune donnée n'a pu être récupérée.

- Frontière β - γ : parmi les régressions proposées, celle de Kingon et al. semble ne pas suivre les mesures expérimentales. Malgré une bonne approximation entre le point triple et 5 GPa, la pente s'écarte des mesures expérimentales pour arriver à une pression de transition à température ambiante dépassant 15 GPa. Du mélange β - γ a été observé par Briggs à une pression similaire aussi cette limite pourrait délimiter cette éventuelle phase de mélange. Les deux autres régressions proposées par Plymate et al. ainsi que Molodets et al. semblent mieux représenter la frontière de transition avec respectivement 9,4 et 9,7 GPa à température ambiante. Leur évolution est similaire à partir du point triple à 3 GPa jusqu'à 7 GPa. La grande majorité des mesures de cette frontière ont été effectuées proche du point triple (jusqu'à 6 GPa) et à température ambiante. L'implémentation d'une régression serait favorisée par de nouvelles mesures, en particulier en caractérisant cette frontière sur la gamme 6-10 GPa.



Ligne rouge : liquidus β [2][7][6][23][35], Ligne verte : transition β - γ [23][13][35], Ligne Bleue : liquidus γ [2][23][35][25][22][16][34], les cercles vides bleus correspondent aux données ponctuelles de [16], Ligne Orange : transition γ -bcc [35], Ligne Violette : liquidus bcc [35]

FIGURE I.4 – Diagramme de phase regroupant les données expérimentales (points) ainsi que les frontières proposées (lignes). Les frontières ont été calculées jusqu'à la pression de transition la plus proche pour les études portant sur une partie du domaine. Liquidus β : 0 - 3,3 GPa, liquidus γ : 3,3 - 40 GPa, transition β - γ : jusque 300 K.

I.3 Etude du comportement en chargement dynamique

Le comportement des matériaux en sollicitation dynamique diffère de celui observé en sollicitation quasi statique. En effet, la forte vitesse de déformation et le faible temps de sollicitation vont forcer le matériau à suivre un chemin thermodynamique particulier. Cette sollicitation provoquant une transformation irréversible, seuls les états initial et final sont connus. Il est néanmoins possible, à priori, de connaître l'état final accessible suite à un choc. Ces états peuvent être déterminés par les relations de Rankine-Hugoniot qui relient les variables caractérisant l'état choqué (P , V , E), la vitesse de la matière à cet état et la vitesse de choc.

$$\rho_0 D = \rho(D - u + u_0) \quad (\text{Conservation de la masse}) \quad (\text{I.9})$$

$$P - P_0 = \rho_0 D(u - u_0) \quad (\text{Conservation de la quantité de mouvement}) \quad (\text{I.10})$$

$$E - E_0 = \frac{1}{2}(P + P_0)(V_0 - V) \quad (\text{Conservation de l'énergie}) \quad (\text{I.11})$$

Avec ρ la densité, D la vitesse de l'onde de choc, u la vitesse particulaire, P la pression, E l'énergie et V le volume. L'indice 0 indiquant l'état initial.

A partir de ces équations, des courbes caractéristiques du comportement du matériau peuvent être construites : la courbe d'Hugoniot présente les états accessibles sous choc dans le plan (P - V) tandis que la polaire de choc présente les états accessibles dans le plan (P - u). Au cours d'une sollicitation, le matériau peut subir diverses transitions induisant des modifications de ses propriétés physiques (passage en domaine plastique, changement de phase) et de l'allure de ses courbes caractéristiques. Contrairement aux sollicitations quasi-statiques, un nombre restreint d'états (P , T) est accessible sous choc définissant une droite d'états accessibles $T(P)$ et non pas une surface (courbe d'Hugoniot). La figure I.5 représente schématiquement le domaine d'états atteignables selon le type de sollicitation dynamique en comparaison avec les sollicitations quasi-statiques.

Les états atteints par le matériau vont aussi dépendre de la manière dont ils sont sollicités. Il existe plusieurs moyens de mise en pression du matériau. La détonation d'une charge explosive va permettre de générer une onde de choc directement dans un matériau en contact immédiatement suivie d'un train d'ondes de détente (onde de choc non soutenue). L'utilisation de cette technique va nécessiter l'emploi d'outils de simulation pour évaluer rigoureusement l'état du matériau suite au passage de l'onde de choc.

Le choc par impact de plaques repose sur la mise en vitesse d'un matériau (impacteur) par le biais de la détente d'un gaz sous pression produit par une détonation ou par l'ouverture rapide d'un réservoir pressurisé. L'impacteur va ensuite percuter une cible, engendrant la propagation d'une onde de choc soutenue qui va maintenir la pression au sein du matériau contrairement à la méthode précédente. Les premiers états atteints par le matériau peuvent être facilement déterminés par l'utilisation des relations de Rankine-Hugoniot. Il existe également des codes de calcul permettant une analyse plus poussée de ce type expérience.

Le choc laser va s'appuyer sur l'irradiation d'un matériau par une impulsion laser de forte énergie qui va produire l'ablation d'un plasma. Celui-ci, en se détendant, va créer une onde de choc non soutenue à la surface du matériau et va se propager dans celui-ci. Là encore, des codes de simulations sont nécessaires pour déterminer les états successifs atteints par le matériau.

La compression quasi-isentropique est un moyen de sollicitation par rampe de compression à la frontière entre la sollicitation dynamique et quasi-statique. On peut citer, entre autres, la génération d'une pression magnétique dans un matériau par le biais de hautes puissances pulsées. Cette pression est générée par fort courant électrique traversé par celui-ci induisant des forces de Laplace. Cette mise en pression étant moins abrupte que pour les méthodes précédentes, il est possible de suivre les états atteints par le matériau lors de la mise en pression. On peut donc qualifier ce processus de quasi-isentropique et l'état final ne sera plus situé sur la courbe d'Hugoniot mais sur une courbe isentrope (Figure I.5). Un type d'expérience similaire peut aussi être obtenue par l'utilisation d'un laser réglé spécifiquement. Là encore, des outils adéquats sont nécessaires pour caractériser le chemin suivi par le matériau.

En combinant à la fois une sollicitation quasi-isentropique et un choc, il est alors possible d'explorer tout un domaine dans le diagramme (P, T) (zone verte dans la figure I.5). Un domaine supplémentaire peut être étudié lors de la détente du matériau suite à une sollicitation où le chemin thermodynamique suit là aussi une isentrope même lors de l'application d'un choc à partir de la pression final de sollicitation (zone grise dans la figure I.5).

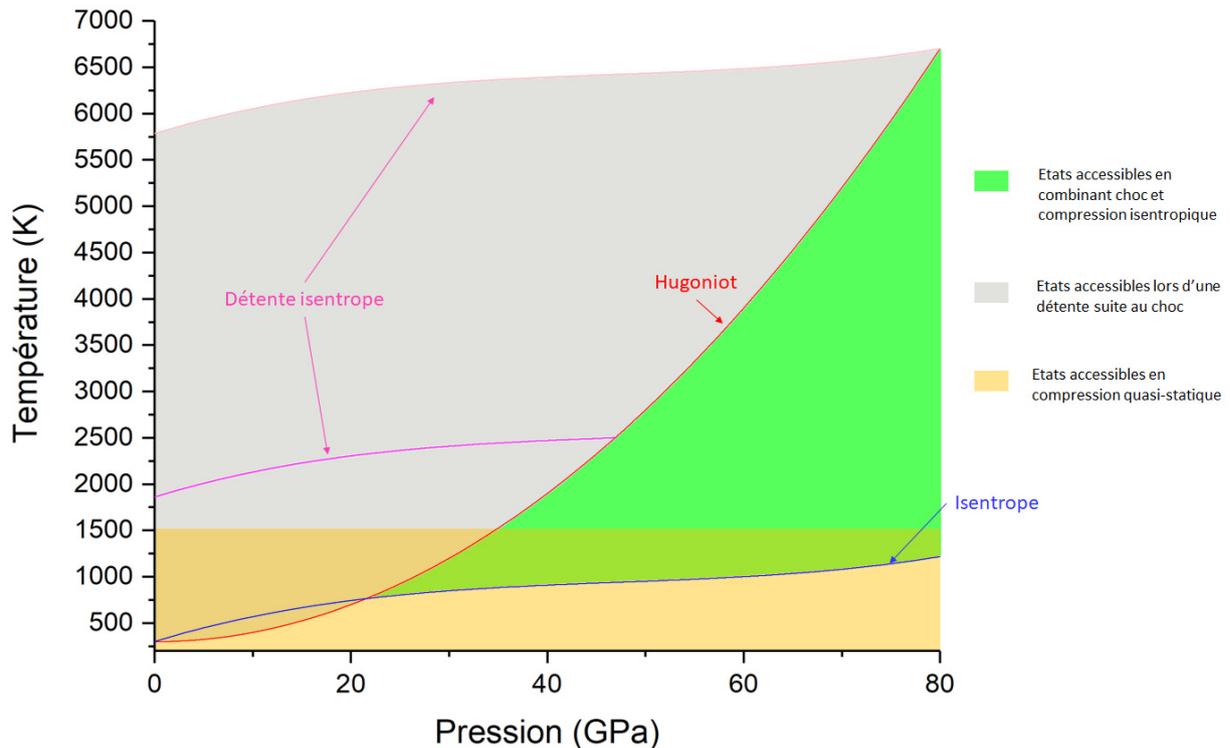


FIGURE I.5 – Schéma récapitulatif des états pouvant être atteints selon la vitesse de sollicitation. Pour rappel seuls les états initiaux et finaux sont connus lors de l'application d'un choc en utilisant la courbe d'Hugoniot contrairement à l'isentrope qui recense tous les états atteints par le matériau. Le chemin suivi par la détente isentrope va dépendre de la pression de sollicitation.

Par ailleurs, dans le cadre d'un changement de phase sous choc, le temps d'application de la pression (choc soutenu ou non) peut varier de la nanoseconde à la centaine de nanosecondes et des effets supplémentaires pourraient être détectés comme un retard de la transition, voire son inhibition ou bien la création d'une phase métastable. Il a été observé lors des études statiques la présence d'une phase de mélange pouvant s'étendre sur plusieurs GPa. La pression de transition est donc elle aussi déterminée dans un intervalle de pression couvrant plusieurs GPa, rendant la détermination du changement de phase sous choc délicate. L'observation du changement de phase peut se faire via l'observation d'une discontinuité d'une propriété physique du matériau. La configuration expérimentale doit être élaborée en conséquence pour permettre l'observation du phénomène étudié. Cependant, pour une bonne détermination du changement de phase, un critère de transition doit être défini. Selon les études et les moyens de mesure, ce critère, s'il est évoqué, peut être différent. Dans ce travail de thèse, l'observation du changement de phase s'effectue au travers d'une anomalie dans le profil de mise en vitesse. Pour s'affranchir du critère de détermination de la pression de changement de phase, celle-ci est donnée dans un intervalle correspondant au début et à la fin de l'observation de l'anomalie lorsque celle-ci est observée.

Les vitesses de sollicitation vont induire des vitesses de déformation qui vont drastiquement varier selon la méthode employée, elles peuvent constituer un facteur influant sur le comportement du matériau, en particulier sur la présence d'une hystérésis à la transformation comme évoqué par Rambert et al.[17] L'implémentation de couches de matériaux supplémentaires (fenêtres enclumes) permettra de prolonger ce temps de sollicitation ou d'atteindre de nouveaux états à travers les phénomènes de transmission et réflexion d'ondes (relations de désadaptation d'impédance).

Il semble donc que l'on puisse discerner deux caractéristiques supplémentaires prépondérantes dans l'étude des matériaux sous choc à savoir le temps et la vitesse de sollicitation. Chacun pourrait avoir un effet particulier sur leur comportement. La table I.7 récapitule les caractéristiques propres de chaque moyen de sollicitation.

Moyen	Pression atteignable	Sollicitation classique	Echelle caractéristique	Vitesse de déformation
Explosifs	qq. dizaines à qq. centaines de GPa	Choc non soutenu	Millimétrique	10^5 s^{-1}
Lanceur de laboratoire	du GPa à qq. centaines de GPa	Choc soutenu	Millimétrique	10^5 s^{-1}
Choc laser	du GPa au millier de GPa	Choc non soutenu	Micrométrique	10^7 s^{-1}
Compression isentropique	du GPa à qq. dizaines de GPa	Rampe de compression	Micrométrique à millimétrique	10^4 s^{-1}

TABLE I.7 – Tableau récapitulatif des spécificités des moyens de sollicitation dynamique

I.3.A Explosifs

Les premières données trouvées sur l'étain font partie d'une base de données établies sur plusieurs matériaux lors d'une même étude. Walsh et al. ont proposé des courbes de compression de vingt-sept matériaux dont l'étain à partir d'une onde de choc générée par un explosif à la surface d'une plaque d'aluminium sur laquelle sont collés plusieurs spécimens identiques. [36] Cinq expériences ont été effectuées sur l'étain entre 170 et 450 kbar (17-45- GPa) en utilisant la technique flash-gap couplée à une caméra à fente pour déterminer les paramètres de choc à travers deux méthodes : analytiquement avec les équations de choc ou graphiquement avec la polaire de choc de l'aluminium. On remarque qu'il existe des différences entre les pressions déterminées via les deux méthodes pour l'étain à partir de 30 GPa. Pour chaque matériau, la construction d'une courbe d'Hugoniot et une équation d'état de type Mie-Grüneisen ont été effectuées. La courbe d'Hugoniot obtenue semble mieux modéliser les résultats obtenus via la méthode graphique aussi seules les données obtenues via cette méthode sont représentées dans les figures I.7 et I.8 à la fin de cette section. Sur cette gamme de pression, il n'est pas mentionné la phase de l'étain en présence. Si l'on se base sur les données en statique, seule la phase γ pourrait être présente.

Une autre base de données a été proposée par le Los Alamos Scientific Laboratory sur un grand nombre de matériaux dont l'étain. [37] Là aussi les propriétés ont été déduites des relations d'impédance à partir d'un matériau connu en contact avec un explosif sur lequel est fixé l'échantillon à étudier, les mesures étant effectuées par la technique flash-gap. Les pressions indiquées s'étendent de la pression ambiante à 165 GPa. Comme évoqué dans la thèse de Mabire [15], on remarque des légères anomalies de pente dans les courbes (D, P), en particulier entre 7 et 10 GPa qui peut traduire un changement entre les phases β et γ . En outre, on peut citer la base de données internet Shock Wave Database rassemblant les données de matériaux sous choc, qui rassemble, entre autres, les données de ce laboratoire mais aussi d'autres études. [38]. Le rassemblement des données est présenté en fin de section dans les figures I.7 et I.8.

Une tentative d'étude de l'étain par diffraction X a été proposée par Morgan et al. sur un dispositif où l'étain est sondé sous choc en contact avec une plaque d'aluminium sollicitée par explosif. [39] Un pulse X de quelques dizaines de nanosecondes est alors utilisé pour analyser la structure d'une mince feuille d'étain à son interface avec du carbone vitreux. En comparant leurs résultats à ceux de Vahveselkä [33], les auteurs concluent à une amorphisation, voire un passage en phase liquide de l'étain. Les pressions de choc calculées pour les deux tirs sont de 17,5 et 19,3 GPa respectivement. Compte tenu de la faible épaisseur de l'échantillon et du caractère non-soutenu de la sollicitation, il pourrait s'agir de la fusion en détente de l'étain avec des pressions résultantes à l'interface de 5,8 et 6,4 GPa respectivement. Il ne semble pas que la fusion soit obtenue directement lors du choc car les valeurs des pressions de fusion sous choc d'autres études sont comprises entre 40 et 50 GPa [15][40] [34].

Gilev et al. ont proposé une mesure de la variation de résistance électrique d'une feuille d'étain placée entre deux plaques de matériau diélectrique sous diverses sollicitations. [41] Un explosif est placé soit directement en contact avec l'un des diélectriques, soit avec une plaque métallique. Celle-ci peut être en contact avec l'un des diélectriques soit projetée dessus (ce dernier cas étant assimilable à un impact de plaques). La mesure de résistance est effectuée par mesure de la tension au sein de l'échantillon sous courant constant, le chauffage induit étant négligé dans les expériences. Trois évolutions de la résistance sont observées : une rapide hausse due au choc (variation de résistance étudiée ici), un plateau augmentant graduellement puis une dernière élévation due à la détente. Les résultats obtenus diffèrent des expériences de mesure de résistance statique et quasi-isentropique. Malgré une forte dispersion des résultats, deux paliers dans la variation de résistance lors du choc sont observés : 4,7 - 5,3 GPa et 8,4 - 9,6 GPa. Le premier n'est pas expliqué car il ne correspond à aucune transformation connue de l'étain contrairement au second qui semble correspondre à la transition β - γ . Une forte augmentation de résistance est aussi détectée lors de la détente pour des chocs à des pressions avoisinant 20 GPa, traduisant un passage en fusion. Plusieurs facteurs peuvent influencer sur la variation de résistance électrique tels que la génération de défauts cristallins et peuvent rendre leur interprétation difficile. La polaire de choc expérimentale est illustrée en figure I.8 en fin de section.

I.3.B Impact de plaques

Des impacts de plaques ont été effectués par McQueen et al. [42] sur 19 matériaux impactés par un projectile accéléré via un explosif. Les mesures de vitesse étaient effectuées avec la technique flash-gap. A partir des données récoltées et des équations de choc, les courbes d'Hugoniot et les polaires de choc ont pu être construites (Figures I.7 et I.8). Une équation d'état a pu être établie pour chaque matériau et les paramètres thermodynamiques d'intérêt calculés aussi bien pendant le choc que la détente dans la gamme de pressions de test. L'étain a été choqué sur des pressions allant de 0,792 à 1,378 mégabar (79,2 - 137,8 GPa) qui dépassent largement le cadre de cette étude, la phase en présence derrière le choc est incertaine de même que les différents calculs théoriques du fait des changements de phases possibles au cours de la sollicitation.

Bien que le matériau connaisse une transformation irréversible jusqu'à son état sous choc, il suit un chemin de détente réversible (isentropique) jusqu'à la pression ambiante. Comme le matériau a subi un chauffage important au passage du choc, son chemin de détente peut alors croiser la courbe de fusion. Le suivi de paramètres physiques pendant cette détente permet donc aussi de déterminer la fusion. Ainsi, Elias et al. ont proposé de déterminer la fusion de l'étain en détente suite à un choc par mesure de réflectivité sur un lanceur à poudre (entre 140 et 324 kbar soit 14,0-32,4 GPa). [43] L'interférométrie Laser Doppler est utilisée à la fois pour déterminer la vitesse en surface libre mais aussi pour détecter la fusion par la variation de la réflectivité de la surface sur deux échantillons sollicités en même temps. Une variation significative de la réflectivité est observée pour une pression de choc estimée à 235 kbar (23,5 GPa), pouvant correspondre à la pression minimale pour engendrer la fusion en détente. Les points obtenus sous choc sont indiqués dans les figures I.7 et I.8.

Anderson et al. ont proposé une étude du changement de phase de l'étain ainsi que de son endommagement par écaillage sous choc par impact de plaques couplé à un diagnostic VISAR et de l'imagerie X. [44] Une marche caractéristique de la transition de phase est observée pour des vitesses de surface entre 0,7 et 0,8 km/s lors du front de montée correspondant à des pressions comprises entre 8 et 9,3 GPa (Table I.10). Les données de choc sont indiquées dans les figures I.7 et I.8. L'écaillage de l'étain est aussi observé sur les signaux de vitesse ainsi qu'avec l'imagerie lorsque celui-ci génère une rupture totale du matériau. Des tests complémentaires ont été menés sous compression quasi-statique. Ils ont permis de mettre en évidence une dépendance du comportement de l'étain à la vitesse de sollicitation : pour de faibles vitesses, le comportement est similaire à celui des métaux déformés par glissement tandis qu'à haute vitesse le comportement semble révéler une déformation due à la fois au glissement et au maillage. Un essai de modélisation d'une EOS est effectué mais ne semble pas donner de résultats probants. La présence non négligeable d'impuretés dans le matériau (1-2%) peut avoir une influence sur son comportement et est à prendre en compte lors de la comparaison avec d'autres études.

La thèse de Mabire s'est portée sur la transformation polymorphique β - γ de l'étain et sur sa fusion sous choc jusqu'à 100 GPa dans le but d'établir une modélisation de son comportement (équation d'état). [15][40] A partir des données expérimentales issues de la bibliographie, une première équation d'état triphasique a pu être construite pour déterminer les configurations expérimentales à tester pour observer les deux transformations d'intérêt. Les résultats alors obtenus sont globalement cohérents avec les données expérimentales à basse pression. La courbe de fusion de la phase β est parfaitement reproduite. Il existe une bonne concordance sur les frontières β - γ et γ -liquide. Celle-ci devient moins bonne à l'approche du point triple calculé dont la position diffère légèrement (3,35 GPa, 590 K au lieu de 2,9 GPa, 581 K). Les courbes de compression isotherme ont été calculées pour les phases β et γ . Les données expérimentales sont reproduites correctement pour la phase β à basse pression mais divergent à l'approche de la transition. Quant à la modélisation de la phase γ , les données semblent mieux reproduire les mesures de Plymate et al. plutôt que Liu et al. Le comportement sous choc a aussi été modélisé à partir des données disponibles. La transition sous choc étant déterminée à 7,6 GPa avec une phase de mélange jusque 9,1 GPa et un dédoublement d'ondes pour des pressions comprises entre 7,6 et 13,5 GPa. La fusion sous choc est déterminée à 49 GPa avec un mélange jusque 58 GPa. Une analyse paramétrique de la modélisation a permis de montrer l'influence de certains paramètres sur les résultats pouvant induire des différences notables selon le type d'équation et la précision des données. 18 chocs par impacts de plaques ont été effectués pour des pressions allant de 12 à 115 GPa avec une mesure VISAR à l'interface entre l'étain et une fenêtre enclume en LiF (Fluorure de Lithium). Les données recueillies sont présentées dans les figures I.7 et I.8. La température du choc est estimée à partir du modèle. Différents phénomènes ont été étudiés et comparés au diagramme de phase statique :

- Limite élastique d'Hugoniot : malgré une forte incertitude due à la mesure VISAR non adaptée aux faibles vitesses, cette limite semble varier avec la pression (0,23-0,32 GPa). A partir des relations d'impédance, elle a pu être calculée pour 3 tirs.
- Transformation β - γ : cette transformation n'est visible que sur une certaine gamme de vitesse d'impact (dédoublement d'ondes). On observe alors un pallier lors de la montée en pression du matériau jusqu'à la pression finale. La pression mesurée et la température correspondante estimée à partir du modèle sont supérieures à celles correspondant à la frontière de phase statique existants (7,6 GPa, 400 K) avec des valeurs comprises entre 9 et 10 GPa, correspondant à un prolongement de l'Hugoniot de la phase β dans le domaine γ . Ces données concordent avec celles obtenues dans les diverses études pouvant révéler un changement de phase gradué selon l'auteur (Table I.10 à la fin de cette section).

- Transformation inverse γ - β en détente : en considérant la propagation des ondes de détente suite à la réflexion des ondes de choc de par la désadaptation d'impédance entre l'impacteur, l'étain et la fenêtre, la pression au sein de l'étain va diminuer en suivant une courbe isentrope pouvant intersecter les frontières de transition. Il est possible de déterminer la pression correspondant à la transition inverse en détente par l'identification d'une anomalie lors de la décélération de la vitesse d'interface. Là aussi, les points de transformation sont décalés par rapport à la frontière statique (température et pression inférieures), faisant penser à un phénomène d'hystérésis.
- Fusion en détente : pour des pressions de choc inférieures à 49 GPa, la phase liquide de l'étain peut être obtenue lors de la détente de la phase γ de la même manière que précédemment, la détente se fait alors à une température supérieure au point triple. On peut alors penser qu'il existe une pression de choc frontière au delà de laquelle la phase en détente n'est plus β mais le liquide. Selon les résultats présentés, cette pression pourrait avoisiner 26 GPa (Essai A6), valeur cohérente avec celle d'Elias et al. de 23,5 GPa. Pour ce phénomène aussi on observe une singularité sur le profil de vitesse en détente similaire à la transition γ - β . Malgré le manque de données expérimentales à haute pression, la comparaison des données obtenues avec le modèle pré-établi semble montrer que l'étain est bien en phase liquide. Les points de transition établis laissent à penser qu'un phénomène d'hystérésis a lieu, en effet, cette frontière semble être parallèle à la frontière de référence du modèle.
- Fusion sous choc : des essais ont été dimensionnés pour atteindre l'état de mélange γ -liquide sous choc (49-53 GPa). La concavité de la courbe de détente permet d'affirmer la présence d'une phase mixte liquide- γ sous choc. Les points déterminés lors de la détente semblent suivre la courbe de fusion jusqu'à fusion complète avant d'en diverger. Il est possible de se demander si ce phénomène aussi pourrait se produire pour d'autres changements de phase en détente, en particulier la transition β - γ .
- Choc en phase liquide : des essais à très haute pression ont été effectués pour étudier l'étain suite à une fusion complète sous choc (96 et 115 GPa), les points mesurés en détente restant dans la phase liquide. Les profils de vitesse ne semblent pas contenir d'indice de changement de phase au cours de l'essai.

Les nouvelles données collectées ont été comparées au modèle d'équation d'état précédemment établi. Concernant la transition β - γ sur les profils de vitesse, le pallier de la transformation semble correctement reproduit après l'ajout d'un terme de retard pour simuler le phénomène d'hystérésis observé. Le profil de détente possède une correspondance moindre pouvant être traduit par une cinétique de transformation inverse différente. Concernant le passage en fusion en détente, l'anomalie observée sur les courbes de vitesse n'est pas parfaitement reproduite. La différence réside dans le fait que dans la simulation, la détente suit la frontière durant la phase de mélange alors que les points expérimentaux ne se situent pas sur cette frontière. Le profil de vitesse concernant la fusion sous choc est plutôt bien reproduit. Les légères variations pouvant être expliquées par une différence entre la frontière réelle et celle modélisée expérimentalement par le manque de données, ou par une cinétique de transformation à améliorer. Quant aux résultats sur le comportement de l'étain liquide, ils sont en accord avec la simulation.

En parallèle, Hérel et al. ont proposé une étude de la température sous choc par l'utilisation d'un pyromètre optique couplé à un VISAR afin de mesurer la température d'interface entre l'étain et une fenêtre enclume transparente en LiF. [45] Les principales difficultés étant l'estimation de l'émissivité du matériau étudié et la prise en compte des diverses conceptions thermiques à l'interface. La potentielle influence de la colle utilisée pour assembler la cible ainsi que la présence d'une couche émissive a aussi été étudiée. La mesure ici ne permet de déterminer la température à l'interface que sous un état de détente partielle. Même si les pressions sortent du cadre de l'étude (38 - 55 GPa), l'auteur présente une méthode possible pour mesurer la température sous choc. Sous les hypothèses d'étude, les températures déduites semblent cohérentes avec le modèle de Mabit aux incertitudes près.

Une méthode de mesure de la vitesse du son à partir d'une mesure VISAR a été proposée par Hu et al. afin de détecter le changement de phase γ -bcc ainsi que la fusion sous choc entre 25 et 80 GPa. [46] Grâce à un impacteur en étain, les mesures peuvent directement sonder l'état sous choc. Les mesures de vitesses du son longitudinale (C_l) et en volume (C_b) à partir des données de vélocimétrie ont permis de détecter les transformations polymorphiques (anomalie dans la mesure de C_l) et la fusion (C_l tend vers C_b du fait de la perte de résistance au cisaillement). La polaire de choc expérimentale est illustrée en figure I.8. La transition β - γ est détectée autour de 7 GPa et la transition γ -bcc à environ 35 GPa. La fusion directe, quant à elle, étant détectée à 45 GPa. Cette étude a été complétée par une deuxième avec des données supplémentaires. [34] Les transitions sont alors évaluées à environ 7,34 et 39 GPa respectivement pour la transition β - γ , γ -bcc et la fusion sous choc. Une zone de mélange solide-liquide est pressentie entre 39 et environ 70 GPa où une transition graduelle de la vitesse du son longitudinale vers la vitesse du son en volume est observée. Les auteurs proposent une courbe d'Hugoniot à partir de l'estimation de la température sous choc ainsi qu'une équation de Simon à partir des données de Kiefer pour la fusion (Table I.5). L'extrapolation de cette courbe semble correspondre aux résultats de transition sous choc de l'étude bien qu'une différence notable soit observée avec les transitions issues d'autres études.

Une autre expérience d'étude de l'étain sous choc par mesure de la vitesse du son a été proposée par Zhernokletov et al. entre 5 et 150 GPa. [47] Deux méthodes de mesures sont utilisées selon la pression de choc : jauges piézorésistives manganin lors d'une sollicitation par explosif (5 - 30 GPa) et luminescence d'un indicateur liquide⁵ lors d'une sollicitation par impact de plaques (30 - 150 GPa). Contrairement à l'indicateur liquide, les jauges manganin permettent de suivre l'évolution des vitesses longitudinales (C_l) et bulk (C_b) de l'échantillon. Une anomalie dans l'évolution des vitesses a permis de conclure à un changement de phase β - γ autour de 10 GPa. Une forte disparité des résultats est ensuite observée entre 31 et 48 GPa (méthode optique) même si des profils associés à une phase solide sont détectés jusque 63 GPa, ce phénomène est apparenté à une transition graduelle de la phase γ vers bcc. La fusion avec une phase de mélange est proposée s'étalant de 60 à 90 GPa sous choc. La polaire de choc expérimentale est présentée en figure I.8.

L'implémentation d'une mesure de température de l'étain par pyromètre sous choc couplé à de la vélocimétrie a été proposée par Chauvin et al. pour observer les transformations de l'étain. [48] Le problème majeur de la mesure de la température par pyrométrie réside dans l'estimation de l'émissivité de la surface considérée et de sa variation lors des transformations afin de calculer la température. Les mesures sont effectuées à l'interface entre l'étain et une fenêtre enclume transparente (LiF), sur une couche émissive de graphite (forte émissivité et bon transfert de chaleur avec l'étain). La transition β - γ n'est pas visible dans le profil de température lors de la mise en pression sur les deux tirs effectués à 12 et 9,1 GPa. La transition est observée sur les mesures de vitesse à 9,1 GPa pour le premier tir mais pas pour le deuxième. Cependant, on observe bien une hausse de la température avec le choc, suivie par un plateau correspondant au plateau de pression. Il est possible de penser que la température mesurée lors du deuxième tir à 9,1 GPa pourrait approcher la température de transition du premier tir. Le profil de température permet cependant de mettre en exergue la transition inverse lors de la détente pour les deux tirs. Une expérience de choc à plus haut niveau (44 GPa) a permis d'observer la fusion complète en détente par l'identification d'anomalies à la fois sur la courbe de vélocimétrie et de température. Une bonne correspondance est observée entre les résultats expérimentaux et les simulations, celle-ci est moindre lors de la transition inverse.

5. Le passage de l'onde de choc dans le liquide va provoquer une luminescence qui est captée par des photodiodes.

La fusion sous choc de l'étain poreux a aussi été étudiée par Song et al. dans une configuration de "reverse impact". [49] La porosité d'un matériau va favoriser un échauffement plus important sous choc et ainsi potentiellement diminuer la pression de fusion. La mesure des vitesses du son en volume et longitudinale a permis de détecter le début de la fusion. Pour des porosités de 1,01 et 1,02, les pressions de début de fusion ont été estimées autour de 50 GPa (49,1 et 45,6 GPa respectivement). Ces résultats étant très supérieurs à ceux déjà obtenus, des expériences sur étain massif ont été effectuées. Une pression de 58,1 GPa en a été déduite pour le début de fusion et 68 GPa pour la fusion complète. Les auteurs expliquent cette différence par la possible transition vers une nouvelle phase inconnue aux alentours de 40 GPa lors des précédentes études.

I.3.C Choc laser

La compression de l'étain par choc laser couplé à la diffraction X (ADXRD) a été étudiée. Lazicki et al. ont mené une étude entre 120 et 1200 GPa afin d'observer les différentes phases à haute pression [50]. Un chemin thermodynamique particulier a dû être suivi pour éviter la fusion de l'étain et observer sur état solide à plus haute pression (rampe de pression, multichoc). L'estimation de la température reste incertaine et semble comprise entre l'Hugoniot et l'isentropie. Sur toute la gamme de pressions considérées, le matériau semble conserver sa phase bcc contrairement à l'apparition d'une phase hcp attendue à haute pression. Les pressions considérées dépassent largement le cadre de cette étude.

Une étude plus particulière sur la transition β - γ a été menée par Briggs et al. sous choc laser avec diffraction X (ADXRD) à l'ESRF⁶. [51] Une feuille d'étain en contact avec un matériau enclume est illuminée à l'interface avec celui-ci, générant une onde de choc. Plusieurs états à des pressions différentes ont pu être sondés. Les échantillons présentant de gros cristaux, les figures de diffraction obtenues sont intermédiaires entre celles de monocristaux et de poudre (plusieurs taches de diffraction réparties autour de cercles correspondant à ceux de la poudre). La diffraction étant effectuée en transmission, tout l'échantillon est sondé. La figure de diffraction va donc rassembler des informations sur tous les états présents au sein du matériau. A partir de simulations, il est néanmoins possible d'estimer l'évolution temporelle de la pression. Les pressions ont été déterminées à partir des paramètres de maille issues de données de diffraction. Au cours de la compression, de nouveaux points sont apparus correspondant à la phase β comprimée (position correspondant aux cercles de β) témoignant d'une réorganisation cristalline dans des domaines plus petits mais sans former des cercles de diffraction complets. A plus haute pression, des points très élargis, semblables à des arcs de cercle sont observés à l'endroit attendu pour la phase γ . Selon les auteurs, la large variation de volume va entraîner une réduction de la taille des grains et provoquer une figure de diffraction proche de celle de la poudre. Les cercles n'étant pas complets, il semble qu'une texture⁷ demeure cependant au sein du matériau. Le décalage du rayonnement X par rapport au pulse laser a permis de sonder le matériau en détente à travers plusieurs essais et d'observer la disparition de la phase γ . La phase γ est observée en compression à partir de 10 GPa et jusqu'à 7,1 GPa en détente, les deux valeurs étant en décalage par rapport aux frontières statiques (de 2 GPa en compression et de 1 GPa en détente). Un effet de la cinétique de transition pourrait expliquer un retard de l'apparition de la phase par rapport à la sollicitation. Ces données sont cohérentes avec celles déjà observées par d'autres méthodes de mesure.

6. European Synchrotron Radiation Facility

7. La texture correspond à une subdivision du matériau en sous domaines d'orientation très proche, voisine de quelques degrés.

I.3.D Compression isentropique

Davis et al. ont proposé une expérience de compression quasi-isentropique (rampe de pression étalée sur plusieurs centaines de nanosecondes) axée sur la transition β - γ effectuée sur la machine Z (Sandia National Laboratories) par le biais de hautes puissances pulsées (HPP). [52] Le trajet thermodynamique suivi permet de suivre l'évolution des caractéristiques du matériau au cours de la compression et d'identifier les frontières entre phases. Différentes configurations cristallographiques ont été utilisées : petits grains (40-50 μm), gros grains (300-1000 μm), étain resolidifié à partir du liquide et monocristaux (100) avec des températures initiales différentes (Table I.8). L'analyse des simulations, couplées aux signaux de vitesse VISAR a permis de déterminer les points (P,T) de la transition. Les résultats obtenus sont proches de la frontière statique, avec un dépassement et une hystérésis moins prononcés qu'en choc. La plus faible vitesse de déformation et le plus grands temps d'application de la pression pourraient expliquer ce phénomène. Cependant certains résultats souffrent d'une grande incertitude due à des difficultés expérimentales. Par ailleurs, il semble que les résultats soient grandement affectés par la nature de la fenêtre enclume utilisée.

Matériau	T ₀ (K)	P (GPa)	T (K)
Petits grains	300	8,29	381
(100)	330	7,88	414
(100)	340	7,5	423
Gros grains	410	5,80	792
(100)	455	5,11	541
(100)	463	4,60	544
(100)	480	4,63	560
(100)	492	4,93	579
(100)	320	9,52	414
Gros grains	325	8,45	419
(100)	339	7,88	426
(100)	375	6,88	461
(100)	377	8,36	478
(100)	467	4,73	547
Resolidifié	485	6,68	597
(100)	490	5,80	590
Resolidifié	495	4,42	576
Resolidifié	500	6,18	609

TABLE I.8 – Valeurs de pression-température mesurées pour la transition β - γ obtenus dans l'étude de Davis et al.

La polyvalence des hautes puissances pulsées peut être illustrée à travers l'étude de Seagle et al. [53] qui ont pu étudier le comportement de l'étain lors de l'application d'une compression isentropique suite à l'application d'un choc à un choc, ceci via la mise en forme du courant parcourant les électrodes. Le choc initial a permis de comprimer l'étain jusqu'à la phase liquide étudiée, la compression postérieure permettant d'étudier le liquide lors d'une compression quasi-isentropique afin d'en obtenir des données permettant d'améliorer son équation d'état. La pression initiale de 65 GPa sort largement du cadre de cette étude.

I.3.E Etudes portant sur la modélisation sous sollicitation dynamique

Des études ont été menées pour modéliser spécifiquement le comportement de l'étain sous choc. Molodets et al. ont proposé l'application d'un modèle thermodynamique semi-empirique pour l'étain liquide et solide (β , γ , bcc) jusque 120 GPa et 7000 K. [35] A partir des données bibliographiques, une Hugoniot et un diagramme de phase ont été construits pour les quatre phases étudiées. Les résultats du diagramme de phase diffèrent en dessous de 7 GPa (position du point triple) mais semblent correspondre au delà. Ainsi en combinant les résultats expérimentaux et la modélisation, une régression polynomiale est proposée concernant le diagramme de phase (Table I.6). Une courbe d'Hugoniot prenant en compte les changements de phase est aussi proposée mais en première observation, la fusion sous choc semble être surestimée (environ 70 GPa) comparée aux données de Mabire (49 GPa) dans le diagramme P, T.

Bernard et al. ont utilisé des codes de dynamique moléculaire pour modéliser la courbe de fusion de l'étain et son Hugoniot. [16] La fusion a été calculée à 0, 10, 20 et 40 GPa, les résultats concordent avec les mesures expérimentales. Une étude approfondie a été portée sur la modélisation de l'Hugoniot jusqu'à 200 GPa à la fois dans le repère (P, V) et (P, T). La comparaison avec d'autres résultats donne un accord satisfaisant en (P, V) bien qu'une divergence est observée en (P, T). En effet, la simulation ne prend pas en compte le changement de phase β - γ induisant certaines différences à basse pression (<50 GPa) même si la tendance globale reste satisfaisante. La comparaison devient difficile au delà de 100 GPa du fait du manque de données expérimentales. Une divergence est alors observée entre les EOS et la simulation.

Une autre étude portant sur la modélisation d'un monocristal d'étain sous choc par dynamique moléculaire a été proposée par Soulard et al. [54] Un potentiel MEAM est utilisé pour simuler un échantillon et observer le changement de phase β - γ ainsi que la fusion. Malgré les difficultés inhérentes à la dynamique moléculaire⁸, les résultats sont cohérents avec ceux obtenus par des calculs hydrodynamiques. Le comportement de monocristaux parfaits de diverses orientations est étudié ((100), (001), (110) et (111)). La courbe d'Hugoniot calculée pour chaque orientation suit une tendance similaire à celle des résultats expérimentaux (Figures I.7 et I.8) même si un décalage est observé avec une transition solide-solide observée à 8,44 GPa et la fusion à environ 50 GPa. Une analyse du voisinage des atomes a permis de proposer une structure cristallographique dans une configuration sous choc comprenant une structure à deux ondes. L'arrangement atomique derrière la première onde (palier à 7,5 GPa) laisse à penser que la phase β comprimée uniaxialement dans la direction de choc est présente. Suite à la deuxième onde de choc, trois phases en présence sont pressenties : une phase β comprimée uniaxialement ($\sim 18\%$), une phase β comprimée de manière isotrope ($\sim 70\%$) et une phase γ ($\sim 8\%$) elle aussi comprimée de manière isotrope. Le temps de transformation ayant été estimé à quelques dizaines de picosecondes. L'analyse de la structure de la phase γ révèle une géométrie cubique (cubique centré) plutôt que tétragonale (tétragonal centré) sachant que cette dernière phase est très proche de la phase bcc avec un rapport c/a avoisinant 1 comme vu précédemment. La simulation des figures de diffraction 1D a permis de comparer les résultats avec les données expérimentales, en particulier concernant la phase γ en bon accord avec les données de Briggs et al. [51]

8. La nécessité de simuler de larges échantillons sur un temps long est limitée par la puissance et le temps de calcul disponible. Par ailleurs, le matériau simulé peut ne pas être représentatif de la réalité en particulier concernant l'absence de défauts en son sein.

Une autre étude menée par Robert et al. [55] a proposé la modélisation multiphase de l'étain afin de l'appliquer dans un code de simulation hydrodynamique. A partir des données expérimentales disponibles les différents éléments participant à cette modélisation ont pu être construits. Une équation d'état a été obtenue à partir de la construction d'une base de données regroupant des données thermodynamiques d'intérêt pour chaque phase considérée (β , γ et liquide) et leurs interconnexions via des transitions de phase. Une loi de comportement élastoplastique a également été construite et ajustée pour chaque phase étudiée. A ces deux premiers éléments s'ajoute l'élaboration d'un modèle d'endommagement propre à chacune des phases. Des simulations ont ensuite été menées afin d'évaluer la capacité du modèle à reproduire divers comportements sous choc que ce soit en présence d'un solide, d'un liquide ou d'une phase de mélange menant à une bonne concordance avec les mesures expérimentales.

I.3.F Récapitulatif des points de transition

I.3.F.a Limite élastique d'Hugoniot

P_{choc} (GPa)	HEL (GPa)	Imp.	Ref.
12,3	0,23	Pl.	[15]
14,1	0,19	Pl.	[15]
17,9	0,32	Pl.	[15]

Exp. : Explosif, Pl. : Impact de plaques, Ls. : Choc laser, Is. : Compression isentropique

TABLE I.9 – Valeurs de la limite élastique d'Hugoniot pour les différentes études

I.3.F.b Transition β - γ

P_{choc} (GPa)	P_{trans} (GPa)	T_{trans} (K)	Imp.	Ref.
Transition directe				
N.C.	7 - 10	N.C.	Exp.	[38]
12,3	9,1	426	Pl.	[15]
12,3	9,3	430	Pl.	[15]
14,1	10,1	444	Pl.	[15]
10,58	8 - 9,3*	N.C.	Pl.	[44]
10,71	8 - 9,3*	N.C.	Pl.	[44]
10,96	8 - 9,3*	N.C.	Pl.	[44]
N.C.	8,29	381	Is.	[52]
N.C.	\sim 7	N.C.	Pl.	[34]
N.C.	\sim 10	N.C.	Pl.	[47]
N.C.	8,4 - 9,6	N.C.	Exp.	[41]
12	9,1	\sim 390	Pl.	[48]
13,7	10	N.C.	Ls.	[51]
Transition inverse				
12,3	7,8	362	Pl.	[15]
12,3	7,8	366	Pl.	[15]
14,1	6,96	389	Pl.	[15]
17,9	5,8	435	Pl.	[15]
13,7	7,1	N.C.	Ls.	[51]

* Valeurs calculées à partir des données disponibles

Exp. : Explosif, Pl. : Impact de plaques, Ls. : Choc laser, Is. : Compression isentropique

TABLE I.10 – Points de transition β - γ sous choc pour les différentes études

I.3.F.c Fusion

P_{choc} (GPa)	P_{trans} (GPa)	T_{trans} (K)	Imp.	Ref.
Transition directe, + : mélange				
49,5	49,5 ⁺	2366	Pl.	[15]
50,2	50,2 ⁺	2378	Pl.	[15]
52	52 ⁺	2409	Pl.	[15]
55,3	55,3 ⁺	N.C.	Pl.	[45]
55,2	55,2 ⁺	N.C.	Pl.	[45]
54,7	54,7 ⁺	N.C.	Pl.	[45]
N.C.	~ 39	1550	Pl.	[34]
N.C.	~ 60 ⁺	N.C.	Pl.	[47]
N.C.	~ 90	N.C.	Pl.	[47]
58,1	58,1 ⁺	N.C.	Pl.	[49]
68	68	N.C.	Pl.	[49]
Transition inverse				
22,5	N.C.	N.C.	Exp.	[36]
23,5	N.C.	N.C.	Pl.	[43]
33,1	6,15	864	Pl.	[15]
37,1	10	1088	Pl.	[15]
37,8	9,6	1103	Pl.	[15]
40,7	14,1	1314	Pl.	[15]
41,4	14,8	1358	Pl.	[15]
45,2	25,8	1757	Pl.	[15]
47,8	33,5	1997	Pl.	[15]
N.C.	20	N.C.	Exp.	[41]
44	19,9	1606	Pl.	[48]

Exp. : Explosif, Pl. : Impact de plaques, Ls. : Choc laser, Is. : Compression isentropique

TABLE I.11 – Points de fusion sous choc pour les différentes études

I.3.F.d Analyse des résultats

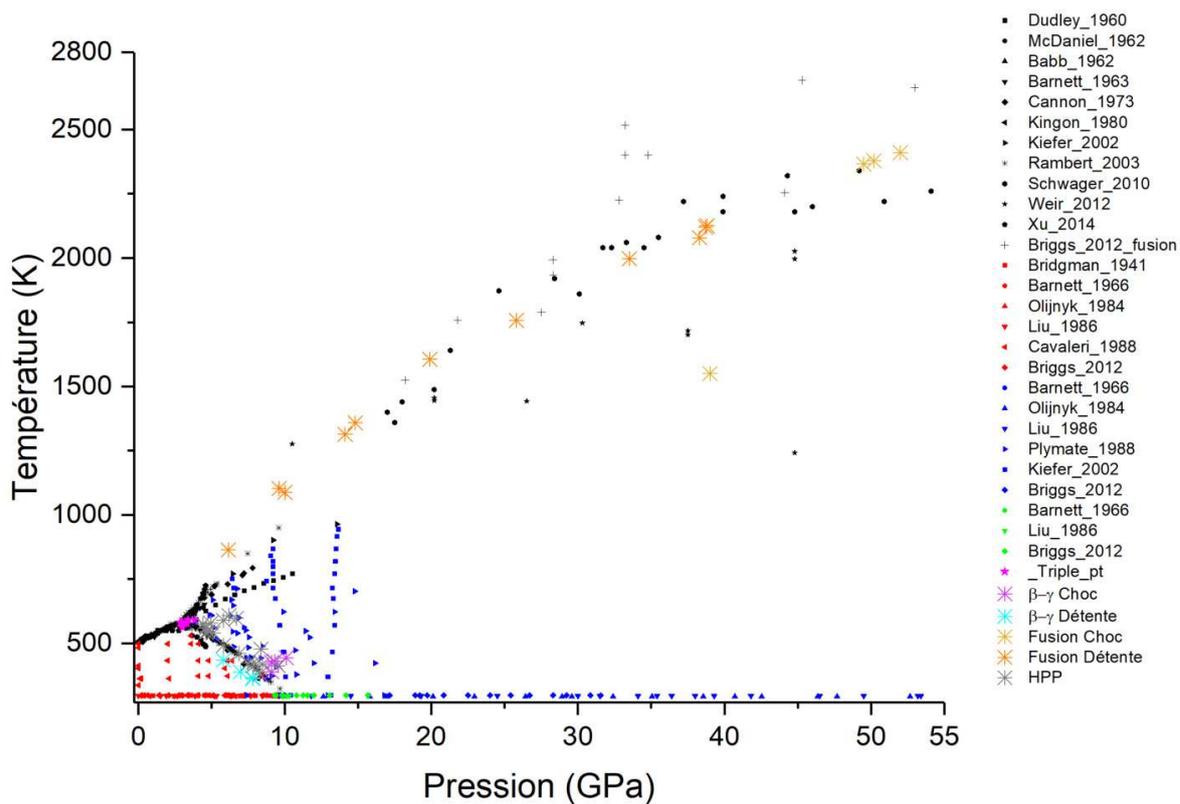
- Limite élastique d'Hugoniot (HEL) : seules les données présentes dans l'étude de Mabire présentent des valeurs de HEL avec une valeur moyenne de 0,25 GPa pour des échantillons polycristallins. La faible pression requise pour observer ce phénomène implique des vitesses particulières faibles qui sont plus difficiles à observer lors du traitement de profils de vitesse par interférométrie. On peut s'attendre à ce que cette limite varie fortement en fonction de la microstructure du matériau. Des études internes au CEA Gramat sur des monocristaux ont révélé une influence de l'orientation du monocristal sur la valeur de HEL.
- Transition β - γ sous choc : la pression de transition entre ces deux phases a été déterminée à travers de nombreuses études avec des moyens de sollicitation divers. La détermination de cette pression peut se faire directement sur un seul essai par l'utilisation de l'interférométrie. On observe alors une marche de vitesse en surface de l'échantillon traduisant la variation de vitesse du son accompagnant le changement de phase. La pression correspondante peut alors en être déduite via les équations de choc par exemple. En fonction des dimensions des matériaux, cette marche dans le profil de vitesse ne sera visible que sur une certaine gamme de pressions de choc. En effet, pour des pressions de sollicitation très supérieures à la transition, un seul front de montée est observé malgré l'occurrence du changement de phase. Cette pression peut aussi être déterminée indirectement à travers la variation d'un paramètre physique propre au matériau.

Le changement de phase entraîne alors une discontinuité de ce paramètre. On peut alors déduire un intervalle de pressions encadrant le changement de phase ou alors extrapoler les données pour retrouver ce point de discontinuité. Ces valeurs de pressions sont comprises entre 7 et 10 GPa de manière générale avec une majorité des valeurs avoisinant 9 GPa (Table I.10).

- Transition β - γ en détente : il existe peu d'études mettant en évidence la transition inverse. Là aussi elle peut être observée directement sur un essai ou indirectement à travers des essais successifs à des niveaux de sollicitation différents. Les pressions déterminées varient entre 5,8 et 7,8 GPa selon les études avec la majorité des valeurs se trouvant entre 7 et 7,8 GPa (Table I.10). Ces valeurs peuvent être directement comparées avec les valeurs en pression de transition directe pour les mêmes études. On constate un écart de pression conséquent proche de 2 GPa entre les valeurs de pression de transition directe et inverse indiquant un phénomène d'hystérésis de la transition. Ce phénomène pourrait mettre en évidence la présence d'une phase métastable traduisant un retard à la transformation. Les portions de phase en présence ne peuvent pas non plus être mesurées de sorte qu'il n'est pas possible de savoir si les pressions correspondent à un début ou une fin de transformation.
- Fusion sous choc : la détermination de la fusion sous choc peut être déterminée de deux manières. En effet, il est souvent évoqué la pression de début de fusion traduisant une phase de mélange et la pression de fusion complète. La fusion n'est pas observable sur le profil de mise en vitesse du matériau. Le début de la transition est généralement établie entre 49 et 60 GPa (Table I.11). Seule la valeur indiquée par Hu et al. [34] est très éloignée et ne pourrait pas correspondre à cette transition comme l'explique Briggs [18], les discontinuités observées pouvant correspondre à la transition vers la phase bcc observée dans son étude. La fusion complète a été déterminée pour des pressions de choc de 68 GPa.
- Fusion en détente : la fusion de l'étain en détente ne peut se produire qu'à partir d'une certaine pression de choc seuil. En effet, le chemin thermodynamique suivi en détente doit conserver une température supérieure au point triple pour ne pas repasser en phase solide. Cette pression de choc minimale est estimée aux alentours de 25 GPa. On remarque dans la table I.11 des valeurs de pression de transition inverse supérieures. En effet, logiquement, plus la pression de choc sera élevée, plus le matériau va subir un échauffement important de telle sorte que les états atteints lors du chemin de détente seront différents. Un raisonnement similaire peut être appliqué concernant la transition inverse γ - β . Cependant cette gamme de pressions sera plus restreinte du fait de l'intervalle de pression où la phase γ est présente. En effet, cette phase est détectée pour des pressions voisines de 9 GPa et la fusion en détente semble s'initier pour des pressions supérieures à environ 25 GPa. La transition inverse ne serait donc observable que pour des pressions de choc comprises entre 9 et 25 GPa.
- Comparaison avec les données statiques : certaines études proposent des données de pression-température concernant les points de transition sous choc, il est alors possible de directement les comparer avec les données statiques. Ces données sont rassemblées dans la figure I.6.

Les mesures de fusion sous choc semblent coïncider avec le liquidus obtenu expérimentalement à partir des conditions statiques. On remarque que la mesure de Hu et al. qui différerait des autres semble se situer sur la limite de transition γ -bcc (voire bcc selon les études), la frontière détectée ne correspondrait donc pas à la fusion mais bien à ce changement de phase. Il est donc possible de se demander si pour des pressions de choc situées entre 40 et 50 GPa la transition γ -bcc pourrait être observée avant la fusion pour des pressions supérieures.

Les points de transition β - γ sont plus épars. La transition directe ne permet de déterminer qu'un seul point à partir de l'ambiante là où la transition inverse permet de déterminer plusieurs points selon la pression de choc. On remarque des différences notables entre les vitesses de sollicitation : les points de transition pour de faibles vitesses de sollicitation (compression isentropique) sont de manière générale plus proches de la transition déterminée en régime statique. Le préchauffage de l'échantillon a permis de déterminer plusieurs points de la frontière et pourrait aussi être utilisé sous choc pour faire des expériences similaires. Les points de transition inverse semblent suivre une tendance similaire à la frontière statique avec un décalage en pression mettant en évidence un possible hystérésis de la transition. On remarque cependant que la frontière statique se situe au milieu des limites de transition sous choc.



*Données sous choc.

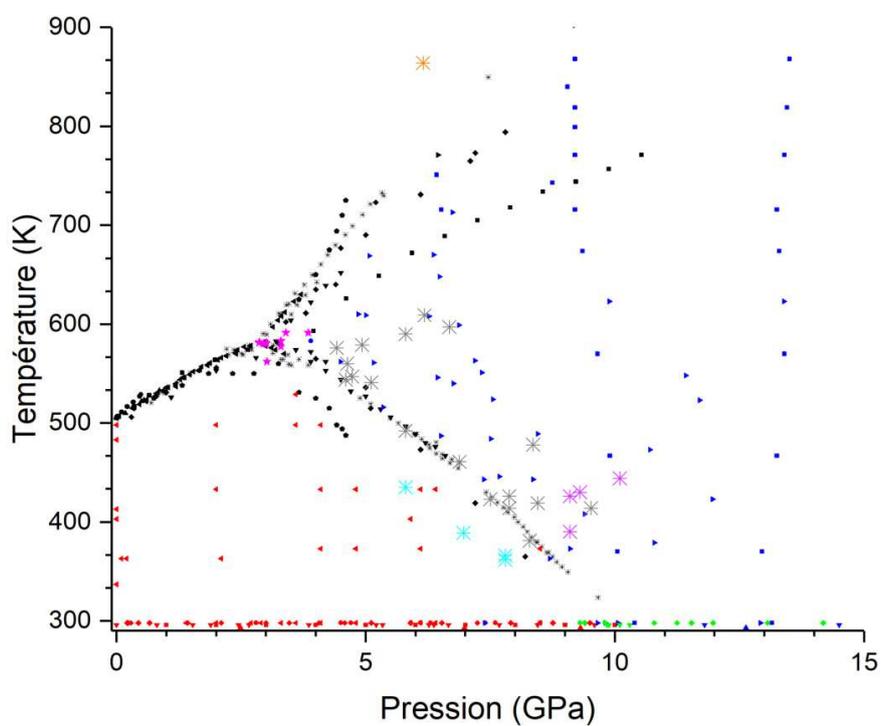


FIGURE I.6 – Comparatif entre les données issues des mesures statiques et la frontière de transition obtenues sous choc (gauche) et zoom sur l'intervalle 0 - 15 GPa (droite)

I.3.G Comportement sous choc

I.3.G.a Courbe d'Hugoniot

La courbe d'Hugoniot rassemble tous les états accessibles sous choc à partir d'un même état de départ. Il est important de noter qu'elle n'indique pas le parcours thermodynamique suivi par l'échantillon, seulement l'état d'arrivée. En effet, la transformation étant un processus irréversible, les états intermédiaires sont inconnus par définition. La courbe d'Hugoniot expérimentale ainsi que des propositions de modélisation à partir des données bibliographiques sont présentées en figure I.7. Les données indiquées par un astérisque ont été retrouvées à partir de calculs théoriques du volume avec la relation $V_0 - V = \frac{u^2}{P}$ [56]. La tendance de la courbe semble se conserver sur toute la gamme de pression malgré les divers changements de phase possibles indiquant une évolution continue du volume spécifique en pression.⁹ En effet, on ne remarque pas de rupture de pente marquée. Seules les données d'Elias et al. semblent diverger en surestimant la pression pour un volume spécifique donné. Cette divergence se retrouve dans la polaire de choc construite seulement à partir des données expérimentales.

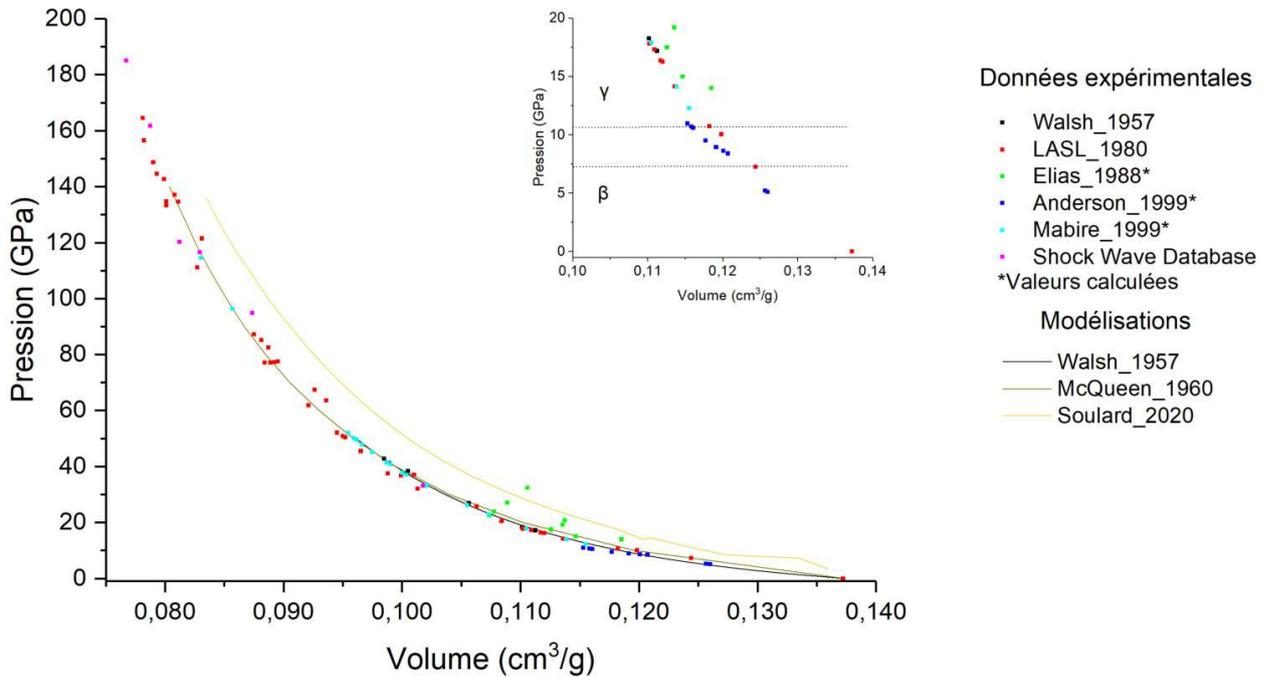


FIGURE I.7 – Graphique récapitulatif des points mesurés permettant de construire la courbe d'Hugoniot ainsi que les modélisations effectuées. L'encart regroupe un zoom sur la zone 0 - 20 GPa avec les lignes en pointillés montrant la zone de transition β - γ .

En s'intéressant à la gamme de pression 0 - 20 GPa (encart), on constate effectivement une légère rupture de pente dans les données d'Anderson et du Los Alamos Scientific Laboratory sur l'intervalle 7 - 11 GPa pouvant correspondre au changement de phase. Seules ces études ont comporté des sollicitations à des pressions inférieures à la transition permettant d'observer ce phénomène.

9. Contrairement au volume de la maille cristalline qui est quasiment divisée par deux lors de la transition β - γ .

La modélisation proposée par McQueen et al. semble correctement reproduire la courbe d'Hugoniot pour des pressions supérieures à 30 GPa, en dessous, celle-ci est légèrement surestimée par rapport aux données expérimentales. En revanche, la modélisation proposée par Walsh semble mieux reproduire les données expérimentales sur toute la gamme de pression pour laquelle elle a été définie. Les données issues de la dynamique moléculaire proposées par Soulard et al. montrent une surestimation de la pression sur toute la gamme de pression à un volume donné.

I.3.G.b Polaire de choc

La polaire de choc est un outil intéressant pour effectuer les calculs sous choc. En effet, cette courbe relie directement la pression au sein du matériau suite au front de choc à sa vitesse particulière. Celle-ci peut-être mesurée expérimentalement par des techniques de vélocimétrie. L'utilisation de plusieurs polaires de choc va permettre de déterminer la pression dans plusieurs matériaux accolés lors du passage d'une onde de choc. L'équation de la polaire de choc est donnée par la deuxième relation de Rankine-Hugoniot :

$$P(u) = \rho_0.D(u).u \quad (\text{I.12})$$

Avec P , la pression de choc, ρ_0 la densité initiale du matériau et D , la vitesse de l'onde de choc.

Celle-ci est en général reliée à la vitesse particulière par la relation empirique suivante :

$$D = C_0 + S.u \quad (\text{I.13})$$

Avec C_0 et S des paramètres caractéristiques du matériau.

On obtient alors :

$$P(u) = \rho_0.S.u^2 + \rho_0.C_0.u \quad (\text{I.14})$$

A partir de la relation précédente, il est possible d'introduire la notion d'impédance de choc $Z_0 = \rho_0.C_0$ correspondant à la pente à l'origine de la polaire de choc.

La connaissance de la polaire de choc de l'étain et de son éventuelle modification au cours de la transition va permettre de calculer la pression en son sein à partir des mesures vélocimétriques. Les données rassemblées sont présentées en figure I.8. Les données indiquées par un astérisque ont été déterminées en utilisant l'approximation de la vitesse de surface libre : $u = u_{SL}/2$.

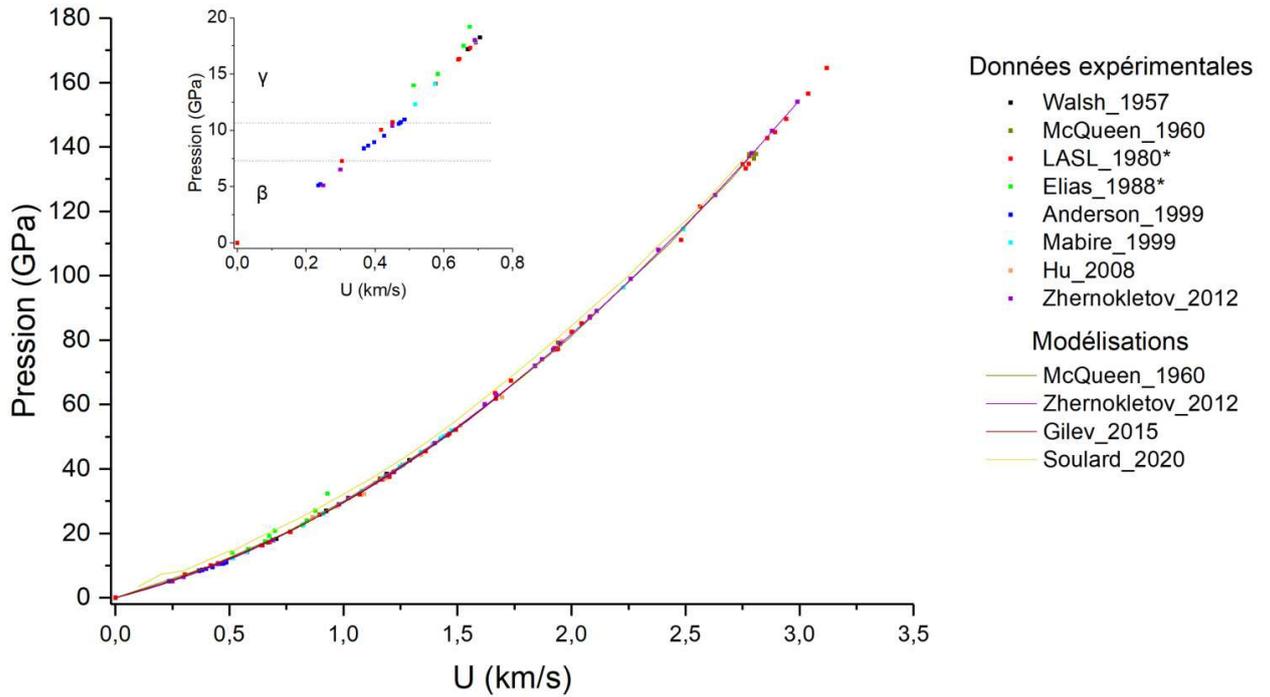


FIGURE I.8 – Graphique récapitulatif des points mesurés permettant de construire la polaire de choc et les modélisations effectuées. L'encart regroupe un zoom sur la zone 0 - 20 GPa avec les lignes en pointillés montrant la zone de transition β - γ .

Comme précédemment pour la courbe d'Hugoniot, on n'observe pas de rupture majeure de pente mais une tendance continue sur toute la gamme de pression. Là aussi les données d'Elias et al. diffèrent des autres résultats. En s'intéressant à la gamme de pression 0 - 20 GPa. Il semble qu'une rupture de pente apparaisse sur la gamme de pression entre 7 et 11 GPa (encart) correspondant à la transition. Cette pente correspondant à la vitesse de l'onde de choc D , une discontinuité devrait être visible. Les modélisations proposées semblent toutes reproduire les données expérimentales avec des différences négligeables. On retrouve cependant la surestimation de pression des données issues de la dynamique moléculaire par Soulard et al. comme observé précédemment. En effet, cette technique ne simulant que le comportement d'un cristal parfait non représentatif de la réalité, des différences de comportement peuvent être observées.

A partir de l'ensemble des données expérimentales collectées, une régression polynomiale d'ordre 2 a été effectuée sur la polaire de choc. A partir de l'analyse des coefficients polynomiaux, il sera ensuite possible de déduire les données du matériau. Comme il n'est pas observé de rupture majeure dans la tendance de la courbe, une seule régression a été effectuée pour les deux phases en première approche. On obtient l'équation suivante :

$$P = 10,68u^2 + 19,38u = \rho_0.S.u^2 + \rho_0.C_0.u \quad (\text{I.15})$$

En considérant une densité $\rho_0 = 7,29 \text{ g/cm}^3$, on retrouve une valeur de C_0 de 2,66 km/s et une valeur de S à 1,47. Ces valeurs sont proches de celles indiquées pour l'étain. [56]

I.3.G.c Vitesse de l'onde de choc

Seules trois études répertorient l'évolution de la vitesse de l'onde de choc avec la vitesse particulaire. Pour rappel, ces deux vitesses sont reliées par la relation $D = C_0 + S.u$. La graphe récapitulatif des résultats expérimentaux et théoriques est présenté en figure I.9.

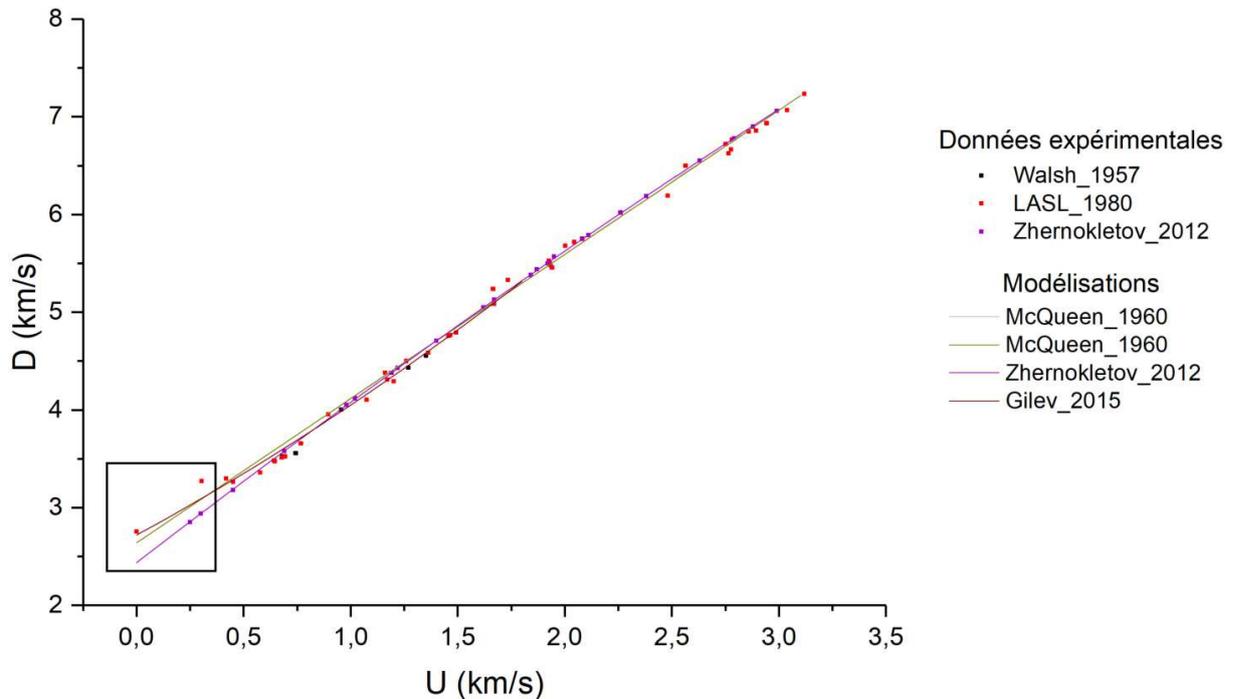


FIGURE I.9 – Graphique récapitulatif des vitesses d'onde de choc mesurées et les modélisations effectuées. Le cadre noir correspond au domaine d'existence de la phase β .

On observe clairement une anomalie dans le profil de D sur les données fournies par le Las Alamos Scientific Laboratory avec un plateau de vitesse d'onde de choc aux environs de 3,3 km/s caractéristique d'un phénomène de changement de phase. [57] Cette anomalie n'est pas observée dans l'étude de Zhernokletov et al. pour des vitesses particulières similaires. Des régressions linéaires ont été effectuées sur les domaines correspondant à des pressions sous la transition (cadre noir dans la figure I.9), seulement deux points ont pu être utilisés dans chaque cas :

- Données LASL : $D = 1,70.u + 2,755$
- Zhernokletov : $D = 1,80.u + 2,400$

La pente de la courbe semblant se conserver, la différence notable réside dans l'estimation de la valeur de C_0 . La valeur communément admise pour l'étain se situant entre 2,6 et 2,8 km/s, la valeur déduite des données de Zhernokletov semble la sous estimer. Cependant, dans leur étude, les valeurs de vitesse du son du matériau massif c_b déduites après choc présentent en effet une discontinuité au niveau de la transition de phase. Cette discontinuité devrait aussi être observée sur la vitesse de l'onde de choc.

Les modélisations proposées par McQueen et al. ainsi que par Gilev et al. proposent un bon compromis pour estimer la vitesse de l'onde de choc en phase β et γ . A l'inverse, la modélisation proposée par Zhernokletov et al. ne permet de retrouver les points expérimentaux qu'à partir d'une vitesse particulière de 0,6 km/s, en effet, les données en phase β ne semblent pas cohérentes avec les valeurs communément admises.

I.3.H Hypothèse de relation d'orientation entre les phases β et γ

Le mouvement des atomes lors d'un changement de phase peut être de type diffusif. Les atomes vont alors migrer au sein du matériau pour constituer la nouvelle phase sous forme de germes qui vont croître, prenant peu à peu la place la phase initiale pour peu que les conditions soient énergétiquement favorables à leur croissance (taille critique qui germe). Cette transformation plutôt lente peut donc engendrer une multitude de germes d'orientation différente, sans lien particulier que ce soit entre eux ou avec la phase mère.

Un autre mécanisme de changement de phase, dit displacif, peut aussi engendrer le passage d'une phase à une autre. Dans ce cas, le mouvement des atomes va alors être très limité et se fera au sein même de la maille cristalline. La vitesse de transformation peut s'avérer beaucoup plus rapide qu'avec une transformation diffusive. Le mouvement des atomes va être contraint énergétiquement au sein de la maille pour former la nouvelle phase. La position relative des atomes entre les phases mère et filles peut donc être connue de sorte qu'il est possible d'établir une relation d'orientation entre les axes cristallins des deux phases. Ainsi, l'orientation de certains plans cristallins des phases mères et filles peuvent être communs suite au mouvement des atomes. L'orientation d'un monocristal de la phase fille peut donc être supposée à partir d'un monocristal de la phase mère. Une dégénérescence de l'orientation de la phase fille peut se produire à cause de la multiplicité des plans communs avec la phase mère, engendrant un nombre d'orientations possibles connu. Ainsi, en utilisant la diffraction X, il serait possible d'observer le changement d'orientation d'un monocristal de la phase mère vers le ou les monocristaux de la phase fille à travers l'analyse des figures de diffraction.

Cette étude porte sur la transition β - γ de l'étain. Les indices obtenus lors des études statiques semblent indiquer une transition diffusive. Cependant, aucune information expérimentale n'a pu être trouvée dans la bibliographie portant explicitement sur la cinétique de transition. Il serait alors également pertinent de considérer l'hypothèse contraire portant sur une transformation displacive, en particulier dans le régime de choc pour des temps de sollicitations très brefs. Des études théoriques se sont portées sur les mécanismes probables de transformation entre ces deux phases.

Katzke et al. [58] ont proposé les mécanismes de transition probables entre les phases des éléments du groupe IV (colonne 14). En effet, de manière générale, les structures cristallines haute pression des éléments légers de ce groupe correspondent aux structures à plus basse pression des éléments les plus lourds. Par exemple ici, la phase cubique face centrées du carbone haute pression est aussi celle adoptée par le silicium, le germanium et l'étain à basse pression. On remarque aussi que ces trois derniers éléments connaissent une transition de cette phase cubique faces centrées vers la structure β de l'étain. Cela permet de faire des hypothèses sur des phases non encore explorées à haute pression des éléments.

Le mécanisme proposé entre les phases β et γ repose sur la translation des atomes selon l'axe c_β :

- Atomes en $(0,0,0)$: translation de $+\frac{c}{8}$
- Atomes en $(\frac{1}{2}, 0, \frac{1}{4})$: translation de $+\frac{3}{8}c$
- Atomes en $(0, \frac{1}{2}, \frac{3}{4})$: translation de $-\frac{c}{8}$
- Atomes en $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})$: translation de $-\frac{3}{8}c$

Par simplicité, il est possible de remplacer ces mouvements par des translations de $\pm\frac{c}{4}$ ou $\frac{c}{2}$ (Figure I.10).

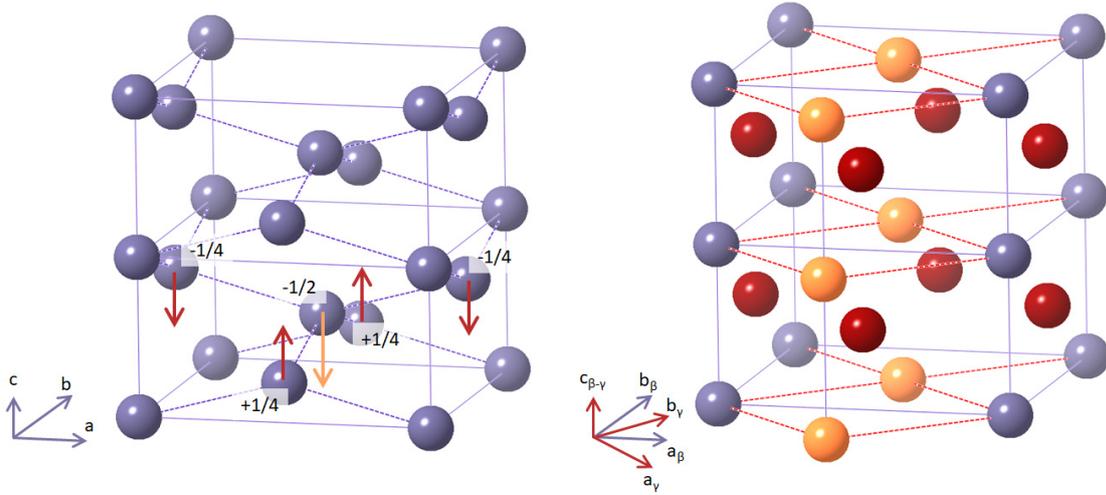


FIGURE I.10 – Relation d'orientation proposée par Katzke et al.

Les plan $\{110\}_\beta$ deviennent les plans $\{100\}_\gamma$ et la direction $[110]_\beta$ devient la direction $[010]_\gamma$, l'axe $[001]$ restant commun aux deux phases. Il est possible de calculer géométriquement les nouveaux paramètres de maille pouvant être obtenus :

$$\begin{aligned}
 a_{\gamma.th} &= a_\beta \cdot \frac{\sqrt{2}}{2} \approx 4,1\text{\AA} \quad \text{avec} \quad a_\beta \approx 5,8\text{\AA} \\
 c_{\gamma.th} &= c_\beta \approx 3,2\text{\AA} \\
 a_{\gamma.exp} &\approx 3,7\text{\AA} \\
 c_{\gamma.exp} &\approx 3,4\text{\AA}
 \end{aligned}$$

Paramètres de maille de la phase γ à partir des données extraites de la Table I.1

Un modèle de dynamique moléculaire a été construit par Mukherjee et al. [59] pour déterminer la phase la plus stable sur une isotherme à 300 K jusqu'à 400 GPa, son Hugoniot jusqu'à 380 GPa et sa courbe de fusion. La proche énergie trouvée entre les phases γ et hcp pour la transition depuis β a nécessité l'analyse du déplacement des atomes lors d'une transformation displacive conduisant sur la plus grande facilité pour former la phase γ avec des mouvements similaires à ceux proposés par Katzke et al.

Si cette relation d'orientation a effectivement lieu, la figure de diffraction du monocristal β (110) devrait donner naissance à une figure de diffraction d'un monocristal γ (100). Il en va de même pour la figure de diffraction d'un monocristal β engendrant une figure d'un monocristal (110) de la phase γ . Ces deux orientations seront donc privilégiées lors des expériences sous choc.

I.4 Bilan de l'étude bibliographique

Les différentes données recueillies pour le régime statique ont permis d'établir un diagramme de phase de l'étain sur la gamme de pression d'intérêt pour cette étude. Les nombreuses techniques utilisées ont permis de mettre en évidence les différentes zones d'existence des phases, les différentes frontières de transition et d'observer l'évolution de paramètres physiques d'intérêt de l'étain. Concernant la transition de phase β - γ qui nous intéresse plus particulièrement, il existe peu de données caractérisant la frontière en température, la majorité des études ayant été faites à température ambiante. Pour ces conditions, des incertitudes demeurent toujours quant à la détermination précise du changement de phase majoritairement observée entre 9 et 10 GPa. La présence d'une phase de mélange observée sur plusieurs GPa est étonnante, en effet, on pourrait s'attendre à observer une stagnation de la pression lors de la compression jusqu'à ce que la transition complète soit atteinte. Ce phénomène pourrait être expliqué en ajoutant une troisième dimension au diagramme de phase (Figure I.11) correspondant au volume (ou au volume spécifique). Les données obtenues par diffraction X ont permis de suivre l'évolution des paramètres cristallins au cours de la transition et de mettre en évidence le changement entre les structures double bct et bct entre β et γ . Aucune expérience n'a encore permis de confirmer les hypothèses présentes dans la bibliographie. La cinétique de transition doit encore être approfondie, en particulier le caractère diffusif ou displacif induisant une évolution temporelle différente qui pourrait être comparée à la vitesse de sollicitation sous choc. Plusieurs propositions de frontière de transition ont été présentées pour construire le diagramme de phase. Cependant, le manque de données expérimentales concernant la transition β - γ ou les phases à haute pression ne permet pas de faire ressortir une frontière franche. Sur la base de ces données, des modèles ont aussi pu être établis que ce soit à partir de calculs hydrodynamiques où de dynamique moléculaire.

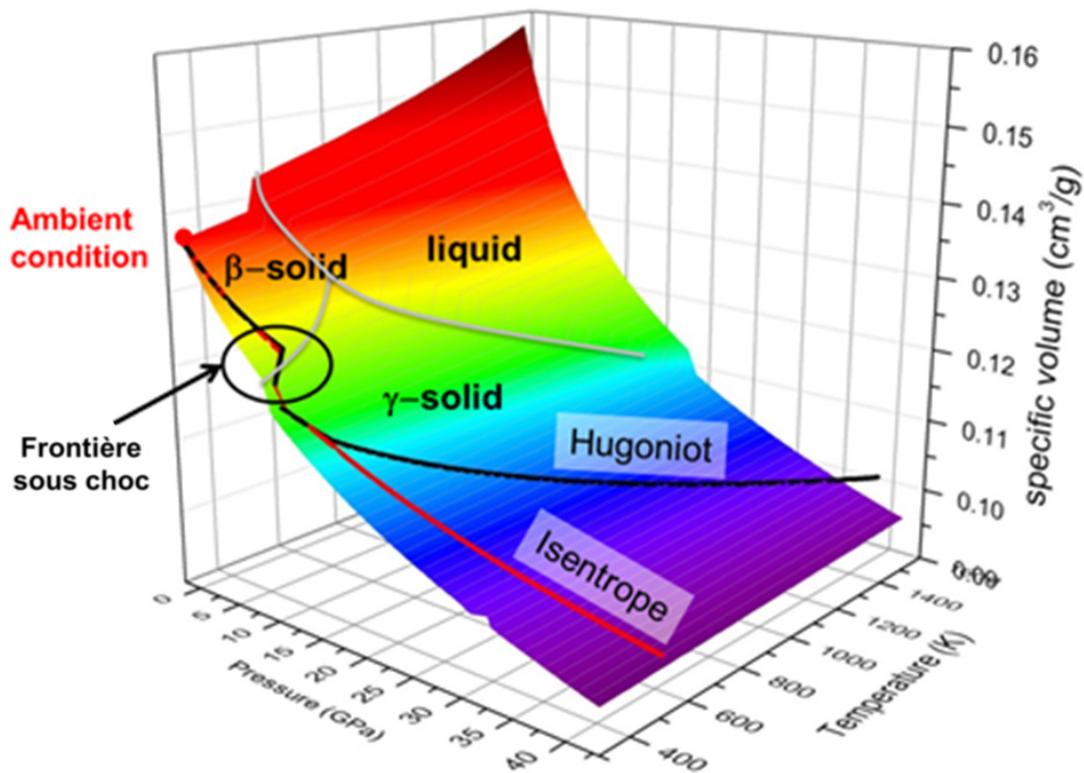


FIGURE I.11 – Exemple de diagramme de phase en trois dimensions concernant l'étain

La caractérisation dynamique de l'étain a permis de mettre en évidence certaines différences de comportement par rapport au régime statique. La forte contrainte temporelle de ce type d'expériences nécessite l'utilisation d'un matériel de mesure adéquat. L'ensemble des états finaux possibles sous choc étant situés sur la courbe d'Hugoniot, il n'est pas possible de parcourir les frontières de transition sur leur totalité. Le préchauffage de l'échantillon pourrait permettre de traverser la frontière à des températures différentes et de la caractériser en température. Les transitions en détente sont plus facilement accessibles à partir d'un seul état initial en faisant varier la pression de choc. La pression de transition β - γ est supérieure à celle normalement attendue d'après le diagramme de phase avec un écart pouvant approcher 2 GPa. On observe alors un changement de phase pour des pressions majoritairement comprises entre 9 et 10 GPa. La transition inverse montre aussi un décalage de pression opposé avec une transition située entre 7 et 8 GPa. La frontière statique semble donc se placer au milieu de ces deux frontières. Les courbes caractéristiques du comportement de l'étain, à savoir sa courbe d'Hugoniot et sa polaire de choc, présentent un changement d'allure lors du passage de la transition. Cependant elle est peu marquée de sorte qu'il semble cohérent de pouvoir déterminer la pression de choc de l'étain à partir d'une seule polaire de choc commune aux deux phases.

A travers l'analyse de ces résultats, il est possible d'identifier de nombreux facteurs pouvant influencer le changement de phase :

- Présence de défauts : comme évoqué dans l'étude du chargement quasi-statique, la présence de défauts (par exemple les impuretés, la présence de dislocations ou de joints de grains) peut jouer un rôle prépondérant pouvant éventuellement favoriser la formation d'une nouvelle phase. Une caractérisation de ces défauts et une étude sur leur influence pourrait mettre en évidence des différences que ce soit en chargement statique ou dynamique.
- La prise en compte du facteur temporel : l'influence du temps peut être considéré au niveau de la vitesse de sollicitation mais aussi au niveau du temps d'application de la pression. Ce phénomène pourrait engendrer un phénomène d'hystérésis avec la présence d'une phase métastable. Si la transition est considérée comme lente, le temps d'application de la pression pourrait ne pas permettre une transformation complète voire pas de transformation. Si la transformation a effectivement lieu, le mécanisme impliqué pourrait lui aussi différer selon le régime utilisé.
- La détermination de la transition : si l'observation du changement de phase peut se faire aisément par la présence d'une brusque variation d'un paramètre physique, la détermination des paramètres correspondants à cette transition nécessite l'utilisation d'un critère de changement de phase. Celui-ci peut ne pas être le même selon les études et peut donc engendrer une incertitude à la transformation. Cette incertitude s'ajoute bien évidemment à celle de la mesure qui peut varier selon les techniques employées. Enfin, certaines techniques ne sont peut être pas révélatrices de l'état réel dans le matériau.
- Direction de sollicitation : lors d'un chargement dynamique, la contrainte subie par le matériau est uniaxiale, engendrant une forte déformation plastique de celui-ci par l'application d'un cisaillement. Au contraire, lors d'un chargement statique, un soin est apporté pour maintenir des conditions hydrostatiques. Il est possible de se demander si ce type de déformation peut influencer sur la transition de phase.

La synthèse bibliographique réalisée montre que la transition β - γ de l'étain doit encore être approfondie aussi bien en régime dynamique qu'en régime statique afin de mieux caractériser la cinétique de transition ainsi que les mécanismes impliqués. Il sera utile de caractériser cette transition à la fois en régime statique mais aussi dynamique pour mettre en évidence les différences de comportement propres au type de sollicitation. La frontière entre régime statique et dynamique n'est pas stricte et il est plus judicieux de s'intéresser à la vitesse de sollicitation imposée au matériau. L'implémentation de la diffraction X sous choc est une technique particulièrement adaptée pour sonder l'état au matériau au niveau cristallographique et étudier son évolution au cours de la sollicitation que ce soit par la modification de la microstructure ou bien par un changement de phase. L'amélioration continue des générateurs de rayonnement X a permis le développement de sources suffisamment brèves et intenses adaptés aux contraintes temporelles de choc que ce soit au sein de grandes installations (synchrotron) ou bien à l'échelle du laboratoire avec des sources plus compactes.

Chapitre II

Moyens expérimentaux utilisés

Il existe plusieurs techniques permettant de mettre en œuvre la diffraction X sous choc, parmi elles, il est possible de citer l'utilisation d'un rayonnement synchrotron, l'utilisation de lampes flash ou bien l'illumination d'un matériau source excité par un laser. Il sera ensuite nécessaire de coupler ces sources à un moyen permettant de mettre sous pression le matériau. Selon la gamme de pression et la vitesse de sollicitation visée, des moyens seront plus adaptés que d'autres : impacts de plaques via des lanceurs à gaz simple ou double étage ou à poudre, choc laser, compression quasi-isentropique.

II.1 Moyens utilisés au CEA Gramat

Le CEA Gramat est doté de moyens expérimentaux permettant de produire des chargements dynamiques par choc ou par rampe. Il possède aussi une forte expérience dans la mise en œuvre de moyens de hautes puissances pulsées. Parmi eux a été développée une source de rayonnement X dont les caractéristiques sont adéquates pour effectuer de la diffraction X sous choc. Des développements ont été menés afin de pouvoir coupler cette source avec un moyen de contrainte par choc.

II.1.A Lanceur Pyrène

Le moyen de mise en pression utilisé dans ce cadre de cette étude est le lanceur Pyrène. [60] Ce lanceur à gaz simple étage utilise la détente d'un gaz moteur, l'hélium préalablement comprimé dans un réservoir. Son tube de diamètre 32 mm est capable d'accélérer des projectiles jusqu'à une vitesse de 750 m/s pour une pression de réservoir de 200 bars. Lors de la mise en pression, le tube de lancement est isolé du réservoir via une vanne rapide. Celle-ci assure l'étanchéité par le biais d'un piston plaqué en sortie du réservoir par du gaz à haute pression. Lors du tir, l'éjection de ce gaz va permettre de libérer ce piston et d'injecter le gaz moteur dans le tube afin de propulser le projectile. Le tube lanceur est lui-même tenu sous vide, de l'ordre de 10^{-2} mbar afin d'éviter la formation d'un coussin d'air entre l'impacteur et la cible. Le projectile est constitué d'un sabot en PVC (Figure II.1) sur lequel est collé l'impacteur. Le sabot est lui-même équipé d'une collerette à l'arrière permettant aussi une étanchéité partielle. On constate ainsi une différence de pression de plusieurs ordres de grandeurs qu'il est primordial de conserver au cours du remplissage du réservoir. Le lanceur est piloté via un boîtier de commande déporté. La planéité de l'impact (tilt) est un élément capital pour s'assurer de la qualité du choc et la génération d'un front de choc homogène sur toute la largeur de l'échantillon. Cette planéité d'impact, exprimée en milliradians, est généralement reproductible à travers les essais et a été caractérisée lors de campagnes précédentes avec une valeur inférieure à 5 mrad. La mesure de la vitesse d'impact se fait par l'utilisation de fils métalliques isolés du tube lanceur. Lors du passage du projectile, ceux-ci sont sectionnés et mis en court circuit avec le métal du tube générant une brève impulsion. La distance entre les fils étant connue, la vitesse d'impact peut alors en être déduite.



FIGURE II.1 – Lanceur Pyrène (gauche) et photographie des sabots utilisés de diamètre 32 mm (droite) : sabot standard et allégé

II.1.B Générateur X-Pinch

La source de rayonnement X utilisée est un générateur X-Pinch. Ce générateur repose sur l'implosion de fils métalliques croisés formant un X traversés par un fort courant. Ce courant est généré lors de la mise en court-circuit d'un condensateur chargé sous une tension de plusieurs kilovolts. Ce type de source est généralement utilisé dans les expériences dynamiques pour effectuer de la radiographie de phénomènes très brefs. Il existe également des générateurs similaires fonctionnant sur un unique fil : les générateurs X-Pinch hybrides. Cependant, l'implosion du fil générant le rayonnement s'effectue de manière aléatoire le long du fil et serait préjudiciable pour la mise en œuvre de la diffraction X.

II.1.B.a Principe de fonctionnement

Le principe de fonctionnement de ce générateur est donné en figure II.2. Une baie de commande déportée va permettre de piloter la charge du condensateur sous un courant constant afin d'atteindre la tension visée. Une fois le condensateur chargé, la mise en court-circuit est effectuée via un éclateur. Le temps de charge est fixé à 50 s, une fois la tension atteinte, celle-ci est maintenue pendant 10 s où un signal de déclenchement générera un courant à travers la charge. Si aucun déclenchement n'a lieu dans cette fenêtre, la mise en sécurité du dispositif est effectuée via une mise à la terre.

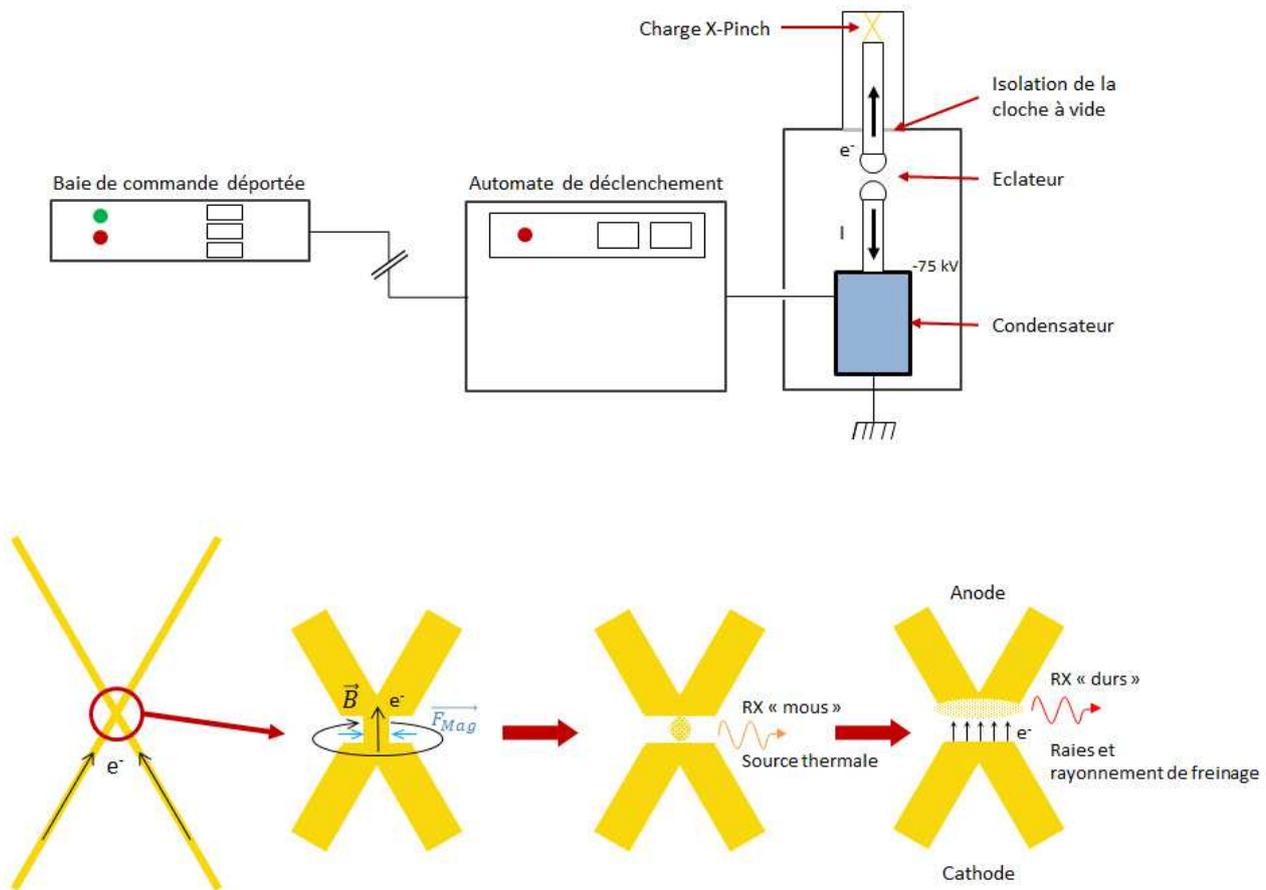


FIGURE II.2 – Principe de fonctionnement du générateur X-Pinch

La charge du X-Pinch est constituée de deux électrodes entre lesquelles sont disposés deux fils métalliques. La nature et le diamètre de ces fils peut-être variable et vont influencer sur les caractéristiques spectrales et temporelles de la source. Lors de la mise en place des fils, ceux-ci sont disposés de manière parallèle l'un de l'autre entre les deux électrodes. Une fois la charge placée dans l'enceinte du X-Pinch, l'électrode supérieure est tournée d'un angle légèrement supérieur à 180° pour s'assurer du bon contact entre les fils, générant la formation du "X". Leur extrémité est ensuite lestée pour achever la mise en place. Un vide inférieur à 9.10^{-5} mbar doit être appliqué avant de pouvoir générer le flash. Il est atteint par l'utilisation d'une pompe turbomoléculaire. Une cloche à vide a été spécialement conçue pour assurer le vide dans l'enceinte tout en permettant la transmission du rayonnement avec un minimum de perte. Des feuilles de mylar d'épaisseur $250 \mu\text{m}$ constituent un bon compromis avec une bonne tenue au vide et une faible absorption du rayonnement dans la gamme spectrale considérée. La source X générée au croisement des fils a la particularité d'être isotrope et polychromatique. Ainsi, il va être possible d'utiliser ce rayonnement sur tout l'angle solide au pourtour des fils. Dans cette étude, une tension de 75 kV est utilisée pour générer le rayonnement aboutissant à une intensité maximale de 300 kA. A travers des campagnes antérieures, les fils d'or de diamètre $25 \mu\text{m}$ ont été choisis pour la diffraction car présentant un fond continu important (numéro atomique élevé) et plusieurs raies d'émission intenses.

Une première caractérisation de la source mettant en évidence la capacité du générateur à effectuer de la diffraction X a été menée par Zucchini et al. [61]. Le processus d'émission des fils suit un déroulement qui a été auparavant caractérisé. Lors de la montée du courant, les fils subissent un chauffage résistif important mais aussi une compression magnétique (forces de Laplace). Il en résulte une forte compression des fils à haute température générant un plasma au bout de quelques nanosecondes. Celui-ci va constituer une première source de rayonnement X intense d'une durée d'une dizaine de nanosecondes. Cette source émet un rayonnement de basse énergie (rayons X "mous"), typiquement inférieure à 10 keV. Elle est généralement utilisée pour l'imagerie mais ne se révèle pas assez énergétique pour effectuer de la diffraction X. Dans les nanosecondes suivantes, alors que la décharge du condensateur continue et que l'intensité du courant croît, le plasma va évoluer et se scinder laissant un gap augmentant localement la résistance électrique permettant une hausse de la tension. Celle-ci va alors pouvoir accélérer les électrons qui vont traverser ce gap et interagir avec un plasma diffus, constituant une seconde source. Elle va générer un rayonnement de freinage (bremsstrahlung) associé à des raies d'émission caractéristiques du matériau. Son intensité est beaucoup moins importante que la première. Les photons générés ont alors une énergie supérieure à 10 keV (rayons X "durs") qui peut, en théorie, s'étendre jusqu'à 75 keV (tension de charge des condensateurs). Ce spectre polychromatique composé d'un fond continu et de raies intenses est adapté à la diffraction X. Il apparaît donc que plusieurs sources se succèdent dans le temps, chacune émettant dans une gamme spectrale particulière. Le temps d'émission complet du rayonnement haute énergie ne semble cependant pas s'étendre au-delà de 100 ns. Des mesures de la taille de source par imagerie de fente semblent indiquer des diamètres de source différentes avec la deuxième source localisée au-dessus de la première et de plus grand diamètre. L'intensité ainsi que le profil d'émission ne semblent pas reproductibles d'un essai à l'autre. Une comparaison quantitative des résultats ne semble donc pas pouvoir être possible.

Afin de mieux dimensionner les paramètres expérimentaux, la caractérisation de la source a été entreprise à travers plusieurs essais. L'intensité ainsi que le profil d'émission n'étant pas reproductibles, il est nécessaire de pouvoir déterminer leur éventuelle influence sur le spectre d'émission et la taille des sources. Les instruments utilisés sont les mêmes que ceux de l'étude de Zucchini et al. [61] où la source étudiée était constituée de fils de molybdène.

II.1.B.b Analyse spectrale

Principe

Le spectromètre utilisé repose sur l'utilisation d'un cristal convexe qui permet d'obtenir le spectre intégré en temps sur une plaque image. Le principe de fonctionnement est illustré en figure II.3

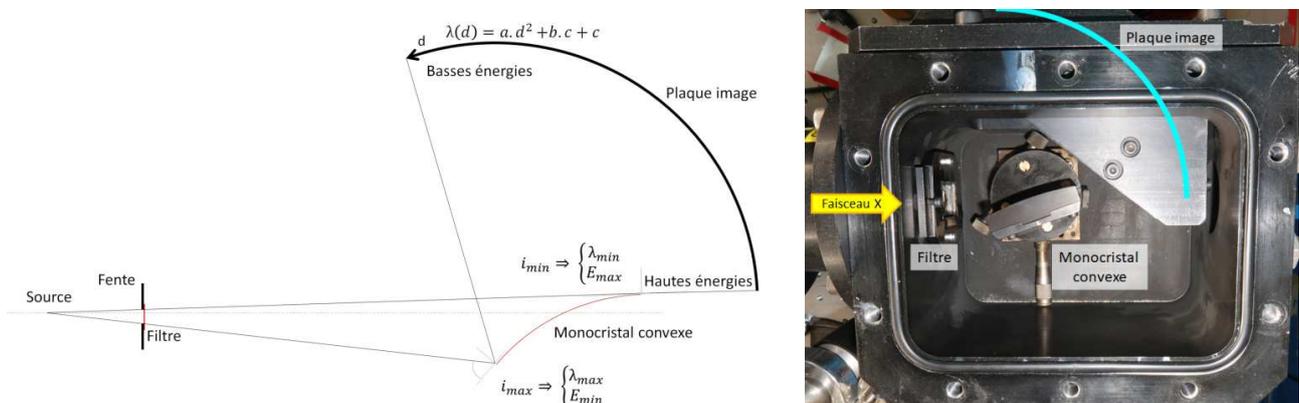


FIGURE II.3 – Principe de fonctionnement du spectromètre (gauche) et photo du spectromètre (droite)

Une source divergente va illuminer un monocristal convexe d'orientation connue. Ainsi, sur toute la longueur du cristal, le plan cristallin de surface est lui aussi convexe. L'angle d'incidence sera différent selon l'endroit illuminé, il va varier de manière continue sur toute la longueur du cristal. En considérant la loi de Bragg appliquée au plan de surface, une seule longueur d'onde sera diffractée pour un unique plan d'incidence. Ainsi, sur toute la longueur du cristal, la longueur d'onde diffractée ne sera pas la même. On va donc obtenir une séparation spatiale des longueurs d'onde diffractées. Le spectre sera collecté sur une plaque image convexe. Selon le type de cristal, ses dimensions et son inclinaison, il va être possible de calculer les longueurs d'ondes détectées sur le spectre à partir d'une mesure de distance par une fonction $\lambda = f(d)$. Cette fonction n'est pas linéaire, aussi on observe une compression du spectre à haute énergie impliquant une perte de résolution. Les plans d'ordre supérieur au plan de surface peuvent aussi participer à la diffraction pour des rayonnements intenses. Ces plans ayant une distance interréticulaire deux fois plus faible, le rayonnement sera alors diffracté à un angle différent.

Dans cette étude, le spectre a été caractérisé à l'aide de deux cristaux : le LiF (200) permettant d'analyser le spectre entre 7 et 35 keV dans la configuration choisie et le Si (111) permettant d'analyser le spectre entre 4 et 12 keV. L'étude s'est portée sur les fils utilisés pour la diffraction X à savoir des fils d'or de 25 μm de diamètre. L'or possède plusieurs raies d'émission dont l'énergie avoisine quelques dizaines de keV (Table II.1). [62] [63] A ces raies doit s'ajouter le rayonnement de freinage ajoutant un fond continu polychromatique au spectre.

Série K

Raie	K_{α_2}	K_{α_1}	$K_{\beta_3} - K_{\beta_1}$	K_{β_2}
λ (Å) [62]	0,185	0,180	0,159	0,155
E (keV) [62]	67,07	68,93	78,04	80,05
E (keV) [63]	66,99	68,80	77,98	N.C.
λ (Å) [63]	0,185	0,180	0,159	N.C.
I	+	++	~	-

Série L

Raie	L_{β_4}	L_{β_3}	L_{γ_2}	L_{γ_3}	L_{η}	L_{β_1}	L_{γ_1}	L_l	L_{β_6}	L_{α_2}	L_{α_1}	L_{β_2}
λ (Å) [62]	1,106	1,107	0,904	0,898	1,203	1,083	0,926	1,460	1,111	1,288	1,276	1,070
E (keV) [62]	11,22	11,21	13,73	13,82	10,31	11,46	13,40	8,50	11,17	9,63	9,72	11,60
E (keV) [63]	N.C.	N.C.	N.C.	N.C.	N.C.	11,44	13,38	N.C.	N.C.	9,63	9,71	11,58
λ (Å) [63]	N.C.	N.C.	N.C.	N.C.	N.C.	1,085	0,927	N.C.	N.C.	1,288	1,278	1,072
I	~	~	-	-	-	+	~	~	-	~	++	~

TABLE II.1 – Récapitulatif des principales raies d'émission K et L de l'or

Le cristal possédant une certaine hauteur, le spectre obtenu sur la plaque image sera en deux dimensions. Les raies du matériau formant des lignes verticales. Un exemple de spectre obtenu avec des fils d'or est présenté en figure II.4.

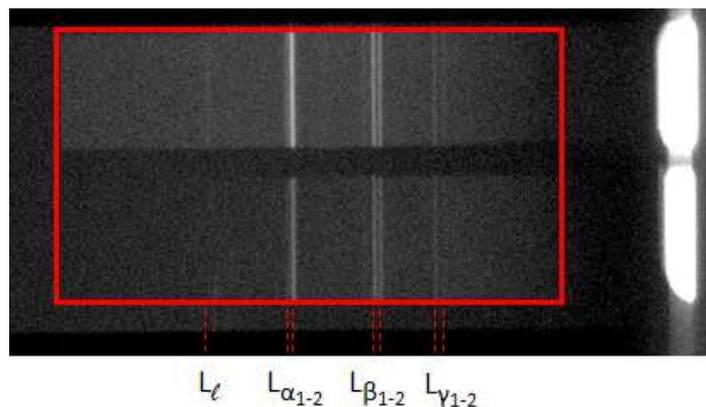


FIGURE II.4 – Exemple de spectre généré par des fils d’or avec un filtre en mylar aluminisé (haut) et aluminium $200 \mu\text{m}$ (bas). Une modification de contraste a été effectuée pour mettre en évidence le fond continu du spectre symbolisé par le rectangle rouge dans l’image.

Un script de traitement développé en interne au CEA Gramat (F. Zucchini) va permettre d’intégrer une zone de cette image en un spectre 1D. Divers facteurs peuvent être pris en compte pour corriger l’intensité issue de la plaque image et calculer l’intensité réelle détectée :

- Réflectivité du cristal : l’efficacité de ré-émission du cristal va être dépendante de la longueur d’onde. A partir d’un fichier de configuration propre au cristal utilisé et à son orientation, il va être possible de corriger les valeurs.
- Filtrage : il est possible d’utiliser des filtres à l’entrée du spectromètre pour isoler certaines parties du spectre. Un filtre n’étant pas parfait, l’atténuation va dépendre de la longueur d’onde sur un intervalle spectral. Il est possible de connaître l’atténuation spectrale d’un filtre en connaissant les matériaux le constituant et leur épaisseur.
- Réponse de la plaque image : la sensibilité de la plaque image n’est pas égale sur toute la gamme spectrale. Par ailleurs, cette sensibilité n’est pas la même selon le type de plaque utilisé. La sensibilité des plaques images en fonction de l’énergie reçue a été caractérisée dans une autre étude (Fujifilm BAS MS). [64]
- Temps de disparition : l’excitation de la plaque image s’estompe avec le temps. Entre l’illumination et la numérisation de la plaque, l’intensité peut alors diminuer et ne sera pas représentative de l’intensité réelle. Cet effet a été caractérisé et devient sensible à partir de quelques minutes suivant l’illumination. [64] Les plaques étant numérisées juste après l’essai (FLA 7000), ce facteur ne sera pas pris en compte ici.

Résultats obtenus

Un filtre en mylar aluminisé dont la transmission à 4 keV avoisine 90% placé en entrée du spectromètre a permis d’étudier le spectre tel qu’il est émis par la source à travers plusieurs essais. Les spectres obtenus suite au traitement avec ce filtre de basse énergie sont présentés dans la figure II.5. L’intensité pouvant varier d’un essai à l’autre, toutes les intensités ont été normalisées à partir de la raie la plus intense correspondant à la raie L_{α_1} de l’or.

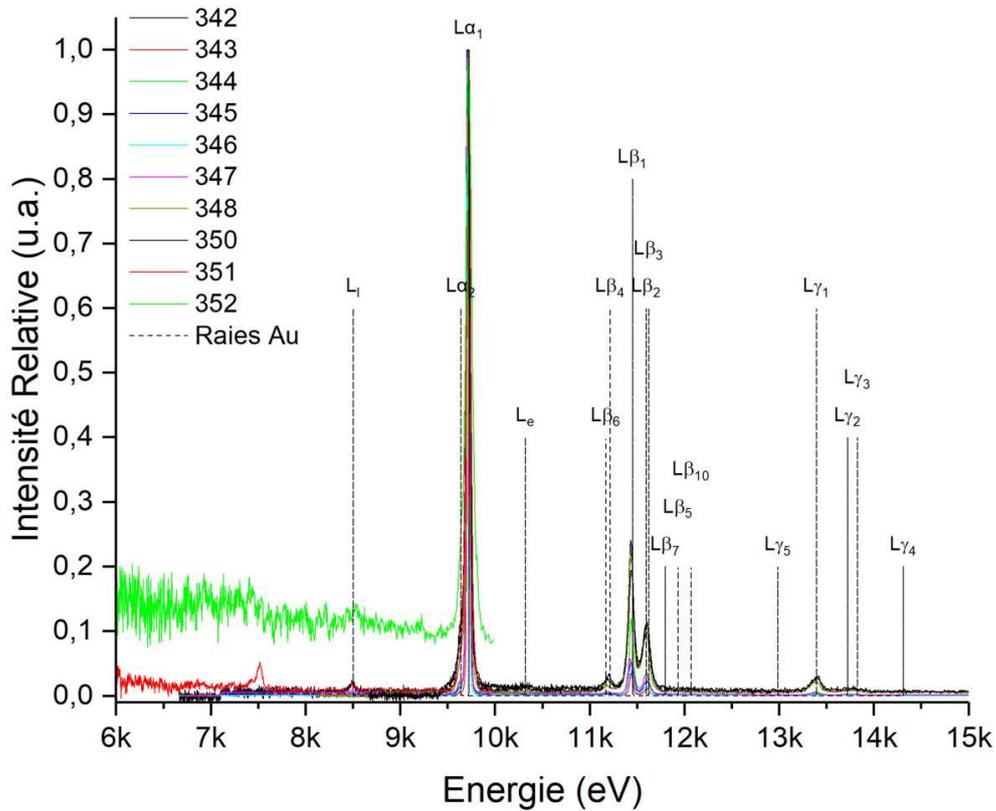


FIGURE II.5 – Spectres obtenus pour le filtre basse énergie. L'intensité relative a été calculée par rapport au pic le plus intense correspondant à la raie L_{α_1} . Les raies théoriques de l'or sont indiquées en pointillés.

On constate que l'intensité du spectre varie en fonction des essais. Le spectre obtenu présente trois raies distinctes intenses correspondant aux raies L_{α} , L_{β_1} et L_{β_2} . Il est parfois possible de discerner des raies beaucoup moins intenses correspondant aux raies L_l , $L_{\beta_{4-6}}$ et L_{γ_1} . On observe que l'intensité relative d'émission des raies L_{β} par rapport à la raie L_{α} peut varier entre les essais. En effet, la raie L_{β_1} voit son intensité relative varier entre 3 et 24% de l'intensité maximale avec une valeur moyenne de 13%. De même, la raie L_{β_2} voit son intensité relative varier entre 1 et 12% avec une valeur moyenne de 6%. L'intensité des raies $L_{\beta_{1-2}}$ ne semble pas conserver le même ratio entre les essais. Les essais 351 et 352 ont été menés pour sonder le spectre à basse énergie. Un pic supplémentaire a été détecté pour une énergie proche de 7,5 keV (essai 351) mais ne correspond à aucune raie de l'or. Du fait de la très faible intensité émise, le spectre de l'essai 352 possède un haut niveau de bruit qui ressort clairement lors du passage en intensité relative. Le fond continu n'est pas distinguable en l'état du fait de sa faible intensité. Le passage en échelle logarithmique a permis de le mettre en évidence, les résultats sont présentés dans la figure II.6.

L'intensité du fond continu est comprise entre 0,05 et 1% de l'intensité de la raie la plus intense. Le brusque front de montée observé à 7 keV correspond au début de la zone illuminée par le cristal, le rayonnement perçu en dessous de cette énergie correspond alors au bruit de fond du détecteur excepté pour les essais 351 et 352. Ce fond continu semble s'atténuer progressivement à partir de 10 keV pour certains essais.

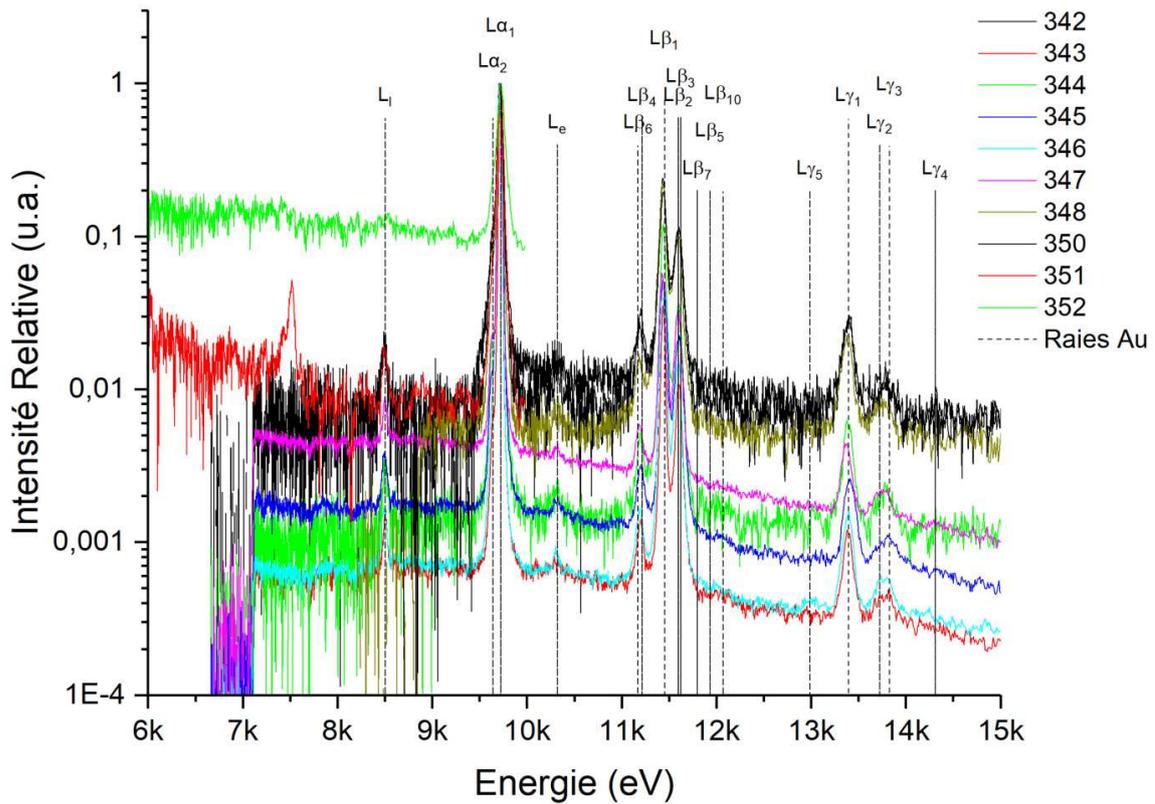


FIGURE II.6 – Spectres obtenus pour les filtres basse énergie de la figure II.5. Une échelle logarithmique a été appliquée pour faire apparaître le fond continu.

Dans les conditions expérimentales, le rayonnement doit traverser deux épaisseurs de matériau avant de pouvoir interagir avec l'échantillon. La charge étant placée sous une cloche à vide, le rayonnement devra tout d'abord traverser sa paroi. Par la suite, ce rayonnement doit traverser un matériau supplémentaire (fenêtre enclume) en contact avec le matériau à étudier avec un angle d'incidence rasant ($10\text{-}20^\circ$). Plus de détails sur la configuration expérimentale sont donnés en II.1.C.a. En considérant la fenêtre de la cloche à vide en mylar d'épaisseur $250\ \mu\text{m}$ ainsi que la fenêtre enclume de carbure de bore d'épaisseur $750\ \mu\text{m}$ dont l'angle d'incidence est compris entre 11 et 18° , une transmission de 10% est inférée pour des énergies comprises entre $7,5\ \text{keV}$ et $8,6\ \text{keV}$ (Annexe A.1). On peut donc considérer que seules les énergies supérieures seront réellement perçues par l'échantillon pour procéder à la diffraction. Un filtre supplémentaire d'aluminium d'épaisseur $200\ \mu\text{m}$ correspondant à ces énergies a été utilisé pour agir sur le spectre et reproduire le rayonnement réellement perçu par l'échantillon. Lors du traitement de l'image, les corrections ont été effectuées seulement pour le cristal et la plaque image. Il est alors possible de comparer les spectres bruts obtenus avec et sans filtration lors d'un même essai. En effet, il est possible de juxtaposer deux filtres en entrée du spectromètre. Le comparatif pour trois essais est illustré dans la figure II.7.

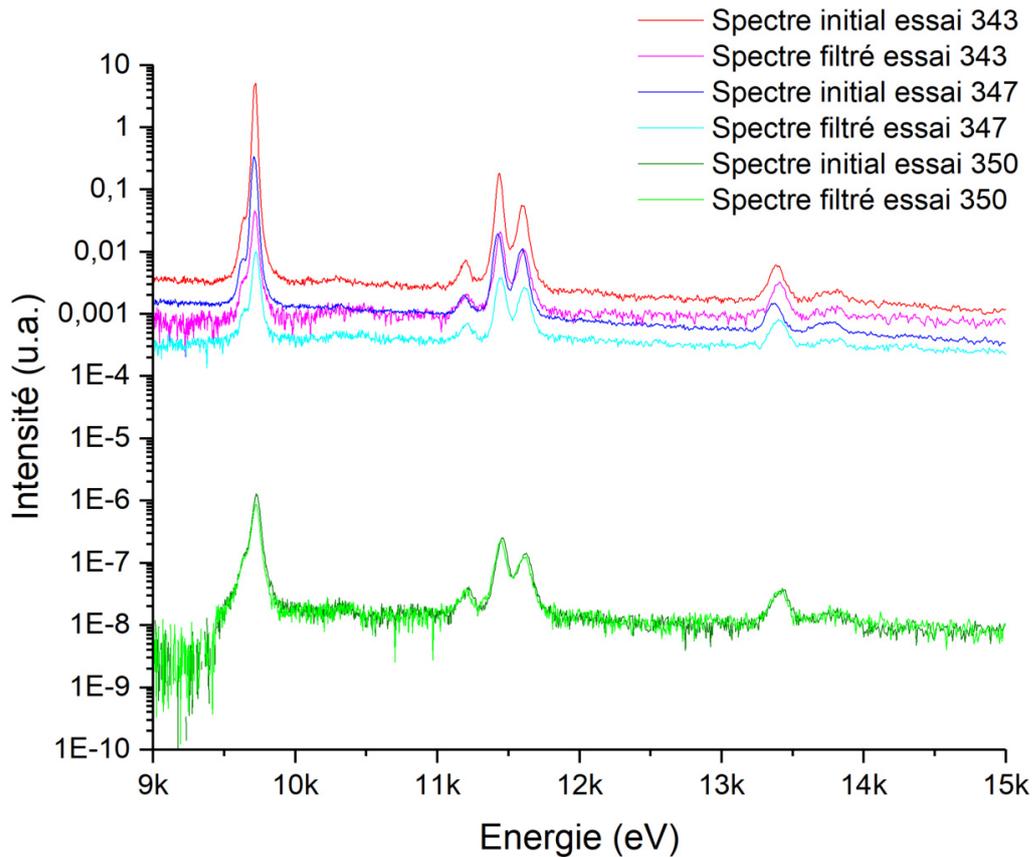


FIGURE II.7 – Comparaison des spectres émis et réellement perçus par l'échantillon pour trois essais. Une échelle logarithmique est appliquée à l'intensité.

A travers des essais différents, on constate une variation de l'intensité brute du fait de l'intensité variable de la source. Pour un même essai, le ratio entre les spectres doit en théorie respecter une allure semblable au filtre (Aluminium d'épaisseur $200 \mu\text{m}$). Pour une énergie spectrale avoisinant $9,7 \text{ keV}$ (raie L_{α}), la transmission avoisine 24% . Pour cette raie, un ratio d'environ $4,2$ devrait donc être trouvé. Celui-ci devrait ensuite tendre vers 1 pour les énergies supérieures. On constate cependant un ratio fortement variable avec des valeurs extrêmes atteignant $1,3$ et $113,3$ comme illustré dans la figure II.7 même si celui-ci semble diminuer aux plus hautes énergies. Il ne semble pas que cette différence soit due au traitement des images permettant de tracer le spectre. En effet, des ratios d'intensité similaires sont mesurés sur l'image brute issue de l'essai ce qui peut indiquer qu'un facteur expérimental n'ayant pas été identifié est à l'origine de ce phénomène. D'autres essais de reproductibilité seraient nécessaires afin de déterminer si cette erreur est récurrente. A travers la comparaison des spectres lors de cet essai, il ne semble pas possible de conclure quant à l'atténuation d'intensité réelle due au filtre. On peut cependant estimer son effet sur l'allure du spectre en procédant à une normalisation par rapport à la raie la plus intense correspondant à la raie L_{α_1} de l'or. Les différents spectres obtenus alors sont présentés dans la figure II.8.

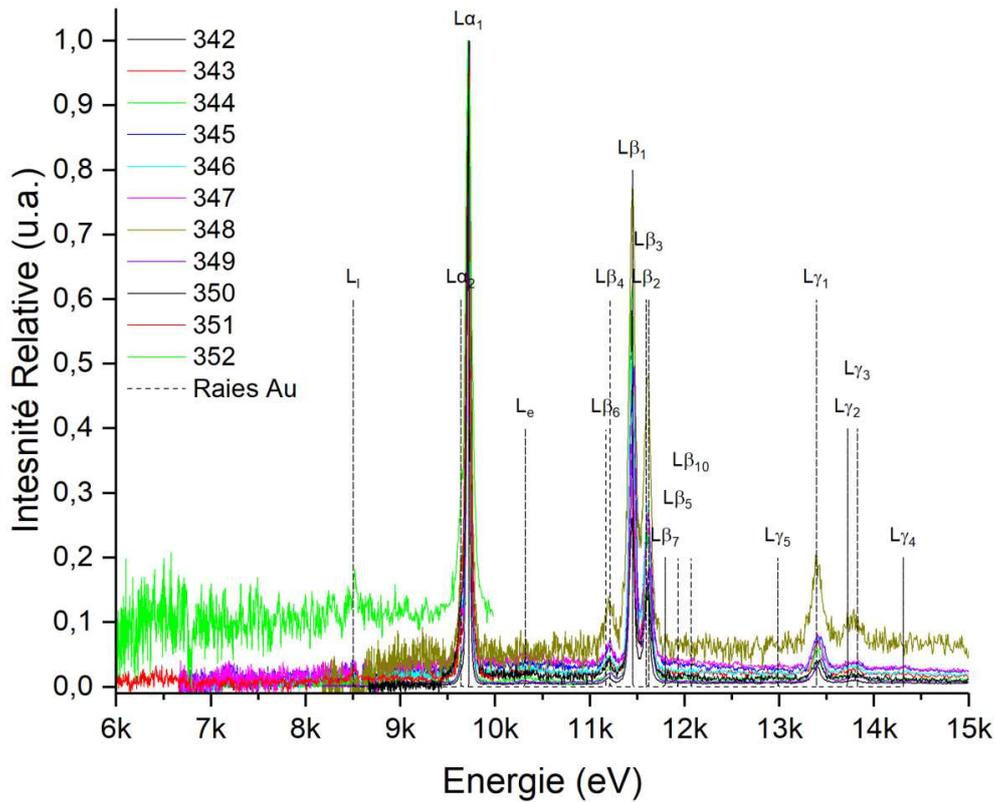


FIGURE II.8 – Spectres obtenus pour les filtres haute énergie. L'intensité relative a été calculée par rapport au pic le plus intense correspondant à la raie L_{α_1} . Les raies théoriques de l'or sont indiquées en pointillés.

On remarque une différence notable par rapport aux spectres précédents concernant l'intensité relative des différentes raies. La raie L_{β_1} voit son intensité relative varier entre 26 et 78% avec une valeur moyenne de 51%. De la même manière, la raie L_{β_2} voit son intensité relative varier entre 14 et 48% avec une valeur moyenne de 25%. On observe par ailleurs un accroissement de l'intensité des pics correspondant aux raies $L_{\beta_{4-6}}$ et L_{γ_1} . A l'inverse, il n'est plus possible de distinguer la raie L_{ℓ} . L'atténuation des différents matériaux aux longueurs d'onde du spectre a permis de diminuer plus fortement l'intensité des photons d'énergie inférieure à 10 keV dont la raie L_{α_1} . Les raies à plus hautes énergies connaissent une atténuation moindre, engendrant une intensité relative plus grande. L'intensité relative des différentes raies est alors répartie de manière plus homogène. L'étude du fond continu a été effectuée en appliquant une échelle logarithmique de l'intensité des spectres comme présenté dans la figure II.9.

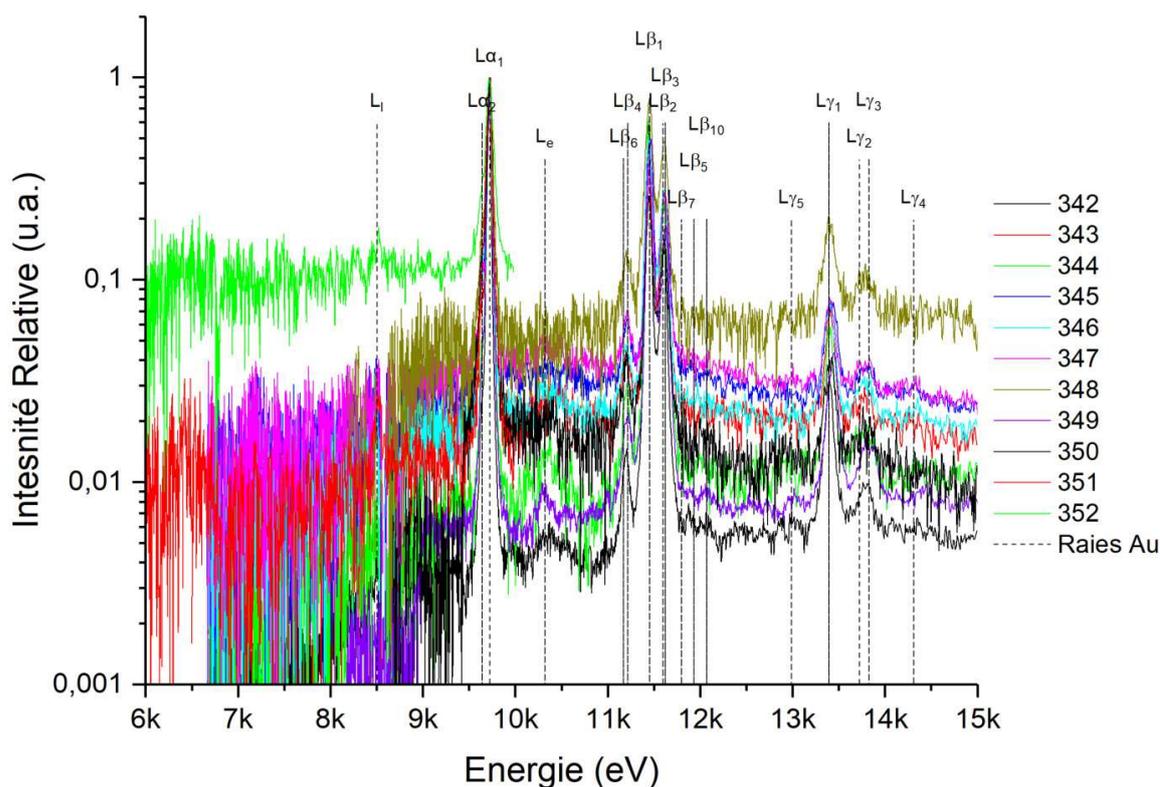


FIGURE II.9 – Spectres obtenus pour les filtres haute énergie. Une échelle logarithmique a été appliquée sur les intensités.

La forte atténuation du filtre pour des énergies inférieures à 10 keV ne permet pas de discerner clairement le fond continu par la forte présence de bruit. L'intensité du fond continu au-dessus de ces énergies varie selon les essais entre 0,4 et 5% de l'intensité maximale de manière générale. On constate par ailleurs un lissage du fond continu sur toute la gamme d'énergie, le rendant plus homogène. La filtration par les différents matériaux traversés par le rayonnement permet donc une homogénéisation de l'intensité relative à travers les gammes spectrales par l'atténuation plus importante des énergies inférieures à 10 keV. Ceci au prix d'une diminution notable de l'intensité du signal.

Le spectre vu par l'échantillon est néanmoins suffisant pour la diffraction. Il est aussi à noter que les rayons diffractés doivent à nouveau traverser la fenêtre enclume ainsi que la protection de la plaque image (mylar d'épaisseur 250 μm) et subissent donc une atténuation équivalente. Le spectromètre utilisé ici ne permet pas de discerner les énergies supérieures à 15 keV. Cependant, les figures de diffraction monocristallines obtenues lors d'essais statiques ont révélé que les points ont été générés par un rayonnement généralement compris entre 0,4 et 1,2 \AA (10-30 keV) lors de l'utilisation de fils d'or.

II.1.B.c Taille de source

L'imagerie directe de la source (ou des sources) est généralement effectuée à travers l'utilisation d'un sténopé de taille inférieure à celle de la source. Le rayonnement acquis au niveau du détecteur sera donc l'image de la source (ou des sources) avec un certain grandissement dépendant des distances source-sténopé et sténopé-détecteur. Cette méthode n'a pas pu être employée ici mais est envisagée dans le futur. Néanmoins, l'utilisation de fentes de plus grand diamètre ne permettra pas de discriminer de multiples sources individuellement mais plutôt la source globale. Cette méthode a été mise en place en utilisant des trous directement percés dans les plaques absorbantes en plomb pour permettre une estimation de la source globale.

Méthode initiale

L'estimation de la taille de source a été effectuée par l'analyse de l'éclairement de la source acquise sur une plaque image à travers un trou percé dans une plaque considérée comme opaque au rayonnement. Dans une première approche, la taille de la source est estimée à partir de calculs géométriques. La configuration considérée est présentée dans la figure II.10.

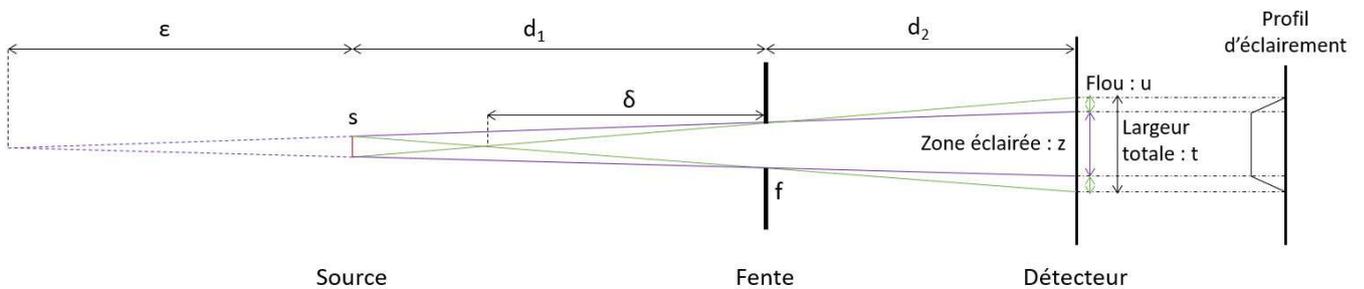


FIGURE II.10 – Configuration considérée pour la mesure de la taille de source

On considère une source uniforme de diamètre s isotrope dont le rayonnement est occulté par une fente de taille f telle que $s < f$. Par tracé des rayons issus des deux extrémités de la source, on remarque un chevauchement de la zone illuminée. En sommant la contribution de chaque élément de source, on peut logiquement s'attendre à un profil trapézoïdal de l'intensité mesurée. A partir de ce profil, il est possible d'estimer la taille de la source à travers la mesure de la zone pleinement éclairée, du flou et de la largeur totale. Chacune de ces longueurs pouvant être liées à la taille de source à partir des paramètres expérimentaux :

- Zone pleinement éclairée

$$s = \frac{d_2 \cdot f - d_1(z - f)}{d_2} \quad (\text{II.1})$$

- Flou

$$s = u \cdot \frac{d_1}{d_2} \quad (\text{II.2})$$

Du fait de la symétrie du profil, la mesure du flou peut être effectuée de chaque côté et devrait indiquer des valeurs semblables.

- Largeur totale

$$s = t \cdot \frac{d_1}{d_2} - f \cdot \frac{d_1 + d_2}{d_2} \quad (\text{II.3})$$

Le détail de ces calculs est présenté en annexe A.2. A partir d'un profil d'image, la taille de la source est obtenue grâce aux paramètres expérimentaux.

Dans notes cas, le choix s'est porté sur un réseau de trous de tailles différentes placé à une distance de 21 cm de la source. L'écran est quant à lui positionné à 72 cm des trous. Des trous de diamètre 1, 1,5 et 2 mm ont été percés dans une plaque en plomb de plusieurs millimètres d'épaisseur afin de s'assurer la bonne opacité des bords. Des filtres ont été utilisés dans certains essais afin d'essayer de discriminer la gamme spectrale d'émission de la source. Des plaques images Fujifilm BAS MS on été utilisées et numérisées avec un scanner FLA 7000. Un exemple d'image obtenue est présenté en figure II.11. L'intensité du rayonnement étant variable, selon la sensibilité du détecteur lors de la numérisation, une saturation de l'image peut avoir lieu. L'utilisation d'atténuateurs optiques est possible dans le scanner pour éviter ce phénomène. La numérisation est effectuée avec une résolution de 25 $\mu\text{m}/\text{pixel}$. Le logiciel de numérisation applique une fonction de normalisation de l'intensité de l'image différente pour chaque numérisation : cette fonction n'étant pas connue, il n'est pas possible de comparer directement l'intensité de deux images scannées à des essais différents.

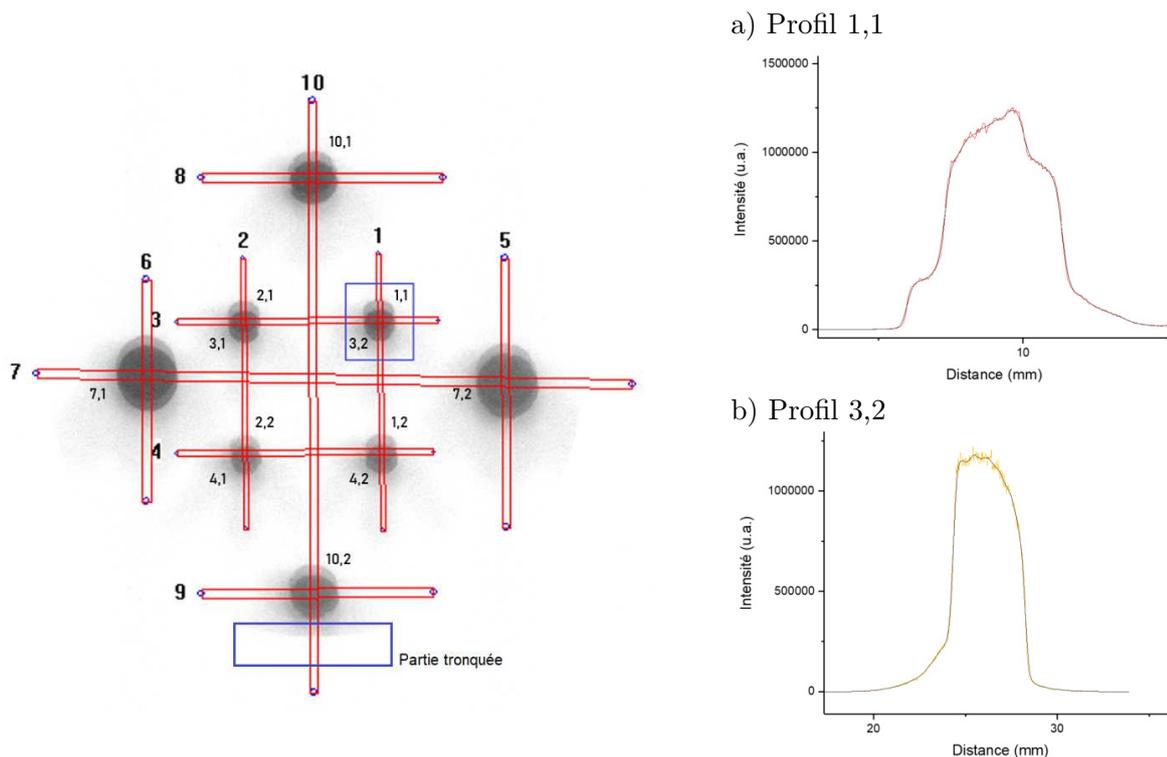


FIGURE II.11 – Exemple d'image obtenue lors des essais d'estimation de la taille de la source (gauche) et profils de coupe vertical (a) et horizontal (b)) obtenus pour la tache encadrée (droite). La courbe noire est obtenue par le lissage des points expérimentaux.

On remarque que chaque tache semble être composée de plusieurs cercles distincts se chevauchant verticalement indiquant la présence de plusieurs sources au cours de l'illumination. Les formules géométriques simples précédentes ne peuvent plus s'appliquer pour estimer la taille de toutes ces sources indépendamment. On peut cependant essayer dans une première approximation d'appliquer ces formules pour estimer la taille de la source totale, ces résultats issus de la figure II.11 sont consignés dans la table II.2. Pour compenser la présence de bruit et la non homogénéité des profils, les différentes mesures ont été prises à 10% et 90% de la hauteur du profil.

Taille de la source en μm obtenue d'après les 4 paramètres mesurées

Profils verticaux					
Profil	ϕ trou (mm)	Flou 1 (u_1)	Flou 2 (u_2)	Zone pleinement éclairée (z)	Largeur totale (t)
1.1	1	712	750	834	628
1.2	1	726	790	869	648
2.1	1	691	1496	1578	610
2.2	1	694	846	872	668
5	2	858	890	1002	745
6	2	846	802	956	692
10.1	1,5	723	805	1063	466
10.2	1,5	901	820	1156	565
Profils horizontaux					
Profil	ϕ trou (mm)	Flou 1 (u_1)	Flou 2 (u_2)	Zone pleinement éclairée (z)	Largeur totale (t)
3.1	1	481	417	589	310
3.2	1	467	391	536	321
4.1	1	572	400	685	286
4.2	1	522	376	615	283
7.1	2	504	545	895	155
7.2	2	595	548	854	290
8	1,5	534	505	746	294
9	1,5	543	508	675	375

TABLE II.2 – Tableau récapitulatif de l'estimation de la taille de la source totale à travers l'ensemble des trous de la figure II.11 en utilisant les quatre paramètres décrits dans la figure II.10

Le profil 10,2 ne peut pas être utilisé en intégralité, la partie basse (cadre bleu dans la figure II.11) est tronquée par le tube de liaison en aluminium. On peut observer une certaine disparité des résultats que ce soit en fonction de la taille du trou ou bien de la méthode d'estimation. Il ne semble pas adapté d'utiliser les profils horizontaux. En effet, du fait du chevauchement vertical des sources, l'allure du profil s'en trouve modifiée et ne permet pas de prendre en compte toutes les sources à la fois. Par ailleurs, il ne serait pas non plus possible de mesurer chaque source individuellement du fait du chevauchement.

De manière générale, plus la source sera petite par rapport à la fente, plus le profil d'éclairement adoptera une allure d'un signal carré. Ce profil va donc présenter une zone de flou d'autant plus faible jusqu'à être nulle si la source est de taille nulle, on a donc $\lim_{s \rightarrow 0} z = t$. Au sein d'un même profil, l'estimation de la source est différente selon la méthode utilisée : la zone pleinement éclairée donne à chaque fois la plus grande estimation de la source tandis que la largeur totale donne la plus faible estimation. La mesure du flou donne des valeurs intermédiaires qui diffèrent selon le côté de la tache. L'ordre de grandeur est similaire entre les trois méthodes entre 600 et 1000 μm avec une moyenne de 792 μm et un écart-type de 141 μm .

La détermination de la taille globale de la source a été effectuée à travers plusieurs essais. Des filtres différents ont été utilisés afin de discriminer les source de rayons X selon leur énergie. En effet, une source rayonnant à basse énergie ne sera pas visible à travers un filtre absorbant totalement son rayonnement. A l'inverse, une source émettant une énergie transmise entièrement ou en partie par le filtre sera visible avec éventuellement une atténuation de l'intensité dans le cas d'une énergie partiellement transmise. A travers l'utilisation de plusieurs filtres, différents seuils d'énergie peuvent être étudiés. Pour se rapprocher des conditions de diffraction, on va en plus s'intéresser à l'atténuation induite par les différents matériaux traversés par le rayonnement avant l'interaction avec la matériau étudié. Comme expliqué précédemment dans l'analyse spectrale, le rayonnement doit traverser la fenêtre de la cloche à vide et la fenêtre enclume avant d'atteindre l'échantillon à sonder. Selon l'angle d'incidence du rayonnement, l'épaisseur à traverser sera différente. Pour une épaisseur de fenêtre de $750 \mu\text{m}$, l'épaisseur à traverser varie entre 2,5 et 3,9 mm. En prenant en compte le type de matériau utilisé, il est possible de modéliser la filtration totale des énergies pour analyser le rayonnement utile. Les angles d'incidence utilisés variant entre 11° et 18° , la transmission à 10% du rayonnement est de respectivement de 7,5 keV et 8,6 keV. Les tailles de source estimées en fonction de l'énergie transmise à 10% pour différents filtres sont présentées dans la table II.3. La taille de source moyenne issue des différentes formules est calculée pour chaque diamètre de trou (\bar{s}_ϕ) puis une moyenne totale (\bar{S}) est calculée pour l'ensemble de l'essai. Les filtres à 1070 et 1300 eV vont permettre de discerner l'ensemble des sources de rayons X rayonnant au delà de cette énergie. Le filtre à 11 000 eV se rapproche le plus de l'atténuation expérimentale et va être représentatif de la source vue par l'échantillon. Les filtres d'énergie supérieure permettront de discerner si plusieurs sources rayonnent à des énergies différentes où si une seule source rayonne sur toute la gamme spectrale considérée.

1070 eV					
Essai	$s_{\phi 1}^- (\mu\text{m})$	$s_{\phi 1,5}^- (\mu\text{m})$	$s_{\phi 2}^- (\mu\text{m})$	$\bar{S} (\mu\text{m})$	$\sigma_S (\mu\text{m})$
349	766	852	983	841	186
350	683	790	853	753	181
351	912	764	824	853	301
352	763	792	879	799	199
1300 eV					
Essai	$s_{\phi 1}^- (\mu\text{m})$	$s_{\phi 1,5}^- (\mu\text{m})$	$s_{\phi 2}^- (\mu\text{m})$	$\bar{S} (\mu\text{m})$	$\sigma_S (\mu\text{m})$
350	709	956	910	802	184
351	764	1029	874	833	138
352	760	967	906	831	176
11 000 eV					
Essai	$s_{\phi 1}^- (\mu\text{m})$	$s_{\phi 1,5}^- (\mu\text{m})$	$s_{\phi 2}^- (\mu\text{m})$	$\bar{S} (\mu\text{m})$	$\sigma_S (\mu\text{m})$
348	966	1044	1145	1030	219
14 300 eV					
Essai	$s_{\phi 1}^- (\mu\text{m})$	$s_{\phi 1,5}^- (\mu\text{m})$	$s_{\phi 2}^- (\mu\text{m})$	$\bar{S} (\mu\text{m})$	$\sigma_S (\mu\text{m})$
341	543	Ø	Ø	543	72
343	754	Ø	Ø	754	281
345	1025	Ø	Ø	1025	434
346	847	1018	Ø	882	196
347	566	661	687	614	146
348	934	1075	1162	1019	211
349	874	928	1151	961	239
18 000 eV					
Essai	$s_{\phi 1}^- (\mu\text{m})$	$s_{\phi 1,5}^- (\mu\text{m})$	$s_{\phi 2}^- (\mu\text{m})$	$\bar{S} (\mu\text{m})$	$\sigma_S (\mu\text{m})$
341	516	Ø	Ø	516	71
343	611	Ø	Ø	611	147
344	974	Ø	Ø	974	200
345	1008	Ø	Ø	1008	349
346	840	944	990	903	187
20 500 eV					
Essai	$s_{\phi 1}^- (\mu\text{m})$	$s_{\phi 1,5}^- (\mu\text{m})$	$s_{\phi 2}^- (\mu\text{m})$	$\bar{S} (\mu\text{m})$	$\sigma_S (\mu\text{m})$
341	545	Ø	Ø	545	79
343	505	Ø	Ø	505	49
344	979	Ø	Ø	979	203
345	942	Ø	Ø	942	311
22 500 eV					
Essai	$s_{\phi 1}^- (\mu\text{m})$	$s_{\phi 1,5}^- (\mu\text{m})$	$s_{\phi 2}^- (\mu\text{m})$	$\bar{S} (\mu\text{m})$	$\sigma_S (\mu\text{m})$
340	747	Ø	Ø	747	96
341	509	Ø	Ø	509	148
342	849	Ø	Ø	849	82
343	529	Ø	Ø	529	150
344	930	Ø	Ø	930	243
345	849	Ø	Ø	849	370

Les essais 340 à 345 ont été menés seulement pour des trous de diamètre 1 mm. Certaines valeurs n'ont pas pu être mesurées du fait de la saturation du détecteur lors de la numérisation.

TABLE II.3 – Tableau récapitulatif des tailles de source globales estimées en fonction du filtre en énergie utilisé. La valeur de l'énergie correspond à une transmission minimale du filtre à 10%. $s_{\phi i}^-$ est la moyenne des tailles de source calculées pour un trou de diamètre i (mm), \bar{S} est la moyenne de globale des tailles pour l'essai considéré, avec un écart-type de σ_S .

A partir de ces résultats, plusieurs tendances peuvent être observées. De manière générale, pour un même essai, la taille de la source croît avec la taille du trou. En effet, plus elle sera grande, plus le chevauchement des profils d'éclairement des différentes sources sera important. On peut alors s'attendre à un profil plus homogène qui serait alors plus représentatif de la source globale. A l'inverse, pour une fente plus petite, le profil présenterait une allure plus accidentée qui nuirait à la détermination des différents paramètres pris en compte dans les formules précédentes.

Les tailles de source déterminées pour différents seuils de filtration présentent une grande dispersion avec des valeurs comprises entre 500 et 1000 μm . Lors du rayonnement, deux sources se succèdent en émettant dans des gammes spectrales différentes. Tout d'abord une source de rayons X "mous" (<10 keV) intense et de petite taille, puis une seconde de plus grande taille générant des rayons X "durs" (>10 keV) avec une intensité moindre. On observe effectivement une différence d'intensité de l'éclairement pour l'essai 349 où le filtre transmettant à 1070 eV a été utilisé en même temps qu'un filtre transmettant à 14 300 eV (Figure II.12).

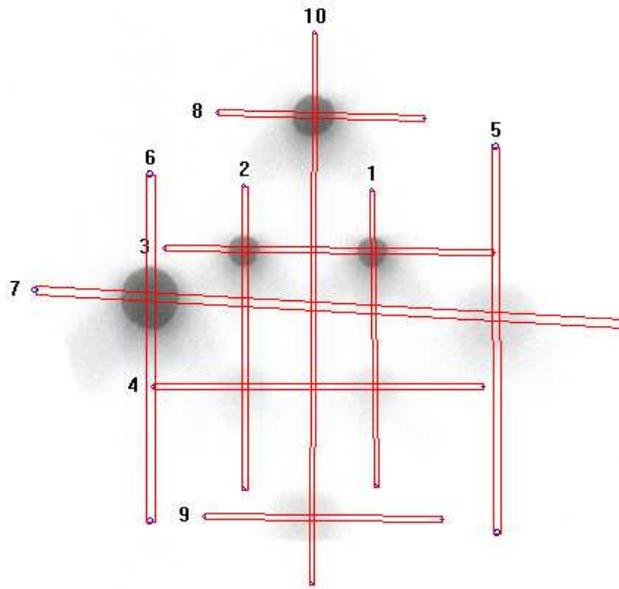


FIGURE II.12 – Exemple d’images obtenues en utilisant simultanément un filtre à 1070 eV (taches sombres) et à 14 300 eV (taches claires)

Les images obtenues pour les basses énergies (filtres à 1070 et 1300 eV) peuvent donc être assimilées à celles générées par la source de rayons X "mous" la plus intense. Sa taille moyenne \bar{S} varie entre 750 et 850 μm avec un écart-type moyen proche de 200 μm .

A cause de contraintes expérimentales, un seul essai a pu être effectué pour le filtre à 11 000 eV. De plus, les raies caractéristiques d'émission de l'or utiles à la diffraction se situent entre 9700 (L_α) et 13 400 eV (L_γ) et sont entièrement ou en partie atténuées par les filtres utilisés ici. Des essais supplémentaires seraient nécessaires avec des filtres plus adaptés en énergie. Cependant, les raies de l'or sont émises en même temps que le rayonnement de freinage. Ce dernier peut rayonner à des énergies supérieures à celles des filtres, en théorie jusqu'à la tension d'accélération, c'est à dire 75 keV¹. On peut donc estimer la taille de source des rayons X haute énergie comprenant à la fois les raies d'émission du matériau ainsi que le rayonnement de freinage à partir des images récoltées pour les filtres transmettant à des énergies supérieures à 11 000 eV.

1. Les essais de diffraction sur monocristaux ont indiqué une gamme d'énergie comprise entre 10 et 30 keV était nécessaire pour produire les figures de diffraction observées.

Les valeurs de taille de source concernant les énergies supérieures à 11 keV semblent plus disparates. Les valeurs de taille moyennent varient entre 500 et 1000 μm avec un écart-type moyen avoisinant 200 μm . La taille de source à haute énergie paraît moins reproductible à travers les essais, rendant une estimation de la taille type difficile. On observe néanmoins pour un même essai que la taille de source estimée pour des filtres différents est proche. Il semble donc qu'une unique source soit responsable de l'émission sur une gamme d'énergie allant de 11 à 22,5 keV permettant la diffraction.

L'ordre de grandeur de la taille de cette source est similaire à celle obtenue précédemment pour les basses énergies. Une étude plus approfondie en utilisant des sténopés serait nécessaire afin de discriminer les différentes sources. Ceux-ci pourraient être combinés à des filtres adéquats atténuant le rayonnement pour des énergies de l'étude correspondant aux raies de l'or.

L'élaboration d'un code permettant de simuler le profil obtenu à travers l'éclairement d'une fente par une ou plusieurs sources a été proposée. A partir de l'ajustement de divers paramètres, il va être question d'essayer de superposer les profils expérimentaux à ceux obtenus numériquement afin de discriminer la physionomie des différentes sources impliquées, leur espacement ainsi que leur intensité relative.

Elaboration d'un outil de simulation

L'objectif de cette méthode est de simuler le profil d'éclairement des sources à travers la fente sur la plaque image. A partir de l'ajustement de paramètres, la taille des sources sera estimée lorsque les profils d'éclairement expérimentaux et simulés auront une superposition satisfaisante. Seul le profil vertical induit par les multiples sources sera calculé car leur espacement horizontal semble négligeable. Plusieurs profils d'émission seront proposés afin de mettre en évidence une éventuelle différence de profil : porte, triangle, cercle, parabole, gaussienne. Dans le cadre du profil gaussien, la largeur est considérée à 10% de la hauteur.

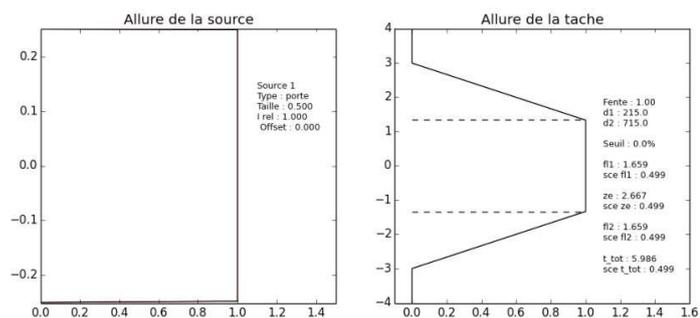
Lors du calcul, la source totale va être subdivisée en un nombre de pas fixe, chacun étant considéré comme une source ponctuelle. Pour chaque incrément, le profil d'éclairement sur l'écran est calculé et ajouté au profil existant avec une certaine intensité. Celle-ci est calculée en fonction de la position de l'incrément sur la source totale. Si plusieurs sources se chevauchent, l'intensité totale sera donc la somme de la contribution de chaque source à cette position. L'intensité pourra varier en fonction du profil de source retenu. Le détail de calcul du profil est expliqué en annexe A.3.

Différents profils d'éclairement pour différentes formes de sources ont été calculés en première approche (Figure II.13) afin de vérifier si la méthode de calcul géométrique fonctionne à travers les équations II.1, II.2, II.3. Une taille de source de 500 μm a été utilisée sous divers profils couplée à une fente de 1 mm de diamètre (profil de gauche). Les distances d_1 et d_2 ont été fixées à respectivement 215 et 715 mm. Dans le calcul a été intégrée l'estimation de la taille de source à partir des formules précédentes par la lecture du profil simulé à un seuil déterminé (profil de droite). Dans cet exemple, les valeurs du flou, de la zone totalement éclairée et de la largeur totale ont été calculées sans seuil (0% et 100% de la hauteur) et avec un seuil de 10% (10% et 90% de la hauteur). Les résultats sont donnés dans la table II.4.

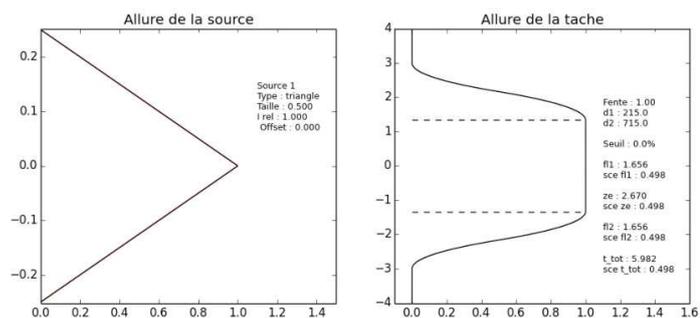
Profil

Simulation

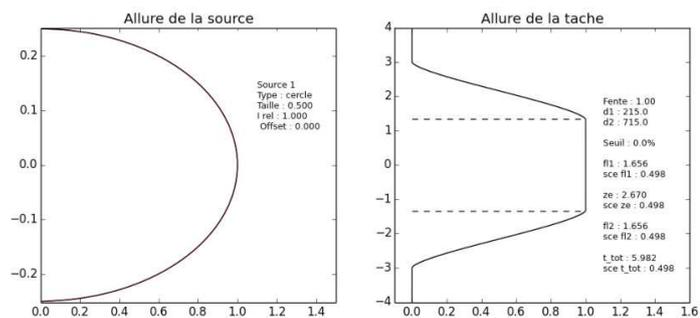
Porte



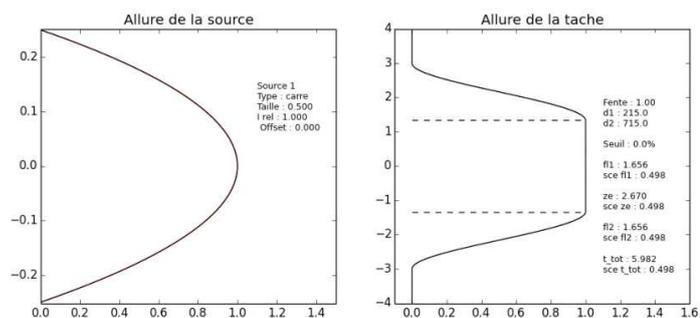
Triangle



Cercle



Parabole



Gaussien

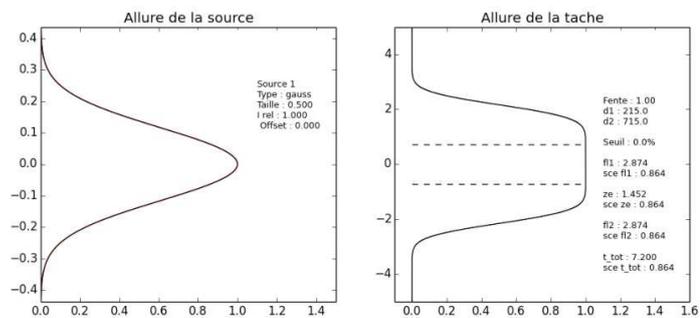


FIGURE II.13 – Simulation de profils d'éclairément de sources de profil divers et estimation de leur taille à partir des données simulées pour un seuil à 0%. Les axes verticaux correspondent à la hauteur en mm et les horizontaux à l'intensité en u.a.

Profil	Seuil à 0%			Seuil à 10%		
	Flou	Zone tot. éclairée	Largeur totale	Flou	Zone tot. éclairée	Largeur totale
Porte	499	499	499	399	400	399
Triangle	498	498	498	277	276	277
Cercle	498	498	498	344	345	344
Parabole	498	498	498	305	304	305
Gaussien	864	864	864	299	299	300

TABLE II.4 – Tableau récapitulatif des mesures de taille de source en μm à partir du profil simulé

L'ensemble des profils obtenus ont une allure symétrique comme attendu. L'estimation à partir des trois formules donne une valeur exacte de la taille de source pour des seuils de mesure à 0%. Il est à noter que la largeur de la gaussienne est définie à $500 \mu\text{m}$ à 10% de sa hauteur en paramètre d'entrée. La valeur de $864 \mu\text{m}$ correspond à une largeur à 0,10% de la hauteur. L'estimation de la taille de la source est toutefois incorrecte dans le cadre d'une mesure avec des seuils à 10% du profil. Il semble que l'erreur soit d'autant plus grande que le profil comporte des bords arrondis en bordure de zone totalement éclairée. L'erreur la plus importante est obtenue dans le cas d'un profil gaussien. C'est pourtant ce type de profil qui caractérise le mieux l'intensité rayonnée par une source. Une proposition de méthode de mesure d'une source gaussienne unique est proposée en annexe A.4 à partir des simulations effectuées. Cette méthode propose d'estimer la taille de la source à partir de mesures effectuées sur le profil d'éclairement en utilisant un abaque construit par la simulation. Elle a été élaborée après la campagne expérimentale et n'a pas pu être testée pour l'heure. Dans la suite de cette partie, seules des sources gaussiennes seront considérées dans la simulation.

En fonction de la taille relative de la source par rapport à la fente, le profil d'éclairement adopte une allure particulière. Plus la source sera grande par rapport à la fente, plus le profil d'éclairement correspondra à l'image de la source à une valeur de grandissement près. A l'inverse, une faible taille de source va engendrer un profil d'éclairement similaire à un signal porte, avec des fronts de montée abrupts.

Il est donc primordial de s'assurer que ce front de montée ne peut pas être plus abrupt que la résolution de la plaque image. En effet, une source plus petite que cette limite entraînera un front de montée qui ne sera pas perceptible sur la plaque image. Pour cela, une feuille de tantale opaque au rayonnement a été apposée directement en contact avec la plaque image et placée en regard de la source. Le front de montée entre la zone sombre et la zone illuminée a ensuite été caractérisé pour estimer une taille de source minimale pouvant générer un profil d'éclairement exploitable. Comme évoqué précédemment, ce profil va dépendre de la taille relative de la source avec la fente et cette analyse doit être faite pour les trois diamètres de trou disponibles : 1, 1,5 et 2 mm.

Un exemple des résultats obtenus pour un trou de 1 mm de diamètre est illustré dans la figure II.14 où sont présentées les simulations de trois profils à partir de sources gaussiennes avec le profil expérimental.

Le front de montée est reproduit de manière satisfaisante pour une taille de source avoisinant $80 \mu\text{m}$ éclairant une fente de 1 mm de diamètre également obtenues pour des tailles de fente de 1,5 et 2 mm. Il ne sera pas possible de mesurer une source de taille inférieure dans cette configuration.

Les profils d'éclairement expérimentaux particuliers sont indicateurs de l'existence d'au moins trois sources différentes générées lors du flash. De ce fait, la possibilité d'utiliser trois sources différentes a été intégrée dans l'outil de simulation. Chaque source peut avoir son propre profil d'émission avec une intensité relative propre et être décalée dans le plan d'émission de la source. L'outil permet aussi d'importer un profil d'éclairement expérimental et de l'intégrer directement au profil d'éclairement simulé afin d'effectuer une comparaison.

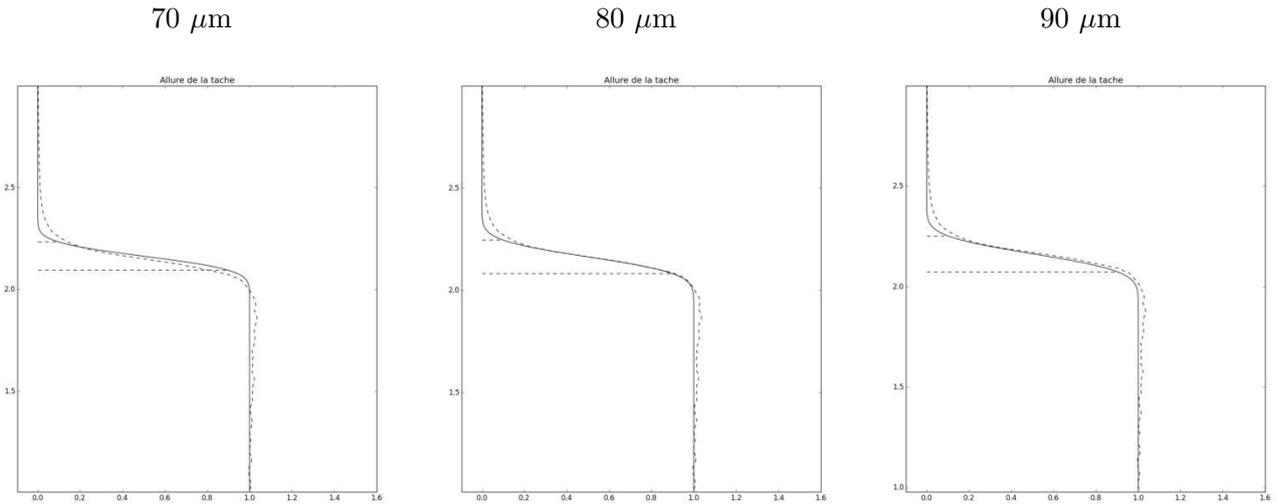


FIGURE II.14 – Comparaison des profils simulés à partir de sources de taille différente pour reproduire le profil d'éclairage sur la plaque image. Les pointillés correspondent au profil expérimental et la ligne plein à la simulation.

L'intensité du profil d'éclairage issu de chaque source va dépendre à la fois de son intensité relative mais aussi de sa taille. Deux sources d'intensité maximale égales mais de tailles différentes ne vont pas engendrer des profils d'intensité égale. Plus la source sera grande, plus le profil sera intense. En effet, si on discrétise chaque source en sources ponctuelles, un point fixe au niveau du détecteur verra un plus grand nombre de sources intenses dans le cas d'une source de grande taille. Un exemple de simulation pour trois sources est donné en figure II.15.

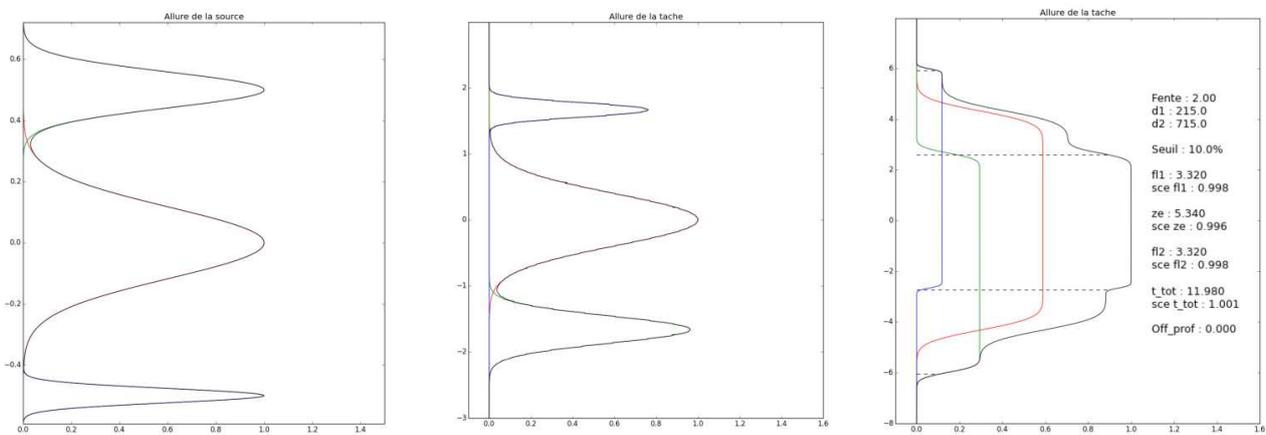


FIGURE II.15 – Simulation du profil d'éclairage de trois sources de même intensité (gauche) mais de taille différente à travers une fente de taille inférieure (centre) et de taille supérieure (droite). Chaque couleur correspond à la contribution de chaque source avec le rouge correspondant à la source 1 de diamètre $500 \mu\text{m}$ (située en haut), le vert correspond à la source 2 de diamètre $100 \mu\text{m}$ (située au bas) et le bleu correspond à la source 3 de diamètre 1 mm (située au milieu).

La figure II.15 indique une image inverse des trois sources avec une taille de fente très faible devant la taille des sources. A l'inverse, les profils se chevauchent et forment un profil global plus homogène lorsque la taille de la fente est supérieure à celle des sources. Comme évoqué précédemment, afin de discriminer chaque source pour les caractériser individuellement, une fente de faible taille est plus adaptée. A l'inverse, une fente plus grande permettra d'accéder à une taille globale de la source. L'estimation de la taille de la source à partir du profil est proche de la taille de source totale dans le cas de la fente de grande taille.

Ainsi, pour chaque essai, l'ensemble des profils verticaux issus de toutes les fentes a été extrait. Le but ici est de déterminer les caractéristiques de chaque source (taille, position, intensité) à partir des paramètres expérimentaux afin de simuler un profil avec une correspondance satisfaisante au profil expérimental. Pour cela, les caractéristiques individuelles de chaque source sont modifiées jusqu'à obtenir une bonne correspondance. Un exemple de simulation pour le profil présenté en figure II.11 est donné dans la figure II.16.

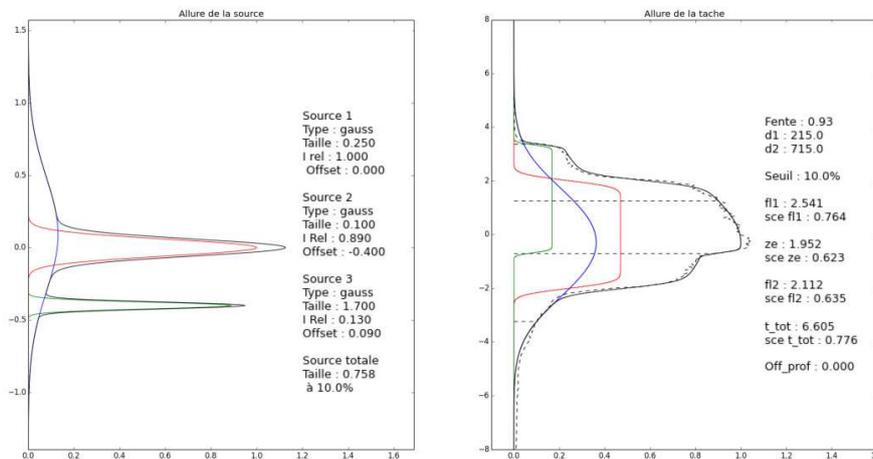


FIGURE II.16 – Exemple de simulation d'un profil obtenu expérimentalement à partir du profil illustré en figure II.11. Chaque couleur correspond à la contribution de chaque source avec le rouge correspondant à la source 1, le vert correspond à la source 2 et le bleu correspond à la source 3.

Dans cet exemple, l'émission est générée par trois sources : une première de diamètre $250 \mu\text{m}$, une seconde plus basse de $400 \mu\text{m}$ de diamètre $100 \mu\text{m}$ et une troisième plus haute de $90 \mu\text{m}$ de diamètre $1700 \mu\text{m}$. Ces différentes sources sont à comparer avec les sources haute et basse énergie connues et dont la position relative par rapport au croisement est connue. Une interprétation est proposée plus loin dans le texte. La taille de fente ainsi que les distances d_1 et d_2 ont dû être ajustées à des valeurs cohérentes de celles mesurées pour parvenir à une meilleure correspondance. Une fois que les sources ont été caractérisées, les profils d'éclairement à travers les autres fentes ont été simulés. Dans ce cas, une bonne correspondance avec les profils expérimentaux devrait être obtenue sans modifier les données des sources en entrée. Les simulations obtenues pour les profils d'éclairement à travers des fentes de 1,5 et 2 mm de la figure II.11 sont illustrées dans la figure II.17 et permettent de reproduire les données expérimentales.

Profil 10,1 dans la figure II.11

Profil 6 dans la figure II.11

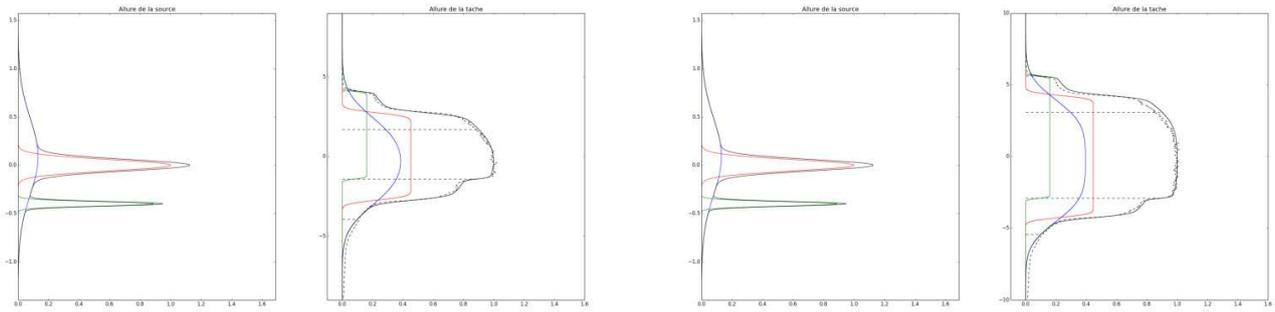


FIGURE II.17 – Profils d’éclairement simulés et expérimentaux à partir des données déterminées dans la figure II.16 pour une fente de diamètre 1,5 mm (gauche) et 2 mm (droite)

Cette technique permettant de déterminer la taille de chaque source séparément a été répétée sur l’ensemble des essais réalisés précédemment. Le récapitulatif de la détermination des tailles de source est donné dans la table II.5. Dans chaque cas, la source 1 correspond à la source centrale à la position d’origine 0 avec une intensité de référence normalisée à 1, la source 2 à la source inférieure et la source 3 à la source supérieure. La valeur du filtre indique l’énergie à partir de laquelle la transmission est supérieure à 10%. Une fonction a été implémentée dans le code pour déterminer la taille de la source totale à partir du profil des trois sources superposées avec un seuil de 10% de l’intensité totale. Une autre fonction a été créée pour déterminer la taille de la source à partir du profil d’éclairement en appliquant les relations II.1, II.2 et II.3 pour des seuils de 10% et de 90% du profil d’éclairement.

1070 eV												
	Source 1			Source 2			Source 3			Scce. Tot.	Est. Scce.	Scce. Géo.
Essai	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	ϕ (μm)	ϕ (μm)
349	1200	0	1	150	-300	7,7	1500	1150	0,17	557	834	841
350	1100	0	1	150	-400	3,6	1500	1100	0,07	836	771	753
351	150	0	1	100	-400	0,53	1700	100	0,08	541	739	853
352	700	0	1	800	-500	0,83	1000	600	0,08	1284	812	799

1300 eV												
	Source 1			Source 2			Source 3			Scce. Tot.	Est. Scce.	Scce. Géo.
Essai	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	ϕ (μm)	ϕ (μm)
350	1100	0	1	150	-400	3,6	1500	1100	0,07	836	771	802
351	150	0	1	100	-400	0,53	1700	100	0,08	541	739	833
352	700	0	1	800	-500	0,83	1000	600	0,08	1284	812	831

11 000 eV												
	Source 1			Source 2			Source 3			Scce. Tot.	Est. Scce.	Scce. Géo.
Essai	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	ϕ (μm)	ϕ (μm)
348	1000	0	1	0	0	0	2800	750	0,15	1801	1061	1030

14 300 eV												
	Source 1			Source 2			Source 3			Scce. Tot.	Est. Scce.	Scce. Géo.
Essai	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	ϕ (μm)	ϕ (μm)
341	700	0	1	0	0	0	2500	400	0,07	787	562	543
343	800	0	1	300	-800	0,12	2500	1000	0,06	1279	787	754
345	900	0	1	300	-350	1,2	2000	1200	0,12	948	1086	1025
346	900	0	1	0	0	0	1800	850	0,12	1546	870	882
347	600	0	1	0	0	0	2000	600	0,06	645	588	614
348	1000	0	1	0	0	0	2000	900	0,14	1766	1029	1019
349	900	0	1	0	0	0	1300	950	0,19	1740	1029	961

18 000 eV												
	Source 1			Source 2			Source 3			Scce. Tot.	Est. Scce.	Scce. Géo.
Essai	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	ϕ (μm)	ϕ (μm)
341	600	0	1	0	0	0	2500	500	0,05	648	502	516
343	800	0	1	300	-800	0,12	2500	1000	0,04	1262	554	611
344	1300	0	1	0	0	0	2000	1000	0,14	2017	1013	974
345	900	0	1	300	-300	1,5	2000	1100	0,13	879	995	1008
346	1000	0	1	0	0	0	1800	1000	0,12	1098	939	903

20 500 eV												
	Source 1			Source 2			Source 3			Scce. Tot.	Est. Scce.	Scce. Géo.
Essai	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	ϕ (μm)	ϕ (μm)
341	800	0	1	0	0	0	2500	700	0,05	856	571	545
343	800	0	1	300	-800	0,12	2500	1000	0,03	1253	523	505
344	1300	0	1	0	0	0	2000	1000	0,14	2017	1013	979
345	900	0	1	300	-300	1,5	200	1100	0,11	872	930	942

22500 eV												
	Source 1			Source 2			Source 3			Scce. Tot.	Est. Scce.	Scce. Géo.
Essai	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	h (μm)	I_{rel}	ϕ (μm)	ϕ (μm)	ϕ (μm)
340	1000	0	1	400	-300	0,5	1500	1200	0,1	1041	927	747
341	600	0	1	0	0	0	2500	500	0,05	648	492	509
342	1500	0	1	500	-400	1,1	1500	1200	0,07	1395	868	849
343	800	0	1	300	-800	0,12	2500	1000	0,03	1253	523	529
344	1300	0	1	0	0	0	2000	1000	0,14	2017	1013	930
345	900	0	1	300	-200	1,5	2000	1100	0,14	779	933	849

Scce. Tot. : taille de la source totale à un seuil de 10% de l'intensité maximale.

Est. Scce. : taille de source estimée sur le profil simulé à partir des relations II.1, II.2 et II.3.

Scce. Géo : taille de source expérimentale mesurée dans la table II.3.

TABLE II.5 – Tableau récapitulatif des tailles de source passées en paramètre de l'outil pour reproduire les profils d'éclairement expérimentaux à travers plusieurs filtres spectraux

Dans la plupart des cas, on peut distinguer que le profil d'éclairement correspond à celui de trois sources séparées verticalement. La source 2 possède la taille la plus petite tandis que la source 3 est la plus grande, la source 1 possédant une taille intermédiaire. La comparaison entre le profil simulé et le profil expérimental peut parfois présenter des différences. Pour une taille de fente fixe, le profil d'éclairement d'une source va se trouver modifié en fonction de sa taille mais aussi de son intensité relative. De ce fait, lorsqu'un chevauchement des profils d'éclairement a lieu, l'ajustement de la taille de chaque source ainsi que son intensité relative peut ne pas permettre de reproduire exactement le profil du chevauchement. Par ailleurs, certains profils sont fortement bruités du fait de la faible intensité mesurée. L'allure du profil d'éclairement ne peut donc pas être correctement discernée. Enfin, on remarque que des modifications significatives de la taille de source, de l'ordre de quelques centaines de micromètres ne modifient pas de manière notable le profil simulé, en particulier pour les sources de faible intensité.

Les valeurs recueillies dans le tableau II.5 correspondent aux paramètres des sources permettant la meilleure correspondance entre le profil simulé et le profil expérimental. En comparant l'estimation de la source globale à partir des formules géométriques appliquées sur le profil simulé et sur le profil expérimental, on observe une différence de taille inférieure à $100 \mu\text{m}$. Cette bonne correspondance est expliquée par la concordance entre le profil expérimental et le profil simulé. On obtient alors des valeurs similaires pour les différents paramètres mesurés (u , t et z) prises en compte dans les relations II.1, II.2 et II.3 induisant une taille de source proche.

Ces valeurs sont toutefois éloignées des sources passées en paramètre. Les formules géométriques semblent majoritairement sous-estimer la taille totale de la source simulée avec des différences comprises entre quelques dizaines de μm et $1000 \mu\text{m}$ (essai 344). Dans de rares cas, la taille de la source est sur-estimée avec des valeurs pouvant atteindre environ $270 \mu\text{m}$ (essai 349). Cette différence pourrait être expliquée lors de la prise en compte de la source 3. Pour rappel, deux sources de taille différente mais d'intensité maximum égale génèrent des profils d'éclairement d'intensité différente. La source 3 étant de très grande taille, il est nécessaire de réduire grandement son intensité relative pour obtenir le profil expérimental jusqu'à des valeurs proches de 10%. La mesure de la taille de source totale s'effectuant à un seuil de 10%, en fonction du chevauchement des sources et de la valeur de l'intensité de la source 3, celle-ci peut ne pas être prise en compte et induire une taille de source totale inférieure à celle estimée. Il en est de même pour le profil d'éclairement où les distances sont mesurées pour des valeurs supérieures à 10% de l'intensité. Un profil peu intense ne sera donc pas pris en compte et induira une erreur sur l'estimation.

Les simulations effectuées pour les sources de basse énergie ($<11 \text{ keV}$) donnent des résultats identiques dans le tableau pour les deux filtres utilisés qui peuvent être considérés comme équivalents compte tenu de la faible différence du seuil d'énergie transmise. Les profils expérimentaux peuvent être reproduits par la simulation de trois sources. La première, située au centre, semble posséder une taille millimétrique (excepté pour l'essai 351²). Une deuxième source plus petite mesurant quelques centaines de micromètre (excepté pour l'essai 352) serait localisée en dessous à une distance avoisinant $400 \mu\text{m}$ d'intensité variable. La troisième source de taille supérieure, environ $1,5 \text{ mm}$ serait localisée au dessus de la première source à une distance proche du millimètre avec une très faible intensité. En tenant compte du phénomène d'implosion des fils, la source 2 de petite taille et de forte intensité pourrait correspondre à la source thermique de basse énergie. Par ailleurs, celle-ci serait située en dessous des deux autres en prenant en compte le sens de déplacement des électrons. Les deux autres sources pourraient être attribuées à la formation de la source de rayons X de haute énergie rayonnant de la même manière dans ces longueurs d'onde du fait du rayonnement de freinage.

2. L'intensité détectée pour les énergies supérieures à 10 keV dans cet essai ont été inférieures à la normale, la source de rayons X haute énergie a probablement été anormalement peu intense.

La simulation des profils d'éclairement pour les hautes énergies (>11 keV) ne nécessite que l'emploi de deux sources dans la majorité des cas. La première (Source 1) étant une source de taille millimétrique associée à une source de taille supérieure (Source 3), proche de 2 mm et de faible intensité. Une troisième source (Source 2) est parfois nécessaire pour reproduire le profil avec une taille de quelques micromètres localisée sous les deux premières. Les essais utilisant simultanément plusieurs filtres d'atténuation différente nécessitent les mêmes paramètres de source pour reproduire le profil. Il semble donc que ces sources rayonnent sur une gamme d'énergie s'étalant de 11 keV (énergie minimale du filtre le moins absorbant) jusqu'à des énergies supérieures à 22,5 keV (filtre le plus absorbant). Les profils étudiés comportant une forte présence de bruit, plusieurs jeux de paramètres peuvent permettre d'obtenir des profils satisfaisants, en particulier lorsque l'on considère la présence de la source 2. Les résultats présentés vont permettre de poser des premières hypothèses sur la physiologie de la source. Une étude plus approfondie impliquant une imagerie directe de la source, par exemple avec un sténopé, serait nécessaire pour confirmer ces résultats.

En première approximation, il serait possible de penser que la source 2 corresponde à une source de rayons X "mous" du fait de sa faible taille, de sa forte intensité et de son absence dans certains essais pour des filtres à haute énergie. La présence d'une source aux caractéristiques similaires à des énergies supérieures à 20 keV pourrait être due à un plasma plus dense dans lequel les électrons sont freinés durant l'émission des rayons X durs, générant une source beaucoup plus petite.[65] Les deux autres sources (Source 1 et Source 3) ont des caractéristiques similaires dans la simulation à la fois à basse et haute énergie. On retrouve cette tendance pour l'essai 349 qui utilise simultanément un filtre haute et basse énergie. Les sources 1 et 3 ont une taille, intensité relative et un positionnement similaires tandis que la source 2 n'est pas requise pour le filtre à haute énergie. Les sources 1 et 3 pourraient à la fois rayonner dans les hautes et les basses énergies et participer à la diffraction X.

Malgré la forte intensité attendue de la source thermique, il semble que les sources à plus haute énergie et d'intensité plus faible soient quand même discernables lors d'utilisation de filtres à basse énergie (essai 349). En effet, la source thermique possède une durée de rayonnement très faible de l'ordre d'une dizaine de nanosecondes. A l'inverse, les sources de rayons X "durs" ayant une intensité plus faible ont une durée d'émission plus longue. L'énergie totale reçue sur le détecteur, correspondant à l'énergie totale des photons détectés peut alors permettre de discerner les deux sources à la fois.

On peut considérer que la source 1 constitue la contribution majeure en terme d'intensité pour les essais à haute énergie. Son diamètre moyen est de l'ordre de $950 \mu\text{m}$. La deuxième source supposée possède un diamètre moyen supérieur, proche de 2 mm mais sa faible intensité la rend difficilement détectable et serait donc moins utile à la diffraction. On va donc considérer que c'est la source 1 qui va le plus contribuer à la diffraction. Un diamètre de $950 \mu\text{m}$ sera considéré dans les calculs suivants.

A la vue de ces résultats, des essais supplémentaires seraient nécessaires pour mieux caractériser spectralement les deux sources. En particulier en utilisant des filtres qui permettraient de mieux discriminer les énergies comprises entre 9 et 11 keV (raies de l'or). L'utilisation d'un sténopé de faible diamètre, inférieur à $100 \mu\text{m}$, couplé avec des filtres serait utile pour imager à la fois les sources basse et haute énergie et confirmer les hypothèses obtenues par la simulation. L'identification de la contribution de plusieurs sources à haute énergie est rendue difficile par le haut niveau de bruit, rendant l'utilisation de l'outil de simulation délicate, en particulier lorsque leur chevauchement est important.

Sur certains essais, on remarque également des profils d'éclairement obliques comme illustré dans la figure II.18. Ces profils sont plus ou moins marqués selon les essais et ne sont pas toujours visibles. Deux profils étant observables, il s'agirait de l'émission de deux sources distinctes. L'étalement des profils d'éclairement laisserait à penser que ces sources ont une taille bien supérieure à la source 3 et seraient à une position supérieure avec un décalage horizontal et symétrique par rapport aux sources précédentes. La non symétrie de ces taches peut être directement corrélée au sens de déplacement des électrons. L'angle d'inclinaison des profils semble suggérer que ces sources pourraient provenir de l'interaction des électrons avec la matière proche des fils de la partie supérieure du croisement.

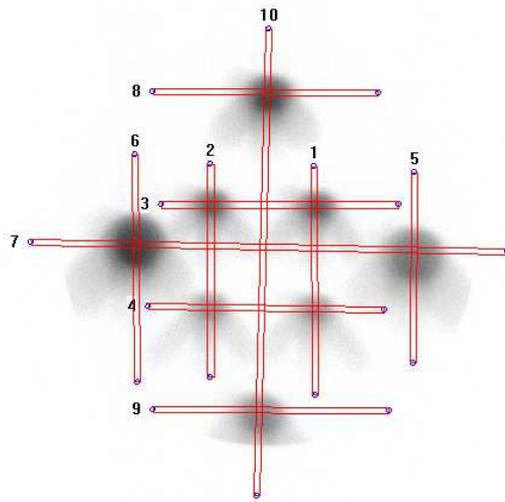
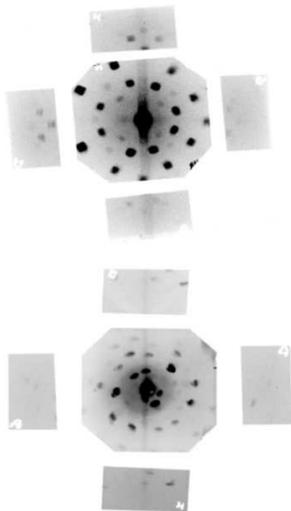


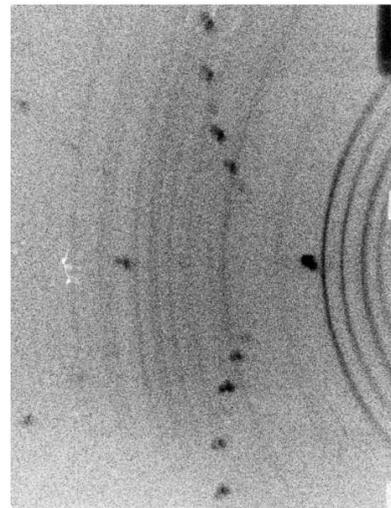
FIGURE II.18 – Profil expérimental présentant des éclaircissements obliques

II.1.C Configuration expérimentale

Des essais de diffraction ont été menés avec succès en utilisant le générateur X-Pinch que ce soit en configuration de réflexion ou de transmission [61] comme illustré dans la figure II.19. Une configuration expérimentale spécifique a été élaborée pour permettre de synchroniser le passage de l'onde de choc avec l'émission du rayonnement X. La source étant isotrope, il est possible de mettre en place d'autres diagnostics en périphérie.



Monocristal de LiF (haut) et Al (bas) avec des fils de Mo [61]



Monocristal de Sn (points) et polycristal de B₄C (arcs-de-cercle) avec des fils d'Au

FIGURE II.19 – Figures de diffraction pouvant être obtenues avec le rayonnement issu du générateur X-Pinch

II.1.C.a Géométrie du montage

La configuration expérimentale utilisée pour la diffraction X sous choc est présentée en figure II.20.

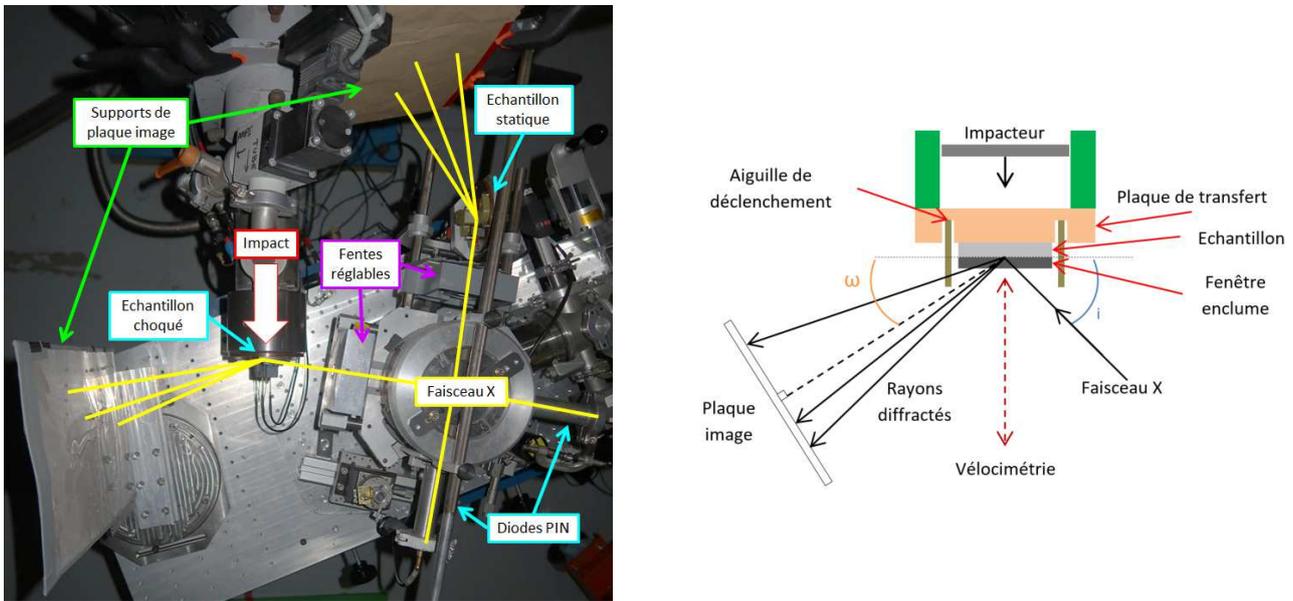


FIGURE II.20 – Photographie de la configuration expérimentale utilisée pour la diffraction X (gauche) et schéma de la configuration de diffraction (droite)

Dans cette configuration, deux diodes PIN polarisées sont utilisées pour mesurer l'intensité du rayonnement émis par la source. Pour éviter la saturation du signal due à un rayonnement hors de la gamme spectrale d'intérêt, un filtre en aluminium d'épaisseur $250\mu\text{m}$ est placé devant la diode afin de détecter seulement les photons à haute énergie. Deux bras d'analyse permettent de sonder dans les mêmes conditions de diffraction à la fois l'échantillon subissant le choc mais aussi un autre échantillon statique. En effet, au cours des tests préliminaires de diffraction statique, il a été parfois constaté une absence de figure de diffraction malgré une intensité du faisceau mesurée non nulle. Pour ne pas attribuer une éventuelle disparition de la figure de diffraction à la modification du cristal sous choc, un deuxième échantillon non choqué est sondé à chaque tir. Pour chaque expérience de diffraction, que ce soit sous choc ou en statique, les deux figures de diffraction sont ainsi collectées, la figure statique servant à confirmer la possibilité de diffraction quelque soit l'intensité émise par la source. De plus, cette figure peut aussi être utilisée pour observer la variation de l'intensité de la figure de diffraction due à la fluctuation de la source.

L'angle d'incidence du faisceau sur la cible du lanceur est tout d'abord réglé sur l'échantillon en déplaçant le générateur par rapport au lanceur grâce à un outillage spécifique. L'angle d'inclinaison de l'écran est ensuite réglé de telle sorte que sa normale forme un angle ω égal à l'angle d'incidence i du faisceau sur l'échantillon. Le bras statique étant solidaire du générateur, les réglages identiques sont effectués dans un second temps. L'angle d'incidence de l'échantillon statique est réglé en le faisant pivoter sur un axe et l'angle de l'écran en l'inclinant sur son support. Le dernier réglage concerne les dimensions de la fente réglable en tungstène. Celle-ci permet de mettre en forme le faisceau de sorte de viser seulement le centre de l'échantillon. Il est donc nécessaire de la placer sur le chemin optique entre la source (croisement des fils) et l'échantillon. L'alignement des différents éléments de diffraction est effectué par l'intermédiaire d'une caméra. Une fois la charge X-Pinch mise en place, le croisement des fils est aligné avec le centre de l'échantillon. La fente est ensuite placée sur le chemin optique avec la hauteur et la largeur ajustées grâce à un réglage micrométrique.

Les dimensions de cette fente doivent être assez faibles pour ne pas illuminer la périphérie de l'échantillon et obtenir une divergence faible (collimation) tout en étant assez grande pour permettre d'effectuer aisément l'alignement compte tenu des incertitudes expérimentales. Il est possible de calculer théoriquement la zone éclairée par la source en prenant en compte les paramètres expérimentaux. Ce calcul est détaillé en annexe A.5.

Sur l'ensemble des essais effectués, la largeur de la fente a été fixée à 1 mm et sa hauteur à 2 mm par souci de reproductibilité de la méthode d'alignement. L'estimation de la taille de la source est incertaine avec des valeurs pouvant atteindre 2 mm (voir II.1.B.c). Cependant, il semble que la majeure partie du rayonnement soit émise pour une source globale de diamètre proche de 950 μm . Les dimensions des zones éclairées pour les différents angles de l'étude ont été calculées (Table II.6) pour une taille de source de 950 μm ainsi que pour une source de 2 mm correspondant au cas le plus défavorable. La zone est d'autant plus petite que la source sera petite, éloignée de la fente et que la fente est proche de l'échantillon. Expérimentalement, ces distances sont limitées par l'encombrement des divers éléments. En effet, la fente ne doit pas se situer sur le trajet de la cible lors de l'impact. Le support de celle-ci reste par ailleurs solidaire du bâti de la source et a une longueur limitée. La distance source-fente a été arrêtée à 14 cm et la distance fente-échantillon à 9 cm.

Incidence	ϕ 950 μm		ϕ 2 mm	
	Hauteur (mm)	Largeur (mm)	Hauteur (mm)	Largeur (mm)
11°	3,9	12	4,6	15
13°	3,9	10	4,6	13
14°	3,9	9,3	4,6	12
18°	3,9	7,3	4,6	9,5

TABLE II.6 – Estimation des dimensions de la zone éclairée sur l'échantillon

La présence de la fenêtre enclume doit être prise en compte lors de l'alignement, en effet, on va viser le centre de l'échantillon à l'interface avec la fenêtre. Le point de visée en surface libre sera donc décalé du centre l'une certaine longueur en fonction de l'angle d'incidence i et de l'épaisseur de la fenêtre e : $\Delta l = e / \tan i$. Le diamètre de l'échantillon étant de 20 mm, en prenant en compte la taille maximale moyenne de source, la zone illuminée sera toujours dans l'étain. La contribution des ondes de détente latérale sera négligée sur la zone éclairée. On considérera que l'état atteint sera homogène sur toute la zone éclairée. La distance entre l'échantillon et l'écran est égale à la distance entre la source et l'échantillon à savoir 23 cm sur la droite perpendiculaire à l'écran formant un angle ω avec l'échantillon (droite pointillée noire dans la figure II.20 (droite)).

II.1.C.b Configuration de l'impact

Les sabots de tous les projectiles utilisés sont constitués de PVC. Certains d'entre eux ont été usinés afin de réduire leur masse (Figure II.1) et accéder à des vitesses d'impact plus élevées dans le cadre de tirs haute pression. Le matériau constituant l'impacteur est choisi en fonction de la gamme de pression visée. Les impacteurs utilisés dans cette étude sont des disques de cuivre de diamètre 30 mm et d'épaisseur 3 mm ou des disques en tungstène de diamètre 28 mm et d'épaisseur 2 ou 3 mm.

Conception de la cible

Une cible particulière a été conçue pour permettre la mise en place d'un système de synchronisation de la source X. Le schéma de la cible est présenté en figure II.20, elle est composée de plusieurs éléments successifs :

- **Plaque de transfert** : cette plaque est directement vissée en bouche du lanceur et sera impactée par le projectile. Elle va permettre de retarder l'arrivée des ondes de choc dans la cible le temps d'initier la génération du rayonnement X via le système de synchronisation. De plus, un vide primaire étant effectué dans le tube du lanceur, cette plaque va empêcher l'échantillon de subir une déformation due à une différence de pression entre la face soumise au vide et celle à pression atmosphérique. Cette plaque est composée de cuivre et possède une épaisseur de 5 mm. Une gorge de 3 mm de profondeur est présente afin de pouvoir y placer les aiguilles de déclenchement du système de synchronisation. Cette gorge délimite un disque de diamètre 20 mm sur lequel sera collé l'échantillon.
- **Echantillon à analyser** : l'échantillon à analyser avec la diffraction X est collé directement sur la plaque de transfert. Dans notre étude, l'échantillon est composé d'étain monocristallin (diamètre 20 mm et épaisseur 1 mm) préalablement orienté sur un diffractomètre de Laue (Photonic Science). L'orientation préalable va permettre de simuler la figure de diffraction pouvant être obtenue lors d'une image statique. Grâce à la connaissance de la gamme spectrale du rayonnement, il va être possible d'ajuster préalablement les paramètres expérimentaux, en particulier l'angle d'incidence, afin d'obtenir la figure de diffraction contenant le plus d'information possible, que ce soit des points (monocristaux) ou des cercles (polycristaux). Les directions cristallographiques choisies pour orienter les différents monocristaux d'étain dans le laboratoire sont présentées dans la table II.7. Les échantillons de pureté 99,999% sont fournis par Princeton ou Goodfellow.

Orientation	Axe horizontal	Axe vertical
(100)	[010]	[001]
(001)	[100]	[010]
(110)	[-110]	[001]
(111)	[-110]	[-1 -1 2]

TABLE II.7 – Tableau récapitulatif des directions cristallographiques choisies pour les différents monocristaux d'étain de l'étude. L'impact s'effectue sur la direction normale à la surface correspondant à l'orientation cristalline (première colonne). Les deux autres directions (deuxième et troisième colonnes) sont choisies arbitrairement en faisant tourner l'échantillon sur lui même et en faisant correspondre deux directions avec l'axe vertical et horizontal du laboratoire.

- **Fenêtre enclume** : la fenêtre enclume permet de maintenir une certaine pression à l'interface avec l'échantillon après l'arrivée de l'onde de choc. En effet, si celui-ci était laissé avec une surface libre, cette surface demeurerait à la pression ambiante. L'étain étant très absorbant, la profondeur de pénétration (correspondant à une atténuation de 63%), n'est que de quelques micromètres sous la surface pour le rayonnement X considéré. On ne sonderait alors pas l'échantillon sous pression mais une zone à pression ambiante. En revanche, avec une fenêtre enclume, l'état induit à l'interface ne sera pas l'état de choc atteint au sein du matériau mais un état dépendant de l'impédance de la fenêtre enclume.

Lors d'une propagation d'une onde de choc (ou de détente) à l'interface entre deux matériaux, l'impédance relative de ceux-ci va permettre de connaître à priori la nature des ondes incidentes et réfléchies :

- L'onde transmise à l'interface est toujours de la même nature que l'onde incidente quelque soit l'impédance des matériaux.
- L'onde réfléchi à l'interface est de même nature que l'onde incidente si l'impédance du matériau amont est inférieure à celle du matériau aval.

La pression (contrainte axiale) ainsi que la vitesse particulaire restent égales dans le matériau de part et d'autre de l'interface. Ainsi, au cours de la propagation d'une onde de choc, les transmissions et réflexions successives vont permettre à un matériau de voir sa pression et sa vitesse varier au cours du temps. Si l'impédance de la fenêtre enclume est supérieure, un choc sera réfléchi à l'interface portant le matériau à une pression supérieure. A l'inverse, une onde de détente sera réfléchi, portant le matériau à une pression inférieure. Pour se rapprocher au maximum de l'état de choc recherché, l'impédance de la fenêtre enclume doit être très proche de l'étain afin de limiter la variation de pression lors de la transmission à l'interface. La pression sera maintenue à l'interface jusqu'à l'arrivée d'une onde de détente provenant soit de la surface libre de la fenêtre enclume soit des matériaux placés avant l'étain. En pratique, la première onde de détente en retour sera celle issue de la surface libre de la fenêtre enclume. La pression sera donc maintenue le temps de l'aller-retour des ondes dans cette fenêtre, qui va définir le temps de pose maximal pour effectuer la diffraction. Le rayonnement X va aussi être déterminant dans le choix de cette fenêtre, en effet, les rayons doivent tout d'abord la traverser jusqu'à l'interface avec l'étain puis les rayons diffractés doivent la traverser à nouveau. Le matériau utilisé doit alors avoir une faible absorption du rayonnement sur tout le trajet emprunté. Le matériau choisi doit donc avoir une impédance proche de celle de l'étain et son épaisseur doit être à la fois assez grande pour permettre un temps de pose maximal et assez faible pour minimiser l'atténuation du rayonnement direct et diffracté. De plus, la fenêtre enclume est elle aussi susceptible de diffracter le rayonnement et produire une figure selon sa microstructure (amorphe, monocristallin ou polycristallin).

Dans notre étude le carbure de bore (B_4C) a été retenu du fait de sa proche impédance avec l'étain mais aussi de sa faible absorption du rayonnement X (matériau de faible numéro atomique). Par ailleurs, ce matériau très dur reste élastique jusqu'à des pressions proche de 15 GPa. Les disques de B_4C (diamètre 20 mm et épaisseur 0,75 mm) fournis par Acal BFI sont fabriqués par compression à chaud de poudre. Sur certains échantillons, il a été constaté une certaine porosité pouvant influencer sur les caractéristiques de choc. Afin de mieux calculer les états de pression atteints, une caractérisation du B_4C a été entreprise, les résultats sont présentés en annexe A.6.

Diagnostics de mesure associés

Différents diagnostics sont mis en œuvre durant l'essai pour assurer une bonne synchronisation entre l'onde de choc et le rayonnement X mais aussi pour vérifier à posteriori le bon déroulement de l'essai.

- Aiguilles de déclenchement : ces aiguilles permettent de détecter l'arrivée de l'onde de choc dans la plaque de transfert à une distance de 3 mm avant l'arrivée dans l'étain, permettant le déclenchement de la chaîne d'émission du rayonnement. Deux aiguilles diamétralement opposées sont utilisées pour déterminer la passage de l'onde de choc au centre de l'échantillon ainsi que le tilt éventuel à l'impact. Elles sont fournies par Dynasen, et sont constituées d'un embout piézoélectrique qui va générer un pic de tension lors de sa déformation suite au passage de l'onde de choc.

- Vélométrie : la mesure de vitesse est effectuée par Vélométrie Hétérodyne (VH) aussi appelée Interférométrie Doppler Fibrée (IDF). Le principe repose sur l'utilisation d'un interféromètre de Michelson via un faisceau laser guidé par une fibre optique jusqu'à la cible. [66][67]. Le déphasage entre le faisceau de référence et le faisceau réfléchi par la cible en mouvement va générer un phénomène d'interférence. Une oscillation de l'intensité du signal lumineux sera mesurée à chaque fois que la surface se déplace d'une moitié longueur d'onde. En traçant ces oscillations dans le temps, il sera possible de calculer la vitesse de déplacement en mesurant la fréquence du signal et en connaissant la longueur d'onde. Une transformée de Fourier par fenêtre glissante est appliquée au signal afin d'extraire la vitesse de la surface libre. A partir de l'utilisation des polaires de choc $P(u)$ pour chaque essai, il sera ainsi possible de déterminer la pression de choc dans le matériau visé en mesurant sa vitesse particulière, tout comme dans les matériaux le précédant. De plus, grâce au signal généré par les diodes, il sera possible de superposer l'émission du rayonnement avec le profil de vitesse pour déterminer dans quel état l'échantillon a été sondé (avant, pendant ou après l'état de choc visé). Du fait de l'opacité de la fenêtre enclume pour la longueur d'onde du laser utilisé (1550 nm) pour la mesure de vitesse, celle-ci ne pourra pas se faire à l'interface avec l'étain mais à sa surface libre.
- Détecteur de rayons X associés à la source X : les figures de diffraction sont détectées sur des plaques images Fuji BAS MS de taille variable. La réponse de ces plaques a été caractérisée par Meadowcroft et al. [64]. Ces plaques sont ensuite numérisées grâce à un scanner FLA 7000 (General Electrics). Pour chaque scan de plaque, le scanner utilise une correction interne automatique en fonction du niveau d'irradiation de la plaque dont la fonction n'est pas connue. Ainsi il n'est pas possible de comparer directement le niveau de gris entre plusieurs clichés ni de calculer la correspondance entre le niveau de gris de l'image et le nombre de photons incident pour chaque pixel. Les figures de diffraction étant très peu intenses, la sensibilité du détecteur est réglée au maximum avec une résolution de scan de $100 \mu\text{m}/\text{pixel}$.

Le collage des différents matériaux constituant la cible est effectué avec la colle AY103 (Araldite) ayant un temps de séchage de 24h entre chaque collage. Les aiguilles de déclenchement ainsi que la tête optique sont collées sur un porte-tête fabriqué par impression 3D avec une colle cyanoacrylate (Loctite). Le porte-tête est ensuite fixé à la cible par des vis en nylon permettant de plaquer le tout en bouche du lanceur.

La vitesse d'impact du projectile est calculée en fonction de la pression désirée à l'interface avec la fenêtre enclume et des différents matériaux traversés. Pour cela, l'utilisation des polaires de choc est tout à fait adaptée. La détermination des différents états sous choc des matériaux impliqués est illustrée en figure II.21.

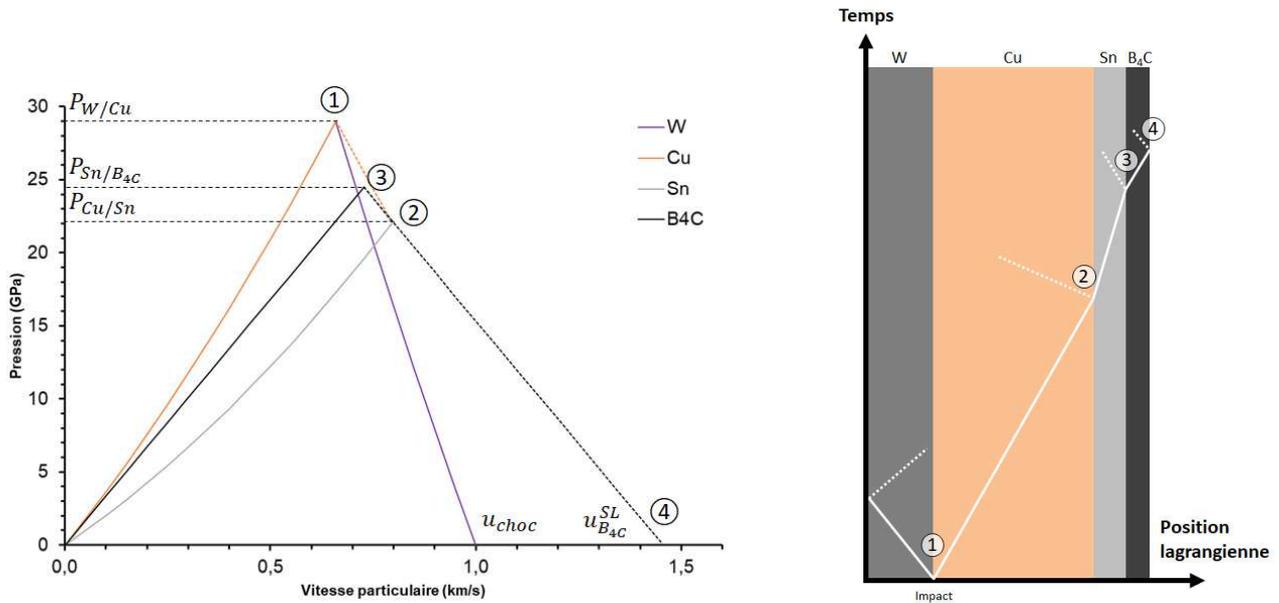


FIGURE II.21 – Détermination de la pression dans les matériaux avec les polaires de choc (gauche) et diagramme de marche correspondant (droite). Les ondes transmises sont en trait continu et les ondes réfléchies en pointillés. Les courbes de polaire de choc sont données à titre illustratif et ne prennent pas en compte les transitions des matériaux (changement de phase, passage en domaine plastique).

Un impacteur en tungstène (W) percute la plaque de transfert en cuivre (Cu) à une vitesse de 1 km/s. Cet impact va produire un choc portant les deux matériaux à une pression de 29 GPa (état 1). Cette onde de choc va se propager à la fois dans l'impacteur mais aussi dans la plaque de transfert jusqu'à l'interface avec l'étain (Sn). La différence d'impédance crée une onde de détente (réfléchi) et une onde de choc (transmise) portant les deux matériaux à une pression de 22 GPa (état 2)³. De la même manière, cette onde va se propager dans l'étain jusque dans l'interface avec la fenêtre enclume (B₄C) où la différence d'impédance va porter les matériaux à une pression voisine de 25 GPa (état 3). Enfin, la réflexion de l'onde de choc en surface libre du B₄C va accélérer la surface à une vitesse de 1,44 km/s (état 4), vitesse qui sera mesurée par l'IDF.

A travers l'étude bibliographique, on a constaté que la polaire de choc de l'étain ne subit pas de changement majeur lors du changement de phase aussi une seule polaire sera considérée pour les calculs. Les polaires de choc de matériaux peut être construits à partir de données existantes (Table II.8). En mesurant la vitesse en surface libre du B₄C et en utilisant l'approximation $u_{B_4C} = u_{B_4C}^{SL}/2$, il sera possible de calculer la pression à l'interface avec l'étain et la pression de choc. Cette méthode est aussi possible via la mesure de la vitesse d'impact pour vérifier la cohérence des mesures.

II.1.C.c Système de synchronisation

Le système de synchronisation a été développé en interne spécialement pour l'expérimentation. A cause des incertitudes expérimentales liées au fonctionnement du lanceur, il n'est pas possible de prédire avec précision le temps écoulé entre le départ de propulsion du projectile et l'arrivée de l'onde de choc à l'interface⁴. Il est plus simple d'estimer le temps de propagation des ondes de choc suite à l'impact en connaissant les matériaux présents dans la cible. Ce système doit être implémenté au plus près de la zone d'intérêt tout en prenant en compte le retard interne des différents composants du système.

3. On ne considère pas le changement de phase de l'étain dans cet exemple.

4. Le temps d'arrivée doit être connu avec une précision de quelques ns. Plus le déclenchement se fera loin de la cible, plus les incertitudes temporelles vont s'accumuler et dépasser la précision visée.

Matériau	ρ_0 (g/cm ³)	C_0 (km/s)	S	$Z_0 = \rho_0 \cdot C_0$
Cu	8,93	3,94	1,49	35,2
W	19,2	4,00	1,24	76,9
Sn	7,29	2,61	1,49	19,0
B ₄ C	2,51	13,8	0	26,9
PMMA	1,19	2,60	1,52	3,1
LiF	2,64	5,15	1,35	13,6
Ta	16,65	3,41	1,2	56,8
Al	2,78	5,33	1,34	14,8
Sn*	7,29	2,66	1,47	19,4

*Valeurs calculées d'après les données expérimentales issues de la bibliographie.

TABLE II.8 – Constantes utilisées pour calculer la polaire des matériaux dans l'étude

Dans cette configuration, le temps de propagation de l'onde de choc entre le déclenchement des aiguilles et l'interface est d'environ 1 μ s pour les vitesses d'impact les plus élevées de l'étude. Ce système est composé de plusieurs parties chacune permettant de mettre en forme le signal, le schéma général est donné en figure II.22.

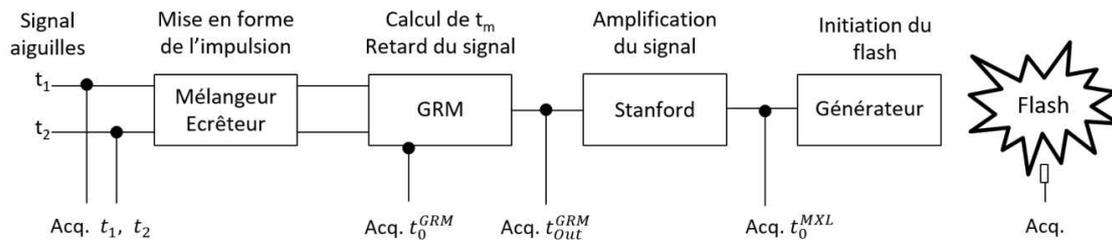


FIGURE II.22 – Schéma des éléments constitutifs de la chaîne de déclenchement

- Mélangeur écrêteur : le profil du signal t_1 et t_2 généré par les aiguilles (jusqu'à 80 V) est variable et comporte une composante de bruit assez importante capable de déclencher l'appareil suivant (0,3 V de tension de seuil). Cet appareil va permettre de mettre en forme une impulsion bas bruit, connue et reproductible à partir de l'impulsion générée par les aiguilles piézoélectriques à partir d'une tension seuil de 3 V. Le front de montée en tension des aiguilles pouvant ne pas être franc, un décalage de l'ordre de la nanoseconde peut avoir lieu. Cet appareil étant chargé de recopier deux voies indépendantes, un décalage supplémentaire ne doit pas être introduit entre les signaux d'entrée et de sortie. Le retard induit par toutes les voies utilisables par l'appareil a été caractérisé et les voies présentant un retard interne similaire ont été sélectionnées. Le retard interne a été mesuré à 40 ns.
- Générateur de retard médian (Greenfield technology) : cet appareil (GRM) est chargé de calculer le temps médian entre les deux aiguilles (détermination du temps de passage de l'onde de choc au centre de la cible) et de le retarder d'un temps déterminé par l'utilisateur (User Delay, UD). Un signal t_0^{GRM} est généré 117 ns après la réception du premier signal de l'aiguille. Le signal de sortie est l'équivalent du signal médian au centre de la cible retardé d'un temps défini par l'utilisateur plus un retard interne.

Plusieurs scenarii doivent être pris en compte en cas de fonctionnement anormal des aiguilles. En effet, si une des deux aiguilles ne fonctionne pas, la machine étant obligée d'attendre le deuxième signal pour calculer le retard, le déclenchement ne sera pas transmis à la suite de la chaîne et le déclenchement du générateur X n'aura pas lieu. Pour cette éventualité, un réglage supplémentaire est disponible : le Sensor Range (SR). Ce réglage définit le temps d'attente maximum de la machine avant de générer le signal de sortie. Il est aussi réglable par l'utilisateur en fonction de la configuration expérimentale. Typiquement, il est calculé pour le cas d'impact le plus défavorable possible avec le tilt maximum mesuré pour ce lanceur, à savoir 5 mrad comme illustré dans la figure II.23.

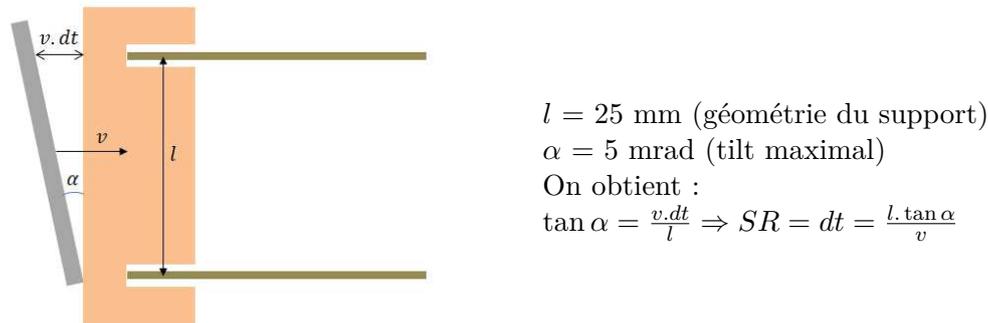


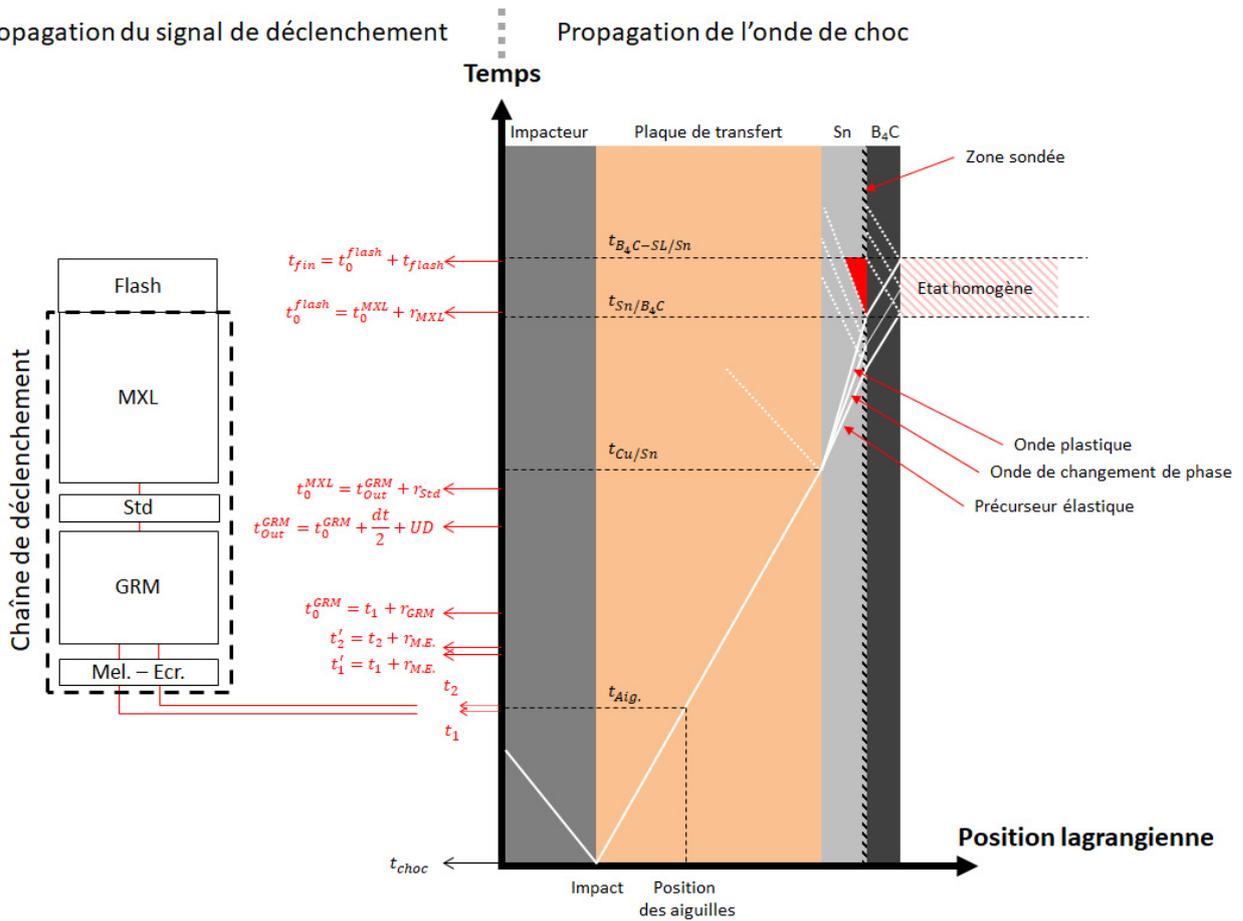
FIGURE II.23 – Schéma de calcul du SR

Si la deuxième aiguille n'émet pas le signal, le signal de sortie généré sera équivalent à celui d'un impact avec le tilt maximum. A l'inverse si c'est la première aiguille qui n'est pas détectée, l'émission va subir un retard conséquent. Ainsi le retard médian sera calculé en fonction du nombre d'aiguilles détectées : $r_m = dt/2$ si les deux aiguilles sont détectées sur un temps inférieur à SR ou $r_m = SR/2$ si une seule aiguille est détectée. Le retard utilisateur est calculé en effectuant la différence entre le temps de propagation de l'onde de choc jusqu'à l'interface et le temps de retard total des différents appareils de la chaîne. Dans un cas de fonctionnement nominal, le temps médian à la sortie du GRM est donc retardé par rapport à la première aiguille détectée du retard interne de la machine plus le retard utilisateur plus la moitié du décalage avec la deuxième aiguille.

- Générateur d'impulsions (Stanford) : l'impulsion d'amplitude 5V générée en sortie du GRM n'est pas suffisante pour déclencher le générateur X-Pinch. Une amplification est nécessaire pour dépasser une amplitude minimale de 10 V. Un générateur d'impulsions Stanford est donc utilisé pour générer un signal adéquat lors de la réception du signal issu du GRM. Là aussi un retard interne mesuré à 94 ns doit être pris en compte.
- Générateur X-Pinch : il existe un retard entre l'arrivée du signal issu du générateur d'impulsions et la détection du rayonnement X. Ce retard va dépendre de plusieurs paramètres expérimentaux dont la nature des fils. Il a été caractérisé sur de nombreux essais impliquant des fils d'or de diamètre 25 μm à une valeur de $460 \pm 10 \text{ ns}$.
- Câbles coaxiaux : les différents câbles utilisés pour connecter les différents appareils des aiguilles piézoélectriques induisent aussi un temps de retard du fait de la propagation du signal électrique. Ce retard est estimé à 5 ns par mètre de câble parcouru.

II.1.C.d Chronologie de l'essai

Le déroulement de l'essai peut être vu en suivant en parallèle la propagation de l'onde de choc et celle du signal de déclenchement des rayons X. Un schéma récapitulatif de la chronologie de l'essai est présenté en figure II.24. Elle présente à gauche la chronologie de la propagation du signal de déclenchement en parallèle de la propagation de l'onde de choc dans l'étain.



Les traits pleins correspondent aux ondes transmises et les pointillés aux ondes réfléchies.

FIGURE II.24 – Schéma récapitulatif de la chronologie de l'essai au niveau de la propagation du choc dans l'échantillon et du signal de déclenchement du rayonnement en parallèle : le retard est déterminé pour sonder un état homogène dans l'étain (zone rouge) à l'interface avec la fenêtre

Au moment de l'impact, deux ondes de choc sont générées à la fois dans l'impacteur et la plaque de transfert se propageant dans des directions opposées à des vitesses différentes portant les deux milieux à la pression $P_{W/Cu}$. On ignore la présence du précurseur élastique d'amplitude négligeable (Figure II.21). L'onde de choc se propage dans la plaque de transfert jusqu'à atteindre les aiguilles de déclenchement après avoir parcouru 2 mm. L'impact n'étant pas strictement plan, deux signaux temporels t_1 et t_2 sont générés par les aiguilles avec un écart dt . Le temps de passage médian t_m au centre de la cible étant compris entre t_1 et t_2 : $t_m = (t_1 + t_2)/2$. L'onde de choc se propage ensuite jusqu'à l'étain. Celui-ci étant moins impédant que le cuivre, une onde de détente va être réfléchiée dans celui-ci tandis qu'une onde de choc sera transmise dans l'étain, portant l'interface à la pression $P_{Cu/Sn}$ (Figure II.21). En considérant une pression supérieure au changement de phase, une structure à trois ondes se forme avec une première onde élastique de faible amplitude portant le matériau à la HEL, une deuxième onde portant le matériau à la pression de transition⁵ et une troisième onde portant le matériau à la pression finale $P_{Cu/Sn}$. On considère alors que cette dernière onde se propage dans le matériau sous la nouvelle phase. Ces trains d'ondes se transmettent ensuite à l'interface avec la fenêtre enclume.

En parallèle, les deux signaux de déclenchement sont reçus par le mélangeur-écrêteur qui va générer une impulsion pour chacun des signaux (t'_1 et t'_2) avec un retard r_{ME} ⁶. Ces signaux sont ensuite détectés par le GRM qui va générer une impulsion t_0^{GRM} avec un temps de retard r_{GRM} après la détection de la première impulsion, à savoir t'_1 . La seconde impulsion est détectée après un temps dt (inférieur au SR). Le GRM va générer une impulsion de sortie t_{Out}^{GRM} correspondant au temps médian entre les aiguilles retardées du retard utilisateur. L'impulsion de sortie va être amplifiée par le générateur d'impulsions Stanford avec un retard r_{Std} et transmise au générateur qui va initier le rayonnement avec un retard r_{MXL} . Le rayonnement doit être émis après que la dernière onde plastique ait atteint l'interface Sn/B₄C et doit être terminé avant le retour des ondes de détente issues de la surface libre du B₄C ce qui délimite à un état homogène de la zone sondée en diffraction X (épaisseur de quelques μm). Le temps d'aller-retour des ondes de choc est estimé à 70 ns avec une durée d'émission du rayonnement inférieure à 100 ns. Sonder cet état homogène est donc possible, mais nécessite une parfaite maîtrise de la synchronisation. On notera que la durée du flash étant légèrement supérieure à celle de l'état, une petite partie correspondant à l'état antérieur ou postérieur sera sondée.

5. Cette onde ne sera visible sur le profil de vitesse que pour une certaine gamme de pressions de choc. Au-delà de cette pression, une seule structure d'onde sera perçue portant le matériau à la pression finale.

6. Le retard induit par les différents câbles de connexion dans la chaîne de déclenchement n'est pas indiqué dans la figure mais pris en compte dans le calcul (5 ns/m).

II.2 Dynamic Compression Sector

Le synchrotron de l'Advanced Photon Source est situé à l'Argonne National Laboratory (Lemont, USA). Il est composé de plusieurs secteurs possédant les installations nécessaires pour utiliser les rayons X dans diverses disciplines. Le Dynamic Compression Sector est dédié à l'étude des matériaux sous sollicitation dynamique. Le rayonnement est alors utilisé pour effectuer aussi bien de l'imagerie que de la diffraction X.

II.2.A Moyens utilisés

II.2.A.a Génération de chocs

Ce secteur possède plusieurs moyens de sollicitation que ce soit par impact de plaques ou choc laser. Plusieurs moyens de sollicitation par impact de plaques sont disponibles : lanceur à gaz simple étage, double étage et lanceur à poudre. Dans l'étude, le lanceur à gaz simple étage a été utilisé. Celui-ci permet d'accélérer des projectiles de diamètre 1,27 cm (1/2") pour des vitesses comprises entre 0,3 et 1,1 km/s. Contrairement au lanceur Pyrène, la cible est mise sous vide au sein d'une chambre d'impact. Celle-ci possède des fenêtres en Lexan pour permettre l'entrée et la sortie du rayonnement X (Figure II.25).

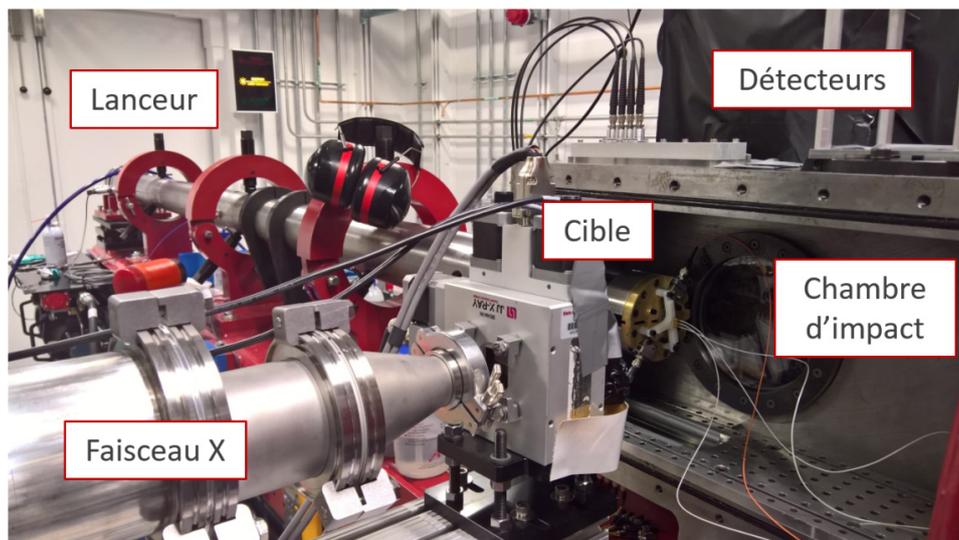


FIGURE II.25 – Configuration du lanceur utilisée pour la diffraction en réflexion au DCS

II.2.A.b Rayonnement synchrotron

Le synchrotron possède quatre modes de fonctionnement chacun générant un rayonnement avec des caractéristiques propres mais pouvant toutefois être ajustées selon les besoins de l'utilisateur. Un rayonnement blanc large bande (5 - 100 keV) peut être utilisé dans le cas de l'imagerie par contraste de phase (PCI). A l'inverse, un rayonnement monochromatique peut être employé à une énergie donnée avec une largeur de 0,01% de la gamme spectrale pour un rayonnement focalisé (3 - 35 keV) ou non focalisé (5 - 54 keV). Un rayonnement rose intermédiaire est aussi disponible avec une largeur de 1 à 5% de la bande spectrale entre 5 et 35 keV.

Pour procéder à la diffraction sur des monocristaux, le rayonnement doit comporter une gamme spectrale suffisante pour obtenir une figure de diffraction avec le maximum de points. Le profil du spectre utilisé est présenté en figure II.26 avec une énergie minimale avoisinant 18 keV jusqu'à 24 keV où le pic de d'intensité est atteint. Le rayonnement est généré par pulses de 100 ps séparés de 153,4 ns.

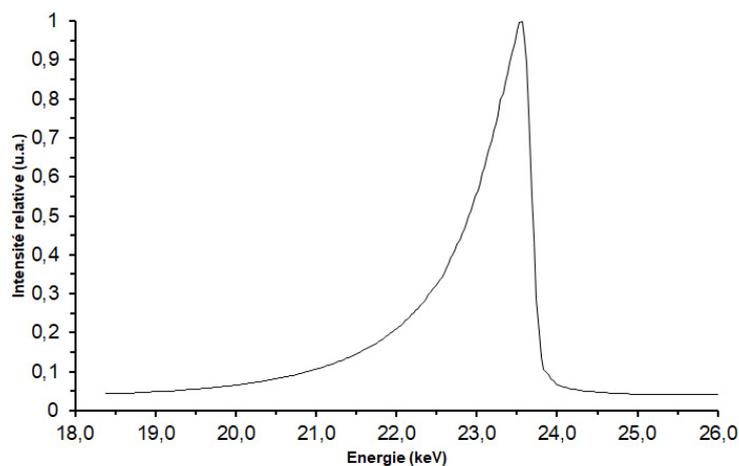


FIGURE II.26 – Spectre du rayonnement utilisé pour la diffraction à DCS

Au sein du détecteur, le rayonnement est détecté par un scintillateur qui convertit les rayons X en photon visibles par des caméras CCD. La lumière peut être redirigée sur une des 4 caméras présentes dans le détecteur. Ainsi, 4 images peuvent être acquises durant une seule expérience grâce à la synchronisation avec chaque pulse de rayon X. Il existe trois diamètres de détecteur possible : 75, 120 et 150 mm avec une sensibilité diminuant avec la taille. Les essais ont donc été menés avec le détecteur de plus petite taille possédant la meilleure sensibilité.

Une première campagne expérimentale a permis de s'assurer de la diffraction des différents échantillons d'étain utilisés en déterminant le meilleur angle d'incidence pour le spectre utilisé. Le détecteur de diamètre 120 mm était alors utilisé. L'ajout de fenêtres enclumes a aussi été testé afin de vérifier la possibilité d'obtenir une figure à l'angle optimal. Les paramètres retenus pour chaque monocristal sont présentés dans la figure II.27.

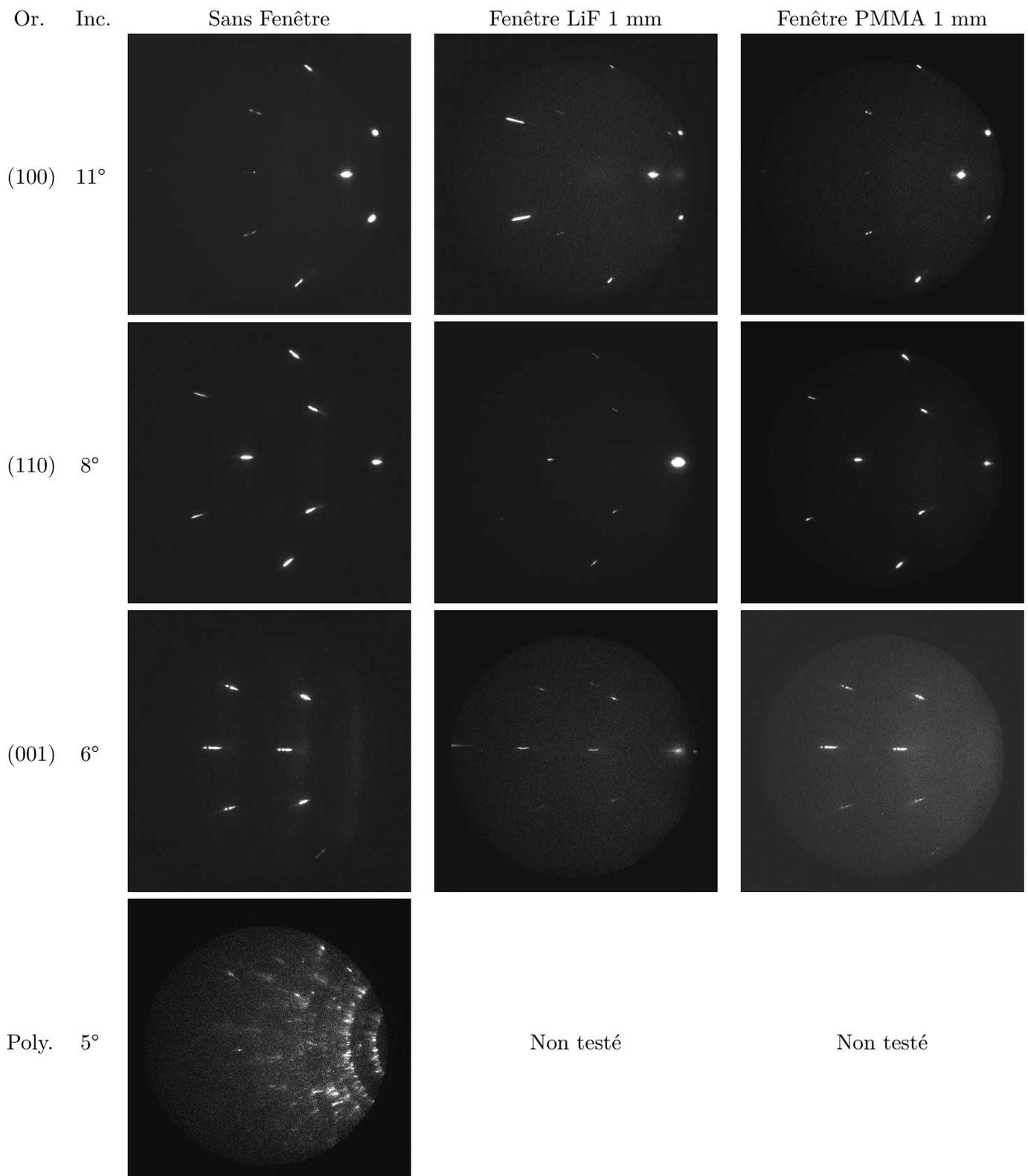


FIGURE II.27 – Récapitulatif des angles optimaux pour les différents monocristaux d'étain

Les figures de diffraction comportent un nombre satisfaisant de points pour permettre une identification facile de l'orientation du cristal même lors d'ajout d'une fenêtre. En effet, malgré la forte atténuation du LiF, une figure de diffraction est quand même obtenue. On constate l'apparition de point de diffractions du fait de l'utilisation de monocristaux de LiF, ceux-ci ont été orientés de manière à ce qu'un minimum de points de la figure soient détectés sans se superposer aux points de l'étain. Le PMMA étant un polymère, il engendre une faible atténuation du faisceau. Sa structure amorphe ne présente pas de figure de diffraction de forte intensité. Des polycristaux d'étain ont aussi été testés sans fenêtre enclume. On observe une multitude de points répartis autour d'arc de cercles caractéristique d'un polycristal avec de gros grains. En effet, plus la taille de grains sera faible, plus le nombre d'entre eux recevant une illumination sera important et plus la figure de diffraction approchera d'un cercle. La figure de diffraction de cet échantillon n'a pas été jugée satisfaisante pour effectuer un essai sous choc, aussi l'influence d'une fenêtre enclume n'a pas été testée.

II.2.B Configuration expérimentale

Cette installation propose une configuration expérimentale adaptée pour pratiquer la diffraction X sous choc que ce soit en réflexion ou en transmission. Un système de synchronisation a aussi été développé pour s'adapter aux besoins de l'utilisateur.

II.2.B.a Géométrie du montage

Le montage expérimental est illustré en figure II.25. La géométrie de la cible utilisée est légèrement différente de celle du CEA Gramat (Figure II.28). La diffraction est toujours effectuée en réflexion avec l'angle d'incidence déterminé lors de la première campagne. Les dimensions du faisceau au niveau de la source étant fixées avec une hauteur de $800 \mu\text{m}$ et une largeur de $300 \mu\text{m}$. Le déclenchement du rayonnement X se fait par l'intermédiaire d'une barrière optique lorsque le passage du projectile engendre une baisse de 30% de l'intensité du laser. L'inclinaison du détecteur est différente de celle du CEA Gramat, en effet, ici la normale est directement perpendiculaire au faisceau incident adoptant une géométrie frontscattering. La position du détecteur peut être pilotée à distance grâce à des moteurs. Le réglage de l'angle d'incidence s'effectue en positionnant le lanceur à un angle adéquat par rapport au faisceau via l'utilisation de rails.

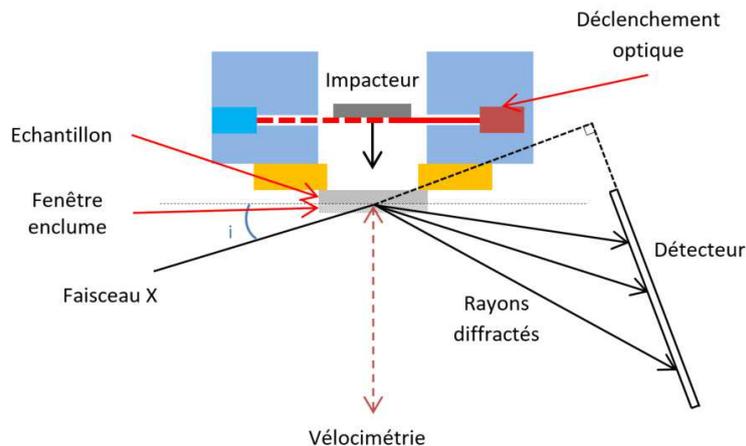


FIGURE II.28 – Schéma de la configuration expérimentale utilisée à DCS

La cible est constituée du monocristal d'étain de diamètre 20 mm et d'épaisseur 1 mm collé sur un rehausseur en laiton lui même vissé sur un porte-cible réutilisable. Une fenêtre enclume transparente d'épaisseur 0,5 mm et de diamètre 1 mm (LiF ou PMMA) est ensuite collée sur l'étain. L'ensemble des collages est effectué avec une colle époxy AB 9110 (Fiber Optic Center). Le projectile va directement impacter la cible en étain. Une mesure vélocimétrique par Interférométrie Doppler Fibrée (1550 nm) est aussi utilisée pour effectuer le recalage temporel entre le passage de l'onde de choc et l'émission du rayonnement. Les fenêtres enclume utilisées ici étant transparentes au rayonnement utilisé, la mesure de la vitesse peut se faire directement à l'interface avec l'étain. L'objectif est d'obtenir une image avant le débouché du choc sur l'étain correspondant à l'état ambiant, une image sur le plateau de choc et deux autres images pendant la détente. Pour régler la synchronisation, il est nécessaire de connaître le temps parcouru par le projectile puis par l'onde de choc dans l'échantillon. La distance parcourue par le projectile est mesurée lors de la fin de l'assemblage de la cible. Une très grande précision sur la vitesse d'impact par rapport à la consigne est nécessaire pour assurer une bonne synchronisation, en effet, un écart de quelques mètres par seconde peut induire une incertitude du temps de trajet de plusieurs dizaines de nanosecondes, en particulier pour de faibles vitesses d'impact.

La distance entre l'échantillon et le détecteur doit être la plus faible possible pour pouvoir détecter le maximum de points de diffraction compte tenu de la petite taille du détecteur. Celle-ci est contrainte par l'encombrement des divers composants de l'expérience et ne peut être inférieure à 10 cm. La diffraction à partir d'un échantillon de référence (Si polycristallin) est effectuée en amont pour valider la configuration avant de passer aux essais.

II.3 Bilan des moyens expérimentaux

Dans ce chapitre, deux moyens capables d'effectuer la diffraction X sous choc ont été présentés : le générateur X-Pinch et le rayonnement synchrotron, tous deux à travers le couplage avec un lanceur.

Le générateur X-Pinch est un moyen alternatif aux sources habituelles pouvant être implémenté à l'échelle du laboratoire. Ce générateur particulier a été caractérisé en termes d'émission spectrale et de taille de source. Le spectre émis est composé d'un faible fond continu polychromatique (Bremsstrahlung) utile pour étudier des monocristaux mais aussi de raies d'émission intenses (propres au matériau des fils) pouvant être utilisées pour étudier des polycristaux par exemple. A travers l'analyse de la taille de source, on identifie le chevauchement de plusieurs sources dans la gamme spectrale d'intérêt dont une première estimation de la taille a été effectuée à travers l'élaboration d'un outil numérique. Les mesures ont permis d'estimer la zone d'éclairement de l'échantillon en diffraction. Une étude plus approfondie pourrait être envisagée dans l'avenir pour mieux caractériser l'ensemble des sources. Malgré un profil d'intensité émise non reproductible, cette source présente des caractéristiques satisfaisantes pour pouvoir effectuer la diffraction X. Des essais statiques ont permis de démontrer la capacité de ce système à fournir des figures de diffraction exploitables.

Un système spécifique a été conçu pour pouvoir coupler ce générateur à un lanceur à gaz à travers la mise en place d'une géométrie cible et d'un système de synchronisation adapté pour répondre aux fortes contraintes temporelles de ce type d'expérience. La mise en place de diagnostics de mesures lors des essais permet à la fois de vérifier la bonne synchronisation entre le passage de l'onde de choc et l'émission du rayonnement mais aussi de caractériser l'état du matériau sondé lors de la diffraction.

L'accès à une grande installation, le synchrotron de l'Advanced Photon Source, va aussi permettre de mettre en place des expériences similaires à travers une configuration propre. Le rayonnement utilisé est bien caractérisé et présente une meilleure reproductibilité avec un spectre en énergie différent. Cependant, l'accès restreint à ce type d'installation montre l'intérêt du développement d'expériences à plus petite échelle pour des études amont. La configuration expérimentale reste comparable à celle utilisée au CEA Gramat en utilisant une géométrie de cible et un système de synchronisation adaptés pour coupler le rayonnement synchrotron avec des moyens de sollicitation dynamique.

Chapitre III

Conception d'un outil de simulation des figures de diffraction

III.1 Revue des logiciels de simulation existants

Il existe plusieurs logiciels permettant de traiter les figures de diffraction de matériaux grâce à la prise en compte de nombreux paramètres. Cependant, parmi les logiciels référencés, aucun n'a permis de pouvoir analyser les figures de diffraction de matériaux monocristallins et polycristallins dans nos conditions expérimentales.

Le logiciel open source Dioptas [68] permet, à partir d'une calibration préalable, de procéder à l'intégration de l'image de diffraction pour obtenir un profil en 2θ à partir d'une longueur d'onde précise. Le résultat étant le fruit d'une intégration, il ne permet pas de mettre en avant les inhomogénéités de la figure de diffraction dans le cas où elle est constituée de points comme pour un monocristal ou un polycristal avec de gros grains. Ce logiciel est particulièrement adapté à l'analyse de figures issues de matériaux polycristallins. Le traitement de figures de diffraction de matériaux monocristallins va dépendre de leur orientation et nécessite de considérer un spectre polychromatique. Ce logiciel n'est pas adapté à ce type de traitement.

Le logiciel Crystal Maker¹ permet une visualisation de la maille de cristaux en trois dimensions. Divers outils sont disponibles pour créer, analyser et modifier les cristaux. Il permet aussi à partir du cristal en cours de visualisation de générer des figures de diffraction X que ce soit pour un monocristal ou un polycristal. La figure de diffraction du monocristal peut être directement générée à partir de la visualisation 3D de la maille et ce, en fonction de son orientation pour une gamme spectrale donnée. Les configurations de diffraction sont limitées au backscattering et au frontscattering et ne correspondent pas à notre configuration expérimentale utilisée plus complexe géométriquement. La figure de diffraction du polycristal se présente sous la forme d'un graphique présentant l'intensité diffractée en fonction de l'angle 2θ pour une longueur d'onde donnée. La figure issue d'un mélange étant aussi possible. Les figures de diffraction étant obtenues en deux dimensions, cette fonctionnalité s'avère limitée.

Les logiciels référencés ne permettent pas à la fois de traiter les figures de diffraction expérimentales obtenues en deux dimensions pour des monocristaux et des polycristaux. De plus, les configurations expérimentales limitées ne permettent pas de s'adapter à la géométrie du montage. Il a été décidé d'entreprendre la conception d'un outil de simulation des figures de diffraction en langage Python pour les matériaux monocristallins et polycristallins pouvant s'adapter à de nombreuses configurations expérimentales. Diverses fonctionnalités ont pu être ajoutées selon les besoins d'analyse. Pour vérifier la bonne cohérence des simulations obtenues, des comparaisons ont été faites avec les logiciels existants.

1. www.crystalmaker.com

III.2 Configuration du montage expérimental considéré

La conception d'un outil de simulation des figures de diffraction repose à la fois sur la connaissance de la réponse du matériau considéré lors de son irradiation mais aussi de la configuration spatiale relative des différents éléments utilisés pour effectuer la diffraction : source, échantillon et détecteur.

Pour effectuer les divers calculs, il est nécessaire de définir un espace dans lequel sont placés les différents éléments qui entrent en compte dans la diffraction. Il sera ainsi possible de définir leurs positions relatives et de tracer le trajet des différents faisceaux (indicent et diffractés) au sein de cet espace.

L'espace considéré est celui du laboratoire, un repère orthonormé va pouvoir être construit afin d'établir des coordonnées nécessaires au calcul. La construction d'autres repères (repère de l'échantillon et repère du détecteur) sera aussi requise pour effectuer les calculs. On pourra alors utiliser des matrices de passage pour pouvoir passer d'un repère à l'autre. Les différents repères utilisés sont illustrés en figure III.1 :

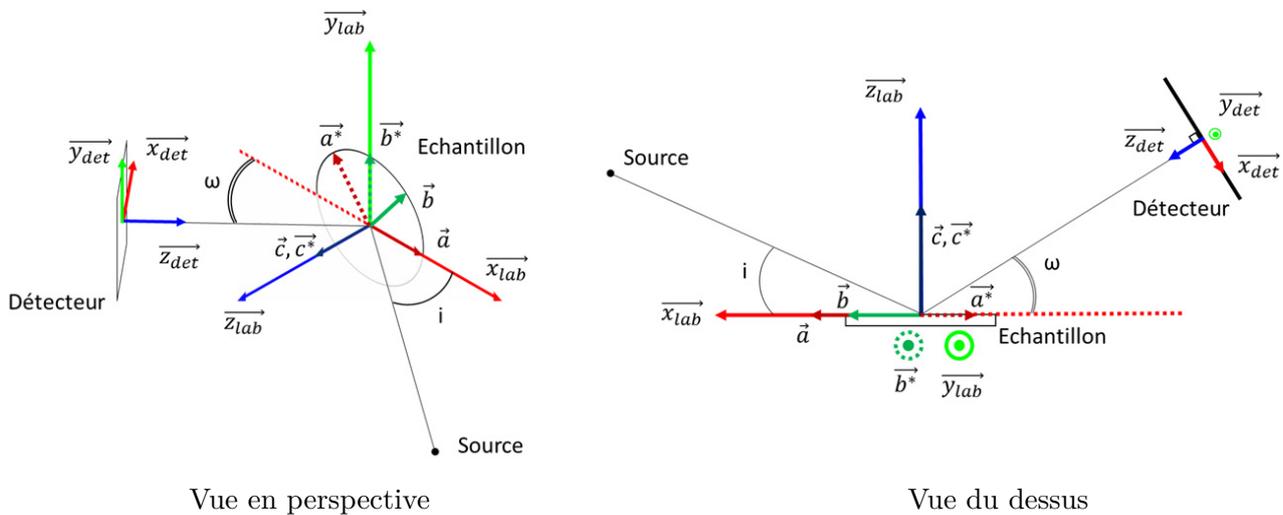


FIGURE III.1 – Configuration géométrique considérée dans le calcul avec les différents repères associés

- Repère du laboratoire (\vec{x}_{lab} , \vec{y}_{lab} , \vec{z}_{lab}) : Le repère du laboratoire est défini par les axes verticaux, horizontaux et par la normale à l'échantillon (direction de l'impact).
- Repère du cristal (si l'on considère un monocristal) : Repère cristallin de l'échantillon défini par les axes cristallographiques \vec{a} , \vec{b} , \vec{c} et les axes associés de l'espace réciproque \vec{a}^* , \vec{b}^* , \vec{c}^* , celui-ci n'étant pas nécessairement orthogonal². Pour faciliter les calculs, nous allons ramener les coordonnées de chacun des axes à un repère orthonormé en utilisant des critères spécifiques.
- Repère du détecteur : Repère dans lequel sont déterminées les coordonnées des points d'intersection des différents faisceaux dans le plan détecteur. La normale à ce plan permettant de situer l'écran dans l'espace avec un angle connu ω . L'origine du repère de l'écran est en pratique confondue avec les deux autres. Elle a été décalée dans la figure au niveau du plan du détecteur pour plus de lisibilité.

2. Seuls les réseaux cubique, orthorombique et tétragonal (quadratique) sont orthogonaux ($\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$).

Par construction, le rayonnement incident se situe dans le plan $(\vec{x}_{lab}, \vec{z}_{lab})$ qui constitue le plan d'incidence sur l'échantillon³. Ce rayonnement est représenté par un vecteur faisant un angle i avec le vecteur \vec{x}_{lab} . Cet angle sera négatif si le rayonnement arrive par derrière l'échantillon. La normale à l'écran appartient aussi au plan d'incidence et est caractérisé par un angle ω avec le vecteur $-\vec{x}_{lab}$. On considérera alors un angle négatif si la normale se situe derrière l'échantillon.

Les configurations couramment utilisées en back-scattering et front-scattering peuvent ainsi être simulées en reliant i et ω (Figure III.2). Les résultats pourront ainsi être comparés au logiciel de simulation de figures de diffraction Crystal Maker afin de vérifier leur cohérence.

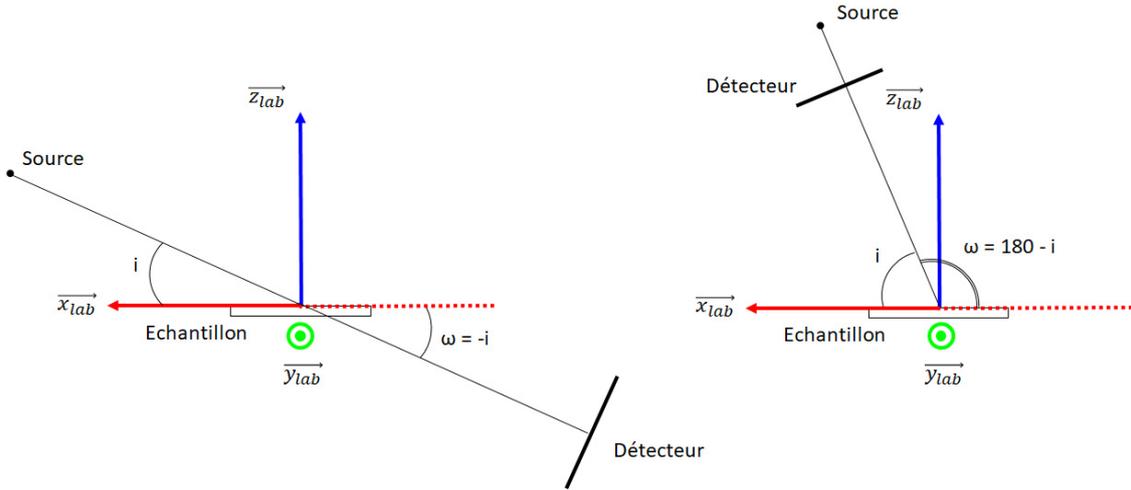


FIGURE III.2 – Configuration front-scattering à gauche et configuration back-scattering à droite

III.3 Outil de dépouillement des figures pour matériaux monocristallins

III.3.A Détermination des plans diffractant

La diffraction X par un matériau cristallin repose sur la ré-émission d'un rayonnement X par le cortège électronique dans une direction particulière du fait du phénomène d'interférences (diffusion élastique). L'organisation structurale locale des atomes est responsable de ce phénomène que ce soit un liquide ou un solide cristallin. Dans le cas particulier des matériaux cristallins, la théorie de la diffraction repose sur la ré-émission d'un rayonnement X pour de nombreux plans cristallins. La diffraction va être influencée à la fois par la structure du matériau mais aussi par la capacité d'interaction des atomes avec le rayonnement. L'intensité diffractée par un plan cristallin va être de la forme :

$$I \propto |G|^2 \cdot |F|^2 \quad (\text{III.1})$$

Avec G , le facteur de forme et F , le facteur de structure. Le facteur de forme va imposer que la diffraction du plan ne peut avoir lieu que sous certaines conditions respectant la loi de Bragg. Si tel est le cas, cette intensité sera modulée par le facteur de structure. Ainsi, des plans peuvent ne pas diffracter même si le facteur de forme est non nul du fait d'un facteur de structure nul.

3. A ne pas confondre avec le plan d'incidence pour un plan atomique constitué du rayon incident et de la normale au plan.

III.3.A.a Facteur de forme

La condition permettant d'obtenir un facteur de forme non nul pour un plan atomique est de vérifier la loi de Bragg :

$$2.d_{hkl} \cdot \sin \theta = n \cdot \lambda \quad (\text{III.2})$$

Avec d_{hkl} , la distance interréticulaire de la famille de plans $\{hkl\}$, θ , l'angle d'incidence du faisceau sur le plan et λ la longueur d'onde du faisceau. La valeur de d_{hkl} pour une maille atomique quelconque est donnée par :

$$d_{hkl} = \frac{1}{\sqrt{h^2 \cdot a^{*2} + k^2 \cdot b^{*2} + l^2 \cdot c^{*2} + 2 \cdot h \cdot k \cdot a^* \cdot b^* \cdot \cos(\gamma^*) + 2 \cdot k \cdot l \cdot b^* \cdot c^* \cdot \cos(\alpha^*) + 2 \cdot l \cdot h \cdot c^* \cdot a^* \cdot \cos(\beta^*)}} \quad (\text{III.3})$$

Avec :

- a , b et c les paramètres de la maille
- α , β et γ les angles correspondant respectivement aux angles $\widehat{b,c}$, $\widehat{a,c}$ et $\widehat{a,b}$
- $\alpha^* = a \cos \left(\cos \gamma \cdot \cos \beta - \frac{\cos \alpha}{\sin(\gamma) \cdot \sin(\beta)} \right)$
- $\beta^* = a \cos \left(\cos \alpha \cdot \cos \gamma - \frac{\cos \beta}{\sin(\alpha) \cdot \sin(\gamma)} \right)$
- $\gamma^* = a \cos \left(\cos \alpha \cdot \cos \beta - \frac{\cos \gamma}{\sin(\alpha) \cdot \sin(\beta)} \right)$
- $a^* = \frac{1}{a \cdot \sin(\beta) \cdot \sin(\gamma^*)}$
- $b^* = \frac{1}{b \cdot \sin(\gamma) \cdot \sin(\alpha^*)}$
- $c^* = \frac{1}{c \cdot \sin(\alpha) \cdot \sin(\beta^*)}$

Dans ces conditions, un rayonnement de même longueur d'onde sera renvoyé dans le plan d'incidence⁴ avec un angle identique à celui du rayonnement incident. Dans le cas d'un rayonnement polychromatique (variation de λ) ou divergent (variation de θ), la probabilité que cette condition soit respectée simultanément pour plusieurs plans différents est plus conséquente. Ainsi, plusieurs rayons peuvent alors être émis dans des directions particulières, formant une figure de diffraction représentative de la structure cristalline du matériau. L'interception de ces rayons avec un plan va former la figure de diffraction constituée d'un nuage de points.

Dans le cas d'un matériau polycristallin ou sous forme de poudre, le grand nombre de monocristaux sondés orientés de manière aléatoire au sein du matériau permet la diffraction de tous les plans à la fois pour une seule longueur d'onde considérée. Ainsi, les rayons seront diffractés dans toutes les directions en formant un cône et générant non pas des points mais des ellipses de diffraction lors de l'interception avec l'écran. Là encore, la position relative de ces ellipses sera révélatrice de la structure du matériau.

III.3.A.b Facteur de structure

Le calcul du facteur de structure va permettre en première approche de déterminer l'intensité diffractée par chacun des plans de la maille dont la loi de Bragg est satisfaite et d'en extraire l'intensité relative diffractée par chacun des plans. Ce calcul requiert au préalable de connaître la structure cristalline, en effet, pour un même matériau cette intensité est différente selon la structure adoptée.

4. Plan formé par le rayon incident et la normale au plan atomique considéré pour la diffraction.

Le calcul du facteur de structure est lui aussi spécifique au plan atomique considéré et est donné par la formule :

$$F_{hkl} = \sum_{maille} f_{element} \cdot \exp(-2i\pi(h.x + k.y + l.z)) \quad (III.4)$$

Avec $f_{element}$ le facteur de diffusion atomique de l'élément considéré, (h, k, l) les indices du plan considéré et (x, y, z) la position de l'élément dans la maille. Une étude a été menée par Brown et al. qui fournit des tables de coefficients polynomiaux approximant le facteur de diffusion de nombreux éléments. [69]

En pratique, on somme la contribution de tous les atomes de la maille obtenus par des translations non primitives du réseau c'est à dire son motif, pour chaque plan atomique (h, k, l) pondérée par $f_{element}$.

On peut prendre exemple sur un cristal de LiF (Fluorure de Lithium) adoptant une double structure cubique à face centrés contenant 8 atomes (Figure III.3). Le motif étant donné par 4 atomes de lithium en $(0, 0, 0)$, $(0,5; 0,5; 0)$, $(0,5; 0; 0,5)$ et $(0; 0,5; 0,5)$ ainsi que 4 atomes de fluor en $(0,5; 0; 0)$, $(0; 0,5; 0)$; $(0; 0; 0,5)$ et $(0,5; 0,5; 0,5)$. Le calcul du facteur de structure peut donc s'effectuer théoriquement :

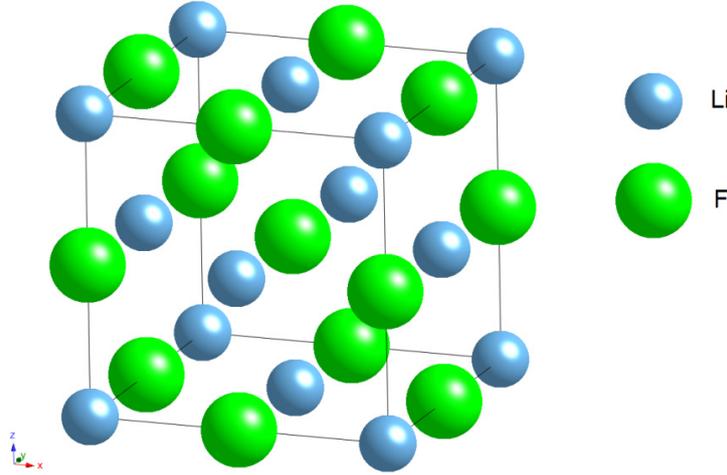


FIGURE III.3 – Représentation de la maille du LiF

$$\begin{aligned} F_{hkl} &= f_{Li} \cdot \exp(-2i\pi(h.0 + k.0 + l.0)) + f_{Li} \cdot \exp(-2i\pi(h/2 + k/2 + l.0)) + f_{Li} \cdot \exp(-2i\pi(h.0 + k/2 + l/2)) \\ &\quad + f_{Li} \cdot \exp(-2i\pi(h/2 + k.0 + l/2)) + f_F \cdot \exp(-2i\pi(h/2 + k.0 + l.0)) + f_F \cdot \exp(-2i\pi(h.0 + k/2 + l.0)) \\ &\quad + f_F \cdot \exp(-2i\pi(h.0 + k.0 + l/2)) + f_F \cdot \exp(-2i\pi(h/2 + k/2 + l/2)) \\ &= f_{Li} \cdot \left(1 + e^{-i\pi(h+k)} + e^{-i\pi(k+l)} + e^{-i\pi(h+l)}\right) + f_F \cdot \left(e^{-i\pi h} + e^{-i\pi k} + e^{-i\pi l} + e^{-i\pi(h+k+l)}\right) \\ &= f_{Li} \cdot \left(1 + e^{-i\pi(h+k)} + e^{-i\pi(k+l)} + e^{-i\pi(h+l)}\right) + f_F \cdot e^{-i\pi h} \cdot \left(1 + e^{-i\pi(k-h)} + e^{-i\pi(l-h)} + e^{-i\pi(k+l)}\right) \\ &= (f_{Li} + f_F \cdot e^{-i\pi h}) \cdot \left(1 + e^{-i\pi(h+k)} + e^{-i\pi(k+l)} + e^{-i\pi(k+l)}\right) \end{aligned}$$

Remarque : h, k et l étant des nombres entiers, $e^{-i\pi h} = e^{i\pi h} = (-1)^h$ on a donc : $e^{-i\pi(k+h)} = e^{-i\pi(k-h)}$

Il est est de même pour $e^{-i\pi(l-h)}$

On en déduit que $F_{hkl} \neq 0$ si h, k et l sont de même parité. Les plans dont les indices h, k et l ont une parité mixte auront une intensité diffractée nulle quand bien même la loi de Bragg serait respectée pour ce plan. D'une manière similaire, les cristaux cubiques centrés verront uniquement diffracter les plans ayant la somme des indices paire par exemple.

Ainsi, pour un cristal donné, il est possible de déterminer tous les plans diffractant ($I_{hkl} = |F_{hkl}^2|$) et leur efficacité relative pour construire la figure de diffraction. L'intensité absolue des plans n'étant pas donnée par la formule précédente, il est néanmoins possible de calculer l'intensité relative de chacun d'entre eux par rapport au plus intense : $I_{hkl_rel} = I_{hkl}/I_{max}$.

III.3.B Détermination des coordonnées des normales cristallines dans le repère du laboratoire

Le cristal pouvant avoir une géométrie quelconque, une méthode générale pouvant s'adapter doit être élaborée. Il va être question de déterminer les coordonnées de n'importe quelle normale du cristal orienté dans le repère du laboratoire. Le rayon diffracté sera déterminé comme étant le symétrique du rayon incident par rapport à cette normale et ce quel que soit la géométrie de la maille.

III.3.B.a Calcul des coordonnées des axes cristallographiques dans un repère orthonormé

On considère un cristal quelconque de paramètres de maille (a, b, c, α , β , γ). Afin de pouvoir utiliser simultanément les axes du réseau direct et du réseau réciproque⁵ dans l'orientation du cristal, on va associer à sa base une base orthonormée. Les coordonnées des vecteurs du réseau réciproque pouvant s'obtenir à partir des coordonnées du réseau direct :

$$\begin{cases} \vec{a}^* = \frac{\vec{b} \wedge \vec{c}}{V} \\ \vec{b}^* = \frac{\vec{c} \wedge \vec{a}}{V} \\ \vec{c}^* = \frac{\vec{a} \wedge \vec{b}}{V} \end{cases} \quad (III.5)$$

Avec $V = \vec{a} \cdot (\vec{b} \wedge \vec{c})$ représentant le volume de la maille.

On se place dans le cas de la figure III.4.

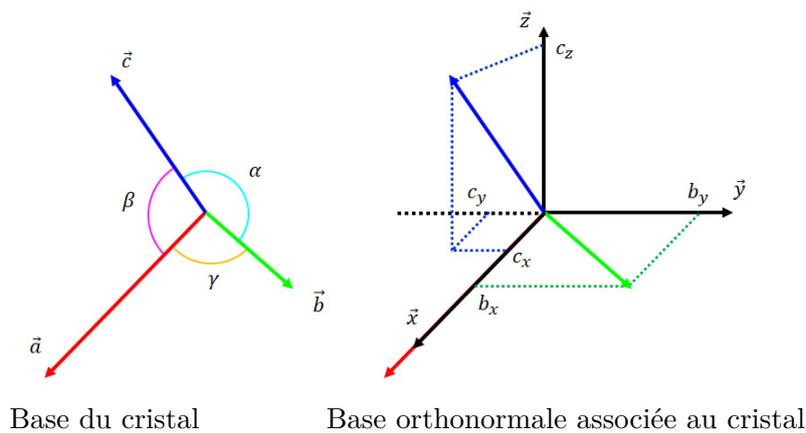


FIGURE III.4 – Schéma de passage du repère cristallin à une base orthonormale

5. Le réseau réciproque est un réseau complémentaire au réseau direct qui permet, entre autres, de déterminer l'orientation de la normale à chaque plan cristallin.

On pose (a_x, a_y, a_z) , les coordonnées de \vec{a} dans le repère orthonormal, de même pour \vec{b} et \vec{c} . Leur norme respective étant a, b et c . On définit premièrement \vec{a} tel que :

$$\vec{a} = a \cdot \vec{x} \quad (\text{III.6})$$

Le calcul des coordonnées de \vec{b} s'effectue en considérant que \vec{a} et \vec{b} se situent dans le plan (x,y) . On obtient alors :

$$\vec{b} = b \cdot \cos \gamma \cdot \vec{x} + b \cdot \sin(\gamma) \cdot \vec{y} \quad (\text{III.7})$$

Le calcul des coordonnées de l'axe \vec{c} est un peu plus délicat et passe par la résolution d'un système d'équations. Par construction, on sait que :

$$\begin{cases} \vec{a} \cdot \vec{c} = \|a\| \cdot \|c\| \cdot \cos \beta \\ \vec{b} \cdot \vec{c} = \|b\| \cdot \|c\| \cdot \cos \alpha \\ \|c\| = \sqrt{c_x^2 + c_y^2 + c_z^2} \end{cases} \quad (\text{III.8})$$

Connaissant les coordonnées de \vec{a} et \vec{b} , il va être possible d'en déduire les coordonnées de c . On obtient donc le système suivant :

$$\begin{cases} a_x \cdot c_x = a \cdot c \cdot \cos \beta \text{ avec } a_x = a \\ b_x \cdot c_x + b_y \cdot c_y = b \cdot c \cdot \cos \alpha \\ c = \sqrt{c_x^2 + c_y^2 + c_z^2} \end{cases} \quad (\text{III.9})$$

La résolution de ce système conduit aux coordonnées de c dans le repère :

$$\begin{cases} c_x = c \cdot \cos \beta \\ c_y = c \cdot \frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)} \\ c_z = c \cdot \sqrt{1 - \cos^2(\beta) - \left(\frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)} \right)^2} \end{cases} \quad (\text{III.10})$$

Finalement, on obtient les coordonnées suivantes :

$$\begin{cases} \vec{a} = \begin{pmatrix} a \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \\ \vec{b} = \begin{pmatrix} b \cdot \cos \gamma \\ b \cdot \sin \gamma \\ 0 \end{pmatrix} \\ \vec{c} = \begin{pmatrix} c \cdot \cos \beta \\ c \cdot \frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)} \\ c \cdot \sqrt{1 - \cos^2(\beta) - \left(\frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)} \right)^2} \end{pmatrix} \end{cases} \quad (\text{III.11})$$

La construction des vecteurs des réseaux réciproques dans cette base devient alors triviale (produit vectoriel) de même que n'importe quel vecteur du réseau cristallin ou réciproque par combinaison linéaire des vecteurs de leur base respective.

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{a}^* = \frac{1}{V} \cdot (\vec{b} \wedge \vec{c}) = \frac{1}{V} \cdot \begin{pmatrix} b_x \\ b_y \\ 0 \end{pmatrix} \wedge \begin{pmatrix} c_x \\ c_y \\ c_z \end{pmatrix} = \frac{1}{V} \cdot \begin{pmatrix} b_y \cdot c_z \\ -b_x \cdot c_z \\ b_x \cdot c_z - b_y \cdot c_x \end{pmatrix} = \frac{1}{V} \begin{pmatrix} b \cdot \sin \gamma \cdot c \cdot \sqrt{1 - \cos^2(\beta) - \left(\frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)}\right)^2} \\ -b \cdot \cos \gamma \cdot c \cdot \sqrt{1 - \cos^2(\beta) - \left(\frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)}\right)^2} \\ b \cdot \cos \gamma \cdot c \cdot \sqrt{1 - \cos^2(\beta) - \left(\frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)}\right)^2} - b \cdot \sin \gamma \cdot c \cdot \cos \beta \end{pmatrix} \\ \vec{b}^* = \frac{1}{V} \cdot (\vec{c} \wedge \vec{a}) = \frac{1}{V} \cdot \begin{pmatrix} c_x \\ c_y \\ c_z \end{pmatrix} \wedge \begin{pmatrix} a_x \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} = \frac{1}{V} \cdot \begin{pmatrix} 0 \\ c_z \cdot a_x \\ -c_y \cdot a_x \end{pmatrix} = \frac{1}{V} \begin{pmatrix} 0 \\ a \cdot c \cdot \sqrt{1 - \cos^2(\beta) - \left(\frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)}\right)^2} \\ -a \cdot c \cdot \frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)} \end{pmatrix} \\ \vec{c}^* = \frac{1}{V} \cdot (\vec{a} \wedge \vec{b}) = \frac{1}{V} \cdot \begin{pmatrix} a_x \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \wedge \begin{pmatrix} b_x \\ b_y \\ 0 \end{pmatrix} = \frac{1}{V} \cdot \begin{pmatrix} 0 \\ -a_x \cdot b_y \\ a_x \cdot b_y \end{pmatrix} = \frac{1}{V} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ a \cdot b \cdot \sin \gamma \end{pmatrix} \end{array} \right. \quad (\text{III.12})$$

$$\text{Avec } V = \vec{a} \cdot (\vec{b} \wedge \vec{c}) = a \cdot b \cdot \sin \gamma \cdot c \cdot \sqrt{1 - \cos^2(\beta) - \left(\frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)}\right)^2}$$

Il est possible d'exprimer les coordonnées des axes cristallins directs ou réciproque dans l'espace orthonormé associé à partir de leurs indices et de la combinaison linéaire des coordonnées des vecteurs de la base :

$$\vec{V} = \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix}_{\text{direct}} = u \cdot \begin{pmatrix} a_x \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}_{\text{ortho}_c} + v \cdot \begin{pmatrix} b_x \\ b_y \\ 0 \end{pmatrix}_{\text{ortho}_c} + w \cdot \begin{pmatrix} c_x \\ c_y \\ c_z \end{pmatrix}_{\text{ortho}_c} \quad (\text{III.13})$$

$$\vec{W} = \begin{pmatrix} h \\ k \\ l \end{pmatrix}_{\text{recip.}} = \frac{h}{V} \cdot \begin{pmatrix} b_y \cdot c_z \\ -b_x \cdot c_z \\ b_x \cdot c_z - b_y \cdot c_x \end{pmatrix}_{\text{ortho}_c} + \frac{k}{V} \cdot \begin{pmatrix} 0 \\ c_z \cdot a_x \\ -c_y \cdot a_x \end{pmatrix}_{\text{ortho}_c} + \frac{l}{V} \cdot \begin{pmatrix} 0 \\ -a_x \cdot b_y \\ a_x \cdot b_y \end{pmatrix}_{\text{ortho}_c} \quad (\text{III.14})$$

Il est aussi possible d'utiliser le calcul matriciel :

$$\vec{V} = \begin{pmatrix} a_x & b_x & c_x \\ 0 & b_y & c_y \\ 0 & 0 & c_z \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} \quad (\text{III.15})$$

$$\vec{W} = \frac{1}{V} \cdot \begin{pmatrix} b_y \cdot c_z & 0 & 0 \\ -b_x \cdot c_z & c_z \cdot a_x & -a_x \cdot b_y \\ b_x \cdot c_z - b_y \cdot c_x & -c_y \cdot a_x & a_x \cdot b_y \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} h \\ k \\ l \end{pmatrix} \quad (\text{III.16})$$

III.3.B.b Orientation du cristal dans le laboratoire

L'utilisation d'une matrice de changement de base va permettre d'exprimer les coordonnées de n'importe quelle normale du cristal au sein de son repère orthonormé dans le repère du laboratoire. Afin de construire cette matrice, il est nécessaire d'exprimer les coordonnées des vecteurs d'une base dans l'autre. La matrice inverse pouvant être obtenue en inversant la première matrice de passage comme expliqué dans l'annexe A.7. Le cristal pouvant être orienté, une matrice de passage différente devrait être construite pour chaque orientation du cristal. Expérimentalement, un nombre limité d'orientations est disponible, réduisant le nombre de ces matrices. Il est à noter que l'implémentation de calculs de rotations permettrait d'obtenir toutes les orientations possibles à partir d'une orientation initiale. Néanmoins, pour plus de facilité d'utilisation, différentes orientations initiales arbitraires ont été fixées, chacune ayant sa propre matrice de passage.

En pratique, il va être plus trivial de déterminer les coordonnées des vecteurs des axes de la base du laboratoire dans le repère orthonormé du cristal. On va choisir de faire correspondre la normale du plan (vecteur réciproque) de surface de l'échantillon avec l'axe \vec{z}_{lab} . Il va ensuite être nécessaire de déterminer deux autres vecteurs à faire correspondre aux axes \vec{x}_{lab} et \vec{y}_{lab} . Par construction d'un trièdre direct, il suffit de définir seulement un deuxième vecteur perpendiculaire, le troisième s'obtenant via un produit vectoriel entre les deux premiers.

Un exemple d'orientation d'un cristal cubique (110) est donnée en figure III.5. De par la configuration expérimentale, la normale à l'échantillon est aussi la normale au plan (110), c'est à dire $\vec{a}^* + \vec{b}^*$. On peut en déduire facilement un deuxième axe perpendiculaire à celui-ci à savoir l'axe \vec{c} .⁶ Le dernier axe obtenu par produit vectoriel des deux premiers correspond à $\vec{b}^* - \vec{a}^*$.

Pour chaque orientation considérée, en choisissant une rotation adéquate du cristal, il sera possible de définir facilement une combinaison de vecteurs du réseau direct qui correspond à un axe du laboratoire et qui est perpendiculaire à l'axe \vec{z} .

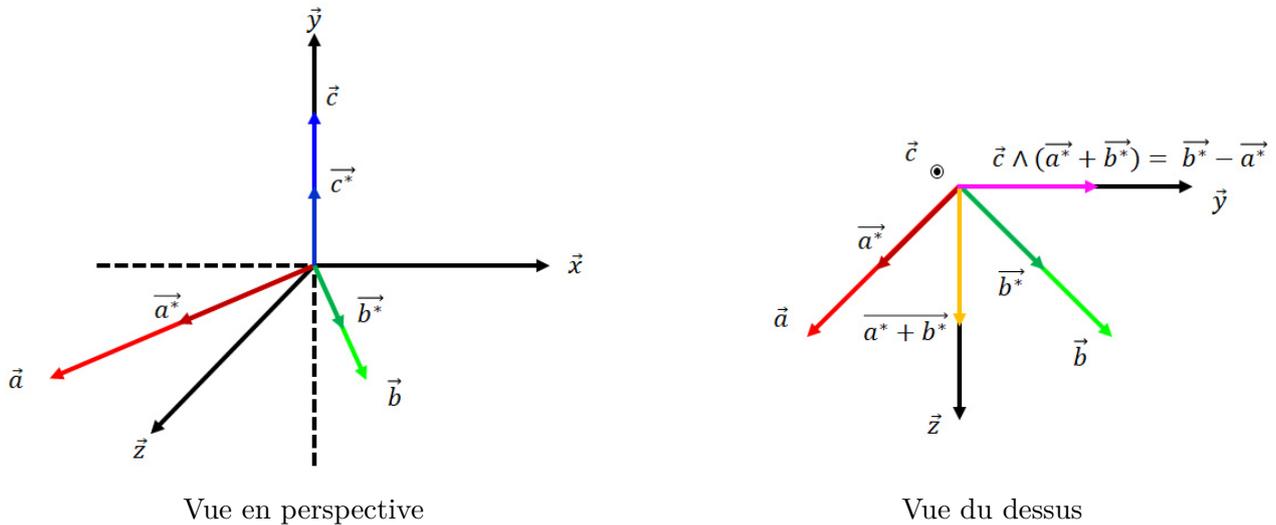


FIGURE III.5 – Exemple d'orientation d'un cristal cubique selon (110)

La liste des différentes orientations retenues est donnée dans la table III.1.

6. Par construction du réseau réciproque, l'axe \vec{c} est perpendiculaire à la fois à \vec{a}^* et \vec{b}^* du fait du produit vectoriel.

Orientation	\vec{z}_{lab}	\vec{x}_{lab}	\vec{y}_{lab}
(100)	\vec{a}^*	$\vec{c} \wedge \vec{a}^*$	\vec{c}
(010)	\vec{b}^*	\vec{c}	$\vec{b}^* \wedge \vec{c}$
(001)	\vec{c}^*	\vec{a}	$\vec{c}^* \wedge \vec{a}$
(110)	$\vec{a}^* + \vec{b}^*$	$\vec{c} \wedge (\vec{a}^* + \vec{b}^*)$	\vec{c}
(101)	$\vec{a}^* + \vec{c}^*$	$\vec{b} \wedge (\vec{a}^* + \vec{c}^*)$	\vec{b}
(011)	$\vec{b}^* + \vec{c}^*$	$\vec{a} \wedge (\vec{b}^* + \vec{c}^*)$	\vec{a}
(111)	$\vec{a}^* + \vec{b}^* + \vec{c}^*$	$-\vec{a} + \vec{b}$	$(\vec{a}^* + \vec{b}^* + \vec{c}^*) \wedge (-\vec{a} + \vec{b})$
(210)	$2\vec{a}^* + \vec{b}^*$	$\vec{c} \wedge 2\vec{a}^* + \vec{b}^*$	\vec{c}
(301)	$3\vec{a}^* + \vec{c}^*$	$\vec{b} \wedge 3\vec{a}^* + \vec{c}^*$	\vec{b}

TABLE III.1 – Orientations arbitraires des orientations initiales courantes possibles pour un monocristal. Les trois vecteurs proposés sont orthogonaux.

En associant les vecteurs exprimés dans la base orthonormée associée au cristal aux vecteurs du repère du laboratoire, on va pouvoir construire la matrice de passage $P_{Ortho_c,Lab}$ entre le laboratoire et le cristal. En effet, en reprenant l'exemple d'une orientation (110) dans la table III.2, on obtient les coordonnées requises.

Coordonnées dans le laboratoire	Axe cristallin	Coordonnées dans la base orthonormée associée au cristal
$\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}^*$	$\begin{pmatrix} a_x^* + b_x^* \\ a_y^* + b_y^* \\ a_z^* + b_z^* \end{pmatrix}$
$\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix} \wedge \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}^*$	$\begin{pmatrix} c_y \cdot (a_z^* + b_z^*) - c_z \cdot (a_y^* + b_y^*) \\ c_z \cdot (a_x^* + b_x^*) - c_x \cdot (a_z^* + b_z^*) \\ c_x \cdot (a_y^* + b_y^*) - c_y \cdot (a_x^* + b_x^*) \end{pmatrix}$
$\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}^*$	$\begin{pmatrix} c_x^* \\ c_y^* \\ c_z^* \end{pmatrix}$

TABLE III.2 – Expression des axes du repère du laboratoire dans la base orthonormée associée au cristal

Dans le cas (110), on peut en déduire les coordonnées pour passer du laboratoire à la base orthonormée par calcul matriciel de la manière suivante :

$$V_{ortho_c} = P_{Ortho_c,Lab} \cdot \begin{pmatrix} i \\ j \\ k \end{pmatrix}_{lab} = \begin{pmatrix} \vec{c} \wedge (\vec{a}^* + \vec{b}^*) & \vec{c} & \vec{a}^* + \vec{b}^* \\ c_y \cdot (a_z^* + b_z^*) - c_z \cdot (a_y^* + b_y^*) & c_x & a_x^* + b_x^* \\ c_z \cdot (a_x^* + b_x^*) - c_x \cdot (a_z^* + b_z^*) & c_y & a_y^* + b_y^* \\ c_x \cdot (a_y^* + b_y^*) - c_y \cdot (a_x^* + b_x^*) & c_z & a_z^* + b_z^* \end{pmatrix} \begin{pmatrix} i \\ j \\ k \end{pmatrix}_{lab} \quad (\text{III.17})$$

La matrice de passage obtenue va permettre de calculer les coordonnées des vecteurs du laboratoire dans le repère orthonormé du cristal. On va chercher à inverser la matrice pour le passage opposé et obtenir $P_{Lab,Ortho_c}$.

III.3.C Détermination des coordonnées des axes du détecteur dans le repère du laboratoire

Afin de pouvoir déterminer l'intersection des rayons diffractés avec le détecteur pour diverses positions de celui-ci, il va falloir définir un repère orthonormé supplémentaire correspondant à la position du détecteur. On pourra ensuite construire une matrice de passage entre le repère du laboratoire et celui de l'écran. Le placement relatif des deux repères est illustré dans la figure III.6.

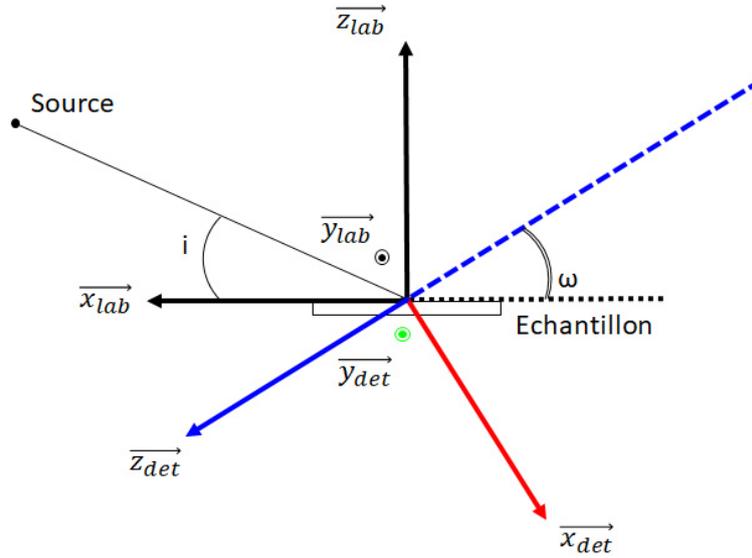


FIGURE III.6 – Orientation relative du repère du détecteur dans la repère du laboratoire vue du dessus

On va considérer l'angle entre la normale à l'écran et l'échantillon dans le plan $(\vec{x}_{lab}, \vec{z}_{lab})$ pour construire un premier axe. Par facilité de construction, on peut aussi définir un deuxième axe égal à l'axe \vec{y}_{lab} du repère du laboratoire. Les coordonnées du troisième vecteur s'obtenant géométriquement ou par produit vectoriel. On appelle \vec{z}_{det} le vecteur normal au plan du détecteur et $\vec{x}_{det}, \vec{y}_{det}$ les deux autres vecteurs restant dans le plan du détecteur.

On peut donc définir leurs coordonnées dans le repère du laboratoire :

Coordonnées dans le repère du détecteur	Coordonnées dans le repère du laboratoire
$\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} \cos \omega \\ 0 \\ -\sin \omega \end{pmatrix}$
$\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} -\sin \omega \\ 0 \\ -\cos \omega \end{pmatrix}$
$\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$

TABLE III.3 – Expression des axes du repère du détecteur dans le repère du laboratoire

On en déduit les coordonnées d'un vecteur quelconque du repère du détecteur dans le repère du laboratoire par calcul matriciel :

$$V_{lab} = \begin{pmatrix} -\sin \omega & 0 & \cos \omega \\ 0 & 1 & 0 \\ -\cos \omega & 0 & -\sin \omega \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} p \\ q \\ r \end{pmatrix}_{det} \quad (\text{III.18})$$

La distance entre l'échantillon et l'écran pouvant varier, il est évident que l'intersection entre les rayons diffractés et l'écran varie également. Plus l'écran sera éloigné, plus les points de diffraction seront espacés entre eux. Il n'est alors pas possible de récupérer les coordonnées (x,y) des rayons diffractés dans le repère de l'écran. Par ailleurs, plus un faisceau divergera de la normale à l'écran, plus il sera éloigné de l'origine de l'écran (voir III.3.E.c). Pour pouvoir directement récupérer les coordonnées du vecteur, il va être nécessaire de le normer à une valeur équivalente à la distance parcourue avant l'intersection avec l'écran. Cette norme va dépendre à la fois de la distance entre l'échantillon et l'écran au niveau de la normale à l'écran et de l'angle entre le rayon diffracté et l'inverse de la normale à l'écran. En effet si cet angle est supérieur à 90°, le rayon n'interceptera jamais l'écran. Connaissant les coordonnées de chaque rayon diffracté et de la normale à l'écran, il est alors possible de les normer :

$$\overrightarrow{r_{hkl}} = \frac{\overrightarrow{r_{hkl}}}{\|\overrightarrow{r_{hkl}}\|} \cdot \frac{d}{\cos(\epsilon)} \quad (\text{III.19})$$

Avec $\overrightarrow{r_{hkl}}$, le rayon diffracté⁷, d , la distance entre l'écran et l'échantillon au niveau de la normale à l'écran et ϵ l'angle entre le rayon diffracté et l'inverse de la normale à l'écran.

Les coordonnées du vecteur dans le plan de l'écran correspondront donc à la position des taches de diffraction des différents plans.

III.3.D Construction des matrices de passage

Grâce aux calculs précédents, il a été possible de construire les relations entre les axes appartenant aux bases des différents repères dans le repère du laboratoire. Les différentes matrices de passage peuvent alors être construites.

⁷. $\overrightarrow{r_{hkl}}$ est normalement déjà normalisé car c'est le symétrique du vecteur correspondant au rayon incident qui est normalisé.

Matrice de passage permettant d'obtenir les coordonnées des vecteurs du réseau direct dans le repère orthonormé

$$P_{Ortho_c,Dir} = \begin{pmatrix} a & b \cdot \cos \gamma & c \cdot \cos \beta \\ 0 & b \cdot \sin \gamma & c \cdot \frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)} \\ 0 & 0 & c \cdot \sqrt{1 - \cos^2(\beta) - \left(\frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)}\right)^2} \end{pmatrix} \quad (\text{III.20})$$

Matrice de passage permettant d'obtenir les coordonnées des vecteurs du réseau réciproque dans le repère orthonormé

$$P_{Ortho_c,Rec} = \frac{1}{a \cdot b \cdot \cos \gamma \cdot c \cdot \sqrt{1 - \cos^2(\beta) - \left(\frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)}\right)^2}} \begin{pmatrix} b \cdot \sin \gamma \cdot c \cdot \sqrt{1 - \cos^2(\beta) - \left(\frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)}\right)^2} & 0 & 0 \\ -b \cdot \cos \gamma \cdot c \cdot \sqrt{1 - \cos^2(\beta) - \left(\frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)}\right)^2} & a \cdot c \cdot \sqrt{1 - \cos^2(\beta) - \left(\frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)}\right)^2} & -a \cdot b \cdot \sin \gamma \\ b \cdot \cos \gamma \cdot c \cdot \sqrt{1 - \cos^2(\beta) - \left(\frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)}\right)^2} - b \cdot \sin \gamma \cdot c \cdot \cos \beta & -a \cdot c \cdot \frac{\cos \alpha - \cos \gamma \cdot \cos \beta}{\sin(\gamma)} & a \cdot b \cdot \sin \gamma \end{pmatrix} \quad (\text{III.21})$$

Matrice de passage permettant d'obtenir les coordonnées des vecteurs du repère orthonormé du cristal dans le laboratoire

La matrice est dépendante de l'orientation du cristal. On peut se ramener au paragraphe III.3.B.b pour sa détermination. Il suffit ensuite d'utiliser uniquement les valeurs de a , b , c , α , β et γ . Cette matrice permettant de déterminer les coordonnées des vecteurs du laboratoire dans le repère orthonormé associé au cristal, il suffit de l'inverser pour obtenir les passages inverses.

$$P_{Lab,Ortho_c} = P_{Ortho_c,Lab}^{-1} \quad (\text{III.22})$$

Matrice de passage permettant d'obtenir les coordonnées des vecteurs du repère du détecteur dans le laboratoire

$$P_{Lab,Det} = \begin{pmatrix} -\sin \omega & 0 & \cos \omega \\ 0 & 1 & 0 \\ -\cos \omega & 0 & -\sin \omega \end{pmatrix} \quad (\text{III.23})$$

Matrice de passage permettant d'effectuer une rotation autour d'un axe

Pour prendre en compte des rotations du cristal autour des axes du laboratoire, l'utilisation d'une matrice de rotation est nécessaire. La formule générale est donnée ici pour une rotation d'un angle φ autour d'un vecteur quelconque de coordonnées (x, y, z) :

$$M_{rot_axe} = \begin{pmatrix} x^2 \cdot (1 - \cos(\varphi)) + \cos(\varphi) & x \cdot y \cdot (1 - \cos(\varphi)) - z \cdot \sin(\varphi) & x \cdot z \cdot (1 - \cos(\varphi)) + a_y \cdot \sin(\varphi) \\ x \cdot y \cdot (1 - \cos(\varphi)) + z \cdot \sin(\varphi) & y^2 \cdot (1 - \cos(\varphi)) + \cos(\varphi) & y \cdot z \cdot (1 - \cos(\varphi)) - a_x \cdot \sin(\varphi) \\ x \cdot z \cdot (1 - \cos(\varphi)) - y \cdot \sin(\varphi) & y \cdot z \cdot (1 - \cos(\varphi)) + x \cdot \sin(\varphi) & z^2 \cdot (1 - \cos(\varphi)) + \cos(\varphi) \end{pmatrix} \quad (\text{III.24})$$

La rotation est positive dans le sens trigonométrique lorsque le vecteur pointe vers l'observateur. Les matrices de rotation autour des axes de la base s'obtiennent en remplaçant les coordonnées x , y et z par des valeurs adéquates.

III.3.E Etapes de calcul

Les éléments permettant de ramener tous les calculs dans le repère du laboratoire ayant été définis. La figure de diffraction est déterminée à travers plusieurs étapes de calcul.

III.3.E.a Initialisation du cristal

Les paramètres de la maille du cristal vont permettre d'orienter les différentes normales des plans diffractant ainsi que de déterminer l'intensité relative diffractée. Ces paramètres peuvent être stockés dans un fichier d'entrée contenant toutes les informations nécessaires pour un matériau et une phase donnée. Le fichier doit contenir les paramètres de maille a , b , c , α , β et γ . Il doit aussi contenir la position des différents atomes dans la maille. Enfin, pour chaque élément, il doit indiquer les coefficients polynomiaux permettant de calculer le facteur de structure de chaque plan comme présenté dans le travail de Brown et al. [69]. Un exemple de fichier à passer en paramètre pour le B_4C est donné en annexe A.8.

Dans la suite, il va être question de déterminer tous les plans diffractant avec une intensité non nulle. Ainsi, sur une plage de valeurs h , k , l donnée, pour chacune des combinaisons, la capacité de diffraction du plan correspondant est évaluée avec l'intensité correspondante. Une liste de plans pouvant diffracter est alors établie. L'intensité de chaque plan de la liste est alors normalisée par la plus grande intensité. Selon les besoins de l'utilisateur, seuls certains plans dont l'intensité relative sera supérieure à un seuil donné seront affichés dans le résultat final. Il est également possible de changer directement les valeurs des paramètres de maille dans l'interface pour simuler une déformation due à une contrainte par exemple.

III.3.E.b Tracé des rayons diffractés

Une fois la liste des plans pouvant diffracter effectuée, il va être question de déterminer le trajet des rayons diffractés dans le laboratoire. Pour un plan donné, le rayon diffracté est déterminé par le symétrique du rayon incident par rapport à la normale du plan. En d'autres termes, le rayon diffracté est ré-émis avec un angle égal à l'angle d'incidence sur le plan atomique considéré. Pour cela, il faut à la fois connaître les coordonnées de la normale du plan ainsi que du rayonnement incident dans le repère du laboratoire.

Expérimentalement, le rayonnement incident \vec{r}_i appartient au plan $(\vec{x}_{lab}, \vec{z}_{lab})$ dans le laboratoire, faisant un angle i avec \vec{x}_{lab} (Figure III.1). Celui-ci est représenté par le vecteur $(\cos i; 0; \sin i)$ de norme unité dans le repère du laboratoire. Il est important de ne pas confondre l'angle d'incidence sur l'échantillon et l'angle d'incidence sur le cristal. En effet, du fait d'incertitudes de fabrication, la surface de l'échantillon peut ne pas être correctement orientée par rapport au plan cristallin considéré. L'angle d'incidence mesuré expérimentalement peut alors être différent de l'angle d'incidence réel sur le cristal. Pour chaque plan (h,k,l) déterminé précédemment, on peut déterminer la position de sa normale dans le repère du laboratoire à partir des matrices de passage et des indices h , k et l :

$$\vec{n}_{hkl_lab} = P_{Lab,Ortho_c} \cdot P_{Ortho_c,Rec} \cdot \begin{pmatrix} h \\ k \\ l \end{pmatrix} \quad (III.25)$$

Un cas de figure en deux dimensions est illustré dans la figure III.7.

On considère un plan (h,k,l) quelconque capable de diffracter parmi la liste des plans déterminés précédemment. Pour que la diffraction soit effective, la loi de Bragg doit être respectée et est régie par les conditions expérimentales. On a donc la relation $2 \cdot d_{hkl} \cdot \sin i_{hkl} = \lambda$ qui doit être vérifiée en considérant la diffraction au premier ordre ($n = 1$ dans l'équation III.2). L'angle d'incidence sur le plan atomique est fixé du fait de l'orientation du monocristal dans l'espace et du rayonnement incident fixe.

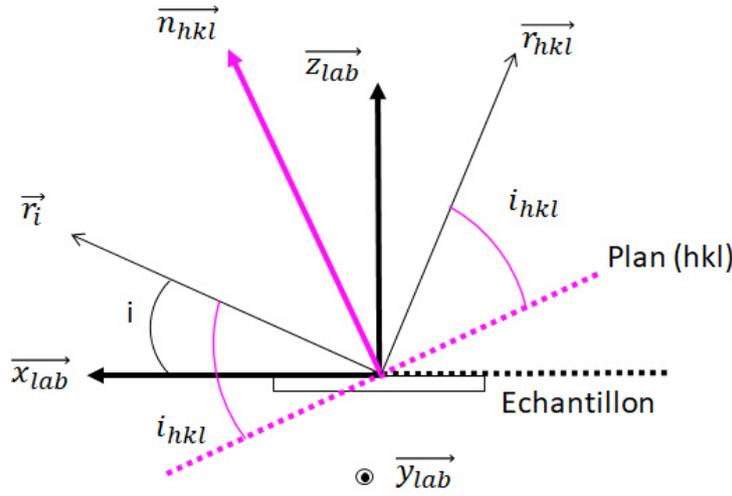


FIGURE III.7 – Exemple de détermination du rayon diffracté pour un plan quelconque (h,k,l) remplissant les conditions de diffraction

La longueur d'onde λ est donnée par la gamme spectrale du rayonnement que l'on considère blanc ici.⁸ Pour chaque plan (h,k,l), l'angle d'incidence sur celui-ci va pouvoir être déterminé mathématiquement connaissant les coordonnées des vecteurs du rayonnement incident et de la normale du plan.

$$i_{hkl} = \arccos \left(\frac{\vec{r}_i \cdot \vec{n}_{hkl}}{\|\vec{r}_i\| \cdot \|\vec{n}_{hkl}\|} \right) \quad (\text{III.26})$$

Connaissant l'angle d'incidence et la distance interréticulaire, on est capable de déterminer la longueur d'onde correspondante pour la diffraction. Dans le cas où celle-ci se situe dans la gamme spectrale de la source passée en paramètre, les coordonnées du rayon diffracté \vec{r}_{hkl} dans le repère du laboratoire peuvent être calculés. Pour cela, une relation vectorielle peut être construite comme illustré dans l'annexe A.9.

A partir des coordonnées du rayon incident et de la normale au plan, les coordonnées du rayon diffracté dans le repère du laboratoire sont obtenues :

$$\vec{r}_{hkl_lab} = -\vec{r}_{i_lab} + 2 \cdot \frac{\vec{r}_{i_lab} \cdot \vec{n}_{hkl_lab}}{\|\vec{n}_{hkl_lab}\|^2} \vec{n}_{hkl_lab} \quad (\text{III.27})$$

Pour rendre compte plus précisément des conditions expérimentales, il a été décidé de pouvoir exercer des rotations du cristal autour des axes du laboratoire. Ces rotations peuvent être implémentées via l'utilisation de matrices de transformation à appliquer à un vecteur. Pour représenter la rotation du cristal selon les trois axes, il suffit donc d'appliquer successivement ces matrices à chaque normale du plan. Les matrices de rotation R_x , R_y et R_z respectivement autour des axes \vec{x}_{lab} , \vec{y}_{lab} et \vec{z}_{lab} s'obtiennent par simplification de la formule III.24.

$$R_x = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(\theta) & -\sin(\theta) \\ 0 & \sin(\theta) & \cos(\theta) \end{pmatrix} \quad R_y = \begin{pmatrix} \cos(\varphi) & 0 & \sin(\varphi) \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin(\varphi) & 0 & \cos(\varphi) \end{pmatrix} \quad R_z = \begin{pmatrix} \cos(\omega) & -\sin(\omega) & 0 \\ \sin(\omega) & \cos(\omega) & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

8. C'est à dire que toutes les longueurs d'ondes dans cet intervalle ont la même intensité.

L'application des rotations n'étant pas commutatif, il convient de choisir l'ordre dans lequel on applique ces rotations. Expérimentalement, on va venir placer le monocristal orienté selon une normale spécifique dans le repère. La première incertitude réside dans la rotation du cristal sur lui-même du fait de l'imprécision lors du collage ou du placement de l'échantillon équivalant à une rotation selon \vec{z}_{lab} . Cet échantillon tourné sur-lui-même peut alors subir une désorientation verticale, équivalente à une rotation selon \vec{x}_{lab} (tilt vertical) ou bien horizontale équivalente à une rotation selon \vec{y}_{lab} (tilt horizontal). Il a été décidé d'appliquer d'abord le tilt vertical de l'échantillon puis le tilt horizontal. En effet, le tilt horizontal revient à modifier directement l'angle d'incidence du faisceau incident sur l'échantillon. En appliquant cette rotation en dernier, il est directement possible d'obtenir la variation d'incidence sur le plan de la surface. Ainsi, avant de déterminer le rayon diffracté symétrique du rayon incident par rapport à la normale de chaque plan, on peut appliquer à chaque normale les rotations dans l'ordre pré-établi $R_{lab} = R_y \cdot R_x \cdot R_z$:

$$\vec{n}_{hkl_lab} = R_{lab} \cdot P_{Lab,Ortho_c} \cdot P_{Ortho_c,Rec} \cdot \begin{pmatrix} h \\ k \\ l \end{pmatrix} \quad (III.28)$$

III.3.E.c Détermination de l'intersection des rayons diffractés avec le détecteur

Les coordonnées des vecteurs diffractés ont été calculées dans le repère du laboratoire. Afin de pouvoir construire une figure de diffraction, leur intersection avec le plan du détecteur doit être établie. Ces coordonnées seront directement données par l'application de la matrice de passage construite précédemment. Cependant, la distance d'éloignement du détecteur par rapport à l'échantillon doit être prise en compte. En effet, plus l'écran sera éloigné, plus les points d'intersection des différents rayons seront éloignés les uns des autres comme illustré dans la figure III.8. Par ailleurs, seuls les rayons diffractés se dirigeant effectivement vers l'écran doivent être pris en compte. En effet, en appliquant la matrice de passage pour passer dans le repère du détecteur, les vecteurs ayant les mêmes coordonnées dans le plan (x_{det}, y_{det}) peuvent ne pas intersecter le détecteur.

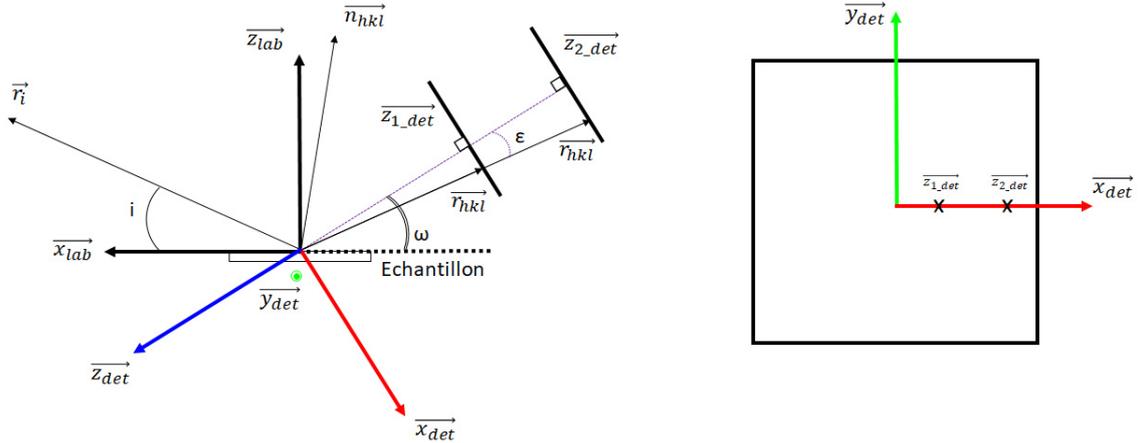


FIGURE III.8 – Exemple d'éloignement des points constitutifs de la figure de diffraction pour deux distances différentes entre le détecteur et l'échantillon

Ainsi, pour chaque rayon diffracté, celui-ci ne sera pris en compte dans l'élaboration de la figure que s'il forme un angle inférieur à 90° avec $-\vec{z}_{det}$. L'intersection de celui-ci avec le détecteur devra prendre en compte la distance effective entre le détecteur et l'échantillon pour traduire l'éloignement de celui-ci lors de la projection dans le plan $(\vec{x}_{det}, \vec{y}_{det})$. Par construction, on va définir la distance entre l'échantillon et le détecteur comme étant la distance entre l'origine du repère du laboratoire et le détecteur sur la droite passant par \vec{z}_{det} . Afin de déterminer la vraie projection des rayons diffractés dans le plan $(\vec{x}_{det}, \vec{y}_{det})$, il est possible de normer chaque vecteur par la distance entre l'origine du repère et le détecteur sur la droite issue du rayon diffracté. Par définition, le vecteur rayon diffracté est de norme unité tout comme le vecteur rayon incident. Le changement de base entre la laboratoire et le détecteur se faisant entre bases orthonormées, la norme se conserve. Il suffit donc de multiplier les coordonnées du vecteur rayon diffracté par la distance avant d'effectuer le changement de base par calcul matriciel. Pour n'importe quel rayon diffracté dans l'espace, la distance est déterminée dans le triangle rectangle formé par le rayon diffracté et $-\vec{z}_{det}$ (séparés par un angle ε , voir figure III.8). Les coordonnées de l'intersection $(x_{hkl_det}, y_{hkl_det})$ pour un plan sont donc les deux premières composantes du vecteur du rayon diffracté après normalisation et passage dans le repère du détecteur :

$$\vec{r}_{hkl_det} = \begin{pmatrix} x_{hkl_det} \\ y_{hkl_det} \\ z_{hkl_det} \end{pmatrix} = P_{Det,Lab} \cdot \frac{d_{ech_det}}{\cos \varepsilon} \cdot \begin{pmatrix} x_{hkl_lab} \\ y_{hkl_lab} \\ z_{hkl_lab} \end{pmatrix} \text{ avec } \varepsilon = \arccos \frac{-\vec{z}_{det_lab} \cdot \vec{r}_{hkl_lab}}{\|\vec{z}_{det_lab}\| \cdot \|\vec{r}_{hkl_lab}\|} \quad (\text{III.29})$$

Ainsi, pour chaque rayon diffracté, on va calculer la distance parcourue entre l'échantillon et l'écran afin d'obtenir un positionnement tenant compte de la distance. On va donc pouvoir obtenir une figure de diffraction du matériau monocristallin. Afin de comparer ces simulations avec d'autres résultats, on va pouvoir importer une image. Celle-ci doit être correctement placée dans le plan du détecteur en tenant compte des paramètres expérimentaux.

III.3.F Fonctionnalités supplémentaires

Au cours des analyses des divers résultats obtenus, certaines hypothèses de comportement du matériau sous choc ont pu être émises. Afin de pouvoir tester leur influence sur la figure de diffraction, des fonctionnalités supplémentaires ont été ajoutées. Celles-ci ne sont pas activées par défaut et doivent être lancées par l'utilisateur.

III.3.F.a Maclage du matériau

Dans cette fonctionnalité, on va essayer de prévoir l'effet du maclage du matériau sur la figure de diffraction. Le maclage est un processus de déformation plastique du matériau dans lequel les atomes vont se réorganiser d'une manière spécifique au sein du cristal. En effet, celui-ci peut alors se subdiviser en domaines monocristallins avec une orientation bien spécifique par rapport au cristal d'origine. On constate qu'un plan cristallin commun réside entre les deux matériaux. Dans certains cas il est possible d'établir une relation géométrique simple pour passer d'un cristal à l'autre. Un exemple de maclage de l'étain est donné en figure III.9.

Le maclage dans l'étain s'effectue via le plan cristallographique (301) qui sert de plan de symétrie. [71][72][73] Géométriquement, ce phénomène revient à effectuer une rotation de $62,8^\circ$ autour de l'axe \vec{b}' . La famille de plans pouvant avoir plusieurs variantes, chacune d'entre elles peut être à l'origine du maclage au sein du matériau. Dans le cas de l'étain, concernant la famille de plans (301), il existe quatre variantes en excluant les plans équivalents dont les normales sont inversées. D'après les données bibliographiques, chacune de ces variantes impose une rotation de $62,8^\circ$ autour d'un axe. Ce système est observé lors d'une traction perpendiculaire à l'axe [001]. D'autres systèmes de macles secondaires peuvent être activés dans certaines conditions particulières où le système principal ne peut être activé.

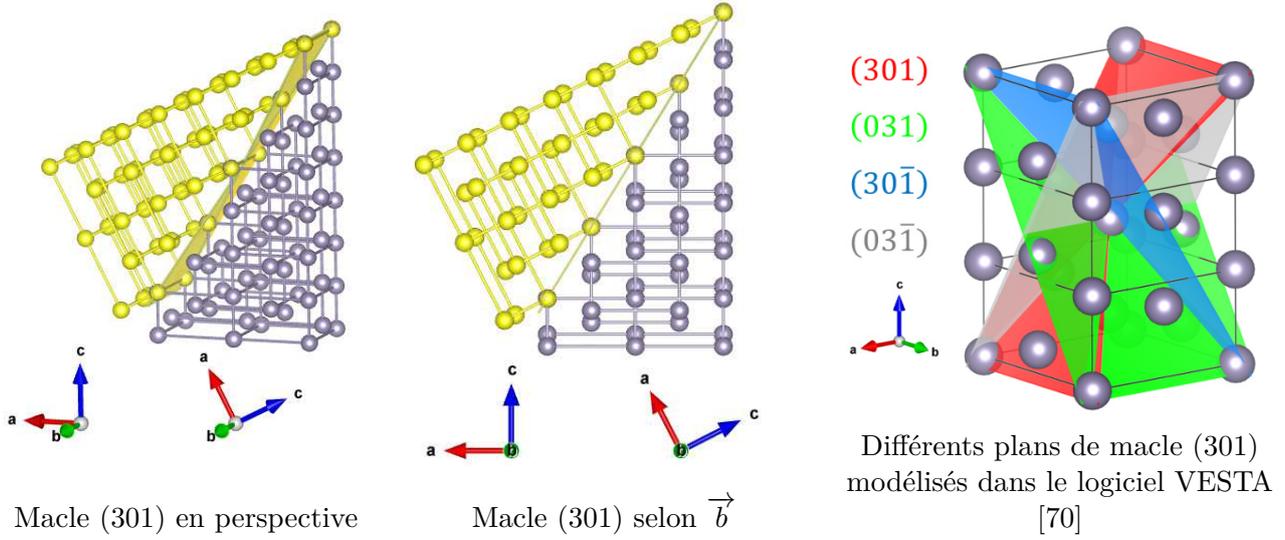


FIGURE III.9 – Exemple du phénomène de maillage dans le cas de l'étain

En pratique dans l'outil, dans le cas où le maillage revient à effectuer une rotation, il va s'agir de faire effectuer au cristal une rotation supplémentaire autour d'un axe cristallographique donné par l'implémentation d'une matrice de rotation R_{macles} . Pour cela, on va définir l'axe de rotation \vec{Rot}_{lab} qui va correspondre à une direction cristalline et construire le vecteur correspondant à partir des indices. On détermine alors les coordonnées de ce vecteur dans le laboratoire en prenant en compte les différentes rotations définies précédemment :

$$\vec{Rot}_{lab} = R_{lab} \cdot P_{Lab,Ortho_c} \cdot P_{Ortho_c,Dir} \cdot \begin{pmatrix} u \\ v \\ w \end{pmatrix} \quad (III.30)$$

Il ne reste plus qu'à construire la matrice de rotation associée définie dans III.24 connaissant l'axe de rotation qui doit être normé à 1 et l'angle de rotation. On applique ensuite cette rotation due à la macles à toutes les normales avant de calculer le rayon diffracté :

$$\vec{n}_{hkl_lab} = R_{macles} \cdot R_{lab} \cdot P_{Lab,Ortho_c} \cdot P_{Ortho_c,Rec} \cdot \begin{pmatrix} h \\ k \\ l \end{pmatrix} \quad (III.31)$$

Ainsi la nouvelle figure de diffraction obtenue va s'afficher à partir de la configuration de référence et d'un plan de macles particulier, l'opération étant à renouveler pour chaque plan de macles à tester.

III.3.F.b Texturation du matériau

Cette fonctionnalité va permettre de simuler l'effet d'une texturation du matériau. La texturation est assimilée à la subdivision du cristal en une multitude de sous-domaines monocristallins d'orientation voisine aléatoire de quelques degrés. Ainsi, pour chaque domaine, les normales correspondant aux différents plans sont déviées par rapport à leur position originale (Figure III.10).

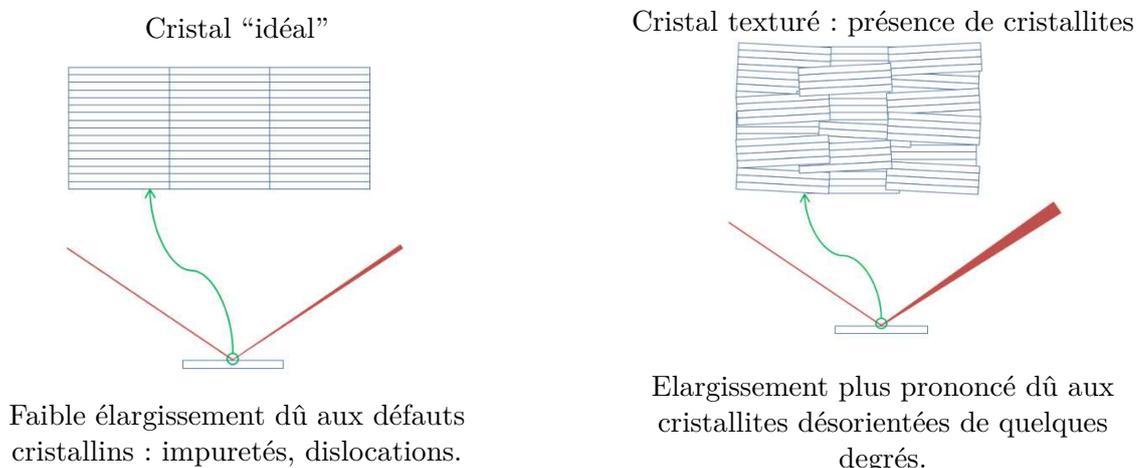


FIGURE III.10 – Exemple de texturation d'un monocristal

Si on définit un angle maximum de désorientation concernant la texturation, les déviations extrêmes pour chaque normale peuvent définir un cône. Au sein de ce cône, on va donc retrouver toutes les déviations possibles avec un angle inférieur à l'angle maximal (Figure III.11). Si on considère un rayonnement qui sonde à la fois plusieurs domaines, on peut calculer les rayons diffractés pour chaque normale déviée. On va s'apercevoir que ce sont des taches plus ou moins grandes qui vont apparaître.

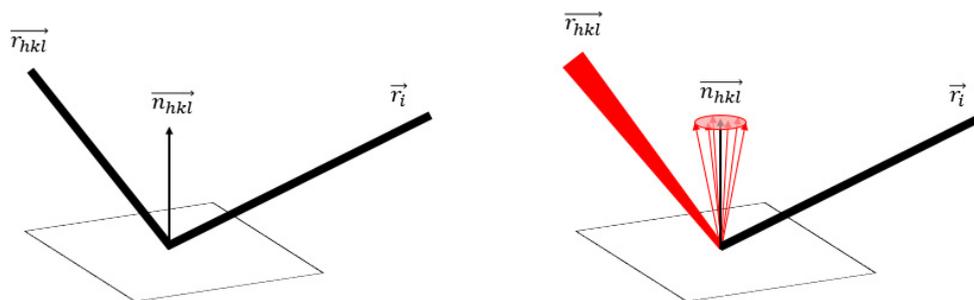
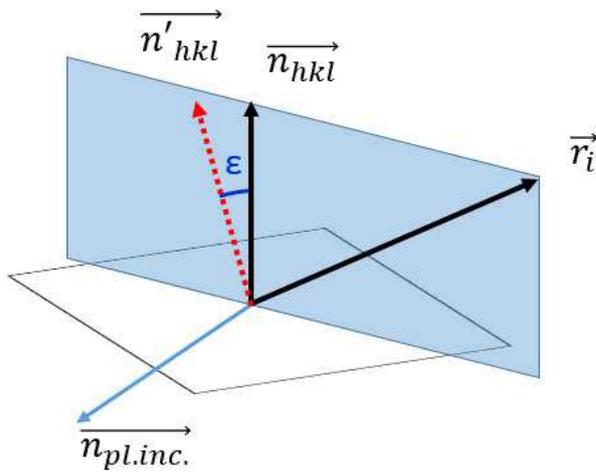


FIGURE III.11 – Schéma de principe pour traiter la texturation

Dans l'outil d'analyse, on va vouloir définir le contour de ces taches défini par la déviation maximale de la texturation du matériau. Pour cela, il va falloir, pour chaque normale de plan diffractant, élaborer un cône de normales déviées d'un angle prédéfini. Ainsi pour chacune de ces normales déviées, on va pouvoir construire l'intersection du rayon diffracté avec l'écran. Dans le calcul, la normale d'origine est définie comme axe de rotation autour duquel un cône de normales déviées est construit. Pour cela, il va être nécessaire de construire une première normale déviée. Les autres s'obtiennent grâce à la matrice de rotation autour de la normale non déviée définie dans l'équation III.24.

Construction de la première normale déviée

Cette première normale doit pouvoir être calculée quelle que soit la position de la normale originale \vec{n}_{hkl} dans l'espace et doit faire un angle spécifique ε avec celle-ci. Dans ce cas, il a été choisi de construire cette première normale en utilisant le plan d'incidence (défini par \vec{r}_i et \vec{n}_{hkl}). Dans ce plan, on a utilisé la normale originale que l'on va faire tourner d'un angle prédéfini pour construire la première normale déviée. L'axe de cette rotation sera défini par la normale au plan d'incidence comme illustré dans la figure III.12. A partir de cette normale et de l'angle de texturation, une matrice de rotation $R_{pl.inc.}$ est utilisée et le premier rayon dévié dans la repère du laboratoire est déterminé.



La normale au plan d'incidence est construite à partir du produit vectoriel :

$$\vec{n}_{pl.inc.}_{lab} = \vec{r}_{i_lab} \wedge \vec{n}_{hkl_lab}$$

Avec \vec{n}_{hkl_lab} ayant subi les diverses rotations expérimentales.

On peut alors construire la matrice de rotation dans ce plan et obtenir le premier rayon dévié :

$$\vec{n}'_{hkl_lab} = R_{pl.inc.} \cdot \vec{n}_{hkl_lab}$$

FIGURE III.12 – Obtention de la première normale déviée

Construction de la figure issue de la texturation

La première normale déviée étant construite, toutes les autres normales déviées sont facilement obtenues par rotation de la première normale autour de la normale originelle. On utilise ici encore une nouvelle matrice de rotation R_{text} telle que définie dans III.24. Le nombre de normales déviées a été fixé arbitrairement à 10 pour diminuer le temps de calcul mais peut être facilement modifié au sein du code. Les coordonnées de chaque normale sont obtenues à partir de la normale précédente à laquelle on applique la même matrice de rotation. Ainsi pour chacune des normales déviées, il est possible de calculer le rayon diffracté par celle-ci et son intersection avec l'écran de la même manière que précédemment.

$$\vec{n}'_{hkl_lab_n} = R_{text} \cdot \vec{n}'_{hkl_lab_n-1} \quad (III.32)$$

Dans la figure de diffraction, on obtient donc l'intersection de la normale non déviée entourée par l'intersection des rayons obtenus par l'ensemble des normales déviées. Cette opération est reconduite pour chaque normale correspondant à un plan diffractant. La liaison des points d'intersection permet alors de délimiter la zone de diffraction maximale induite par la texturation du matériau.

III.3.F.c Mouvement de l'échantillon

Lors de la sollicitation, le matériau est mis en mouvement lors du passage de l'onde de choc. La zone sondée n'est alors pas à la même position qu'initialement et un décalage de la figure de diffraction pourrait être observé. De plus, le mouvement du matériau pendant l'illumination pourrait lui aussi créer un effet de flou sur la figure. Afin d'essayer de visualiser l'effet de ce mouvement, il est possible de déplacer le détecteur dans le plan de détection pour le replacer à sa position d'origine. Certains paramètres vont alors devoir être modifiés comme illustré dans la figure III.13.

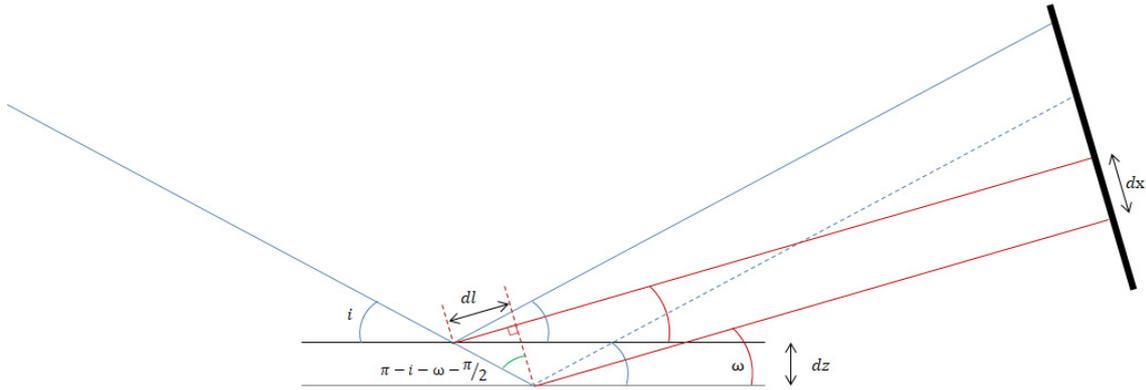


FIGURE III.13 – Schéma décrivant la modification des paramètres dus à l'avancée de l'échantillon

Pour simuler ce phénomène, une solution simple est de trouver les paramètres à modifier dans l'outil simulant, dans une première approche, l'effet de l'avancée de l'échantillon : il s'agit de la modification de la distance échantillon-détecteur δl et celle du placement du détecteur δx . Ils sont obtenus en résolvant le système suivant :

$$\begin{cases} \frac{\delta z}{\sin i} = \delta l \cdot \cos(i + \omega) + \delta x \cos(\pi - i - \omega - \frac{\pi}{2}) \text{ avec } \delta z = v \cdot \delta t \\ \delta l = \frac{\delta z}{\sin i} \cdot \cos(i + \omega) \end{cases} \quad (\text{III.33})$$

On obtient :

$$\begin{cases} \delta x = \frac{\delta z}{\sin i} \cdot \sin(i + \omega) \\ \delta l = \frac{\delta z}{\sin i} \cdot \cos(i + \omega) \end{cases} \quad (\text{III.34})$$

Ainsi, en modifiant les distances respectivement de δx et δl , il est possible de simuler l'effet de l'avancée de l'échantillon au cours de l'expérience. Dans les conditions expérimentales présentées dans les prochains chapitres, l'avancée de l'échantillon est de l'ordre de plusieurs dizaines de micromètres.

III.3.G Comparaison des résultats

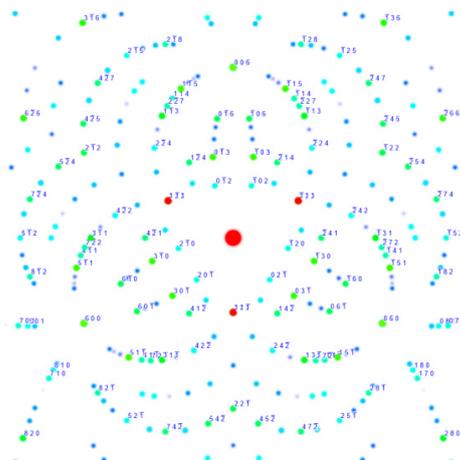
Une interface graphique a été élaborée pour une plus grande facilité d'utilisation. Des fonctions supplémentaires ont été ajoutées concernant le traitement de fichiers, la modification des paramètres expérimentaux et l'analyse des paramètres du cristal utilisé. Une présentation de l'interface graphique ainsi que de ces fonctionnalités est présentée en annexe A.10.

III.3.G.a Figure de diffraction du monocristal

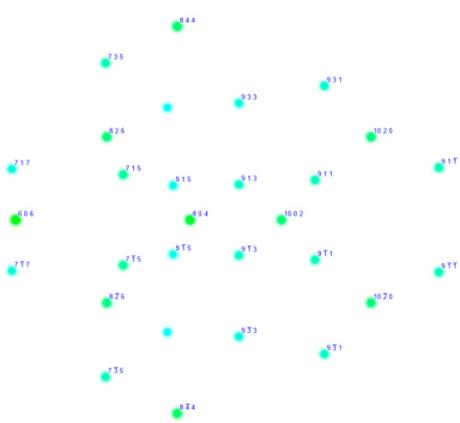
Les premiers résultats obtenus via cet outil ont été comparés avec ceux proposés par le logiciel Crystal Maker. Celui-ci permet aussi de simuler la figure de diffraction d'un monocristal orienté dans l'espace. Cependant, seules deux configurations géométriques sont accessibles via ce logiciel en backscattering et frontscattering. L'outil de simulation pouvant s'adapter à de nombreuses configurations expérimentales, les figures en frontscattering et backscattering⁹ vont pouvoir être directement comparées, en particulier pour les matériaux utilisés dans l'étude (Figure III.14). Pour plus de lisibilité, les points de chaque figure ont été grossis et les images n'ont pas été superposées.

9. Pour rappel, dans la configuration en backscattering, l'angle de l'écran ω vaut $180 - i$ et en frontscattering, celui-ci vaut $-i$, voir la figure III.2.

B_4C (111)
Frontscattering
Incidence à 90°



Si (301)
Backscattering
Incidence à 90°



Sn (110)
Frontscattering
Incidence à 15°

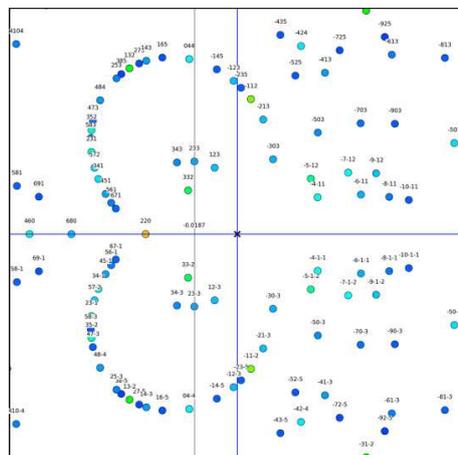
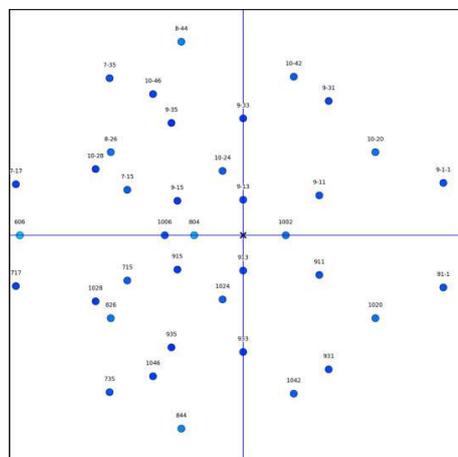
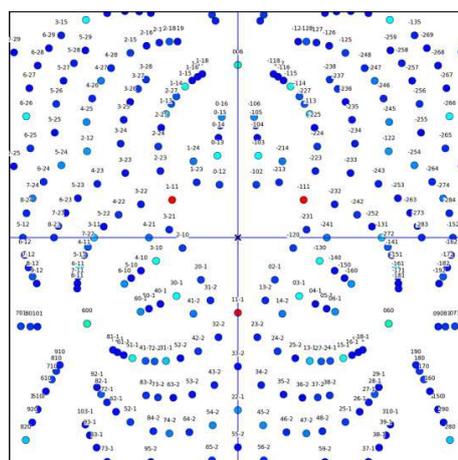
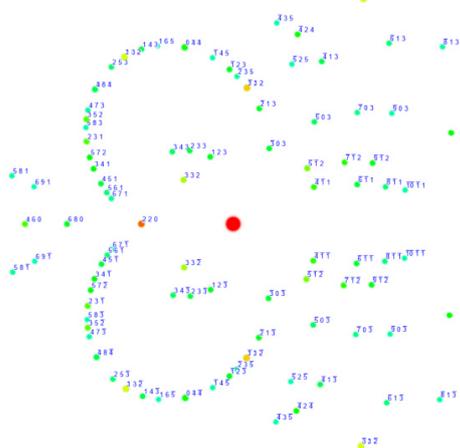


FIGURE III.14 – Comparaison de figures de diffraction de monocristaux dans différentes configurations

L'échelle d'intensité en couleur n'est pas identique entre les deux simulations, cependant, les intensités relatives comparées sont proches avec un écart inférieur à 0,1% pour les matériaux testés. Dans certains cas, l'outil parvient à simuler plus de points de diffraction que le logiciel. Ces points sont très peu intenses et leur présence n'est pas déterminante dans l'indexation des figures.

III.3.G.b Figure de diffraction du maillage et le la texturation

Pour valider la simulation de l'effet du maillage et de la texturation, les figures de diffraction ont été comparées avec les résultats de Turneure et al. [74]. Cette étude porte sur le comportement de monocristaux de magnésium (Mg) hexagonal sous choc. Dans l'expérience, les monocristaux orientés (001) sont impactés par un projectile en polycarbonate. Ces cristaux sont sondés en diffraction X en transmission plusieurs fois au cours de la propagation des ondes de choc. La configuration est choisie en frontscattering avec une incidence inclinée sur l'échantillon. Sur les figures de diffraction, on observe tout d'abord une élongation des points de la figure du monocristal puis une apparition de nouveaux points dans les images suivantes au cours de plusieurs essais consécutifs. Le premier phénomène a été assimilé à la texturation du monocristal et le deuxième à du maillage. Les auteurs ont élaboré des simulations de figures de diffraction pouvant être obtenues dans les deux cas. La bonne correspondance entre la théorie et la pratique ont permis de confirmer les hypothèses de comportement du matériau (Mg) sous choc. La comparaison a donc été faite entre les simulations issues de l'outil et celles présentées par l'auteur. L'ensemble des figures de diffraction des 5 essais est présenté dans le supplément de l'étude. Tous les essais ont été reproduits et comparés avec l'outil de simulation. Seule la comparaison avec l'essai présenté dans l'étude est effectuée ici.

Figure ambiante

Pour chaque essai est présentée la figure de diffraction du monocristal ambiant. Il ne semble pas qu'une orientation préalable du monocristal ait été effectuée mis à part l'orientation (001). Il peut donc adopter n'importe quelle rotation autour de cet axe. A partir des données disponibles et de la figure de diffraction, les paramètres expérimentaux ont pu être déterminés dans l'outil pour reproduire la figure ambiante (Figure III.15).

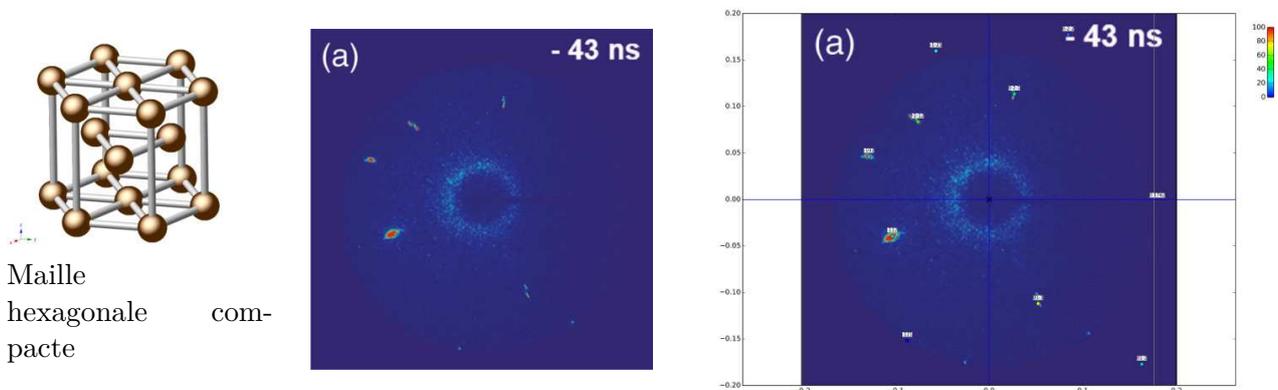


FIGURE III.15 – Comparaison entre la figure de diffraction expérimentale (centre) et reproduite dans l'outil (droite) pour le cristal ambiant

Texturation

Le déplacement et/ou l'élongation des points de la figure de diffraction peuvent, en première approche, être produits par une modification des paramètres de maille suite à une compression ou une dilatation quelle soit isotrope ou anisotrope pouvant provoquer une déformation uniforme ou graduelle selon le type de sollicitation. A partir des données disponibles, il est possible d'estimer la déformation de la maille aux conditions imposées au matériau. L'élongation des points de la figure obtenue est trop faible pour expliquer le phénomène observé. La texturation du matériau pourrait en être à l'origine et des simulations ont été effectuées par les auteurs pour obtenir ce résultat. Il en a été conclu qu'une texturation du matériau avec une désorientation maximale de 2° est capable de produire une figure de diffraction équivalente. Ces paramètres ont été introduits dans l'outil pour valider la fonctionnalité (Figure III.16).

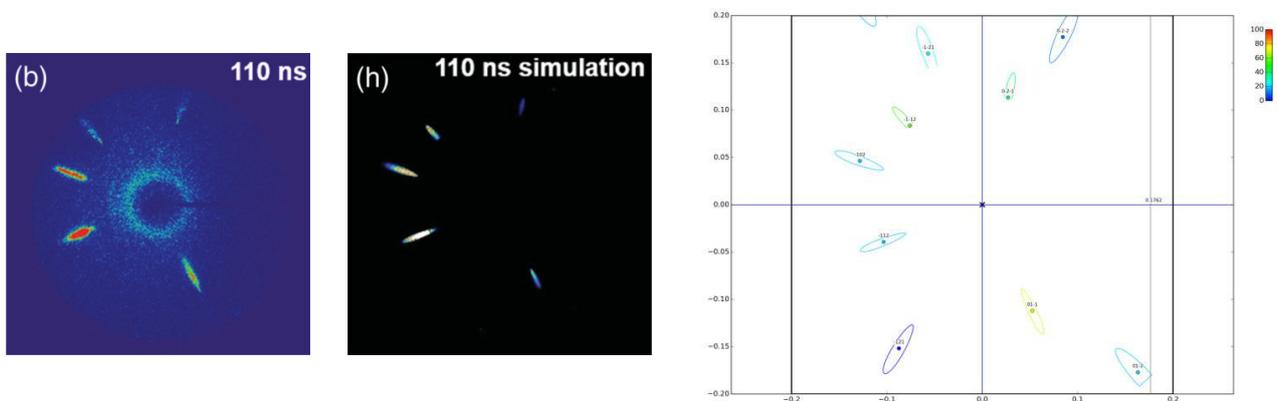


FIGURE III.16 – Figure de diffraction expérimentale reproduite dans l'outil pour le phénomène de texturation

La figure de diffraction calculée dans l'outil semble mieux correspondre à celle simulée par les auteurs qu'à celle obtenue expérimentalement. Les résultats obtenus sont tout de même satisfaisants pour valider cette fonctionnalité.

Maillage

Le mécanisme de maillage du magnésium présenté par les auteurs consiste en la rotation du cristal de $86,3^\circ$ autour des directions $\langle 11-20 \rangle$ du réseau hexagonal. Il en résulte 6 rotations équivalentes, chacune participant à la figure de diffraction : \vec{a} , $-\vec{a}$, \vec{b} , $-\vec{b}$, $\vec{a} + \vec{b}$, $-\vec{a} + \vec{b}$. Les figures de diffraction obtenues pour chaque rotation ont été simulées dans l'outil et superposées pour ensuite être comparées avec les figures expérimentales et celles obtenues par les auteurs (Figure III.17).

Dans ce cas aussi, on observe une meilleure correspondance de la figure de diffraction calculée avec celle de la simulation de l'étude qu'avec celle obtenue expérimentalement. La concordance est toutefois satisfaisante dans les deux cas pour valider cette autre fonctionnalité. La figure calculée dans l'outil a pris en compte tous les plans possibles dans la gamme spectrale quelque soit leur intensité. Le nombre de points obtenus est alors supérieur à celui de la figure expérimentale. Une modification du seuil d'intensité permet de retrouver uniquement les points nécessaires à la reproduction de la figure expérimentale.

La comparaison avec d'autres figures issues de la littérature aurait été souhaitable cependant, aucun autre exemple n'a pour l'heure été trouvé pour éprouver ces fonctionnalités.

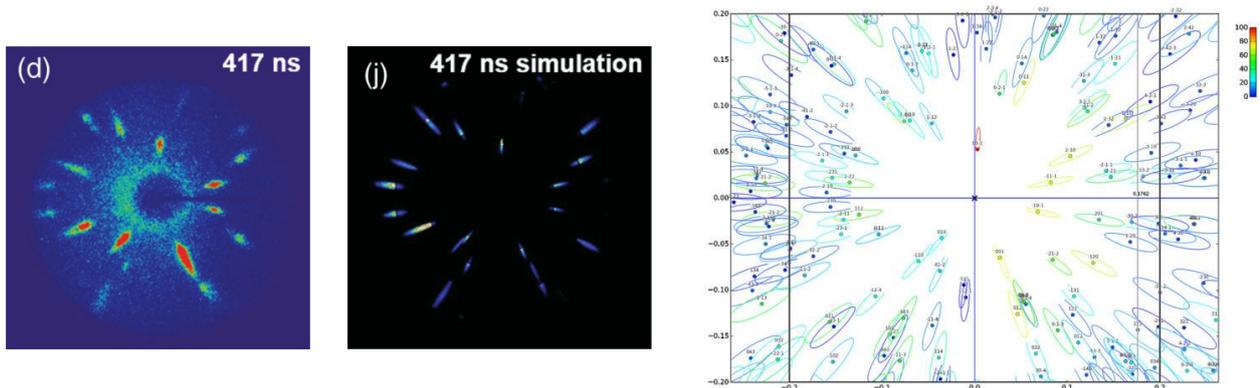


FIGURE III.17 – Figure de diffraction expérimentale reproduite dans l’outil pour le phénomène de maclage

III.4 Outil de dépouillement des figures pour matériaux polycristallins

La méthode de calcul pour un matériau polycristallin reste sensiblement le même. En effet, dans ce cas là, on considère le matériau comme étant un agrégat d’une multitude de monocristaux d’orientation aléatoire. Si le faisceau sonde un nombre suffisant de cristaux, il existera toujours un monocristal orienté de telle manière qu’un plan respectera les conditions de Bragg. Tous les plans cristallins du matériau vont alors diffracter en même temps. Pour une famille de plans particulier, les normales de ces plans vont donc être orientées dans toutes les directions possibles de l’espace. Ainsi, pour une longueur d’onde particulière seulement un nombre restreint de normales sera orienté de manière adéquate pour diffracter. On comprend donc que contrairement à un matériau monocristallin où il est nécessaire d’avoir une gamme de longueurs d’onde étendue pour maximiser le nombre de plans diffractant, il est plus judicieux d’utiliser un rayonnement monochromatique. En effet, une seule longueur d’onde est suffisante pour faire en sorte que tous les plans diffractent. L’utilisation d’un rayonnement polychromatique nuirait à l’analyse des résultats car une famille de plans diffracterait de multiples fois à un angle déterminé pour chaque longueur d’onde incidente.

III.4.A Calcul de l’intensité

Le calcul de l’intensité diffractée par chaque plan reste le même via le calcul du facteur de forme et du facteur de structure. Pour chaque association d’indices, la liste de plans diffractant va être déterminée en sélectionnant les plans dont l’intensité diffractée est non nulle. Cependant, certains paramètres supplémentaires vont entrer en compte dans l’intensité finale diffractée.

III.4.A.a Influence de la multiplicité

Dans une même famille de plans, chaque plan va diffracter dans la même direction, l’intensité diffractée va donc être proportionnelle au nombre de plans d’une famille. Il va donc être nécessaire de déterminer la multiplicité m_{hkl} de chaque famille de plans. On ne va donc plus distinguer un plan particulier mais une famille de plans. La multiplicité de chaque famille va fortement dépendre de la géométrie du cristal. De manière générale, les plans équivalents s’obtiennent en permutant l’ordre et le signe des indices du plan correspondant à des directions équivalentes.

Les cristaux cubiques possèdent la plus haute symétrie parmi les différentes formes de réseaux, ainsi les plans (hkl) avec $h \neq k \neq l \neq 0$ possèdent la plus haute multiplicité avec 24 variantes possibles. L'intensité diffractée par cette famille de plans par un polycristal sera donc 24 fois plus intense que celle d'un unique plan.

En pratique, la connaissance des indices (hkl) ne suffit pas à déterminer la multiplicité des plans car elle est fortement dépendante de la géométrie, d'autant plus lorsque le cristal subit une déformation anisotrope. La comparaison des distances interréticulaires n'est pas non plus suffisante pour déterminer la multiplicité des plans, en effet, il existe dans certaines structures cristallines des plans d'indices différents ayant une distance interréticulaire très proche. Le décompte de multiplicité de la famille de plans peut donc être erroné. La valeur du facteur de structure peut aussi elle-même varier pour chaque plan d'une même famille d'indices.

La multiplicité sera déterminée pendant le calcul : pour chaque plan, la distance interréticulaire et le facteur de structure vont être déterminés, on va ensuite parcourir la liste de plans déjà diffractants. Si une distance interréticulaire équivalente a déjà été déterminée, le facteur de structure sera comparé, si les valeurs sont égales, le plan ne sera pas ajouté à la liste des plans diffractants mais un compteur de multiplicité sera incrémenté.

III.4.A.b Facteurs supplémentaires

Afin de s'assurer de la cohérence des résultats concernant l'intensité de diffraction, une comparaison est possible avec les logiciels de simulation des figures de diffraction de diffractomètre indiquant l'intensité relative diffractée en fonction de la mesure 2θ . Des différences notables d'intensité ont été observées lors de la comparaison. Ces logiciels utilisent une correction supplémentaire du fait de la configuration expérimentale particulière due au diffractomètre.

Facteur de polarisation

Ce terme est dû à la diffusion du rayonnement par les électrons. En effet, selon l'angle d'incidence du faisceau, la diffusion sera différente selon sa polarisation, chacune de ses composantes n'étant pas diffusée avec la même efficacité. Il va en résulter une modulation de l'intensité en fonction de l'angle d'incidence sur le plan θ . Ce facteur est donné par la formule suivante dans le cas d'un rayonnement incident non polarisé :

$$\frac{1 + \cos^2(2\theta)}{2} \quad (\text{III.35})$$

Facteur de Lorentz

Ce facteur est fortement dépendant de la technique de mesure et n'est peut-être pas adapté à la configuration réelle utilisée au CEA Gramat. Son implémentation va cependant permettre de pouvoir comparer directement les résultats entre l'outil et les logiciels de simulation. Il pourra être retiré du calcul si besoin. Ce facteur traduit l'influence du temps d'acquisition différent pour chaque réflexion dans les diffractomètres. En effet, selon l'angle sondé, le temps passé à mesurer l'intensité diffractée n'est pas la même lors du balayage en angle et doit être corrigé pour reproduire les mesures expérimentales. On utilise donc un facteur supplémentaire donné par la formule suivante :

$$\frac{1}{\cos(\theta) \sin^2(\theta)} \quad (\text{III.36})$$

Ce facteur est souvent combiné au précédent pour l'obtention d'un facteur unique Lp :

$$Lp = \frac{1 + \cos^2(2\theta)}{2 \cdot \cos(\theta) \sin^2(\theta)} \quad (\text{III.37})$$

Facteurs annexes

Des facteurs supplémentaires peuvent être ajoutés pour moduler l'intensité :

- Facteur d'absorption : l'intensité diffractée au sein du volume sondé peut être impactée par la distance à parcourir dans le matériau avant d'en sortir. En fonction de l'angle d'incidence du faisceau, la distance parcourue dans le matériau va être différente. Plus la pénétration sera profonde, plus l'absorption sera importante du fait de la plus grande distance parcourue. Ce phénomène va grandement dépendre de la capacité d'absorption du matériau considéré.
- Facteur de température : du fait de la température, les atomes vibrent autour de leur position d'équilibre ce qui va influencer sur la distribution électronique autour de l'atome et modifier l'intensité diffractée.
- Orientation préférentielle : dans le cadre de la diffraction de polycristaux, l'orientation des cristallites peut ne pas être aléatoire. On observe donc l'orientation des cristallites dans des directions plus fréquentes. Ainsi, la répartition des orientations n'étant pas homogène, certaines intensités de plan vont être plus récurrentes.

Ces derniers facteurs n'ont pas été pris en compte dans les études car trop spécifiques de la configuration expérimentale et du matériau utilisé. Ils pourront être ajoutés ultérieurement dans le code de calcul. Les premières expériences de diffraction X étant seulement qualitatives, il n'a pas été jugé utile de les intégrer. Les premiers comparatifs en prenant en compte seulement le facteur m_{hkl} et le facteur Lp ont été suffisants pour obtenir des résultats comparables entre l'outil et les logiciels. L'intensité finale de chaque famille de plans étant ensuite calculée de la manière suivante :

$$I_{hkl} = Lp \cdot m_{hkl} \cdot |F_{hkl}^2| \quad (\text{III.38})$$

Chaque intensité étant ensuite normalisée par rapport à l'intensité maximale : $I_{rel_hkl} = I_{hkl}/I_{max}$.

III.4.B Calcul des coordonnées des axes cristallographiques dans le repère du laboratoire

Le calcul des coordonnées des normales de plans est simplifié car il ne va plus nécessiter de matrice de passage entre les réseaux cristallins et la base du laboratoire. En effet, le calcul peut être directement fait dans la base du laboratoire à partir de la loi de Bragg. Pour une longueur d'onde considérée, tous les plans d'une même famille vont diffracter à partir d'un angle d'incidence unique du fait de la distance interréticulaire identique. Parmi toutes les normales orientées aléatoirement pouvant diffracter, seules celles permettant de respecter la loi de Bragg participent à la diffraction. Cette condition va imposer une exigence d'angle entre le rayonnement incident et les normales de chaque famille de plan. Géométriquement, pour une famille donnée, l'ensemble des normales vont constituer un cône autour du rayon incident qui constitue son axe. En effet, chaque normale va faire un angle de $90 - i_{hkl}$ avec celui-ci (i_{hkl} étant l'angle d'incidence de la famille de plans hkl à la longueur d'onde considérée). La configuration géométrique est illustrée en figure III.18.

Pour chaque famille de plans, il va être aisé de calculer directement une normale de la famille hkl dans le plan d'incidence du laboratoire (\vec{x}_{lab} , \vec{z}_{lab}) en connaissant l'angle d'incidence imposée par la longueur d'onde du rayonnement incident. Les autres normales constitutives de ce cône sont obtenues là encore par l'utilisation d'une matrice de rotation $R_{normale}$ (Equation III.24) appliquée à cette première normale, l'axe de révolution de cet axe étant le vecteur du faisceau incident. Le nombre de normales calculé pour chaque famille de plans a été arbitrairement fixée à 100 mais peut être modifiée à tout moment au sein du code.

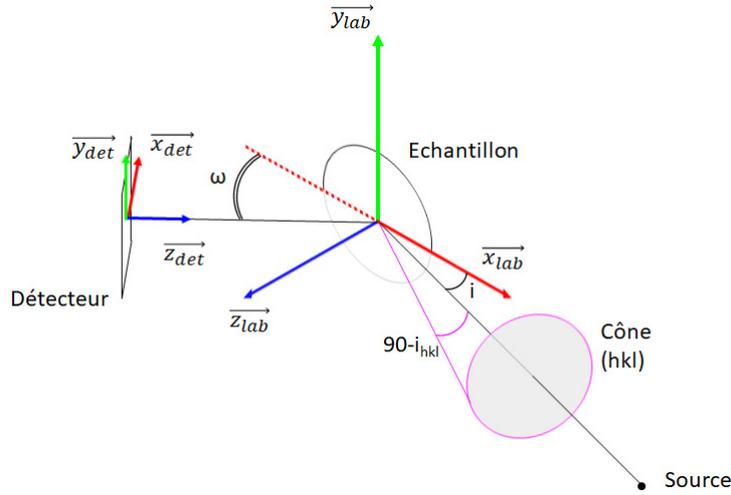


FIGURE III.18 – Configuration géométrique considérée dans le calcul avec les différents repères associés

$$\overrightarrow{n_{0\{hkl\}_lab}} = \begin{pmatrix} \cos(i + (90 - i_{hkl})) \\ 0 \\ \sin(i + (90 - i_{hkl})) \end{pmatrix} \quad \overrightarrow{n_{n\{hkl\}_lab}} = R_{normale} \cdot \overrightarrow{n_{n-1\{hkl\}_lab}} \quad (\text{III.39})$$

Avec i l'angle d'incidence du faisceau sur l'échantillon et i_{hkl} , l'angle d'incidence sur le plan.

III.4.C Détermination de l'intersection des rayons diffractés avec le détecteur

Lors du calcul de chaque normale, les coordonnées du faisceau diffracté $\overrightarrow{r_{hkl_lab}}$ sont alors obtenues en calculant le symétrique du rayon incident par rapport à la normale. Ainsi, pour une famille de plans, un cône de rayons diffractés sera formé. L'intersection de ces cônes de rayons diffractés avec l'écran va donc former la figure de diffraction qui ne sera donc pas constituée de points mais d'ellipses. De la même manière que précédemment, seuls les rayons diffractés formant un angle inférieur à 90° avec $-\overrightarrow{z_{det}}$ seront comptabilisés dans la construction de la figure de diffraction.

$$\overrightarrow{r_{hkl_det}} = P_{Det,Lab} \cdot \frac{d_{ech_det}}{\cos \varepsilon} \cdot \overrightarrow{r_{hkl_lab}} \quad \text{avec } \varepsilon = \arccos \frac{-\overrightarrow{z_{det_lab}} \cdot \overrightarrow{r_{hkl_lab}}}{\|\overrightarrow{z_{det_lab}}\| \cdot \|\overrightarrow{r_{hkl_lab}}\|} \quad (\text{III.40})$$

Pour chaque famille de plans, l'ensemble des intersections avec le détecteur vont être reliées pour approximer l'allure de la figure de diffraction générée par l'ensemble des normales réellement présentes au sein du matériau. Il est important de noter que le calcul ici est effectué pour simuler la figures de diffraction d'une infinité de monocristaux orientés aléatoirement. Dans la pratique, un nombre limité de cristaux est sondé. La figure de diffraction va alors se rapprocher de lignes constituées de points, chacun étant issu d'un monocristal. Dans le cas d'un polycristal avec orientation préférentielle, l'identification des indices de plans pour une longueur d'onde particulière sera donc aussi possible grâce à cet outil.

III.4.D Comparaison des résultats

A l'heure actuelle, il n'a pas été trouvé de logiciel permettant de simuler des figures de diffraction en deux dimensions, ce que permet l'outil. Cependant, il est possible de comparer directement les calculs d'intensité via le logiciel Crystal Maker qui permet de simuler les figures de diffraction de poudre pour un diffractomètre par exemple. Il existe aussi de nombreux travaux présentant des figures de diffraction de poudre ou de polycristaux en configuration frontscattering permettant de tester les fonctionnalités de l'outil. Une présentation de l'interface graphique ainsi que de ces fonctionnalités est présentée en annexe A.11.

Différentes figures de diffraction en une dimension ont été comparées pour des matériaux ayant des réseaux cristallins différents (Figure III.19).

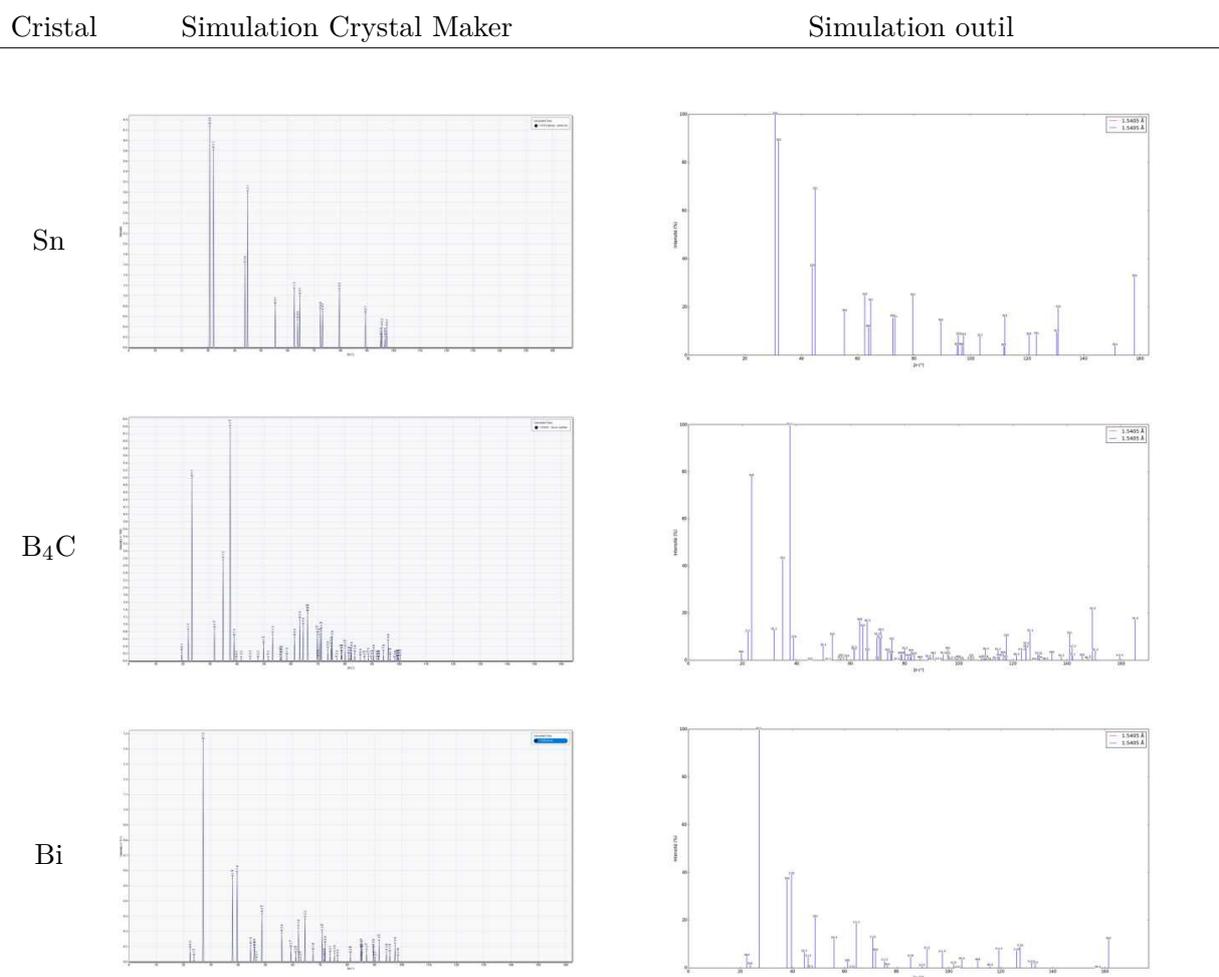


FIGURE III.19 – Comparaison de figures de diffraction de poudres. Dans chaque cas, l'intensité relative des plans est présentée pour les différentes valeurs 2θ .

Les intensités relatives comparées sont proches avec un écart inférieur à 0,2% pour les matériaux testés en prenant en compte seulement les facteurs m_{hkl} et Lp . Il semble dans certains cas que l'outil parvienne à simuler plus de points de diffraction que le logiciel. Ces points sont très peu intenses et leur présence n'est pas déterminante dans l'indexation des figures.

Des comparaisons entre des figures de diffraction expérimentales et simulées ont pu être effectuées. Pour des besoins pratiques, cet outil a été modifié pour afficher les figures de diffraction de deux longueurs d'onde. En effet, le rayonnement X-Pinch utilisé au CEA Gramat possède des raies d'émission intenses engendrant simultanément deux figures de diffraction superposées pour les mêmes familles de plan. Cela permet aussi de pouvoir proposer des figures avec des bandes plus "larges" pour des rayonnements avec une gamme spectrale large. L'indexation d'une figure de diffraction de silicium polycristallin est présentée en figure III.20. Cette figure sert de calibration avant les expériences menées au sein du Dynamic Compression Sector de l'Advanced Photon Source (USA). La configuration utilisée ici est similaire au frontscattering avec un angle d'incidence de 8° sur l'échantillon. On observe une certaine largeur des bandes induite par un rayonnement qui n'est pas purement monochromatique mais qui se répartit entre 20 et 24 keV (0,62-0,52 Å).

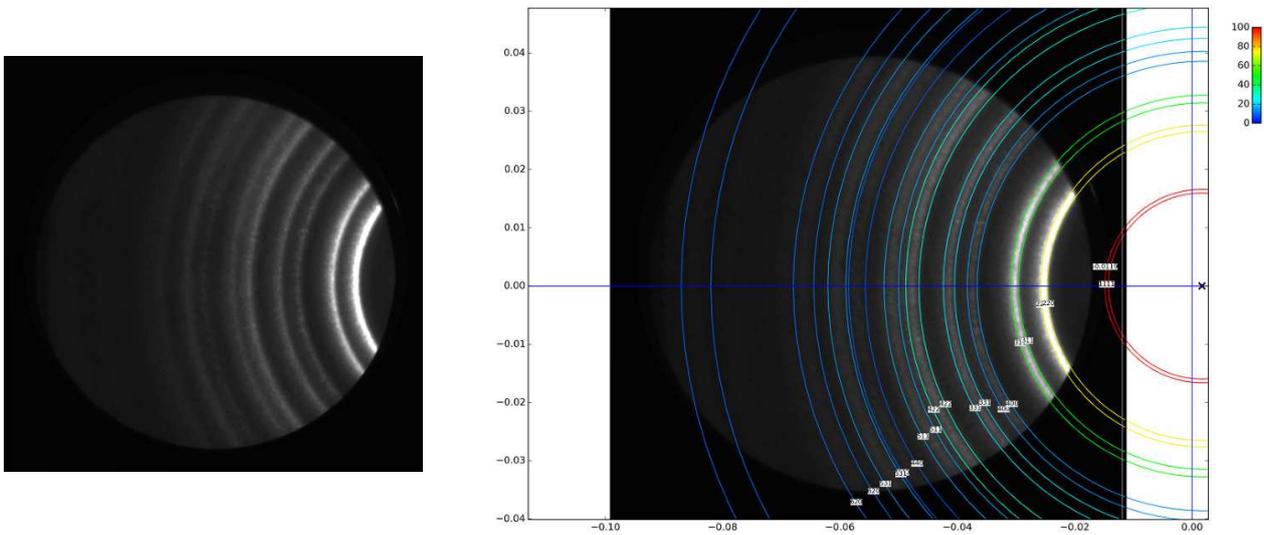


FIGURE III.20 – Indexation d'une figure de diffraction de silicium polycristallin

L'indexation de la figure est satisfaisante, chaque cercle de diffraction simulé pour une famille de plans pour deux longueurs d'ondes encadre la figure associée. Chaque arc de cercle a pu être rattaché à une famille de plans et aucun décalage n'est observé avec les cercles les plus éloignés correspondant aux grands angles. L'utilisation d'un polycristal est très pratique pour retrouver les paramètres expérimentaux, que ce soit l'angle d'incidence sur l'échantillon, l'angle de l'écran ou la distance échantillon-détecteur. Il va aussi permettre de définir la position du détecteur dans le plan de position avant de pouvoir indexer la figure d'un monocristal. En effet, la figure de diffraction d'une poudre ne dépend pas de l'orientation de l'échantillon mais seulement des paramètres expérimentaux contrairement à la figure de diffraction d'un monocristal.

III.5 Bilan sur l'élaboration de l'outil de simulation

Le développement d'un outil de simulation a été nécessaire pour pouvoir analyser les figures de diffraction dans les conditions particulières des essais. A partir de considérations géométriques, il a été possible tracer les rayons diffractés par l'échantillon pour former la figure de diffraction. Cet outil a pour vocation de simuler la figure de diffraction de n'importe quel réseau cristallin pour peu qu'il soit correctement renseigné dans le fichier de configuration. Pour l'heure, la maille la plus complexe testée est celle du carbure de bore (B_4C). Des fonctionnalités supplémentaires ont été ajoutées pour simuler divers phénomènes physiques pouvant influencer la figure de diffraction. Deux versions de cet outil permettent indépendamment de simuler la figure de diffraction en deux dimensions d'un monocristal ou d'un polycristal à partir du même fichier de paramètres. Enfin l'élaboration d'une interface graphique a permis une plus grande facilité d'accès aux utilisateurs par la modification directe des paramètres expérimentaux et la visualisation des résultats.

Chapitre IV

Résultats expérimentaux

Différentes expériences ont été menées à la fois au sein du laboratoire du CEA Gramat avec la source X-Pinch mais aussi au Dynamic Compression Sector de l'Advanced Photon Source (USA) avec le rayonnement synchrotron. Ces expériences combinent à la fois la sollicitation dynamique de l'échantillon et la mise en place de la diffraction X afin d'en sonder l'état cristallin. Diverses configurations ont été mises en œuvre pour étudier différents états de compression que ce soit pour des chocs au-dessus et en dessous de la transition, mais aussi lors du retour en phase initiale. Un schéma des états atteints à l'interface est présenté en figure IV.1.

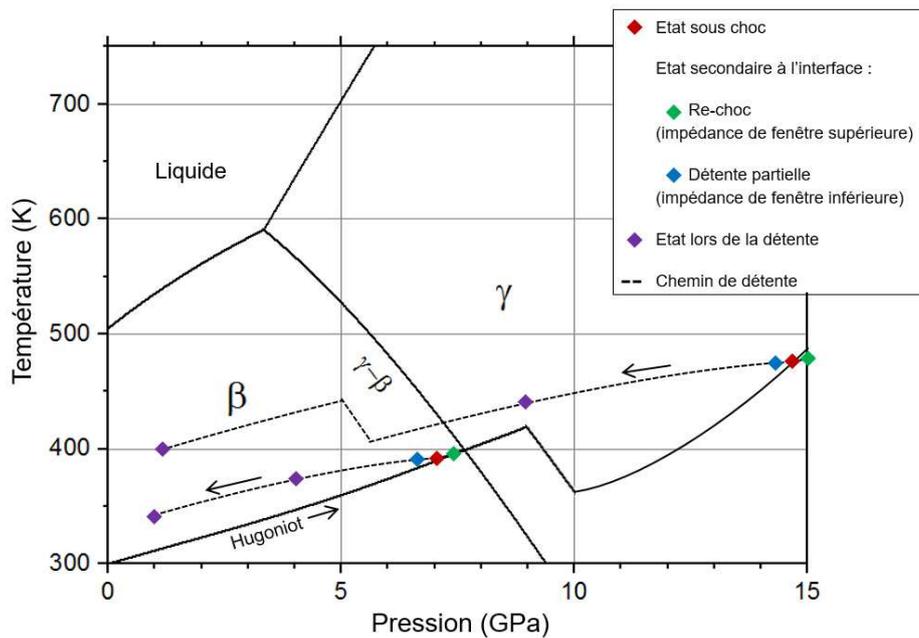


FIGURE IV.1 – Schéma récapitulatif des états atteints par l'étain sous choc. De par la configuration expérimentale, seuls les états secondaires et les états de détente peuvent être sondés en diffraction

IV.1 Laboratoire CEA Gramat

Des essais préliminaires ont été menés au CEA Gramat pour valider la configuration, en particulier le système de synchronisation, tout d'abord sur des cibles dans leur état initial (P et T ambiant) puis sur des cibles sous choc sans fenêtre enclume (monocristal en surface libre). Enfin, les essais ont pu être menés avec la configuration complète présentée précédemment. Le dimensionnement des expériences a été effectué en prenant en compte les paramètres des matériaux présentés dans la figure II.21.

Compte tenu de l'incertitude concernant l'impédance de choc de la fenêtre en B_4C , les valeurs de pression à l'interface avec l'étain ont été calculés par deux méthodes (Figure IV.2) :

1. A partir de la mesure de la vitesse d'impact et la mesure de la vitesse de surface libre en appliquant l'approximation $u_{Sn/B_4C}^{choc} = u_{B_4C}^{SL}/2$. Cette vitesse correspond aussi à celle de l'étain à l'interface avec la fenêtre enclume. En estimant la vitesse particulière de l'étain $u_{Sn/Cu}^{choc}$ à partir de la vitesse d'impact, la différence de vitesse $\Delta u = u_{Sn/B_4C}^{choc} - u_{Sn/Cu}^{choc}$ va permettre de calculer la variation de pression dans l'étain en utilisant à nouveau sa polaire de choc en première approximation (ligne pointillé grise) : une accélération traduira une détente tandis qu'une décélération traduira un re-choc. Du fait de la faible différence d'impédance, ces bonds de pression devraient être faibles.
2. A partir des relations d'impédance en utilisant les caractéristiques du B_4C estimées à partir de la bibliographie en annexe A.6, ainsi que celles des autres matériaux traversés par l'onde de choc. Grâce à cette méthode, il est possible de calculer le temps de l'aller de l'onde de choc au sein du B_4C mais aussi la pression à l'interface avec l'étain.

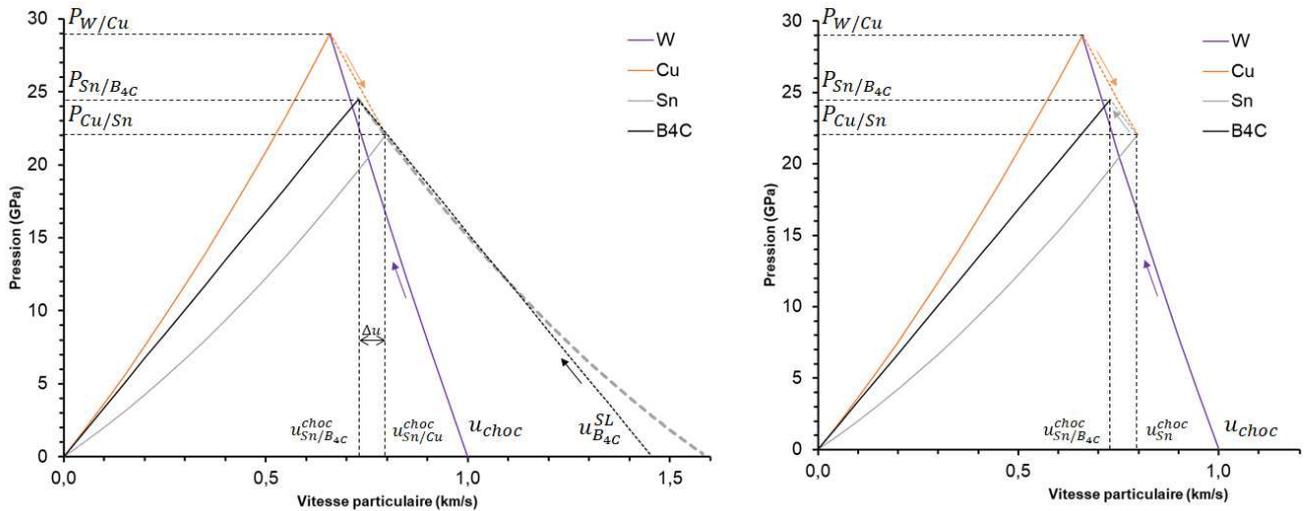


FIGURE IV.2 – Illustration des deux méthodes utilisées pour calculer la pression à l'interface étain/fenêtre enclume

La synchronisation sera jugée satisfaisante si le rayonnement est émis avant la mise en mouvement de la surface libre du B_4C à un temps correspondant au transit de l'onde de choc dans la fenêtre enclume. On comparera en particulier le temps lors de l'atteinte du plateau de vitesse en surface libre, correspondant au débouché de l'onde de choc finale, avec le temps d'émission du rayonnement. Ainsi, pour un temps d'aller d'environ 60 ns, le rayonnement doit être initié 60 ns avant ce plateau. Une simulation numérique a été menée au CEA Gramat avec le code UNIDIM inspiré du code de calcul WONDY [75] auquel des fonctionnalités supplémentaires ont été ajoutées [76].

Ces simulations ont été menées pour estimer le temps de retour des ondes de détente à l'interface. Pour l'essai simulé à la plus haute vitesse correspondant aux vitesses d'ondes les plus rapides, le temps de retour des ondes est estimé à environ 10 ns (Figure IV.3). La fenêtre enclume restant élastique, on peut raisonnablement penser que le temps de retour des ondes sera sensiblement le même pour des essais à plus basse vitesse. Une fenêtre d'observation d'environ 70 ns est donc déduite de cette analyse. Il semble donc que le rayonnement total de durée proche de 100 ns ne puisse pas sonder uniquement l'état où la nouvelle phase devrait être présente. Le récapitulatif des synchronisations de l'ensemble des essais menées au CEA Gramat est présenté en annexe A.13. Le temps d'émission a été fixé à titre indicatif à 100 ns et le temps d'observation à 70 ns.

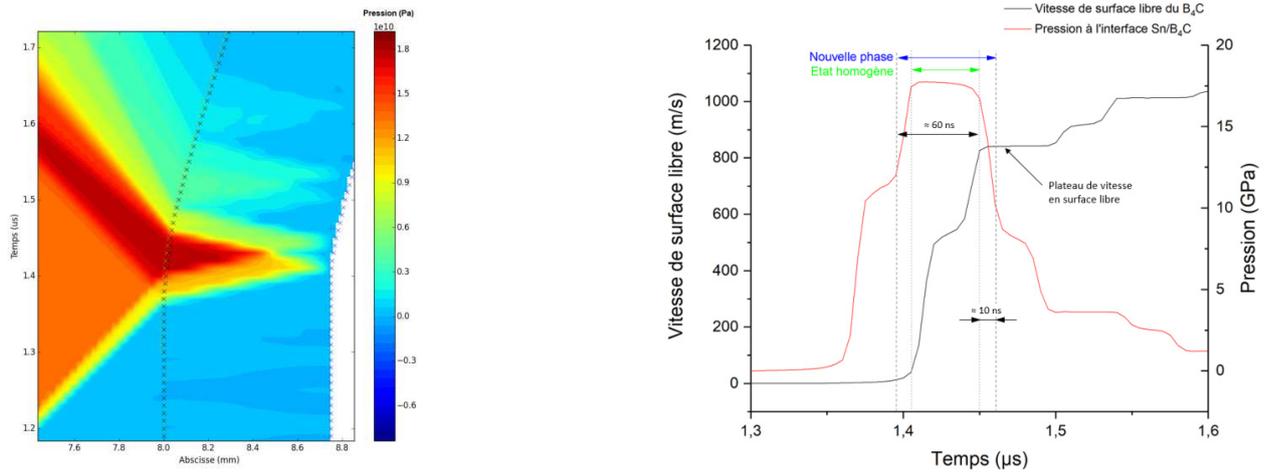


FIGURE IV.3 – Diagramme de marche simulé au niveau de l'interface Sn/B₄C (gauche) et correspondance entre le niveau de pression de l'étain avec la vitesse de surface libre du B₄C (droite)

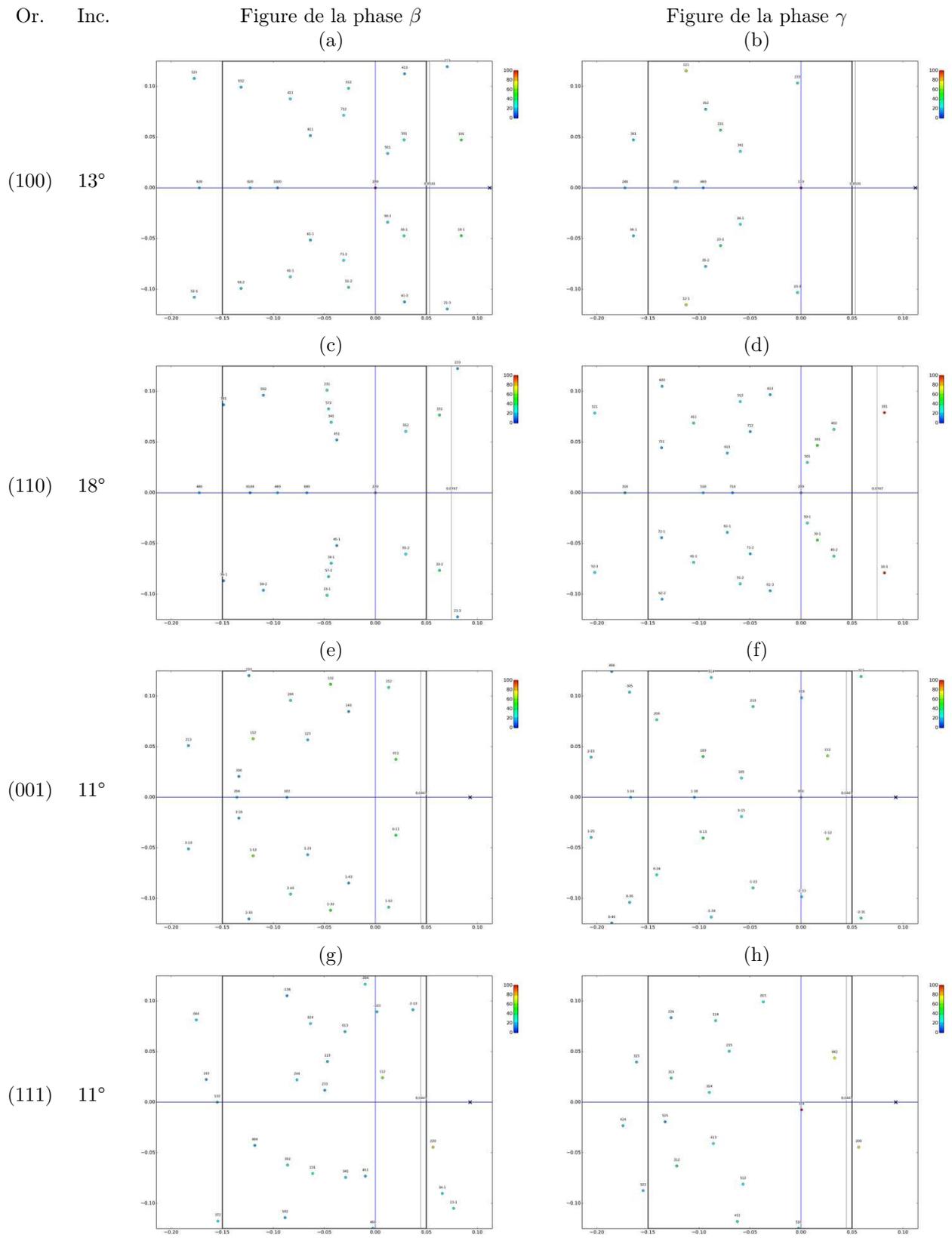
Compte tenu de l'allure du spectre de rayonnement, on peut s'attendre à une figure de diffraction particulière. Celle-ci devrait être composée de plusieurs cercles engendrés par la fenêtre enclume polycristalline correspondant aux raies de l'or mais aussi de points formant la figure de diffraction issue du monocristal d'étain suite à l'interaction avec le spectre continu. L'identification de l'influence des paramètres expérimentaux pouvant influencer sur la figure de diffraction est présentée en annexe A.12.

Dans toutes les images de diffraction présentées, des corrections de la luminosité et du contraste ont été appliquées afin de mettre en évidence les différents éléments constitutifs de la figure de diffraction.

IV.1.A Figures de diffraction attendues

En tenant compte des paramètres expérimentaux, de la géométrie du montage ainsi que de la relation d'orientation supposée [58], il est possible de simuler l'évolution des figures de diffraction pour chaque orientation entre la phase β et γ . Pour chaque orientation, l'angle d'incidence permettant d'obtenir le plus de points de diffraction a été déterminé en prenant en compte les caractéristiques spectrales de la source (Figure IV.4). En particulier pour faire en sorte que les plans les plus intenses diffractent pour les longueurs d'onde correspondant aux raies d'émission du matériau constitutif des fils. Concernent les fils d'or, on s'intéresse aux raies $L_{\alpha_{1,2}}$, $L_{\beta_{1,2}}$ et $L_{\gamma_{1,2}}$. Les essais statiques de diffraction sur monocristal ont révélé que les points constitutifs de la figure sont générés par un rayonnement généralement compris entre 0,4 et 1,2Å (environ 10-30 keV) pour des fils d'or.

Les orientations (100) et (110) semblent les plus adaptées à l'observation du changement de phase avec des figures de diffraction nettement différentes contrairement à l'orientation (001). De plus, ces figures ont l'avantage de posséder un axe de symétrie permettant d'observer directement si une rotation du cristal a lieu par rapport à l'orientation visée contrairement à l'orientation (111). La figure de diffraction théorique de l'orientation (110) semble posséder le plus grand nombre de plans diffractant sur les raies de l'or. L'étude a donc été plus particulièrement poussée concernant cette orientation. Les essais 319, 322, 324, 327, 330, 332 et 334 portant sur des monocristaux (110) ont été menés avec un angle d'incidence de 14° avant l'élaboration de l'outil de simulation des figures de diffraction. Cet angle était précédemment utilisé pour les essais de diffraction et permettait d'obtenir des figures satisfaisantes. Il a été modifié pour atteindre 18° par la suite. La figure de diffraction reste sensiblement la même qu'à 18° avec un léger décalage des points, seule la longueur d'onde de diffraction de chaque plan est modifiée.



Or. : Orientation du monocristal / Inc. : Angle d'incidence du faisceau

FIGURE IV.4 – Comparaison entre les figures de diffraction β et γ pour un monocristal préalablement orienté en respectant la relation d'orientation pour l'angle d'incidence le plus adapté en considérant la gamme spectrale du rayonnement

IV.1.B Essais au-dessus de la transition

Les essais au-dessus de la transition ont pour objectif d'observer directement l'apparition de la nouvelle phase γ . Afin d'éviter les éventuelles problématiques de phase de mélange proche de la transition, des pressions supérieures à la pression de transition attendue ont été appliquées. Ces expériences ont été menées sur des monocristaux d'orientation différente. La durée du rayonnement est assimilée à 100 ns lors des essais sauf si une autre durée est mentionnée.

IV.1.B.a Orientation (110)

Essai	α_{B_4C}	Imp.	V_{Imp} (m/s)	P_{Choc}^{Sn} (GPa)	$u_{SL}^{B_4C}$ (m/s)	$P_{Meth.1}^{Sn/B_4C}$ (GPa)	$P_{Meth.2}^{Sn/B_4C}$ (GPa)	$t_{prop.}$ (ns)
324	1,1	W	636	13,0	1000	13,6	13,7	60
327	1,1	W	585	11,8	970	11,6	12,6	61
332	1,1	W	635	13,0	1000	13,6	13,7	61
360	1,1	W	665	13,7	Ø	Ø	14,4	60
362	1,1	W	661	13,6	Ø	Ø	14,3	61

α_{B_4C} correspond à la porosité estimée de la fenêtre en B_4C .

$t_{prop.}$ correspond au temps aller des ondes de choc entre l'interface de l'étain et la surface libre du B_4C . Le temps d'émission doit se faire $t_{prop.}$ avant le plateau de vitesse de surface libre.

TABLE IV.1 – Tableau récapitulatif des essais au-dessus de la transition pour les monocristaux (110)

Un problème d'acquisition des signaux n'a pas permis de mesurer la vitesse de surface libre pour les essais 360 et 362, les pressions sont seulement estimées à partir de la mesure de la vitesse d'impact.

Essai 324

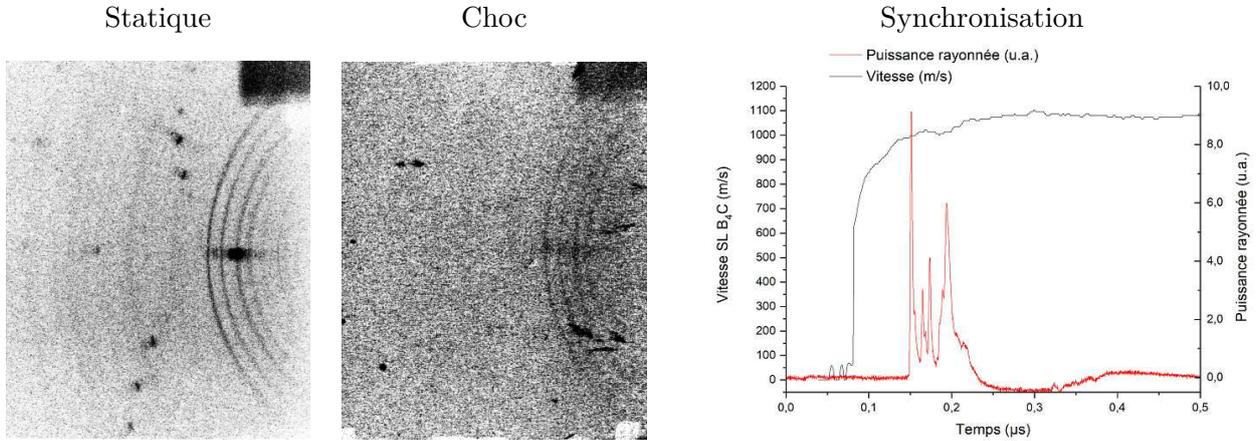


FIGURE IV.5 – Résultats obtenus pour l'essai 324

La figure de diffraction statique est cohérente avec celle attendue pour le monocristal (110) dans la figure IV.4 (c). Les cercles correspondent à la figure de diffraction du B_4C . Sous choc, on observe la disparition de la figure de diffraction ambiante de l'étain, la figure du B_4C restant encore présente. Les différents points sombres observés résultent de l'impact de débris sur la plaque image suite au choc. Le haut niveau de bruit de l'image sous choc ne permet pas de discerner les points constitutifs d'une figure de diffraction de monocristal. Il semble que la tache centrale de la phase ambiante plus intense soit encore présente, elle peut également correspondre à la nouvelle phase dans le cas de la relation d'orientation.

La synchronisation lanceur ne semble pas optimale, en effet le rayonnement est émis 20 ns après le plateau de vitesse en surface libre. L'état de l'étain n'est alors pas celui visé. On observe deux marches dans le front de vitesse. La première correspond au précurseur élastique pour des vitesses légèrement inférieures à 100 m/s. La seconde, située entre 600 et 700 m/s, est caractéristique du changement de phase. En utilisant l'approximation de vitesse en surface libre, on peut estimer que la pression de changement de phase est comprise entre 8,5 et 9,6 GPa d'après cette deuxième marche.

Essai 327

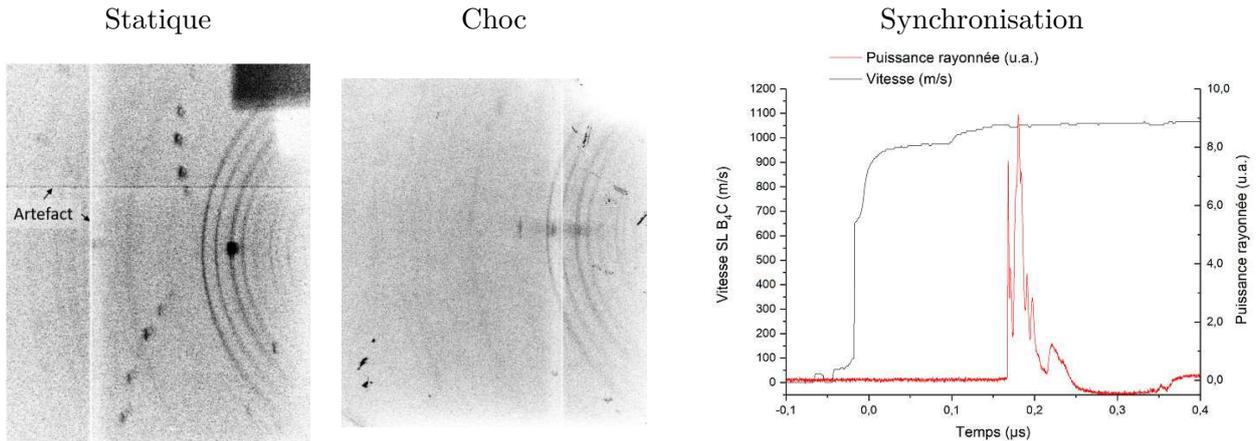


FIGURE IV.6 – Résultats obtenus pour l'essai 327

Dans l'essai 327 (Figure IV.6), l'émission du rayonnement a eu lieu environ 160 ns après le débouché en surface libre. Une analyse après essai a mis en évidence un mauvais réglage du retard interne du GRM avec un excès de 200 ns par rapport au réglage standard. On distingue clairement sur le profil le précurseur élastique suivi du changement de phase entre 600 et 700 m/s sur le front de montée. Du fait du retard important du rayonnement, l'état de l'étain ne semble donc pas sous choc mais dans un état de détente. Les lignes verticales et horizontales observées dans les deux figures sont des artefacts survenus pendant la numérisation de la plaque image. On observe là encore la conservation de la figure de diffraction de la fenêtre enclume lors du choc. On observe par ailleurs l'apparition d'arcs de cercle intercalés entre les ellipses de diffraction du B_4C . La présence d'arcs de cercle traduit la présence d'un matériau polycristallin avec une certaine orientation préférentielle. L'hypothèse la plus probable étant la présence d'étain en phase β , des simulations de figures d'étain polycristallin ont été menées à partir des paramètres expérimentaux. Les différentes simulations effectuées sont présentées en figure IV.7 avec les raies L_α et L_β de l'or.

A première vue, il ne s'agit pas de la phase γ , en effet, les cercles les plus intenses de la figure ambiante ne coïncident pas avec l'arc de cercle le plus intense à gauche. Une compression considérable de la maille serait nécessaire afin de provoquer un décalage de la figure de diffraction. La correspondance semble meilleure concernant la phase β ambiante même si un décalage est observé entre les deux arcs de cercles et la simulation. Une tension de la maille de l'ordre de 4% doit être appliquée dans la simulation pour provoquer le décalage adéquat de la figure de diffraction. Cette traction reste hypothétique et n'a pas été observée dans les simulations au temps correspondant. Cependant, il est raisonnable de penser que le monocristal de la phase β recristallise sous la forme d'un polycristal lors de la transition inverse. Des essais de diffraction de polycristaux d'étain en phase β de taille de grain voisine de 50 μm ont été menés mais n'ont pas permis d'obtenir de figure de diffraction afin de mener une comparaison. Des études sont en cours pour essayer d'obtenir des échantillons à grain plus fin.

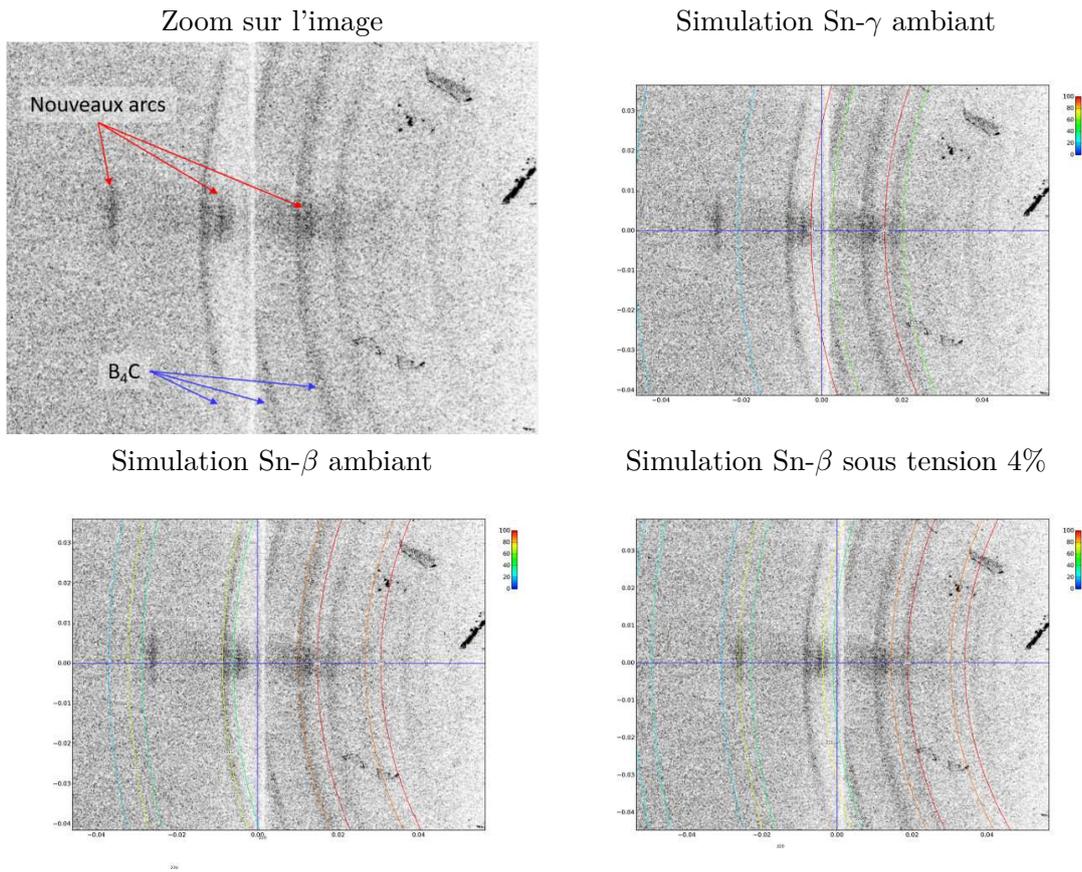


FIGURE IV.7 – Comparaison des simulations effectuées pour déterminer l’origine des arcs de cercle pour l’essai 327

Essai 332

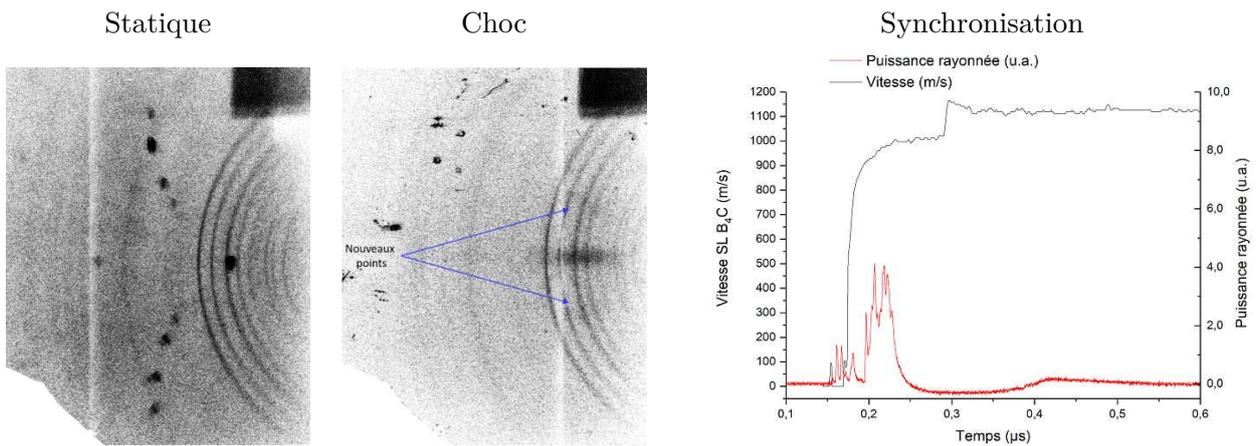


FIGURE IV.8 – Résultats obtenus pour l’essai 332

Le signal de vitesse de l'essai 332 présente les deux inflexions en montée correspondant à la limite élastique ainsi qu'au changement de phase. Le rayonnement a été émis environ 60 ns avant le plateau de vitesse et s'est poursuivi 20 ns après. L'étain a donc été sondé majoritairement pendant l'état homogène sous choc. La disparition des points de la figure de diffraction ambiante est de nouveau observée. Il semble cependant que l'on puisse discerner trois points diffus dont deux ne correspondant pas à la phase ambiante. La faible intensité de rayonnement mesurée par rapport aux deux essais précédents a probablement atténué l'intensité de ces marques. En reprenant les paramètres expérimentaux et en simulant la phase γ attendue selon la relation d'orientation (orientation (100)), il apparaît une correspondance (Figure IV.9 (gauche)) avec les plans (301), (200) et (30-1). A partir de l'analyse menée en annexe A.12, la grande largeur des points laisse à penser qu'une texturation est présente de l'ordre de 3° (Figure IV.9 (droite)). Cependant, le faible nombre de points obtenus ne permet pas de conclure quant à l'orientation et la présence de cette phase, en effet, une rotation quelconque du monocristal pourrait aussi donner lieu à une telle figure.

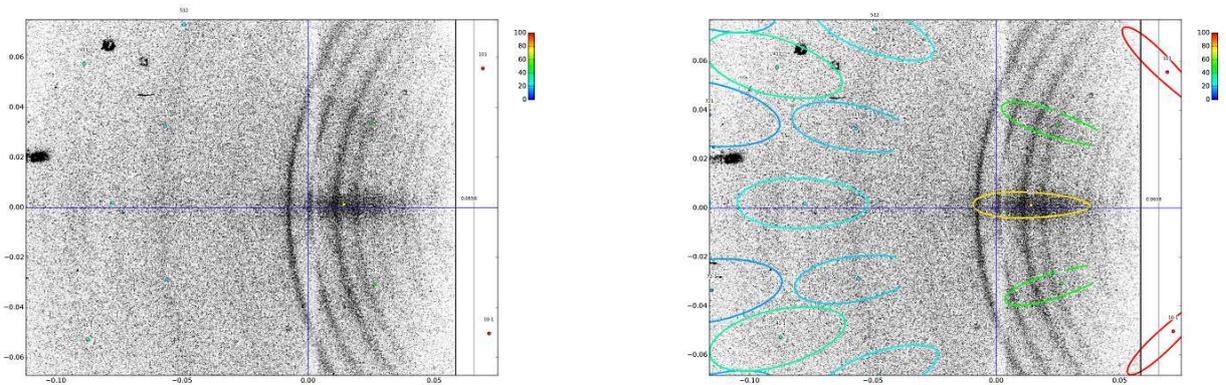


FIGURE IV.9 – Comparaison entre les taches diffuses mesurées pour l'essai 332 et les taches simulées de la phase γ (100) attendue d'après la relation d'orientation (gauche), et simulation de la texturation associée (droite)

Essai 360

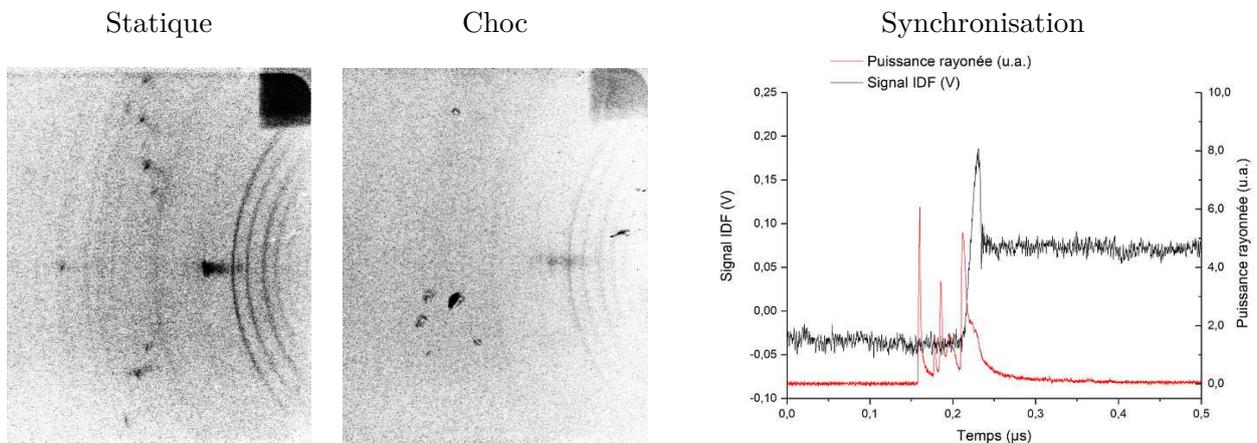


FIGURE IV.10 – Résultats obtenus pour l'essai 360

Un problème d'acquisition lors de cette expérience n'a pas permis de pouvoir traiter le signal de vitesse, néanmoins le débouché du choc reste visible et permet de vérifier la qualité de la synchronisation. Le rayonnement a été émis environ 75 ns avant le débouché de la première onde de choc. En observant les profils de vitesse équivalents, on peut estimer à 50 ns le temps de montée du profil de vitesse avant d'atteindre le plateau soit 125 ns avant. L'étain a donc commencé à être sondé avant l'état de pression homogène et un bref instant à son début. On observe encore une fois la disparition des points du monocristal ambiant même si la tache intense centrale semble se conserver. Il n'est pas possible de statuer quant à la phase sous choc de l'étain. Cependant, cet essai peut être rapproché du précédent qui a eu lieu à une compression équivalente à un temps légèrement plus tardif où l'on aperçoit l'apparition des deux taches diffuses. Si celles-ci sont effectivement dues à la phase γ , le fait que celles-ci apparaissent plus tardivement par rapport à l'état de choc et mettrait en évidence un retard à la transformation.

Essai 362

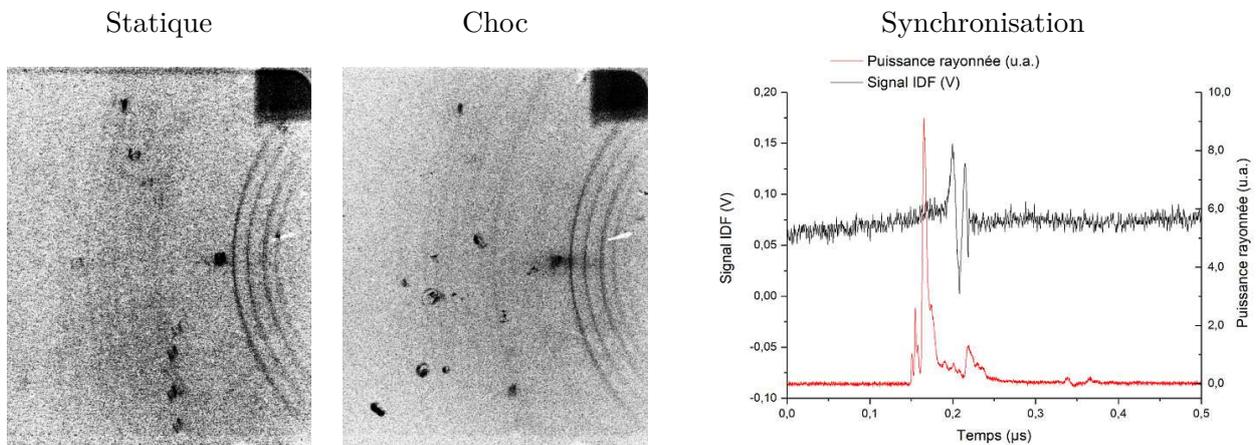


FIGURE IV.11 – Résultats obtenus pour l'essai 362

Tout comme l'essai 360, le signal IDF n'a pas pu être exploité pour déterminer la vitesse en surface libre, cependant l'instant de débouché peut quand même être déterminé. Le début du rayonnement a été émis environ 70 ns avant le débouché soit environ 120 ns avant le plateau de vitesse. Le matériau a donc été sondé avant et au début de l'état de choc. On observe nettement la conservation de certaines taches de diffraction, en particulier la tache centrale ainsi que deux points supplémentaires correspondant aux plans (231) et (-23-1). Du fait de l'orientation du cristal, ceux-ci diffractent avec l'intense raie L_α de l'or. Des taches supplémentaires peuvent être discernées correspondant aux plans (341) et (34-1) diffractant avec la raie L_γ de l'or. Il semble que le monocristal original soit donc toujours présent dans la zone sondée. En effet, dans la figure IV.12, on observe un placement similaire des différents points entre la figure statique et sous choc analysés avec l'outil d'indexation.

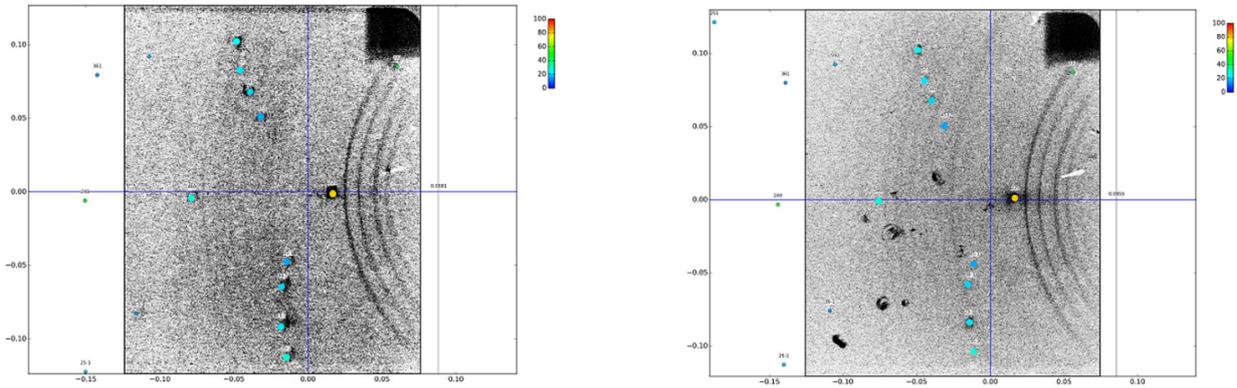


FIGURE IV.12 – Comparaison des figures de diffraction indexées statique (gauche) et dynamique (droite) pour l’essai 362. Les cercles de diffraction du B_4C sont utilisés comme référence. Les points de diffraction issus de la simulation ont été volontairement grossis par souci de lisibilité.

IV.1.B.b Orientation (100)

Essai	α_{B_4C}	Imp.	V_{Imp} (m/s)	P_{Choc}^{Sn} (GPa)	$u_{SL}^{B_4C}$ (m/s)	$P_{Meth.1}^{Sn/B_4C}$ (GPa)	$P_{Meth.2}^{Sn/B_4C}$ (GPa)	$t_{prop.}$ (ns)
365	1,1	W	669	13,8	\emptyset	\emptyset	14,5	60
367	1,1	W	656	13,5	\emptyset	\emptyset	14,2	60

α_{B_4C} correspond à la porosité estimée de la fenêtre en B_4C .

$t_{prop.}$ correspond au temps aller des ondes de choc entre l’interface de l’étain et la surface libre du B_4C . Le temps d’émission doit se faire $t_{prop.}$ avant le plateau de vitesse de surface libre.

TABLE IV.2 – Tableau récapitulatif des essais au-dessus de la transition pour les monocristaux (100)

Essai 365

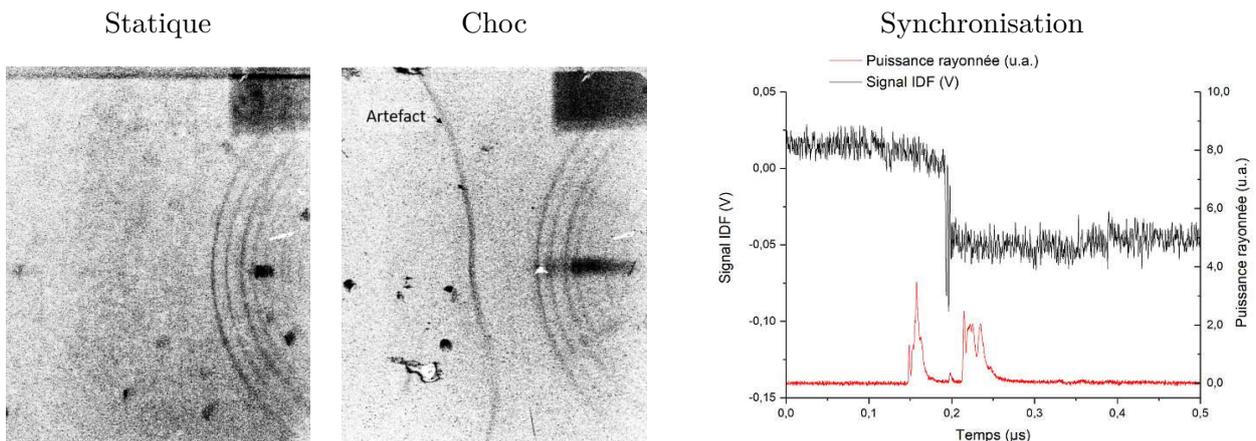


FIGURE IV.13 – Résultats obtenus pour l’essai 365

Les points obtenus en statique correspondent à la figure attendue pour cette orientation (Figure IV.4 (a)). Cet essai a aussi connu un dysfonctionnement du dispositif d'acquisition du signal IDF, la détermination du temps de débouché restant néanmoins possible. L'émission du rayonnement semble s'être effectuée en deux temps avec une première partie ayant été émise 50 ns avant le débouché (100 ns avant le plateau) sur une durée de 25 ns et une deuxième émise 17 ns après le débouché (33 ns avant le plateau) sur une durée de 38 ns. Malgré la faible intensité du rayonnement, il est encore possible de discerner les cercles de diffraction issus du B_4C . La ligne verticale est un artefact dû à une probable déformation de la plaque image après interaction avec le souffle du projectile.

La figure ambiante de l'étain n'est plus discernable sous choc excepté trois taches allongées de manière plus importante que précédemment concernant l'orientation (110). Ces taches semblent se situer au même endroit que les trois taches ambiantes, l'élongation traduisant alors une texturation du matériau. Une simulation a été menée avec l'outil d'indexation à partir des données d'après la figure statique en utilisant les cercles du B_4C comme référence. Une bonne correspondance est trouvée sur la figure sous choc avec une texturation d'environ 4° (Figure IV.14 (gauche)) pour obtenir un allongement équivalent des taches. Une simulation a aussi été menée en considérant la phase γ (110) respectant la relation d'orientation cependant il n'y a pas de correspondance (Figure IV.14 (droite)). Il est donc possible d'en déduire que le monocristal d'origine ait subi une texturation et que la phase β se conserve. Il n'est pas possible cependant de savoir si l'image correspondrait plutôt au premier flash où l'état de choc ne serait pas encore atteint ou à la deuxième correspondant à l'état homogène.

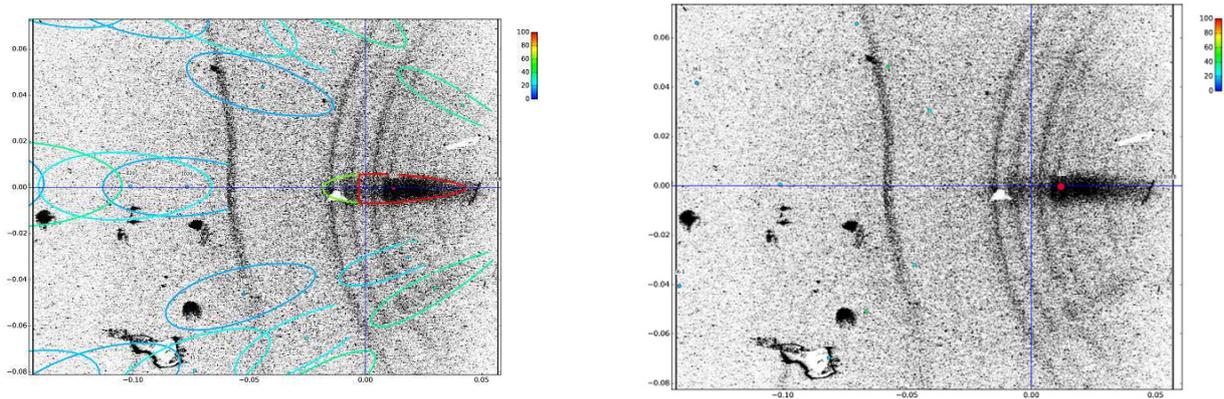


FIGURE IV.14 – Simulation de la texturation du cristal à partir de la phase ambiante (gauche) et figure de diffraction attendue pour la phase γ en respectant la relation d'orientation (droite) pour l'essai 365. Le point de l'image de droite a été grossi par souci de lisibilité.

Essai 367

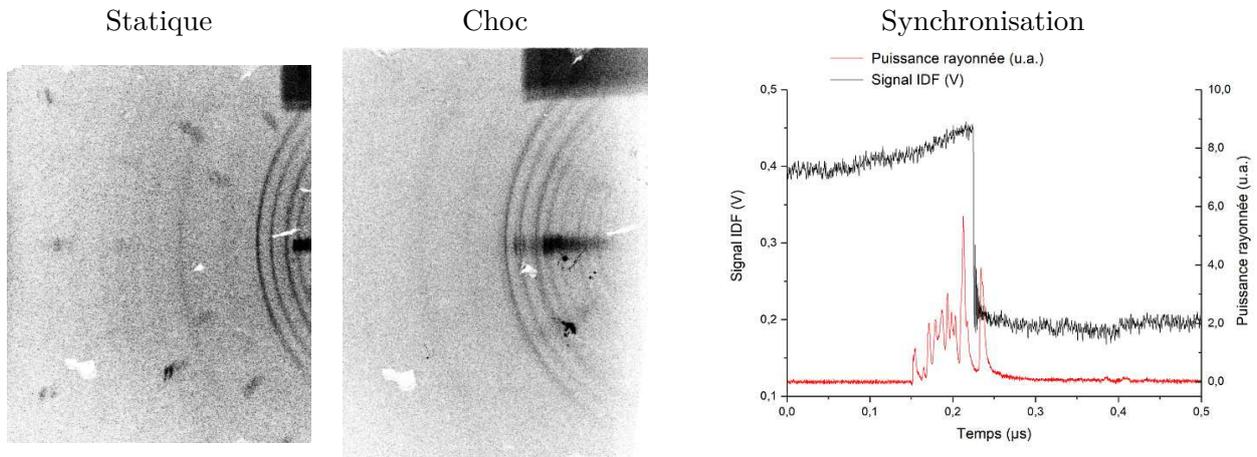


FIGURE IV.15 – Résultats obtenus pour l’essai 367

De la même manière que précédemment, le signal vélocimétrique n’a pas permis de déterminer la vitesse de surface libre mais seulement l’instant de débouché de l’onde de choc. Le rayonnement a été émis 76 ns avant le débouché soit 126 ns avant le plateau correspondant à la fin de l’état ambiant et au début de l’état sous choc homogène. De la même manière que pour l’essai précédent, on observe la conservation de trois taches allongées. Une comparaison similaire a été faite entre le monocristal ambiant subissant une texturation (Figure IV.16 (gauche)) ainsi qu’avec la phase γ attendue (Figure IV.16 (droite)). On observe là aussi une bonne correspondance avec le monocristal de départ subissant une texturation voisine de 4° . Par ailleurs, on observe également la présence d’un arc de cercle entre les deux premiers cercles intenses du B_4C . Des simulations ont été menées pour simuler la figure de diffraction des phases β et γ à partir des conditions expérimentales pour les longueurs d’ondes correspondant aux raies L_α et L_β de l’or. Les résultats sont indiqués dans la figure IV.17.

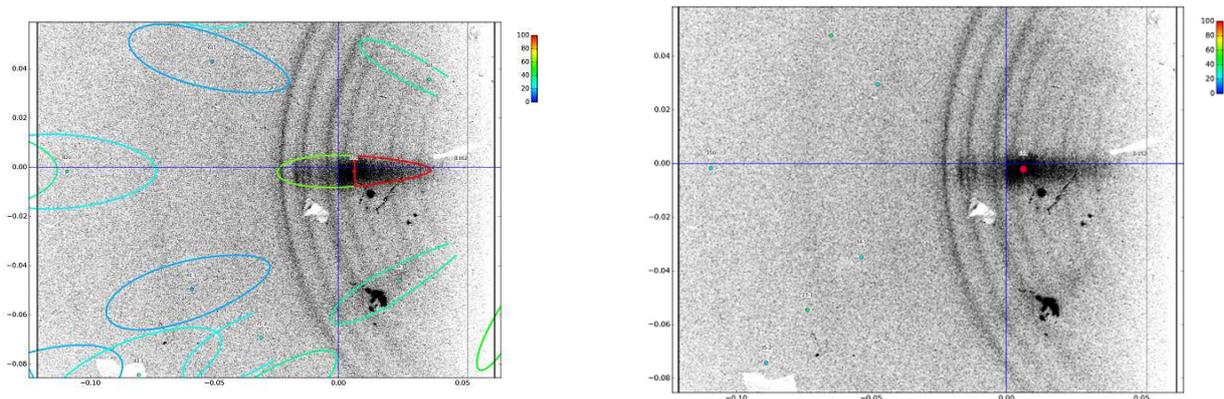


FIGURE IV.16 – Simulation de la texturation du cristal à partir de la phase ambiante (gauche) et figure de diffraction attendue pour la phase γ en respectant la relation d’orientation (droite) pour l’essai 367. Le point de l’image de droite a été grossi par souci de lisibilité.

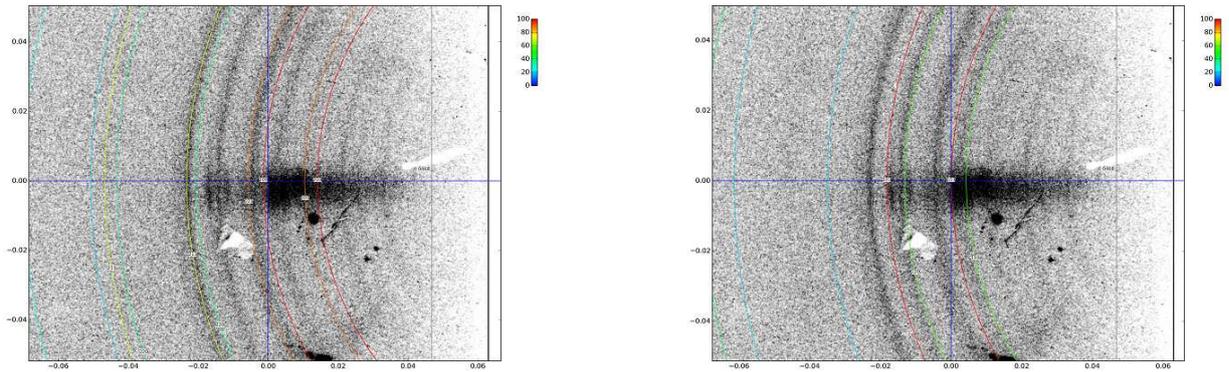


FIGURE IV.17 – Simulations des figures de diffraction pour un polycristal d'étain en phase β (gauche) et γ (droite) pour l'essai 367

La simulation de l'étain β a été effectuée en prenant en compte les paramètres de maille ambiants. On remarque qu'aucun des cercles de la phase ambiante n'est proche de l'arc de cercle. Une compression de la maille non négligeable de l'ordre de 10% serait nécessaire pour obtenir une correspondance. Les valeurs des paramètres de maille seraient alors inférieures à celles relevées dans la bibliographie. A l'inverse, les paramètres de maille de la phase γ utilisés correspondent à ceux relevés lors de la transition de phase en régime statique. La correspondance semble meilleure et l'hypothèse de présence de la phase γ semble plus probable. Le décalage observé pourrait être dû aux incertitudes expérimentales où à une différence de paramètre de maille, dans ce dernier cas, une déformation de l'ordre du pourcent serait nécessaire. Cette hypothèse reste néanmoins à confirmer sur d'autres essais.

Des essais statiques n'ont pour l'instant pas permis d'obtenir de figure de diffraction de la phase β ambiante polycristalline. La capacité de détection de la figure de diffraction de la phase γ polycristalline peut donc aussi être mise en question, surtout compte tenu de la synchronisation qui semble majoritairement sonder la fin de l'état ambiant où la nouvelle phase ne devrait pas être présente. La présence de la phase γ ne peut donc pas être confirmée dans cet essai. Il semble cependant plus probable que la figure monocristalline corresponde à la phase β à la vue de la synchronisation du rayonnement tout comme l'essai précédent.

IV.1.B.c Orientation (001)

Essai	α_{B_4C}	Imp.	V_{Imp} (m/s)	P_{Choc}^{Sn} (GPa)	$u_{SL}^{B_4C}$ (m/s)	$P_{Meth.1}^{Sn/B_4C}$ (GPa)	$P_{Meth.2}^{Sn/B_4C}$ (GPa)	$t_{prop.}$ (ns)
369	1,1	W	625	12,8	\emptyset	\emptyset	13,5	60
377*	1,0	W	626	12,8	900	14,4	15,1	56
389	1,0	W	669	13,8	940	16,3	16,2	56

α_{B_4C} correspond à la porosité estimée de la fenêtre en B_4C .

$t_{prop.}$ correspond au temps aller des ondes de choc entre l'interface de l'étain et la surface libre du B_4C . Le temps d'émission doit se faire $t_{prop.}$ avant le plateau de vitesse de surface libre.

*Du fait d'un dysfonctionnement de l'isolation entre la cuve de remplissage et le tube lanceur, un vide insuffisant n'a pas permis d'obtenir une mise en pression semblable à un impact de plaques. La pression indiquée est celle qui aurait due être obtenue en prenant en compte les paramètres de l'expérience.

TABLE IV.3 – Tableau récapitulatif des essais au-dessus de la transition pour les monocristaux (001)

Essai 369

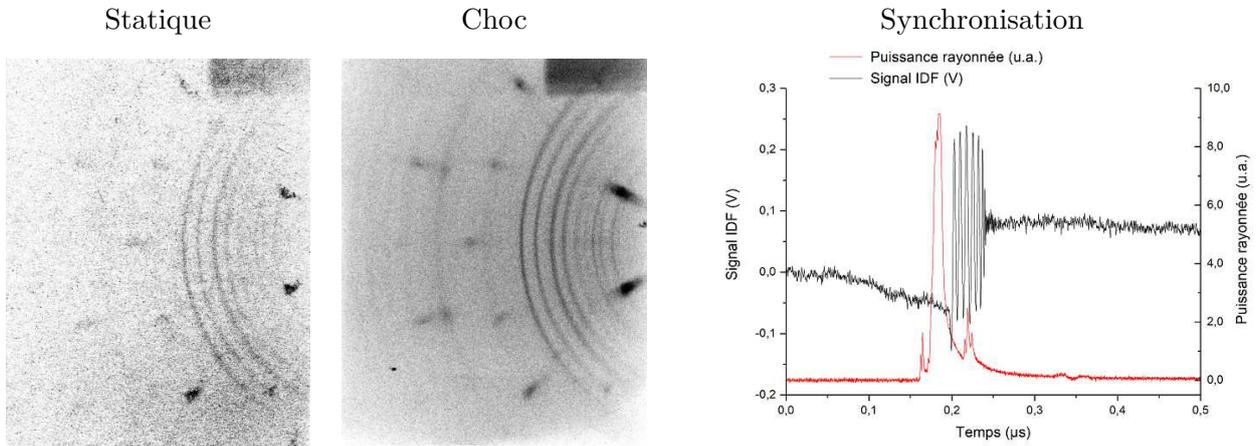


FIGURE IV.18 – Résultats obtenus pour l'essai 369

La figure de diffraction statique correspond à la figure attendue pour cette orientation (Figure IV.4 (e)). Le signal de vélocimétrie a seulement permis de déterminer l'instant de débouché de l'onde de choc en surface libre. Le rayonnement a été émis environ 80 ns avant le débouché (130 ns avant le plateau). Il semble probable que l'étain sondé n'ait pas encore atteint l'état de choc lors de la majeure partie de l'émission. En effet, la figure de diffraction sous choc est identique à la figure initiale, confirmant la présence du monocristal dans la zone sondée. Une faible élongation des points est visible pouvant indiquer une légère texturation du matériau (environ $1,5^\circ$) en particulier pour les deux points intenses situés sur la droite de l'image. Malgré la faible intensité de l'image statique, une telle texturation avant l'essai ne semble pas présente.

Essai 377

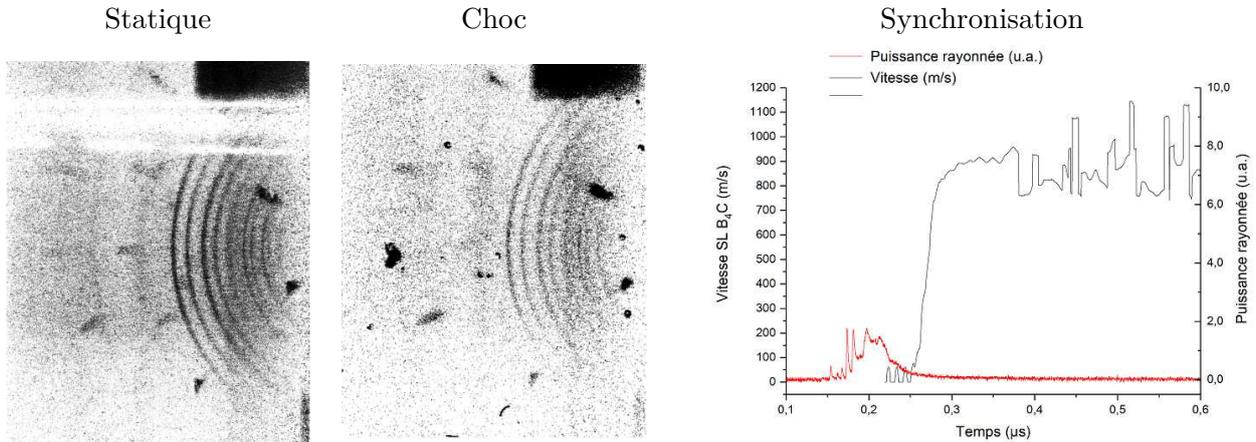


FIGURE IV.19 – Résultats obtenus pour l'essai 377

Un dysfonctionnement de l'isolation entre la cuve de remplissage et le tube lanceur a eu lieu au cours de l'essai entraînant une hausse de la valeur du vide au-dessus des valeurs recommandées dans le tube. Cet essai n'est donc pas représentatif d'une mise sous pression via un choc par impact de plaques. En effet, le front de montée du profil vélocimétrique présente une pente moins abrupte que pour les autres essais indiquant une mise sous pression plus lente. La synchronisation est mauvaise, en effet, l'émission du rayonnement est intervenue environ 150 ns avant le plateau de vitesse. La faible intensité de rayonnement ne permet pas de discerner autant de points de la figure de diffraction que pour l'image statique. Néanmoins, on ne remarque pas de différence entre les points les plus intenses entre les deux images indiquant que le monocristal est toujours présent.

Essai 389

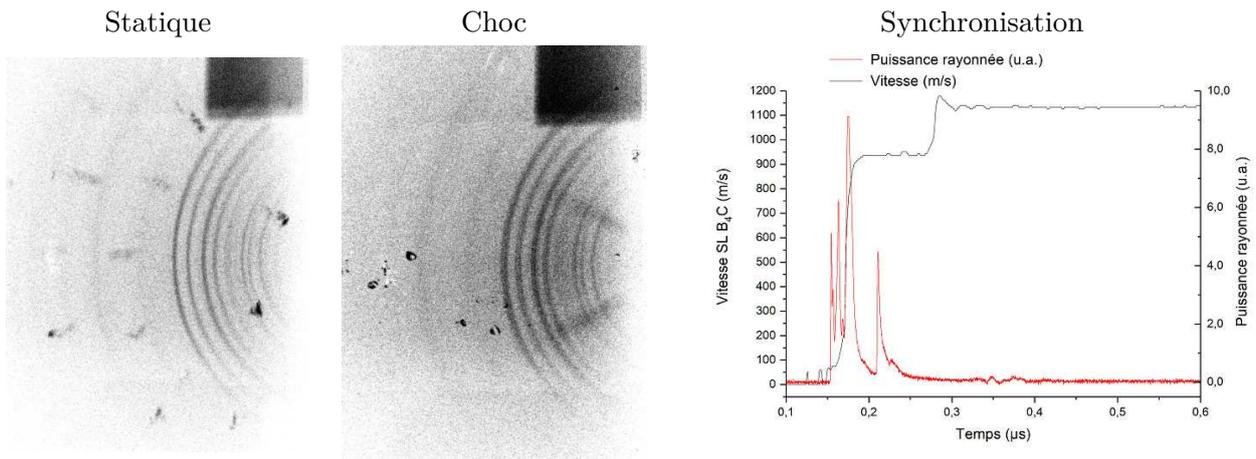


FIGURE IV.20 – Résultats obtenus pour l'essai 389

L'émission du rayonnement a eu lieu environ 40 ns avant le plateau de vitesse. L'échantillon a donc été sondé pendant l'état de choc et en détente. Sur le signal vélocimétrique, seul le précurseur élastique se détache du front de montée, la pression finale est trop importante pour observer le dédoublement caractéristique du changement de phase. La fenêtre enclume utilisée ici possède une porosité négligeable, rendant son impédance de choc plus élevée. Pour une même pression de choc, on doit alors s'attendre à une vitesse particulière inférieure. En prenant en compte les relations d'impédance avec le B_4C non poreux, la marche de vitesse devrait être observée entre 490 et 560 m/s en surface libre. On observe la disparition des points de diffraction de la figure ambiante. Seuls deux points très allongés sont observés à des positions similaires à celles des point intenses de la phase ambiante. Une comparaison a été effectuée dans la figure IV.21 avec la phase ambiante et la phase γ attendue.

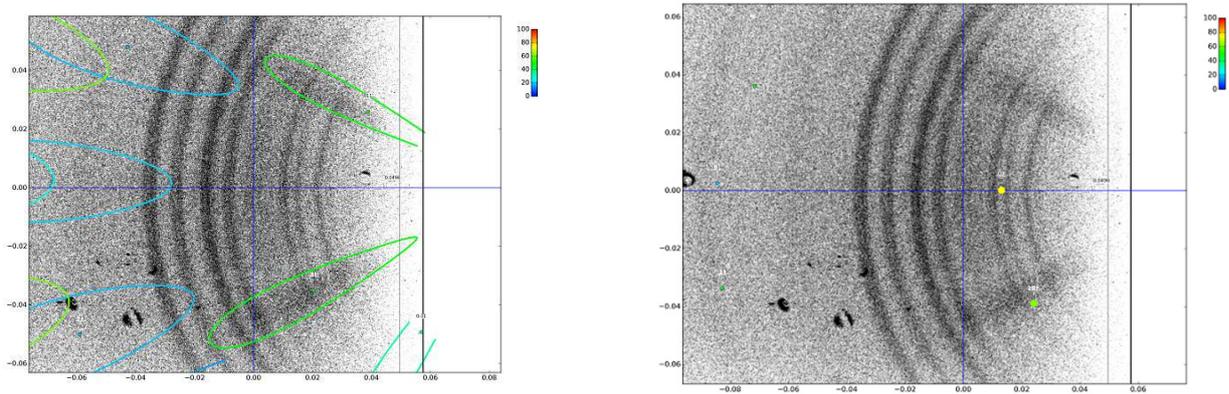


FIGURE IV.21 – Simulation de la texturation du cristal à partir de la phase ambiante (gauche) et figure de diffraction attendue pour la phase γ en respectant la relation d'orientation (droite) pour l'essai 389. Les points de l'image de droite ont été grossis par souci de lisibilité.

En ajustant les paramètres de l'outil, une bonne correspondance est obtenue pour une texturation de l'ordre de 5° afin d'entraîner une élongation suffisante à partir des points à partir de la figure ambiante. Une simulation a aussi été effectuée en prenant en compte l'orientation de la phase γ à partir de la relation d'orientation. Un point de diffraction correspondant à un plan de la famille $\{112\}$ semble proche d'un des points allongés, cependant, le point symétrique ne peut pas être obtenu même en appliquant des rotations de 90° pouvant correspondre à des orientations équivalentes à partir de la phase β . Par ailleurs, on n'observe pas non plus l'apparition d'un point intense (002) diffractant à une longueur d'onde ($0,55 \text{ \AA}$) proche de la famille $\{112\}$ ($0,46 \text{ \AA}$). Il semble donc plus probable que le monocristal de la phase β soit encore présent à l'interface lors de l'émission du rayonnement malgré l'état de pression proche de 16 GPa correspondant a priori au domaine de stabilité de la phase γ .

IV.1.B.d Orientation (111)

Essai	α_{B_4C}	Imp.	V_{Imp} (m/s)	P_{Choc}^{Sn} (GPa)	$u_{SL}^{B_4C}$ (m/s)	$P_{Meth.1}^{Sn/B_4C}$ (GPa)	$P_{Meth.2}^{Sn/B_4C}$ (GPa)	$t_{prop.}$ (ns)
383	1,0	W	662	13,6	930	15,8	16,0	56
386	1,0	W	670	13,8	920	16,6	16,2	56

α_{B_4C} correspond à la porosité estimée de la fenêtre en B_4C .

$t_{prop.}$ correspond au temps aller des ondes de choc entre l'interface de l'étain et la surface libre du B_4C . Le temps d'émission doit se faire $t_{prop.}$ avant le plateau de vitesse de surface libre.

TABLE IV.4 – Tableau récapitulatif des essais au-dessus de la transition pour les monocristaux (111)

Essai 383

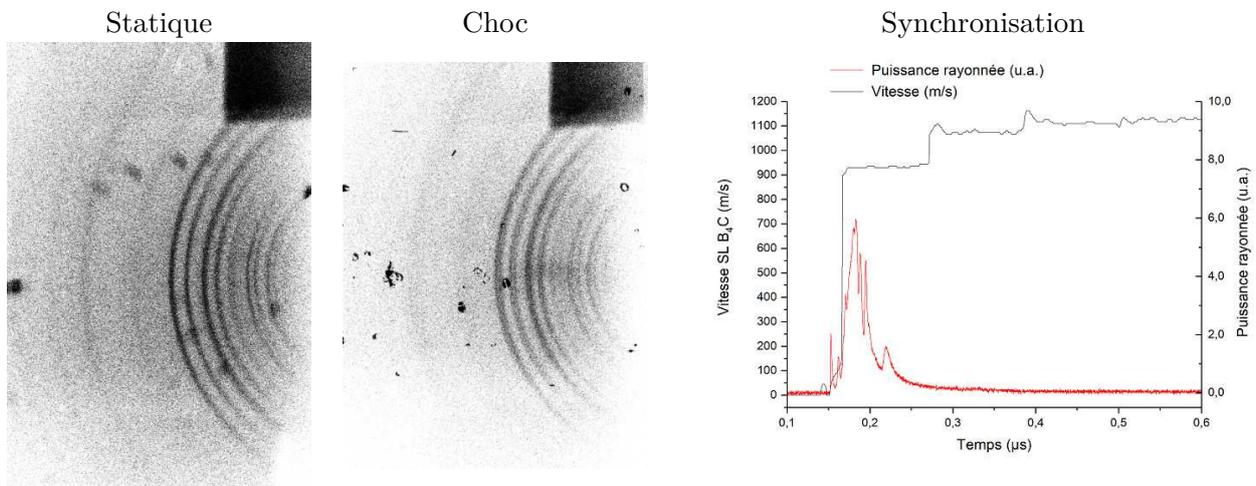


FIGURE IV.22 – Résultats obtenus pour l'essai 383

La figure de diffraction correspond bien à celle attendue pour cette orientation avec une rotation de l'échantillon de 180° sur lui même (Figure IV.4 (g)). Le rayonnement a été émis environ 20 ns avant le plateau de vitesse en surface libre. L'étain a été sondé pendant l'état homogène et principalement lors de la détente. La marche du changement de phase n'est pas visible sur le front de vitesse contrairement au précurseur élastique. Aucun point constitutif de la figure de diffraction ambiante n'est observée sous choc. Seule la figure de diffraction du B_4C persiste. A la vue de ces images, il n'est pas possible de conclure quant à la phase d'étain en présence lors de cet essai.

Essai 386

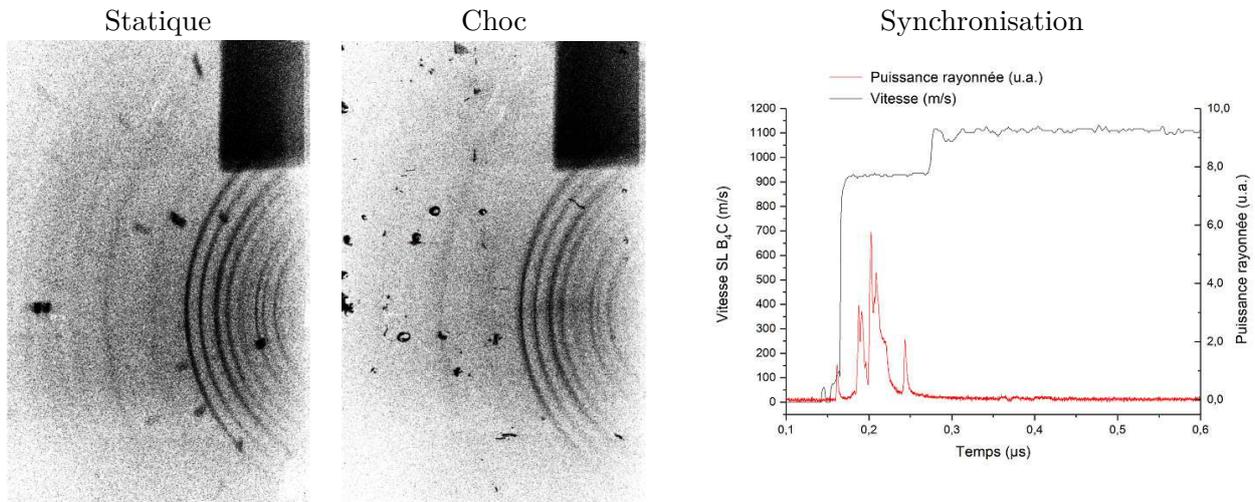


FIGURE IV.23 – Résultats obtenus pour l'essai 386

L'émission du rayonnement a eu lieu 10 ns avant le plateau de vitesse en surface libre. La majeure partie du rayonnement ayant été émise 10 ns après le plateau, l'état de détente est majoritairement sondé. Tout comme l'essai précédent on peut constater une disparition de la figure de diffraction correspondant à la phase ambiante, la figure de la fenêtre enclume restant identique.

IV.1.B.e Bilan des essais à haute pression

Orientation (110)

Les synchronisations différentes sur l'ensemble des tirs ont permis de sonder l'état homogène sous choc mais aussi des états antérieurs ou postérieurs. Sur l'ensemble des essais, on observe une forte diminution, voire une disparition de la figure de diffraction ambiante du monocristal ambiant. L'essai 332 présente la meilleure synchronisation avec la majeure partie du rayonnement ayant été émise pendant l'état de pression homogène. Lors de cet essai, il est possible d'observer trois taches allongées dont deux ne correspondant pas à la figure de diffraction ambiante de l'étain. La position de ces points semble correspondre avec l'orientation attendue pour un monocristal de phase γ en respectant la relation d'orientation. Les essais 360 et 362 ont sondé l'échantillon en majeure partie avant l'état de choc et l'apparition de ces deux taches n'est pas observée. Même si on distingue seulement une tache dans la figure de l'essai 360, la figure obtenue lors de l'essai 362 indique clairement la présence du monocristal β ambiant. Les temps de synchronisation étant les mêmes, on peut aussi penser que la tache de diffraction de l'essai 360 corresponde à la phase β . Il n'est cependant pas possible d'en déduire si ce monocristal correspond à l'état avant ou pendant le choc. La présence de ces nouvelles taches ne peut pas être confirmée lors de l'essai 324 qui a sondé l'échantillon à la fin de l'état de choc et lors de l'état de détente pour une pression de choc similaire du fait de la forte présence de bruit de fond dans l'image. La synchronisation lors de l'essai 327 n'a pas permis d'observer l'étain lors de l'état de choc mais à des temps postérieurs correspondant à un état de détente. Cependant l'apparition d'arc de cercles centraux est observée pouvant évoquer la présence d'un polycristal. A partir des simulations effectuées, l'hypothèse la plus probable correspondrait à un polycristal de la phase β . En considérant que les transitions directes et inverses ont eu lieu, la phase de retour de la phase β serait alors polycristalline. L'identification de cette microstructure pourrait donc indiquer l'occurrence des transitions de phase directe et inverse.

Orientation (100)

La synchronisation des essais 365 et 367 ont permis de sonder l'étain à des instants similaires lors de la sollicitation correspondant à la fin de l'état ambiant et au début de l'état de choc. Dans les deux cas, il s'avère que l'on observe l'apparition de trois taches allongées lors de l'image sous choc. L'emplacement de ces taches semble correspondre aux trois taches intenses observées lors de l'image statique. Par ailleurs, en considérant la relation d'orientation, la figure de diffraction de la phase γ correspondante ne présente pas de point à ces emplacements. Tout comme les essais 360 et 362, il semble que le monocristal ambiant soit encore présent pendant la durée du rayonnement et subisse une texturation. Cependant, il n'est pas possible de conclure si la figure du monocristal correspond à la fois à l'état avant et pendant le choc. L'essai 367 présente néanmoins l'apparition d'arcs de cercles dont la correspondance semble meilleure avec la phase γ polycristalline. Ce phénomène serait alors contradictoire avec les résultats obtenus pour l'orientation (110) avec la présence d'un monocristal γ .

Orientation (001)

La synchronisation des essais 369 et 377 n'a permis de sonder l'étain sous l'état de choc qu'un bref instant, la majorité du rayonnement ayant eu lieu avant l'arrivée de l'onde de choc tout comme les essais 360, 362, 365 et 367. On observe alors la conservation de la figure de diffraction du monocristal ambiant. Il semble cependant qu'une faible texturation ait lieu. L'émission du rayonnement de l'essai 389 a permis de sonder l'étain durant l'état de choc et l'état de détente. Deux taches allongées symétriques sont observées à des positions semblables à celles de la figure ambiante. La simulation prenant en compte la relation d'orientation pour la phase γ permet d'obtenir qu'un point de diffraction proche d'une des deux taches. Il semble plus probable que la phase β soit encore en présence avec une forte texturation. Cet essai peut-être rapproché de l'essai 332 en termes de synchronisation où l'on observe effectivement deux taches de diffraction similaires pour des orientations différentes.

Orientation (111)

La synchronisation des essais a permis de sonder l'étain dans un état similaire correspondant à la fin de l'état sous choc et principalement à l'état de détente. On constate au sein des deux figures de diffraction sous choc la disparition de la figure de diffraction ambiante laissant seulement la figure de la fenêtre enclume visible. Aucun indice ne permet d'attester de l'état cristallin de l'étain, que ce soit en phase β ou γ .

Conclusion

A la vue de ces premiers résultats, il est possible de distinguer plusieurs phénomènes :

- Les essais ayant sondé l'étain à la fois à la fin de l'état ambiant et au début de l'état de choc révèlent une figure de diffraction semblable à celle de l'ambiante subissant une texturation. L'angle de désorientation subi semble différent selon les orientations utilisées.
- Deux essais ont suggéré une éventuelle phase γ sans pour autant la confirmer. Ces deux essais proposent néanmoins des phénomènes contradictoires. L'essai 332 pour un échantillon (110) semble montrer que la relation d'orientation est satisfaite par l'apparition de nouveaux points ne correspondant pas à l'ambiant. A l'inverse, l'essai 367 semble montrer la formation d'une phase γ polycristalline.
- La phase β obtenue lors de la détente pourrait adopter un caractère polycristallin. Cet aspect pourrait être un indicateur de l'occurrence de la transition dans la zone sondée.

Les figures de diffraction obtenues pour les orientations autres que (110) ne permettent pas de mettre en évidence un phénomène similaire à l'essai 332 où la relation d'orientation serait satisfaite. Par ailleurs, certains essais voient l'apparition de cercles semblables évoquant la formation de polycristal. Il est donc aussi possible d'envisager une formation de la phase γ sous la forme d'un polycristal. La synchronisation des essais a permis de sonder des états plus proches du début de l'état de choc ou alors plus proches de la détente. Il serait pertinent de pouvoir directement comparer des essais à un même niveau avec une synchronisation similaire. De ce fait une influence de l'orientation du monocristal pourrait être mise en avant. En effet, différents processus de déformation plastique peuvent être favorisés pour une certaine direction de sollicitation et, par extension, pourraient être couplés à la transition de phase qui survient ensuite.

Si l'on considère que les nouvelles taches observées lors de l'essai 332 sont dues à la présence de la phase γ monocristalline, il semble donc qu'elle ne soit pas détectable dès le début de l'état de choc du fait de leur absence lors des essais 360 et 362 menés à une pression supérieure à cet essai. Le fait que cette phase ne soit pas détectée pourrait alors être expliquée par une cinétique de transformation induisant un retard temporel. La phase γ pourrait aussi être présente en faible quantité ne permettant pas de collecter assez de rayonnement diffracté. Il serait possible d'envisager que cette phase γ se développe sous forme d'un nombre restreint de cristallites ne respectant pas la relation d'orientation supposée mais conservant une orientation préférentielle issue de l'orientation du monocristal original.

Il est par ailleurs possible de penser que la phase γ adopte un aspect polycristallin. Dans ce cas, le rayonnement diffracté par un même volume sondé illuminerait une surface plus grande du détecteur, réduisant alors l'énergie déposée par unité de surface. La figure de diffraction aurait alors une intensité très faible. Des essais de diffraction de polycristaux de phase β ayant une taille de grain de l'ordre de $50 \mu\text{m}$ ont été menés et n'ont pas permis de discerner la figure de diffraction du bruit de mesure. La détection de polycristaux d'étain γ semble donc être délicate, surtout si la transition de phase est incomplète, réduisant la quantité de matière diffractante.

Les pressions de choc et d'interface dépassent les pressions auxquelles la phase gamma est détectée dans la bibliographie. On constate en effet une marche dans le profil de montée en vitesse pour les essais 324, 327 et 332 que l'on attribue au changement de phase entre 600 et 700 m/s (8,5 - 9,6 GPa). L'écart de pression provoqué par un éventuel hystérésis est donc dépassé de telle sorte que la phase γ devrait être présente. La détection de la marche en montée lors du profil de vitesse ne permet pas de conclure quant à la complétion de la transformation. En effet, cette marche pourrait indiquer le début de la transition et la phase γ serait alors en très faible quantité. A l'inverse si cette marche est révélatrice d'une transition complète, seule la phase γ devrait être présente. Cette phase devrait donc être détectée lors des essais impliquant une orientation différente et pour une synchronisation similaire sauf si une éventuelle influence de l'orientation du monocristal ne permet pas l'initiation de la transformation. Compte tenu du niveau de pression atteint à l'interface, cette hypothèse semble peu probable.

Si l'on considère maintenant que la phase γ n'est pas formée pendant la sollicitation, la phase β devant alors persister, elle devrait être identifiable sur les figures de diffraction. La comparaison quantitative en termes d'intensité de la figure de diffraction n'est pas réalisable du fait du système de numérisation. Cependant, il semble qu'une baisse de l'intensité diffractée ait lieu lors du choc. L'absence de figure de diffraction de l'étain pourrait alors être due à une intensité diffractée inférieure au niveau de bruit. Dans le cas de la conservation d'un monocristal, une figure constituée de points devrait être perceptible. Il serait également possible d'envisager un changement de microstructure de la phase β induisant la formation de certaines cristallites d'orientation particulière. On peut aussi évoquer un changement de microstructure où l'étain adopterait une structure polycristalline constituée de nombreux grains d'orientation aléatoire. On observerait alors un ensemble de points répartis sur des arcs de cercles caractéristiques d'une phase de l'étain correspondant aux raies intenses de l'or (de manière similaire aux cercles formés par la fenêtre enclume).

Le nombre de points constitutifs de chaque cercle étant proportionnel au nombre de cristaux formés. Comme évoqué précédemment, la diffraction de polycristaux d'étain β n'a pas permis d'obtenir une figure de diffraction exploitable dans la configuration actuelle. Une absence de figure de diffraction pourrait indiquer une perte de cristallinité du matériau adoptant une phase amorphe ou liquide mais ces hypothèses semblent peu probables. L'absence de figure de diffraction inhérente à l'étain reste problématique. En effet, une figure devrait être discernable quelle que soit la phase et sa configuration cristallographique. Cette hypothèse restant valable dans le cas où le matériau garderait une phase solide et une organisation cristalline. Une modification de la configuration de diffraction pourrait être envisagée à l'avenir afin d'augmenter l'intensité des figures diffractées, par exemple en choisissant un matériau alternatif pour les fils.

IV.1.C Essais à pression croissante sous la transition pour l'orientation (110)

Les essais à haute pression ont révélé dans la plupart des essais une disparition de la figure de diffraction ambiante mais ne révélant pas de nouvelle figure de diffraction renseignant sur l'état cristallographique de l'étain. Des essais ont alors été menés afin de déterminer à quel niveau de pression cette disparition a lieu et si elle peut être associée à la formation de la phase γ .

Essai	α_{B_4C}	Imp.	V_{Imp} (m/s)	P_{Choc}^{Sn} (GPa)	$u_{SL}^{B_4C}$ (m/s)	$P_{Meth.1}^{Sn/B_4C}$ (GPa)	$P_{Meth.2}^{Sn/B_4C}$ (GPa)	$t_{prop.}$ (ns)
334	1,1	Cu	334	4,6	330	5,6	5,1	60
322	1,1	Cu	425	5,9	510	6,4	6,6	60
319	1,1	Cu	442	6,2	520	6,8	6,9	60
330	1,1	Cu	472	6,6	520	7,8	7,4	60
393	1	W	389	7,5	560	8,8	9,1	56
391	1	W	440	8,6	600	10,5	10,4	56

α_{B_4C} correspond à la porosité estimée de la fenêtre en B_4C .

$t_{prop.}$ correspond au temps aller des ondes de choc entre l'interface de l'étain et la surface libre du B_4C . Le temps d'émission doit se faire $t_{prop.}$ avant le plateau de vitesse de surface libre.

TABLE IV.5 – Tableau récapitulatif des essais en-dessous de la transition pour les monocristaux (110). L'ordre des essais est présenté par pression de choc croissante.

Essai 334

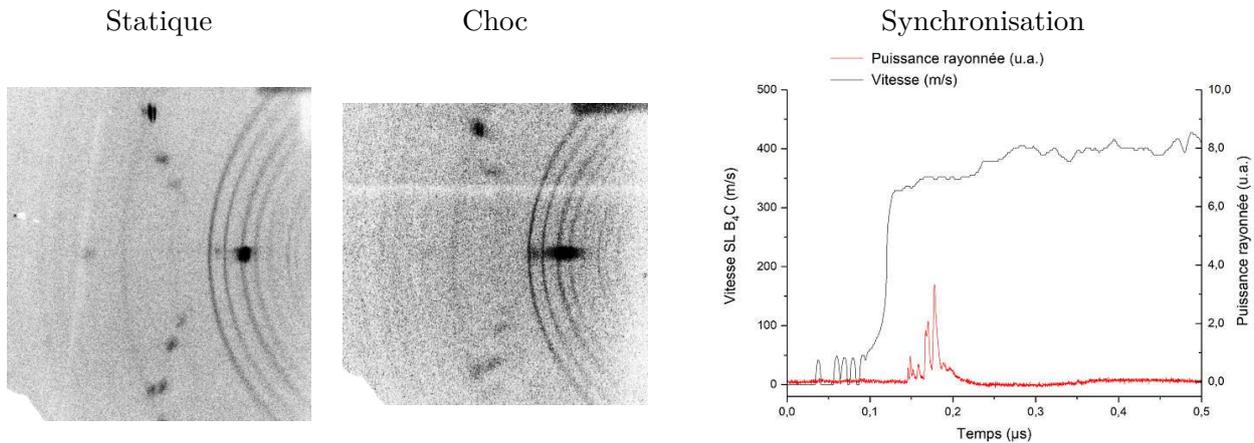


FIGURE IV.24 – Résultats obtenus pour l'essai 334

Malgré la faible intensité du rayonnement émis, la figure de diffraction sous choc laisse apparaître une figure de diffraction similaire à celle de l'ambiante. Les points constitutifs de la figure semblent cependant allongés. La synchronisation indique que le rayonnement a été émis 15 ns après le début du plateau de vitesse, correspondant à l'état de détente. A travers le chemin thermodynamique suivi, le monocristal semble se conserver mais en subissant une détérioration. Une texturation du cristal avec un angle de l'ordre de $1,7^\circ$ est proposée suite aux simulations effectuées dans la figure IV.25. Pour rappel, l'étude des différents facteurs expérimentaux pouvant influencer sur la figure est proposée en annexe A.12.

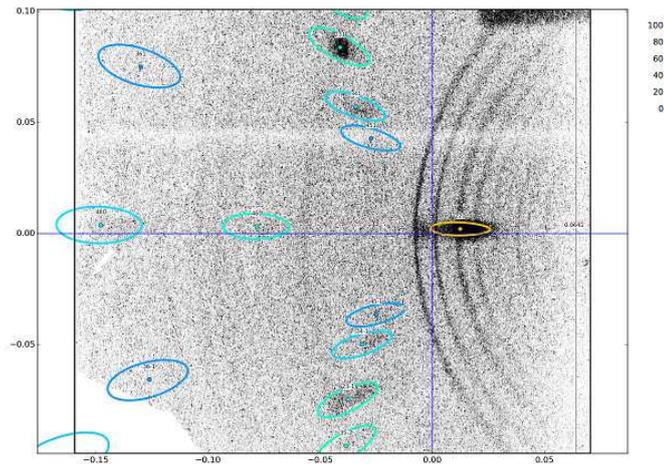


FIGURE IV.25 – Résultats de simulation obtenus pour une texturation du cristal ambiant de $1,7^\circ$ pour l'essai 334

On remarque également la présence de deux taches allongées rappelant une partie d'arc de cercle entre les deux premiers cercles intenses du B_4C . Le fait qu'elles soient aussi présentes dans la figure de diffraction statique suggère qu'elles pourraient raisonnablement être associées à de l'étain polycristallin. Ce phénomène peut aussi être observé pour d'autres figures statiques pour les essais 324, 360, 322 et 319 mais n'avait pas été considéré. Ces trois essais ont utilisé des monocristaux (110) d'un même lot de cible. Une détérioration de la surface de l'échantillon lors de l'assemblage a pu survenir et influencer sur la structure cristallographique de la zone sondée. Un soin supplémentaire a été apporté lors de l'assemblage des cibles dans les essais postérieurs afin de ne pas endommager le monocristal d'étain.

Essai 322

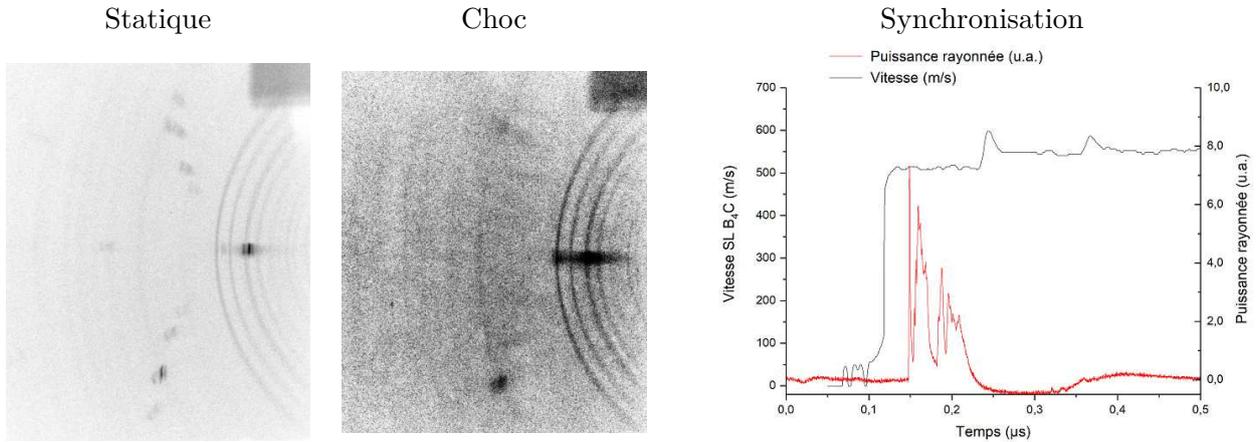


FIGURE IV.26 – Résultats obtenus pour l’essai 322

On remarque également la présence de deux taches de diffraction entre les deux premiers cercles intenses du B_4C comme évoqué précédemment. La synchronisation a montré que le rayonnement a été émis environ 25 ns après le plateau de vitesse en surface libre. Le début de la détente a été sondé de la même manière que l’essai précédent. On observe une forte élongation de la tache centrale. Les autres points de la figure statique ne sont pas visibles exceptés deux points symétriques correspondant à la famille $\{231\}$. Ces trois points diffractent pour des longueurs d’onde proches des raies de l’or. Le haut niveau de bruit pourrait laisser à penser que le fond continu n’a pas été assez intense pour permettre la génération des autres points constitutifs de la figure de diffraction. Une texturation comprise entre 2 et 3° permet d’obtenir une élongation similaire à celle observée expérimentalement.

Essai 319

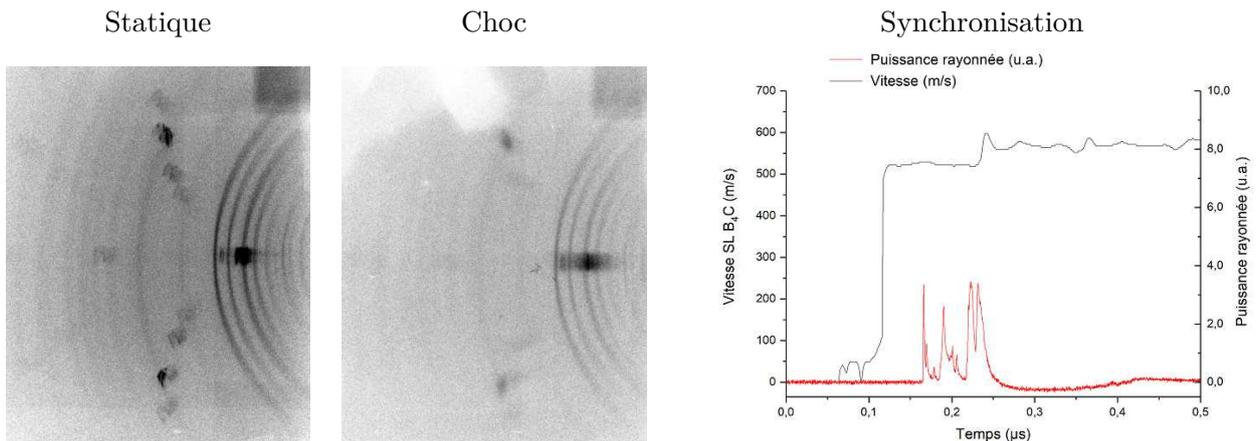


FIGURE IV.27 – Résultats obtenus pour l’essai 319

La figure de diffraction présente elle aussi deux taches situées entre les deux premiers cercles intenses du B_4C . Le rayonnement a été émis environ 40 ns après l'atteinte du plateau de vitesse, l'état de choc n'a donc pas été sondé mais seulement la détente venant ensuite. On observe ici la conservation de la figure de diffraction ambiante même s'il est plus difficile de la discerner sous choc. Il ne semble pas qu'une élongation des taches de diffraction soit visible. Cette faible visibilité pourrait être expliquée par la faible intensité du rayonnement émis détecté par la diode. On peut en déduire que le monocristal soit encore présent lors de l'essai précédent à plus bas niveau.

Essai 330

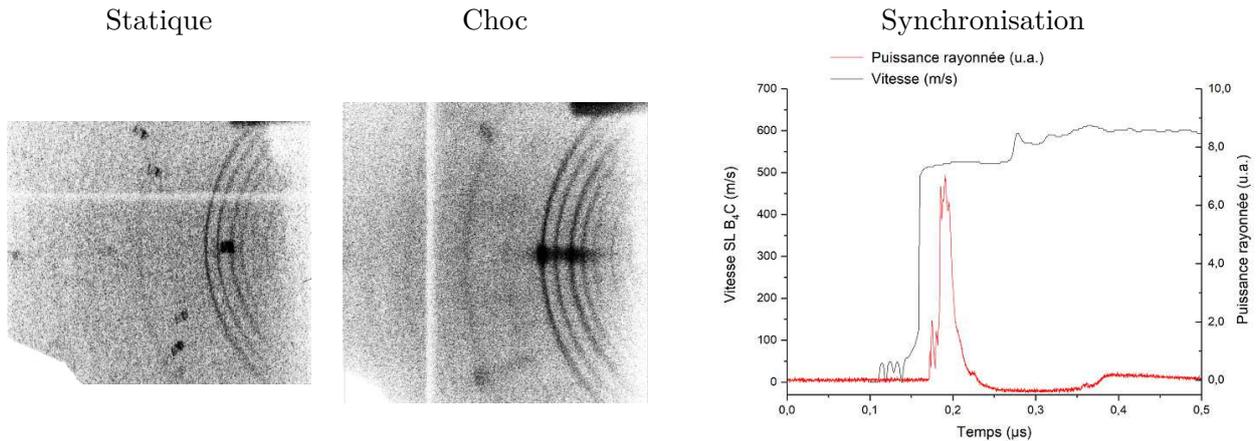


FIGURE IV.28 – Résultats obtenus pour l'essai 330

La synchronisation indique que le rayonnement a été émis environ 10 ns après le plateau de vitesse correspondant au début de la détente. Ici encore, trois taches allongées sont discernables correspondant aux raies de l'or. Une texturation proche de 3° permet d'obtenir une élongation équivalente dans la simulation. Il semble donc que la phase β soit encore présente pour ce niveau de sollicitation après l'état de choc.

Essai 393

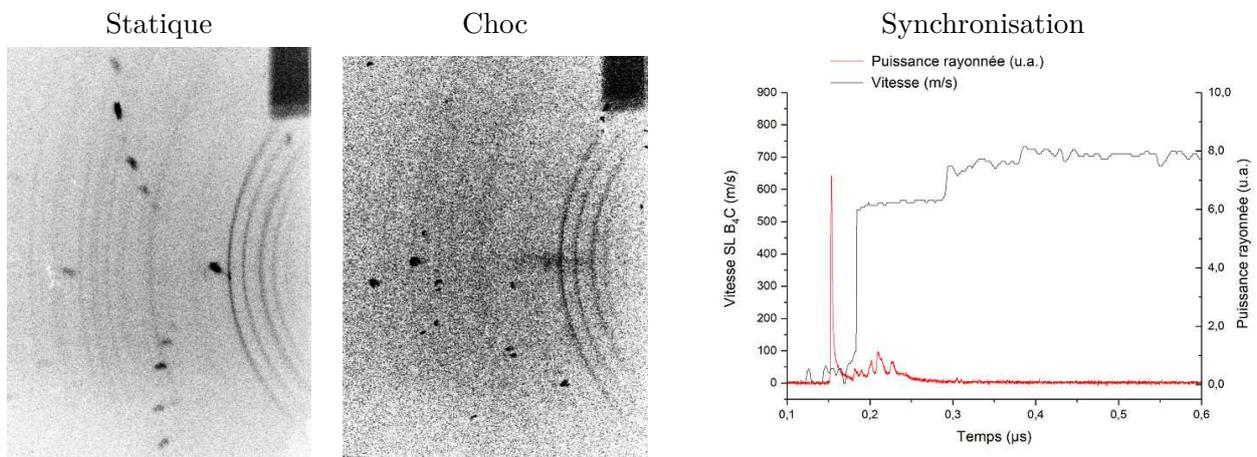


FIGURE IV.29 – Résultats obtenus pour l'essai 393

La synchronisation indique que le rayonnement a été émis environ 40 ns avant le plateau de vitesse et a principalement sondé l'état sous choc avec le pic d'émission intense. On observe un fort niveau de bruit rendant les cercles du B_4C plus difficiles à identifier qu'à l'accoutumée induisant une intensité totale émise faible. La figure de diffraction du monocristal du bras statique (non montré ici) est également faiblement identifiable. Les points de la figure ambiante ne sont pas discernables mis à part le point central. Le B_4C ayant une porosité négligeable, on peut estimer la marche de changement de phase entre 490 et 560 m/s comme évoqué dans l'essai 389. La vitesse du plateau semble donc indiquer que la pression serait voisine du changement de phase. Il n'est donc pas possible de conclure quant à la phase en présence lors de cet essai. La tache centrale étant positionnée au même endroit que pour le monocristal ambiant, la phase β serait la plus probable.

Essai 391

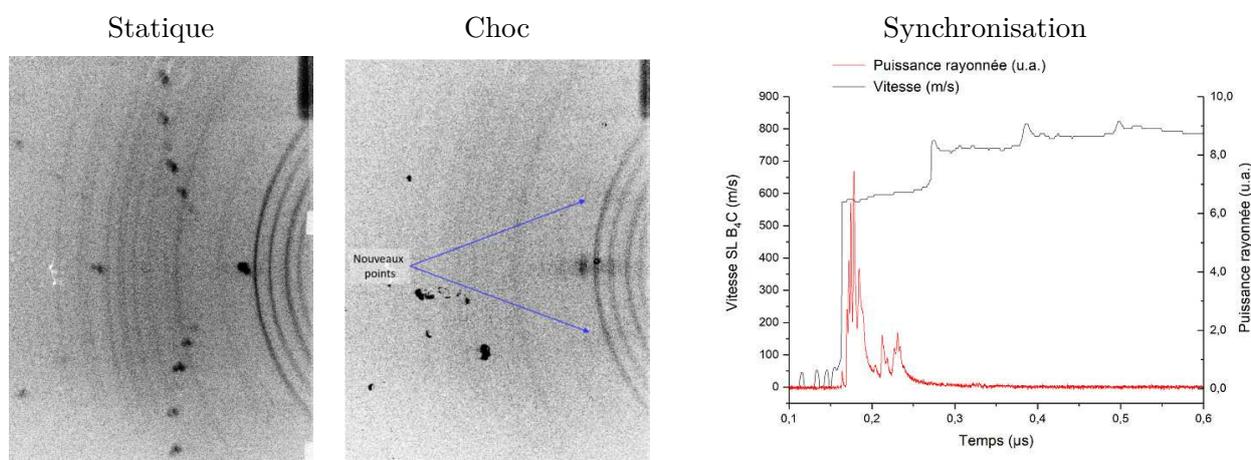


FIGURE IV.30 – Résultats obtenus pour l'essai 391

Le début d'émission du rayonnement a eu lieu lors de l'atteinte du plateau de vitesse. La toute fin de l'état de choc ainsi que l'état de détente ont été sondés. La vitesse correspondant au plateau de pression est proche des vitesses attendues pour la marche correspondant au changement de phase avec la fenêtre en B_4C non poreux. On observe là encore la disparition des points de la figure de diffraction ambiante, seule la tache centrale semble demeurer. Il est possible de distinguer de manière diffuse deux autres taches allongées symétriques similaires à celles de l'essai 332 ne correspondant pas au monocristal (110) ambiant. En utilisant à nouveau la relation d'orientation pour obtenir la phase γ , on retrouve là encore les points des plans (301) et (30-1) qui coïncident.

IV.1.C.a Bilan des essais à pression croissante

Les différents essais menés semblent montrer une disparition progressive de la figure de diffraction de la phase (110) ambiante avec la montée en pression. La synchronisation des essais a majoritairement permis de sonder l'étain à la fin de l'état de choc et partiellement en détente. L'identification de la phase β jusqu'à l'essai 330 (pression inférieure à 8 GPa) permet de conclure quant à la conservation du monocristal lors d'un choc à pression inférieure à la transition jusqu'à la phase de détente. L'intensité diffractée sous choc par ces figures semble plus faible et peut nuire à l'identification de la figure. Le phénomène de texturation envisagé crée un étalement de la zone éclairée sur le détecteur, réduisant de fait l'intensité perçue. Cette identification est aussi fortement tributaire de l'intensité variable de la source.

La disparition effective de la figure ambiante est observée lors de l'essai 393. La pression est alors proche de celle du changement de phase mais reste inférieure. La disparition de ces points est à nuancer avec la faible intensité du rayonnement. La figure de diffraction de l'échantillon de référence statique, rendue possible grâce à l'émission isotrope de la source, est aussi très peu intense, même pour les plans diffractant avec les raies de l'or.

L'essai 391 a permis de sonder l'étain à une pression légèrement supérieure à celle généralement admise pour le changement de phase. On observe un phénomène similaire à l'essai 330 avec l'apparition de taches ne correspondant pas à la phase ambiante. Il serait alors possible de penser que la transition β - γ a eu lieu si cette figure peut être associée à la phase γ . Les autres essais à haute pression réalisés pour l'orientation (110) n'ont pas permis de sonder l'étain à des temps de synchronisation similaires. La similarité des résultats entre les essais 391 et 330 pourrait laisser à penser à un phénomène reproductible. Il serait alors possible d'envisager la création d'une ou plusieurs cristallites de la phase β ou γ dont l'orientation serait déterminée en fonction de l'orientation du monocristal initial. Compte tenu du temps de synchronisation, l'identification de cette structure pourrait être accessible pour des états correspondant à la fin de l'état sous pression voire à la détente quelque soit le niveau de pression. Des essais supplémentaires à des pressions comprises entre 8 et 11 GPa à des temps de synchronisation similaires pourraient être utiles pour approfondir la disparition de la figure ambiante.

IV.1.D Conclusion des essais menés au CEA Gramat

Les essais menés au CEA Gramat ont permis de poser des premières hypothèses de comportement sous choc. La combinaison du générateur X-Pinch avec un lanceur grâce à un système de synchronisation a permis de sonder l'étain dans des états proches de l'état de choc. Les résultats obtenus sur cette installation sont prometteurs et permettent une alternative intéressante pour effectuer des expériences à l'échelle du laboratoire. Son intérêt peut être perçu pour prototyper des expériences avant de les implémenter au sein de grandes installations comme sur synchrotron par exemple. La durée du rayonnement reste cependant problématique car elle demeure trop importante par rapport à l'état d'observation envisagé. Il est donc probable que la figure de diffraction soit représentative de plusieurs états. Pour pallier à ce problème il va être nécessaire d'essayer de réduire le temps d'émission ou d'augmenter le temps d'observation.

Parmi toutes les orientations testées, seules les orientations (110) ont permis de faire apparaître des points de diffraction n'appartenant pas à la figure ambiante pour des pressions supérieures à la phase ambiante. La synchronisation du rayonnement a alors permis de sonder la fin de l'état de choc et le début de l'état de détente. La détection de cette microstructure pourrait donc être décalée par rapport à la mise en pression révélant une influence de la cinétique de transformation. Ces nouveaux points semblent bien corrélés à la figure attendue pour la phase γ d'après la relation d'orientation proposée, même si les résultats ne permettent pas d'affirmer avec certitude la présence de cette nouvelle phase. La phase β pourrait adopter une microstructure polycristalline en détente suite à la transformation. La disparition progressive de la figure de diffraction ambiante lors de la montée en pression semble indiquer que la pression de choc influence l'évolution du monocristal en provoquant une détérioration de celui-ci.

IV.2 Dynamic Compression Sector

Les essais ont été menés au sein du synchrotron de l'APS en utilisant une configuration expérimentale proche de celle du CEA Gramat (voir II.2.A.a). Des essais sous choc au-dessus et en dessous de la transition ont été effectués. La durée d'exposition étant proche de 100 ps, la synchronisation sera satisfaisante si une des quatre expositions a eu lieu pendant le plateau de choc. Les essais ont été configurés pour faire en sorte que la deuxième image soit acquise durant cet état, la première sondant le matériau avant l'arrivée de l'onde de choc.

Des difficultés d'approvisionnement en monocristaux d'étain n'ont pas permis d'orienter les monocristaux avant le collage des cibles contrairement au CEA Gramat. Cependant, des images avant essai ont été acquises pour s'assurer de la présence d'un nombre de points de diffraction suffisant. Après analyse des figures, la majeure partie des essais a été effectuée avec un monocristal de rotation similaire. Les fenêtres enclumes en LiF étaient constituées d'un monocristal (001), une orientation préalable a permis d'effectuer la rotation adéquate afin de minimiser le nombre de points de diffraction pouvant gêner à l'interprétation des figures. Les fenêtres en PMMA étant amorphes, leur figure de diffraction adopte l'aspect d'une tache diffuse à des angles faibles. Des corrections de luminosité et de contraste ont été effectuées afin de mettre en évidence les figures de diffraction. Un essai de calibration a été effectué à partir d'un échantillon de silicium (Si) polycristallin et a permis de fixer les paramètres expérimentaux (Figure III.20). A partir de la calibration du Si, les longueurs d'onde les plus intenses sur le spectre correspondent à un intervalle compris entre 0,51 et 0,53 Å dans l'outil d'indexation. Cette gamme peut être légèrement étendue dans l'analyse des figures de monocristaux car pouvant générer des points de diffraction peu intenses. Une gamme de longueur d'onde s'étendant entre 0,5 et 0,69 Å a été considérée, pour faire apparaître un maximum de points. A partir de la figure de diffraction de calibration, la longueur d'onde la plus intense a été estimée à 0,508 Å par intégration azimutale sur le logiciel Dioptas [68]. Du fait de la faible taille du détecteur, un ajustement de la position de l'ordre de quelques centaines de micromètres a dû être effectué. Un ajustement de la position a été appliqué lors des différents traitements afin de permettre une première comparaison des essais entre eux.

L'objectif principal ici était de mener une première analyse qualitative de l'évolution de la figure de diffraction monocristalline sous diverses sollicitations et d'observer la formation de la phase γ afin de valider la configuration expérimentale. Une deuxième campagne d'analyse quantitative en perfectionnant les paramètres expérimentaux était prévue mais n'a pas pu être mise en œuvre à cause de la crise sanitaire.

L'utilisation de fenêtres transparentes a permis de sonder directement la vitesse particulière à l'interface avec l'étain. Ces fenêtres en LiF ou en PMMA sont moins impédantes que le B_4C , cependant le lanceur est capable d'atteindre des vitesses de projectile supérieures à celles du CEA Gramat. Ainsi des pressions de choc supérieures à la pression de transition peuvent être atteintes à l'interface. La pression de choc dans l'étain sera ainsi estimée de deux manières tout comme précédemment :

1. A partir de la mesure de la vitesse d'impact et de la mesure de la vitesse particulière à l'interface.¹ On va alors utiliser la polaire de l'étain à partir de l'état de choc supposé pour déterminer le nouvel état à partir de la vitesse d'interface.
2. A partir de la mesure de la vitesse d'impact et en utilisant les relations d'impédance du matériau constitutif de la fenêtre enclume (Figure II.21)

1. Contrairement aux essais du CEA Gramat, l'approximation de la vitesse de surface libre n'est pas nécessaire pour calculer la vitesse particulière à l'interface étain/fenêtre.

Le tracé des profils vélocimétriques à partir du logiciel de traitement s'est révélé difficile. En effet, on constate la présence de plusieurs phénomènes dans les spectrogrammes correspondants comme illustré dans la figure IV.31 (gauche). On remarque plusieurs harmoniques pouvant induire en erreur la transformée de Fourier par fenêtre glissante, en particulier pour les temps longs où la fréquence du signal de vitesse est moins perceptible. Différents filtres fréquentiels ont été utilisés pour isoler le signal sur des tronçons temporels afin de reconstruire le signal final.

Par ailleurs, les essais utilisant des fenêtres en LiF ont révélé une anomalie dans le premier plateau de vitesse où une chute de celle-ci est observée. Des simulations comparatives ont été réalisées (Figure IV.31 (droite)) afin de comprendre la présence de cette anomalie. Il semble que la chute de vitesse coïncide avec l'instant de mise en vitesse de la surface libre du LiF. Cette accélération est d'ailleurs observable sur le spectrogramme de certains essais, cependant une correction différente est nécessaire pour déterminer la vitesse réelle, en effet, une correction due au LiF est appliquée pour le signal d'interface. Elle n'est pas nécessaire en surface libre du fait de la réflexion du signal dans l'air. Les vitesses obtenues à la suite de cette anomalie ne correspondent pas aux vitesses normalement attendues pour ce type d'essai.

Un essai de reproductibilité a été mené au CEA Gramat dans les mêmes conditions qu'un essai au synchrotron. L'anomalie est à nouveau détectée excluant toute erreur de manipulation lors des mesures. Il est à noter que cette anomalie n'a pas été observée dans le cadre des essais utilisant une fenêtre enclume en PMMA de même épaisseur que celles en LiF lors des essais au synchrotron. Les temps longs correspondant à des états de détente issus de l'interaction des différentes ondes transmises et réfléchies à travers la cible rend difficile l'interprétation de l'état de l'échantillon sondé en diffraction.

Une explication de ce phénomène a été apportée dans le travail de Fratanduono [77] et est développée en annexe A.14. Le saut de vitesse observé provient de l'occurrence d'une discontinuité analytique dans l'expression de la vitesse apparente de l'interface. Cette discontinuité survient lors du débouché de l'onde de choc à la surface libre de la fenêtre enclume et n'est donc pas visible pour des fenêtres plus épaisses. Du fait que cette anomalie se produise au débouché de l'onde de choc en surface libre du LiF et que les valeurs théoriques et expérimentales des différents sauts observés soient proches tendent à penser qu'elle puisse être expliquée par ce phénomène. Il est donc possible de considérer que l'état homogène de choc à l'interface perdure lors de l'anomalie, jusqu'à l'accélération observée, correspondant au retour des ondes de détente à l'interface. Seules les figures de diffraction ayant été collectées avant et pendant le premier plateau de vitesse, jusqu'à l'accélération à la fin de l'anomalie, pourront être directement reliées à un état connu de l'étain à savoir à l'état ambiant et homogène de pression à l'interface.

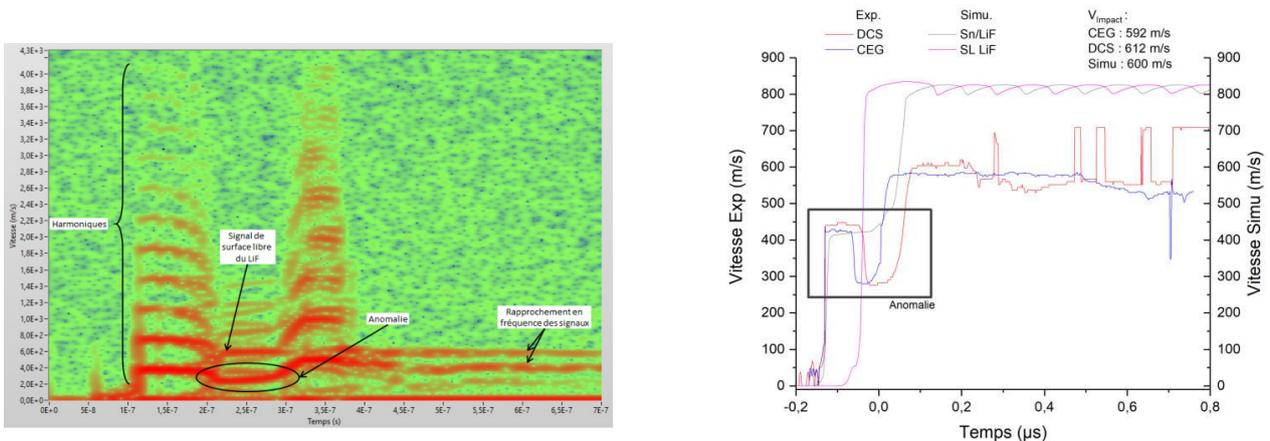


FIGURE IV.31 – Exemple de spectrogramme obtenu lors de l'analyse du signal vélocimétrique (gauche) et comparaison entre la simulation du profil de vitesse et les résultats expérimentaux

IV.2.A Essais au-dessus de la transition

Essai	Imp.	V_{Imp} (m/s)	P_{Choc}^{Sn} (GPa)	$u_{Sn/LiF}$ (m/s)	$P_{Meth.1}^{Sn/LiF}$ (GPa)	$P_{Meth.2}^{Sn/LiF}$ (GPa)
3	Ta	1013	19,2	868	14,0	14,3
5	Ta	1005	19,0	720	18,3	14,1
8	Ta	802	14,5	691	10,7	10,9

TABLE IV.6 – Tableau récapitulatif des essais au-dessus de la transition pour les monocristaux (110)

Essai 3

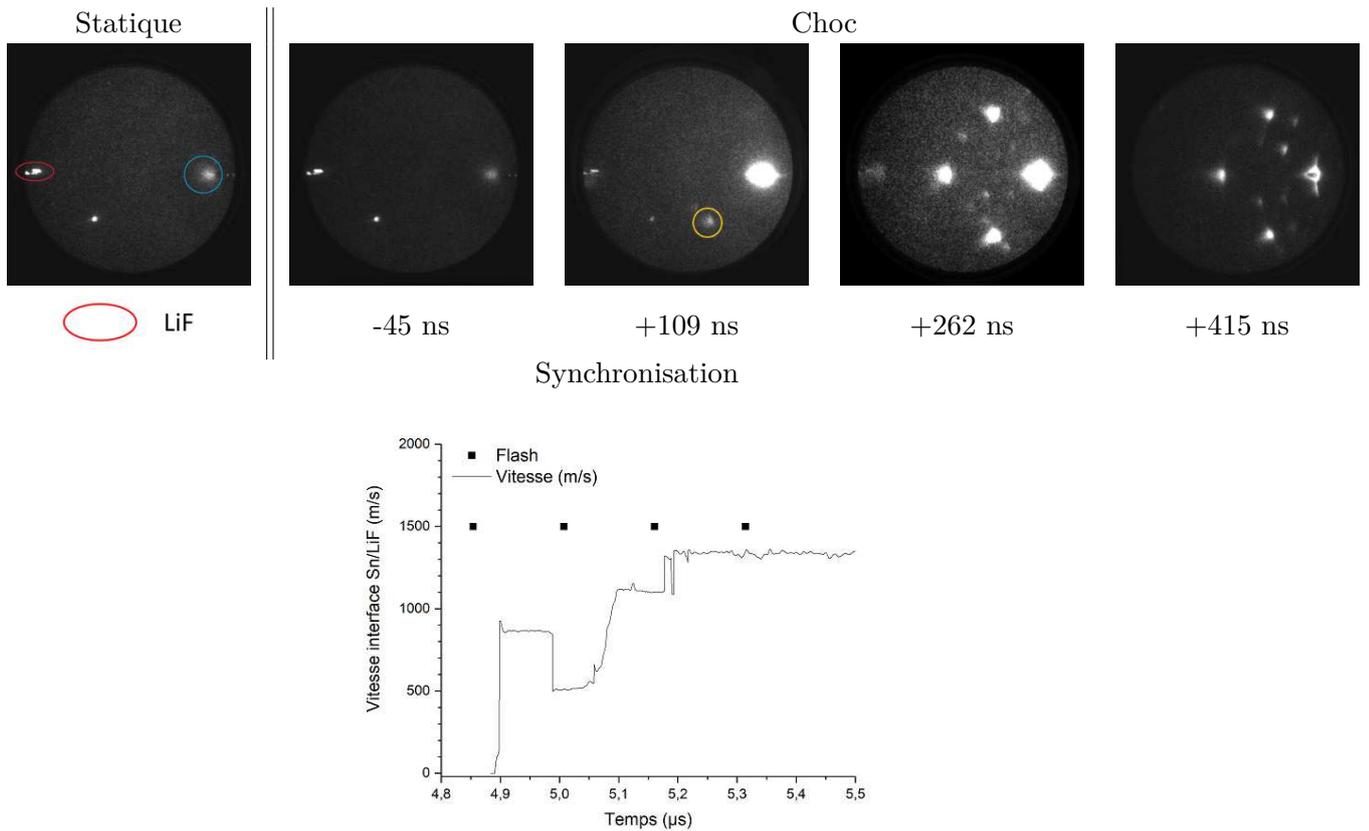


FIGURE IV.32 – Résultats obtenus pour l'essai 3, les temps correspondent au retard par rapport au débouché de l'onde de choc à l'interface ($\approx 4,9 \mu s$ sur le signal de vitesse)

La figure de diffraction statique comporte à la fois la figure de diffraction de l'étain ambiant ainsi que celle de la fenêtre enclume en LiF. On remarque par ailleurs la présence d'un point lumineux intense aux petits angles (cercle bleu). Ce phénomène a été observé à tous les essais mais ne semble pas provenir de l'étain dont les points de la figure de diffraction ont une très faible taille et une forte intensité. La première image a été acquise avant le débouché de l'onde de choc à l'interface et est similaire à l'image ambiante. La deuxième image a été acquise sur le plateau de pression visé. On remarque la rémanence de la figure de diffraction ambiante sur les images acquises sous choc. Après consultation, il s'agit d'un fantôme, un artefact de mesure dû à la rémanence de l'image précédente sur le capteur, de l'ordre de quelques pourcents d'intensité. Le point lumineux intense aux petits angles semble aussi gagner en intensité. On constate l'apparition d'un nouveau point (cercle orange) ne correspondant pas à la figure de diffraction ambiante.

L'identification de ce point peut se faire soit en considérant un monocristal et en utilisant les paramètres expérimentaux de la figure ambiante plus la relation d'orientation supposée soit en simulant la formation d'un polycristal lors du choc en considérant les paramètres obtenus lors de la calibration avec le silicium polycristallin. Dans les deux cas, il semble que la phase γ corresponde le mieux à l'emplacement de ces points comme illustré dans les figures IV.33 et IV.34.

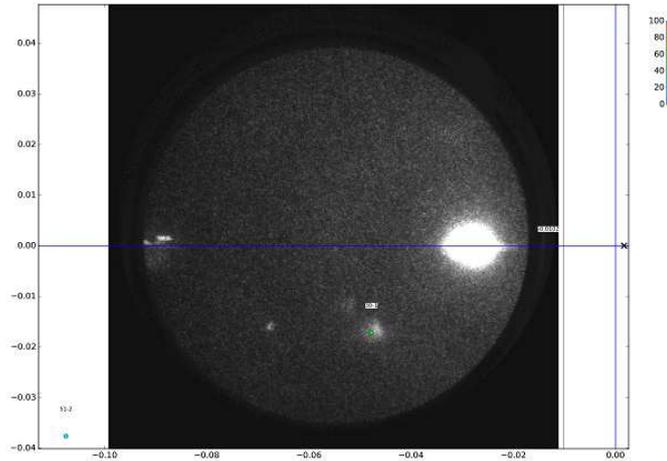


FIGURE IV.33 – Essais d'indexation pour l'essai 3 en considérant un monocristal γ (image à +109 ns sur la figure IV.32)

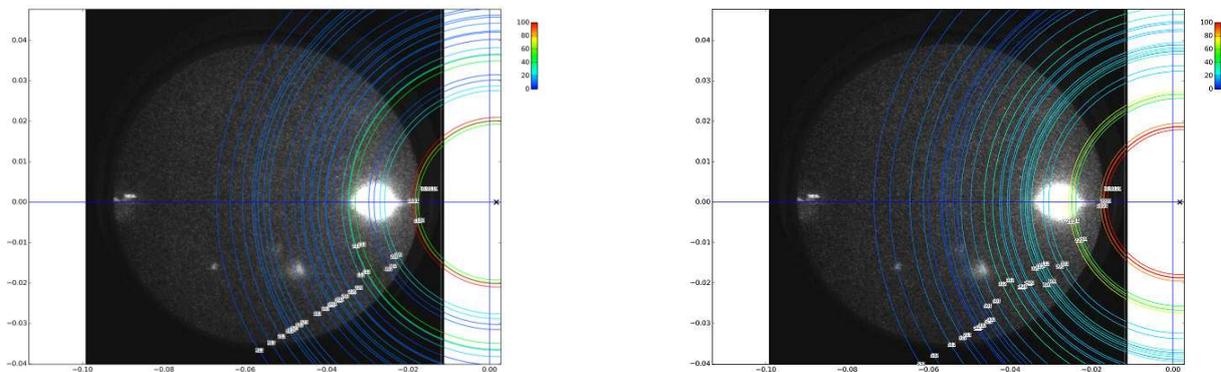


FIGURE IV.34 – Essais d'indexation pour l'essai 3 (image à +109 ns sur la figure IV.32) en considérant un polycristal γ (gauche) ou β comprimé (droite)

En considérant la conservation d'un monocristal avec la relation d'orientation, un point de diffraction correspondant au plan (30-1) se situe à l'emplacement correspondant au point identifié. Si l'on considère maintenant la formation d'un polycristal avec une gamme spectrale plus restreinte, la famille de plans $\{103\}$ pourrait être à l'origine de ce point. Une unique cristallite d'orientation aléatoire serait alors formée. L'hypothèse de la présence de la phase β comprimée n'est pas à exclure, en effet, on remarque aussi la présence d'un cercle de diffraction correspondant à la famille $\{501\}$ proche de ce point.

Les images suivantes correspondant à un état de détente, des figures devraient correspondre à la phase β . Des simulations ont été menées pour déterminer quelle phase pourrait le mieux correspondre (Figure IV.35). On observe l'apparition de trois points intenses symétriques dans l'image 3. Le point inférieur observé dans celle-ci se situe à un angle de diffraction inférieur à celui de l'image 2. Dans l'image 4, on observe également l'apparition de six autres points dont quatre semblent se répartir sur un cercle d'angle de diffraction inférieur et les deux autres sur un cercle passant par les deux points lumineux observés sur l'image 3. Cette configuration évoque la formation d'un polycristal dont les cristallites adoptent une orientation préférentielle. On remarque sur les images 3 et 4 une meilleure correspondance avec les plans intenses d'une phase β polycristalline indiquant la présence la plus probable de cette phase lors de la détente. L'adoption de cette microstructure particulière pourrait indiquer que la transition de phase qui a eu lieu précédemment influe sur la microstructure de la phase suite à la transition inverse.

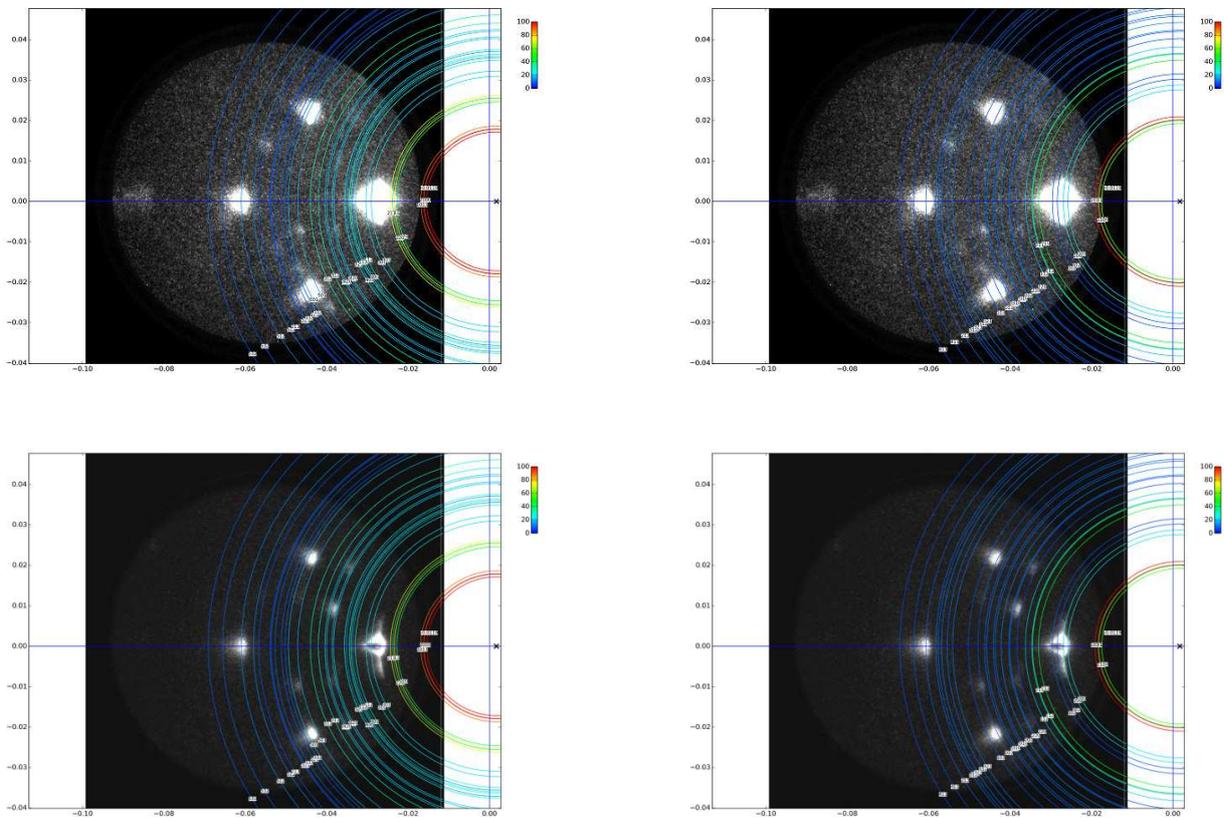


FIGURE IV.35 – Essais d'indexation pour l'essai 3 (image à +262 ns et +415 ns sur la figure IV.32) en considérant un polycristal β (gauche) ou γ (droite)

Essai 5

L'échantillon utilisé lors de cet essai a été tourné de 60° sur lui même après collage modifiant par la même occasion la figure de diffraction du LiF.

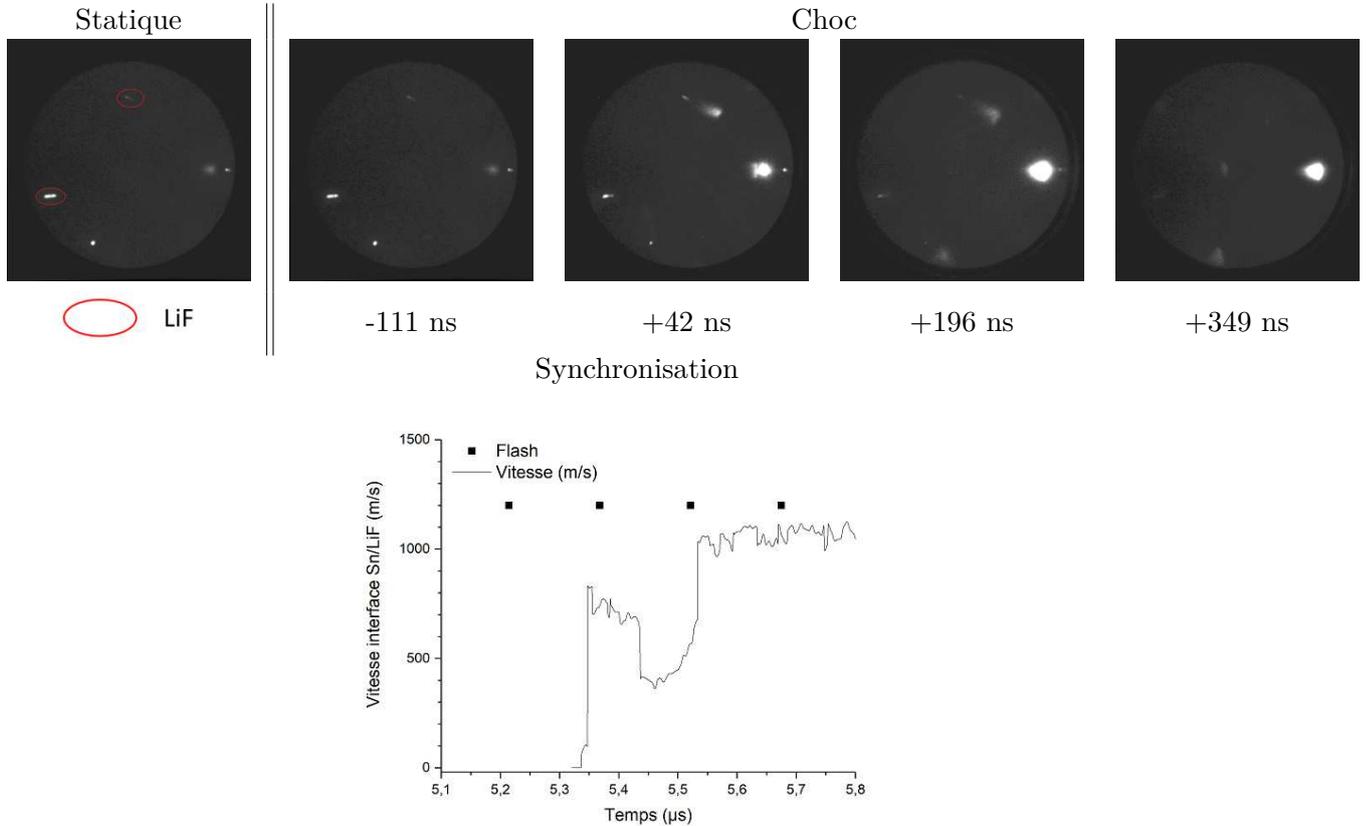


FIGURE IV.36 – Résultats obtenus pour l'essai 5, les temps correspondent au retard par rapport au débouché de l'onde de choc à l'interface ($\approx 4,35 \mu\text{s}$ sur le signal de vitesse)

Le traitement du signal vélocimétrique n'a pas permis d'obtenir un profil de vitesse satisfaisant tout comme l'essai précédent. La pression calculée à partir de ce plateau de vitesse semble donc erroné dans l'avant dernière colonne de la table IV.6 pour cet essai. Cependant, il est possible de discerner que la deuxième image a bien été acquise pendant le plateau de choc. Un point supplémentaire est apparu dans cette image de manière similaire à l'essai précédent. L'analyse de la figure de diffraction d'un monocristal en considérant la relation d'orientation n'a pas permis d'obtenir l'apparition d'un point à cette position contrairement à l'essai précédent (Figure IV.37). L'analyse à partir d'un échantillon polycristallin a aussi été effectuée (Figure IV.38). Ici encore, il n'est pas possible de confirmer la phase γ du fait de la proximité des figures β , γ et de l'incertitude du placement de l'écran. On constate cependant que ce point semble se situer à un angle de diffraction proche de celui de l'essai précédent, il pourrait donc s'agir de la même famille de plans. Le déplacement de ce point par rapport à l'essai 3 pourrait indiquer une influence de l'orientation du monocristal de départ dans l'hypothèse d'une relation d'orientation entre les phases.

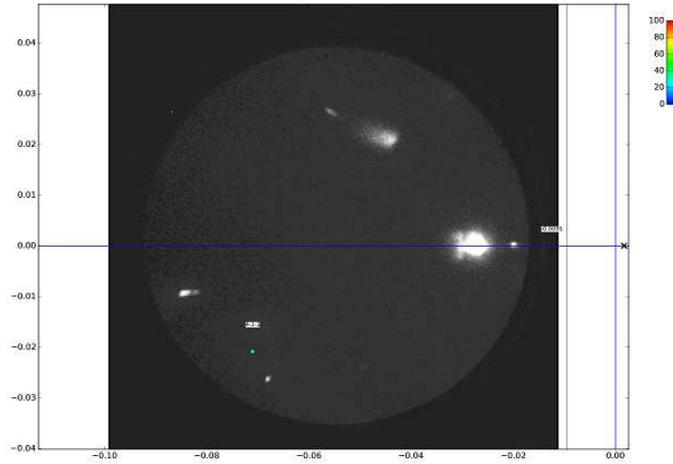


FIGURE IV.37 – Essais d’indexation pour l’essai 5 (+42 ns) en considérant un monocristal γ

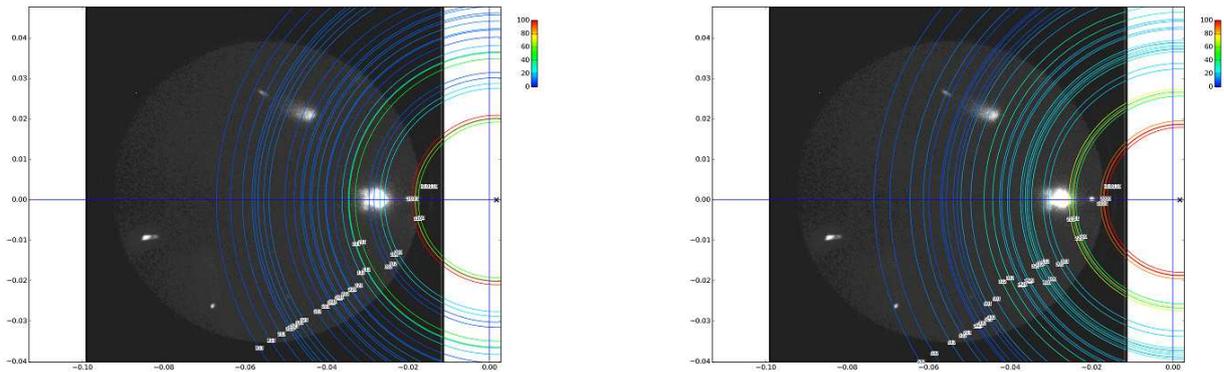


FIGURE IV.38 – Essais d’indexation pour l’essai 5 (+42 ns) en considérant un polycristal γ (gauche) ou β comprimé (droite)

L’analyse des deux images issues de la détente montre une meilleure correspondance avec la diffraction de la phase β (Figure IV.39). On constate l’apparition de deux points intenses non symétriques sur l’image 3 contrairement à l’essai précédent. Un troisième point apparaît également sur l’image 4 cependant la figure diffère fortement de celle obtenue pour l’essai précédent. Cette différence pourrait là aussi indiquer une influence de l’orientation dans le cadre de la formation d’un polycristal avec orientation préférentielle. L’orientation des cristallites pourrait alors dépendre de l’orientation du monocristal de départ.

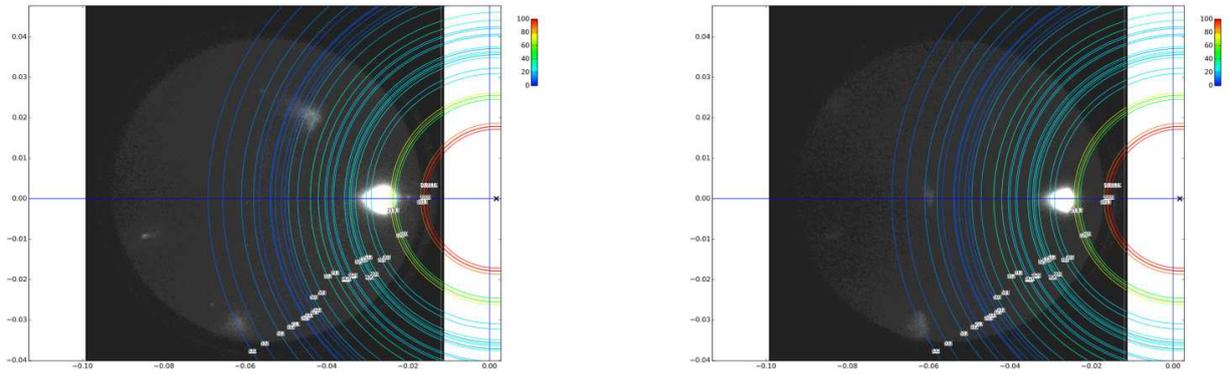


FIGURE IV.39 – Essai d'indexation pour l'essai 5 (+196 ns et +349 ns) en considérant une phase β polycristalline pour l'image 3 (gauche) et 4 (droite)

Essai 8

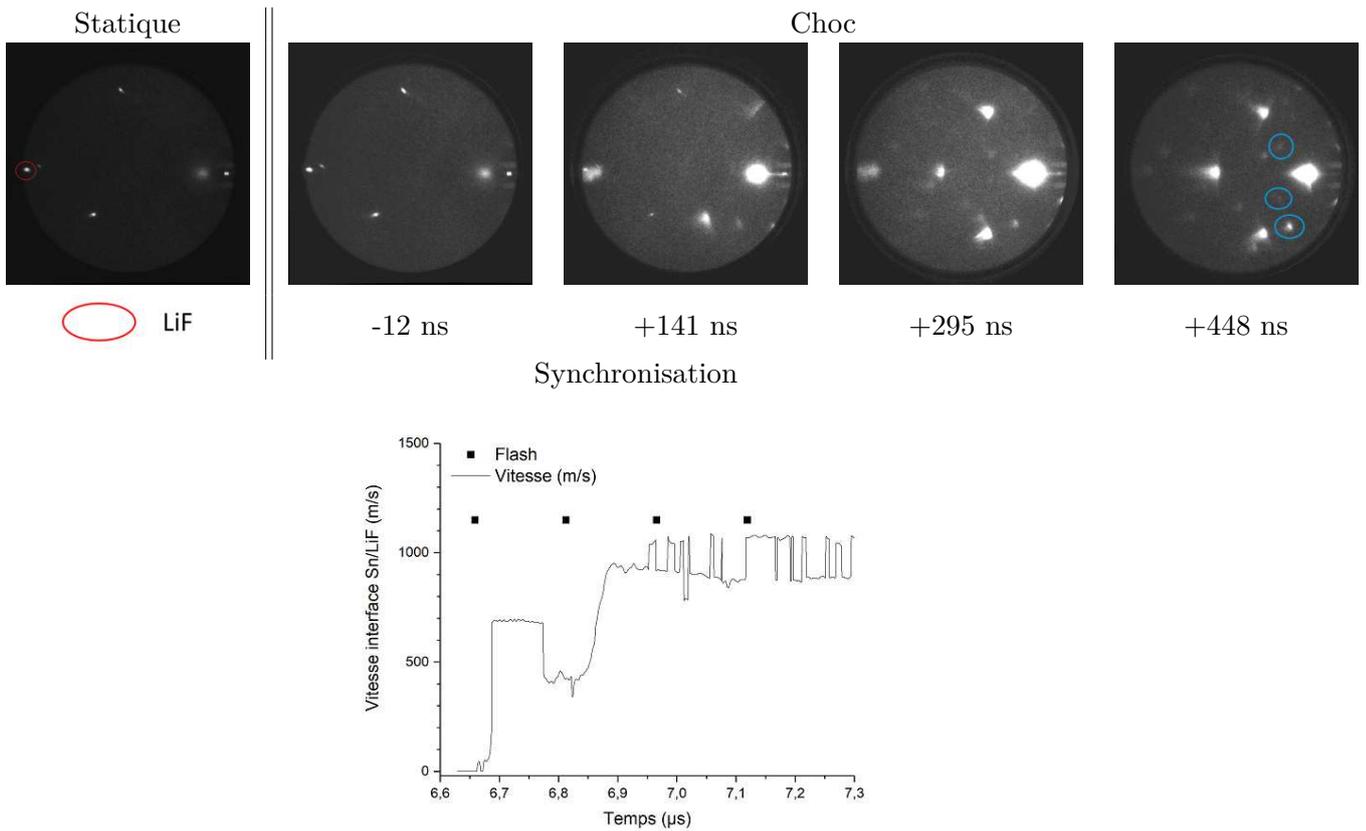


FIGURE IV.40 – Résultats obtenus pour l'essai 8, les temps correspondent au retard par rapport au débouché de l'onde de choc à l'interface ($\approx 6,65 \mu s$ sur le signal de vitesse)

Cet essai a été effectué dans des conditions d'orientation des monocristaux similaires à l'essai 3. L'image 2 a été acquise avant l'accélération à la fin l'anomalie de vitesse, correspondant à l'état de choc. A nouveau, on constate l'apparition d'un point intense à une position similaire à l'essai 3. La comparaison directe des figures n'est pas possible du fait de l'ajustement de la position du détecteur avant essai. Par ailleurs, on constate également l'apparition d'arc de cercles à de faibles angles dont l'origine n'a pas pu être déterminée. Il pourrait s'agir d'un matériau en contact avec le faisceau qui diffracte également. L'analyse à partir d'un monocristal avec l'outil de diffraction et la relation d'orientation comme illustré dans la figure IV.41 permet cependant de rapprocher cette figure de l'essai 3. Même si l'hypothèse de la présence de la phase β n'est pas à exclure du fait de figures de diffraction proches à ces angles, la cristallite formée semble adopter la même orientation que lors de l'essai 3. La position différente de ce nouveau point lors de l'essai 5 tend à faire penser que son orientation dépend de l'orientation du monocristal ambiant.

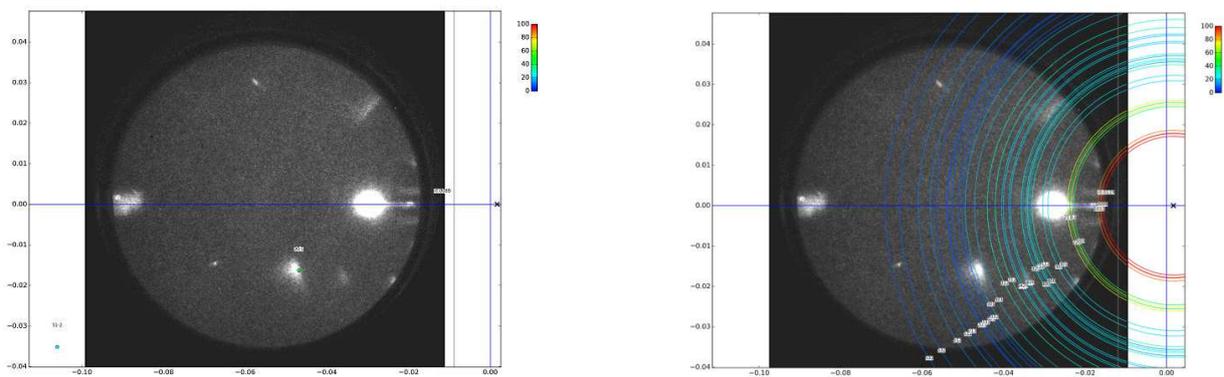


FIGURE IV.41 – Essai d'indexation de l'image sous choc pour l'essai 8 (+141 ns) considérant un monocristal (gauche) ou un polycristal (droite) de la phase β

Les figures en détente présentent aussi une allure similaire à l'essai 3 affichant une bonne correspondance avec la phase β (Figure IV.42). On observe l'apparition de trois points intenses symétriques dans l'image 3 comme précédemment en plus du point apparu lors de la phase précédent qui perd en intensité. Les points supplémentaires de l'image 4 (cercles bleus sur la figure IV.41) sont moins intenses et ne semblent pas se répartir de manière symétrique tout comme dans l'essai 3. Certains d'entre eux se situent cependant à des positions similaires aux petits angles. Compte tenu de la pression de sollicitation inférieure, l'apparition de cette figure caractéristique dans l'image 4 pourrait dépendre du niveau de sollicitation à l'interface.

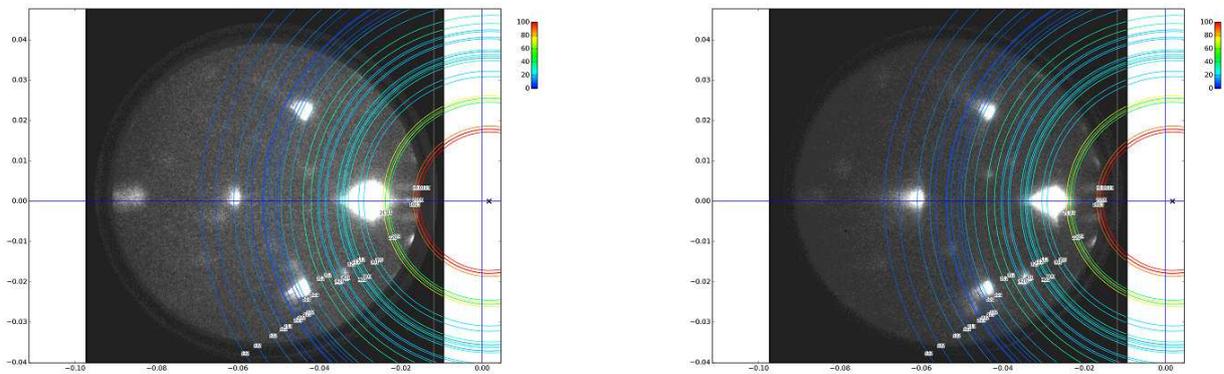


FIGURE IV.42 – Essai d'indexation pour l'essai 8 (+295 ns et +448 ns) en considérant une phase β polycristalline pour l'image 3 (gauche) et 4 (droite)

IV.2.A.a Bilan des essais à haute pression

Parmi les essais effectués, la présence de la phase γ ne peut pas être confirmée. Certains phénomènes ont cependant pu être observés :

- Au sein des images sous choc des essais 3 et 8, on observe l'apparition d'un point de diffraction ne correspondant pas à la phase ambiante. Même si les simulations considérant la relation d'orientation semblent correspondre avec la figure expérimentale pour les essais 3 et 8, celles-ci ne concordent pas avec l'essai 5 où le cristal a été tourné sur lui-même. Il est difficile de confirmer la relation d'orientation avec seulement un point de diffraction. Celui-ci pourrait être dû à la formation d'une cristallite d'orientation différente lors du choc. Néanmoins l'orientation de celle-ci semble reproductible lors des essais 3 et 8 utilisant un monocristal de départ de même orientation et elle serait modifiée lors de l'essai 5 utilisant une orientation différente. L'analyse à partir d'une figure de diffraction polycristalline révèle des cercles de diffraction des phases β et γ très proches à ces angles. A cause de l'ajustement de la position de l'écran avant chaque essai (du fait de la faible taille du détecteur) et de l'incertitude d'orientation du monocristal suite à la fabrication, il n'est pas possible d'effectuer une analyse quantitative afin de comparer les deux essais. Ce point est encore détectable lors des images acquises pendant la détente jusqu'à quasiment 300 ns après le débouché lors de l'essai 8. Si celui-ci correspond effectivement à la phase γ , un retard à la transition inverse pourrait être supposé.
- Les figures de diffraction en détente présentent des caractéristiques similaires, à savoir trois points intenses répartis de manière symétrique ainsi que des points se situant sur des arcs de cercles caractéristiques indiquant dans les deux cas un polycristal avec orientation préférentielle. La différence des figures entre les essais 3 et 8 d'une part, et l'essai 5, d'autre part laisserait à penser que les cristallites formées adopteraient aussi une orientation dépendante du monocristal de départ. Par ailleurs les différences entre les figures de diffraction des essais 3 et 8 permettraient de supposer que la figure en détente dépendrait du niveau de sollicitation. En effet, il est possible d'envisager une hypothèse reliant la figure de détente à la figure du choc. Pour rappel, la diffraction en réflexion ne permet de sonder que la matière proche de l'interface, de l'ordre de quelques micromètres. On peut alors supposer que la transition peut ne pas être complète à l'interface. Lors de la détente, la phase β non transformée adopterait alors une structure particulière sous forme de polycristal générant les trois points intenses symétriques observés dès l'image 3 indiquant une orientation préférentielle des cristallites. Celle-ci serait majoritaire et donc diffracterait avec le plus d'intensité. La phase β ayant subi la transformation en phase γ adopterait une structure différente lors de la transition inverse et avec là aussi une structure polycristalline. Cependant, l'orientation de ces cristallites serait différente de la phase β non transformée. Il serait alors possible d'envisager que le taux de phase en présence dépende du niveau de sollicitation impliquant une variation d'intensité de la figure en détente. Le retard d'apparition de cette figure serait alors reliée au mécanisme de transformation que ce soit par le biais d'une hystérésis dans la pression de détente ou bien d'une cinétique de transition. En effet, on constate que l'apparition de ces figures correspond à la baisse d'intensité du point intense apparu sous choc. Si ce point intense correspond effectivement à la phase γ , son observation en détente indiquerait sa présence pour des pressions ambiantes.

Même si la présence de la phase γ ne peut pas être confirmée, la figure de diffraction en détente serait alors révélatrice de l'historique de transformation du matériau sous choc. La microstructure pourrait être un marqueur de l'occurrence de la transition de phase du fait de la recristallisation particulière de la phase β pendant la détente. En effet, la conservation du monocristal a été observée lors des essais à basse pression au CEA Gramat. Afin de confirmer ces résultats, des essais à niveau de pression croissante ont été effectués.

IV.2.B Essais à pression croissante sous la transition

Essai	Imp.	V_{Imp} (m/s)	P_{Choc}^{Sn} (GPa)	$u_{Sn/LiF}$ (m/s)	$P_{Meth.1}^{Sn/LiF}$ (GPa)	$P_{Meth.2}^{Sn/LiF}$ (GPa)
1	Al	608	5,7	291	4,8	4,5
2	Al	599	5,6	288	4,7	4,4
6	Cu	612	8,9	444	7,1	6,9
10	Cu	601	8,7	440	6,9	6,8
7	Ta	706	12,5	601	9,5	9,5

TABLE IV.7 – Tableau récapitulatif des essais en-dessous de la transition pour les monocristaux (110)

Essai 1

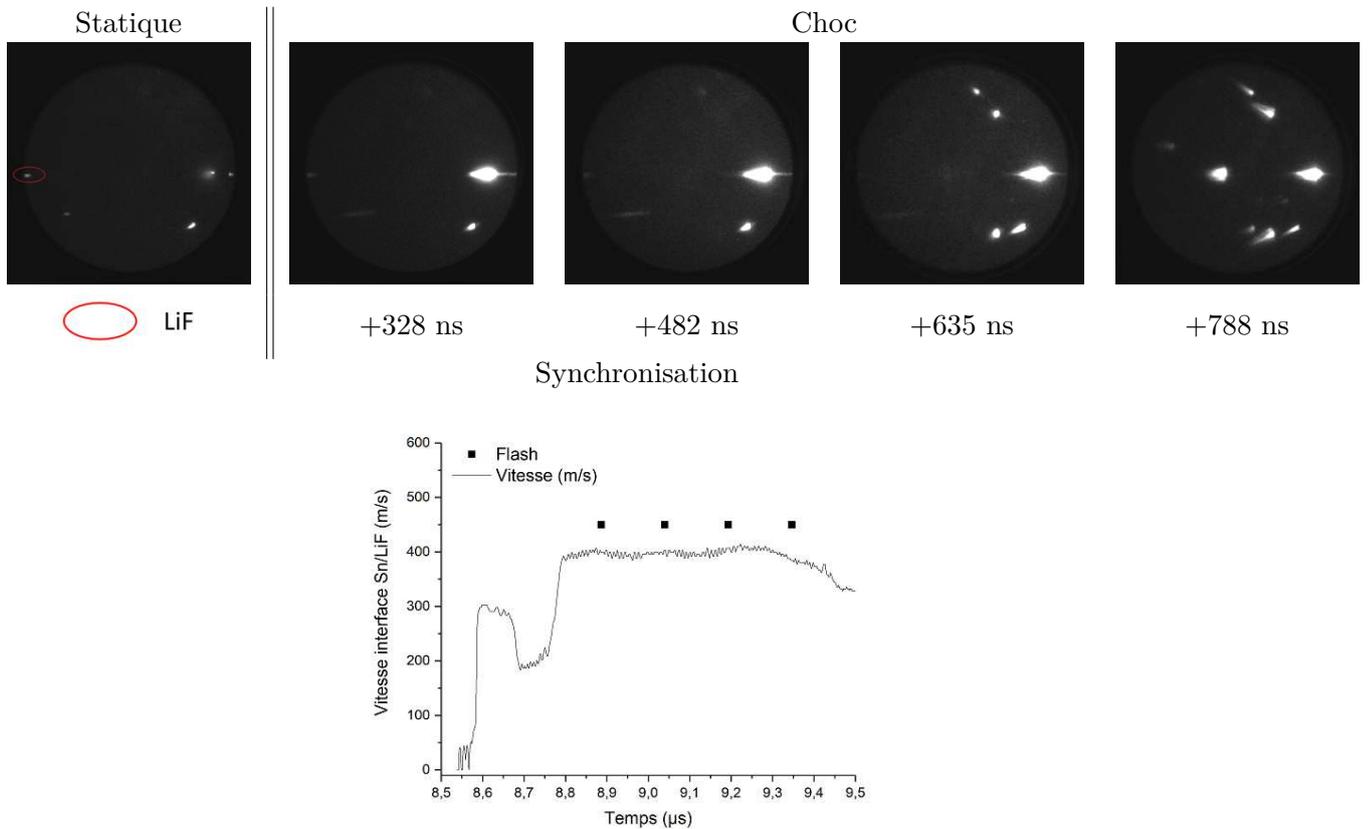


FIGURE IV.43 – Résultats obtenus pour l'essai 1, les temps correspondent au retard par rapport au débouché de l'onde de choc à l'interface ($\approx 8,55 \mu s$ sur le signal de vitesse)

La synchronisation de cet essai n'a permis de sonder l'échantillon que pour des temps longs. On observe néanmoins des phénomènes intéressants. En effet, les deux premières images acquises présentent des figures identiques qui se superposent ne révélant aucune modification du cristal entre les deux images. On observe la conservation des points de la figure de diffraction ambiante indiquant que le monocristal s'est conservé après l'état de choc. Ces points subissent par ailleurs une elongation similaire observée au CEA Gramat assimilée à de la texturation. Cet allongement n'est pas homogène entre les deux points de diffraction, en effet la simulation correspondant au point le plus allongé indique un angle de texturation de l'ordre du degré. Cet angle produit alors une elongation trop importante pour le point plus intense situé à un angle inférieur (Figure IV.44 (gauche)).

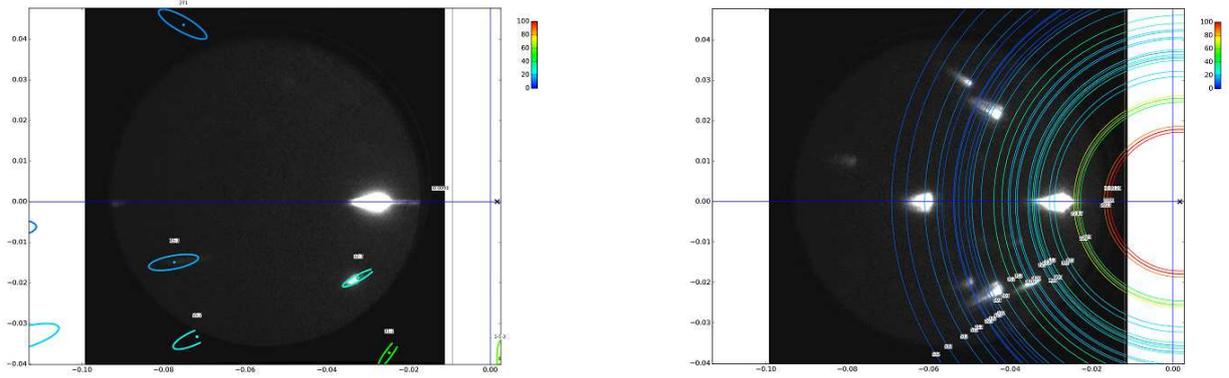


FIGURE IV.44 – Essai de simulation de la texturation du cristal ambiant avec un angle de 1° pour l'image 1 (+328 ns) (gauche) et d'indexation en considérant une phase β polycristalline pour l'image 4 (droite) concernant l'essai 1

Les images suivantes voient l'apparition de points de diffraction supplémentaires à des temps très longs supérieurs à 600 ns après le débouché ne pouvant pas être comparés aux autres essais. On observe l'apparition de quatre points intenses dont deux symétriques dans la troisième image rappelant les points intenses précédemment obtenus en détente. Les deux autres points ayant des positions proches, il est possible de penser à des cristallites d'orientation voisine. La quatrième image présente l'apparition d'un point central intense supplémentaire permettant d'obtenir les trois points intenses observés précédemment (Figure IV.44 (droite)), l'orientation du monocristal de départ étant équivalente. On n'observe pas cependant les points supplémentaires peu intenses obtenus précédemment tendant à conformer l'hypothèse de la microstructure en détente.

Essai 2

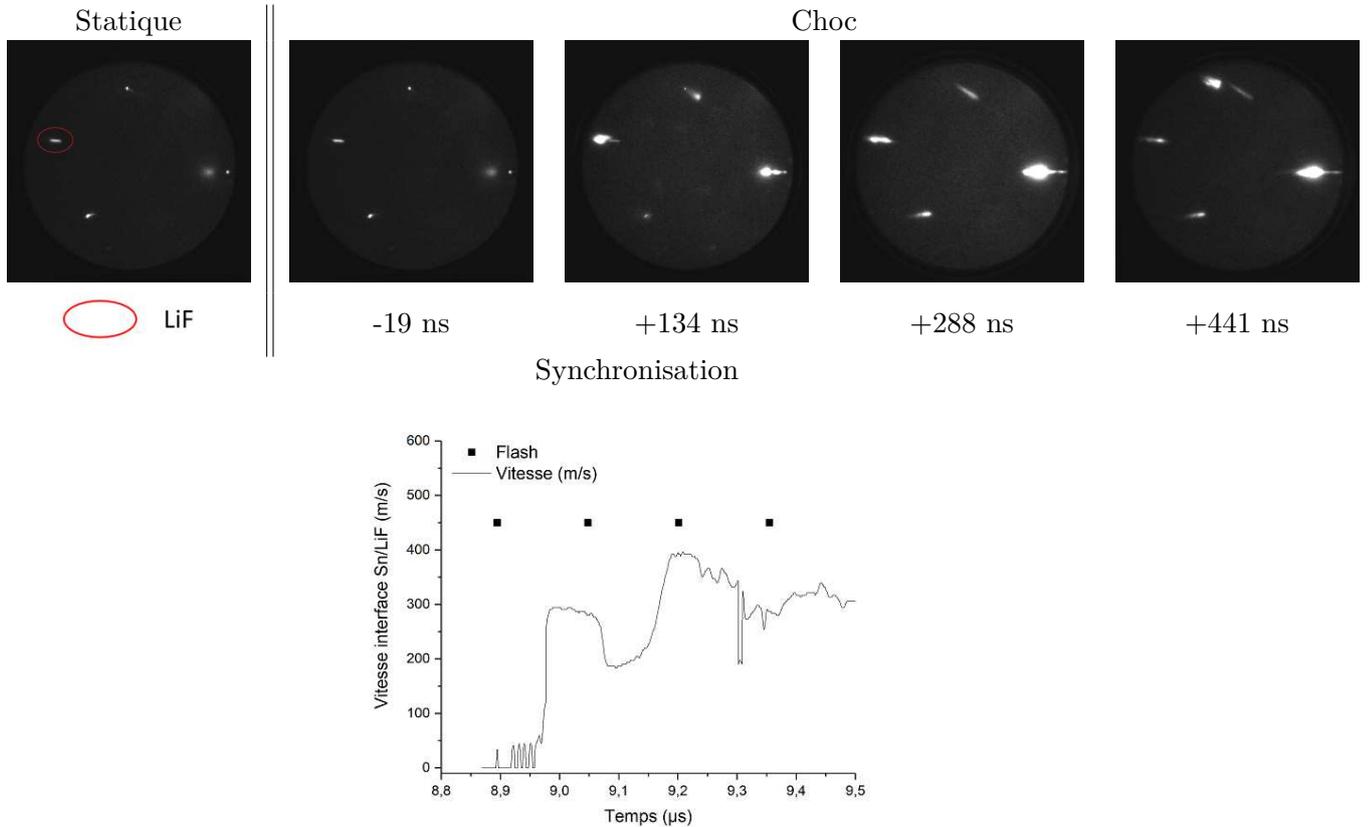


FIGURE IV.45 – Résultats obtenus pour l’essai 2, les temps correspondent au retard par rapport au débouché de l’onde de choc à l’interface ($\approx 8,95 \mu\text{s}$ sur le signal de vitesse)

Cet essai a été mené à une sollicitation similaire à l’essai 1 avec une orientation de monocristal semblable. La synchronisation a permis d’effectuer une image pendant le plateau de vitesse visible sur le profil correspondant à l’état de choc. On observe sur cette image l’apparition d’un point diffus proche de la position de la phase ambiante initiale qui reste observable du fait de la présence du fantôme de l’image précédente. Une hypothèse envisageable serait que ce point soit généré par la formation d’une cristallite d’orientation voisine du monocristal ambiant à l’endroit sondé par le faisceau. Les images 3 et 4 peuvent être directement comparées aux images 1 et 2 de l’essai 1 compte tenu de la synchronisation. On observe sur ces images une élongation des points de diffraction, qui ne semble pas non plus homogène selon les points. Celle-ci témoignerait alors de la texturation de la cristallite formée en sous-domaines d’orientation voisine de l’ordre du degré (Figure IV.46). Cet effet d’élongation est aussi observable sur le point de diffraction provenant du LiF. On constate dans l’image 4 de l’essai 2 l’apparition d’un point intense ne correspondant pas à la figure caractéristique intense formée de trois points. Il pourrait s’agir de la formation d’une nouvelle cristallite lors de la détente. La figure de diffraction particulière constituée de trois points semble donc se former pour des temps longs quasiment 790 ns après le débouché contre environ 260 pour l’essai 3. L’occurrence de la recristallisation de l’étain interviendrait donc à des temps différents selon le niveau de sollicitation. On peut donc s’attendre à un temps d’apparition inférieur pour les essais suivants à pression croissante.

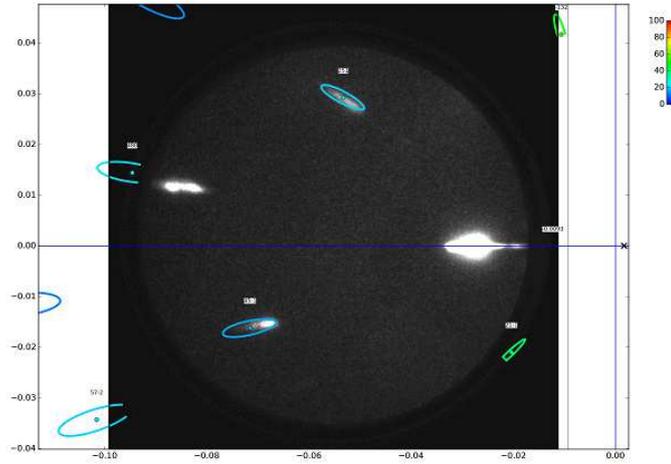


FIGURE IV.46 – Essai de simulation de la texturation du cristal ambient avec un angle de 1° pour l'essai 2

Essai 6

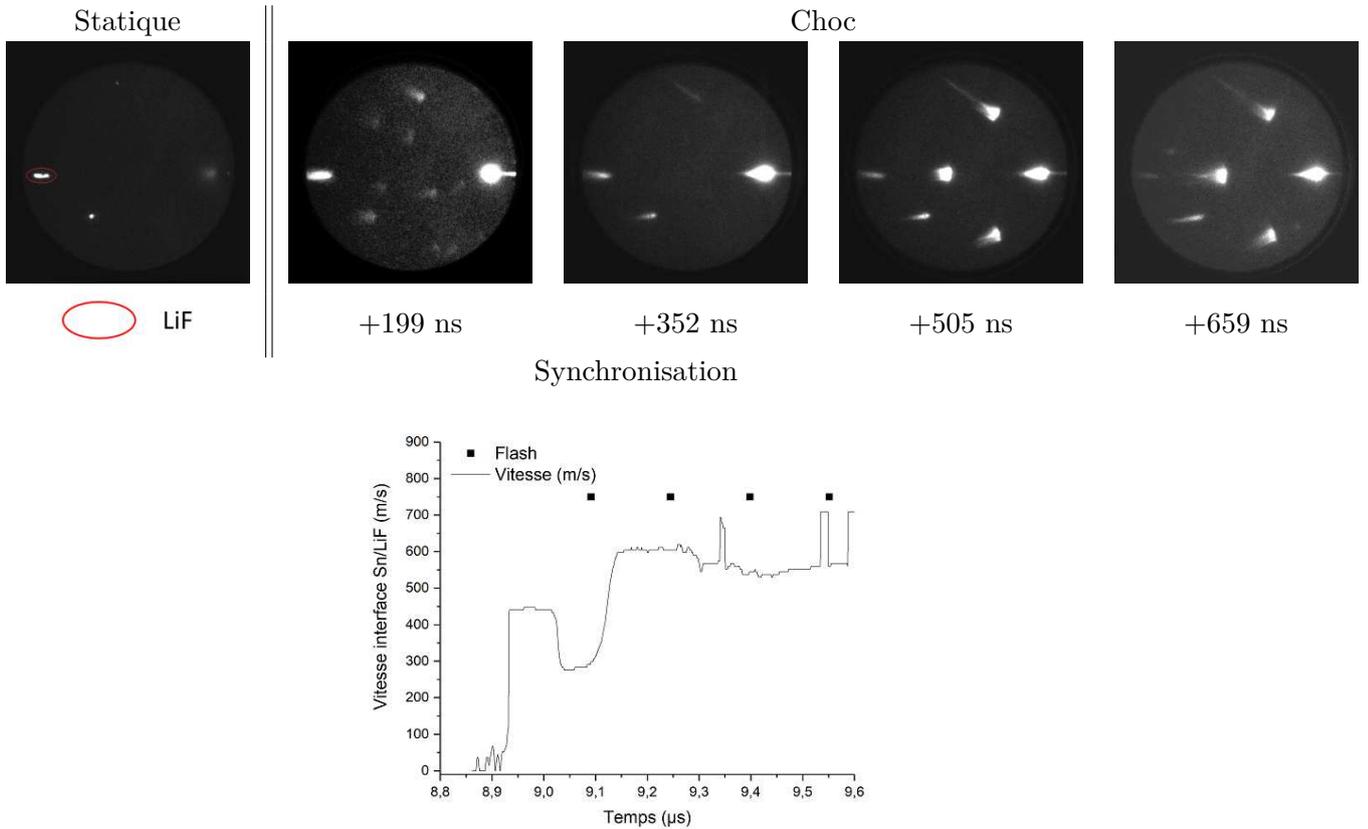


FIGURE IV.47 – Résultats obtenus pour l'essai 6, les temps correspondent au retard par rapport au débouché de l'onde de choc à l'interface ($\approx 8,9 \mu$ s sur le signal de vitesse)

La synchronisation de cet essai a été tardive, en effet, la première image a été acquise lors de la fin de l'état de choc. On remarque dans cette première image l'apparition de points de diffraction répartis de manière inhomogène. Le contraste de cette image a été augmenté pour faire apparaître cette figure. On remarque quelle est aussi présente dans l'image n°2 de l'essai précédent mais est à peine discernable. Cette figure apparaît également dans les essais suivants traduisant un phénomène reproductible. Les pressions atteintes à l'interface ne sont pas suffisantes pour franchir le seuil de changement de phase expérimental. La simulation de la figure de diffraction de l'étain polycristallin ne permet pas d'identifier les plans dans la gamme de longueurs d'ondes intenses. Il pourrait alors s'agir d'un ou plusieurs monocristaux diffractant à des longueurs d'ondes moins intenses non prises en comptes lors de la simulation de figures polycristallines. La reproductibilité de cette figure évoque le phénomène de maillage. Ce processus de déformation génère la subdivision d'un monocristal de départ en domaines d'orientation fixe, reliés géométriquement au monocristal de départ. A partir de plusieurs monocristaux orientés de la même manière, l'application d'un maillage créerait une multitude de sous domaines d'orientation connue avec un plan cristallin commun avec le cristal parent. Pour certains systèmes de maillage des directions équivalentes vont générer une dégénérescence, il va donc en résulter plusieurs orientations de cristaux possibles.

Des recherches ont été menées sur le maillage de l'étain dont les principaux résultats ont déjà été évoqués dans le chapitre III.3.F.a. Pour rappel, le système de macle principal de l'étain s'effectue via le plan (301) servant de plan de symétrie. Le passage d'un cristal à l'autre s'effectue par la rotation de $\pm 62,8^\circ$ autour des directions [100] et [010]. Il existe donc quatre variantes possibles, chacune pouvant générer une figure de diffraction. Ce système semble être initié lors d'une compression perpendiculaire à l'axe [001]. Cet axe se situe dans le plan de l'échantillon pour une orientation (110) et sera perpendiculaire à la direction d'impact. A partir de l'orientation du monocristal ambiant, des simulations ont été menées afin de reproduire les quatre figures de diffraction possiblement générées par les quatre variantes de macles. Tous les résultats ont ensuite été superposés et comparés à la figure expérimentale. Les résultats sont présentés dans la figure IV.48.

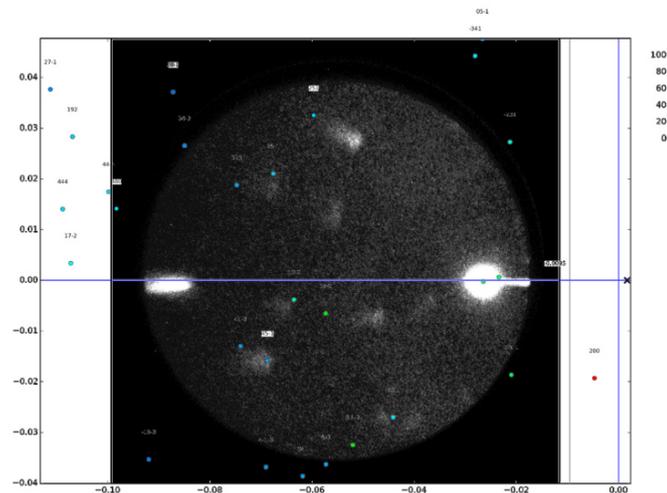


FIGURE IV.48 – Essai de simulation de la figure de diffraction engendrée par le maillage du monocristal (110) ambiant lors de l'essai 6 (+199 ns)

Il semble que la simulation ne permette pas de reproduire la figure de diffraction expérimentale. Il est probable que le système de macles activé ne soit pas celui évoqué dans la bibliographie. En effet, ce phénomène n'a été observé que pour des déformations lentes. Il est possible de penser qu'un autre système pourrait être activé dans le cadre des déformations rapides sous choc. Des essais seraient nécessaires pour approfondir le maillage de l'étain, en particulier sous choc. Cette étude pourrait être couplée à une analyse EBSD² et à de la diffraction X afin de relier la figure de diffraction à la microstructure générée suite au maillage. Des expériences sous sollicitation lente pourraient tout d'abord être employées sur une installation de type mouton de choc dans un premier temps. A partir des résultats obtenus, des essais de diffraction X sous choc pourraient alors être envisagés avec récupération d'échantillon. Il est à noter que la microstructure de celui-ci ne serait pas représentative de celle sous choc mais serait la conséquence de la propagation des diverses ondes se propageant durant toute l'expérience. Ces essais seraient à mener pour des monocristaux de différente orientation, en effet, le processus de déformation plastique impliquant des systèmes de glissement, selon la direction de sollicitation un système particulier pourra être activé (Loi de Schmid).

Cette figure particulière disparaît dans l'image suivante. Une figure similaire à l'image ambiante avec un allongement des points est observée de manière similaire à l'essai n°2 pour un temps voisin en détente impliquant une disparition du phénomène de maillage. Si le maillage a effectivement eu lieu dans l'image précédente, la figure de diffraction devrait également être présente du fait de la forte détérioration du monocristal. L'hypothèse semble donc être mise en défaut.

Les deux dernières images présentent à la fois les trois points intenses associés à de la recristallisation β (IV.49) ainsi que la figure de diffraction de la phase ambiante texturée. Une microstructure mixte combinant à la fois le monocristal ambiant et les nouvelles cristallites pourrait être proposée.

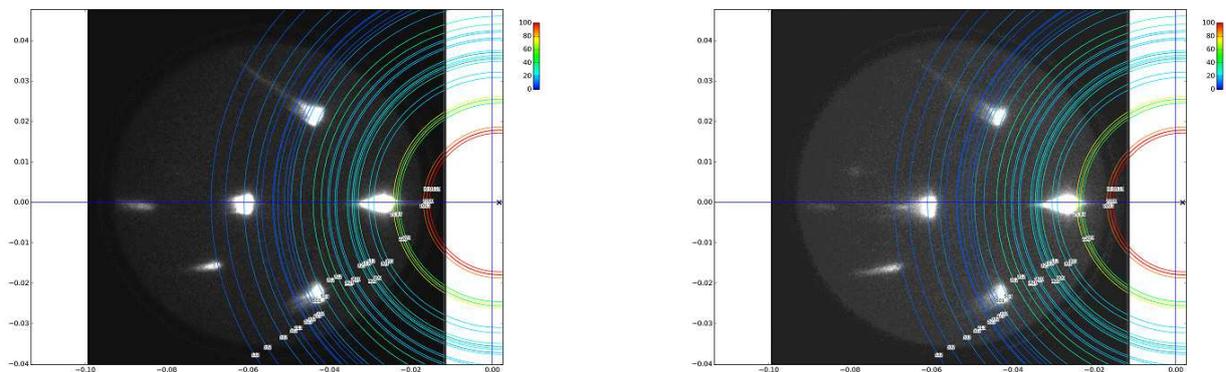


FIGURE IV.49 – Essai d'indexation pour l'essai 6 (+505 ns et +659 ns) en considérant une phase β polycristalline pour l'image 3 (gauche) et 4 (droite)

2. Electron BackScattered Diffraction. Technique expérimentale employée au sein d'un microscope électronique à balayage (MEB) afin de déterminer localement l'orientation d'un cristal.

Essai 10

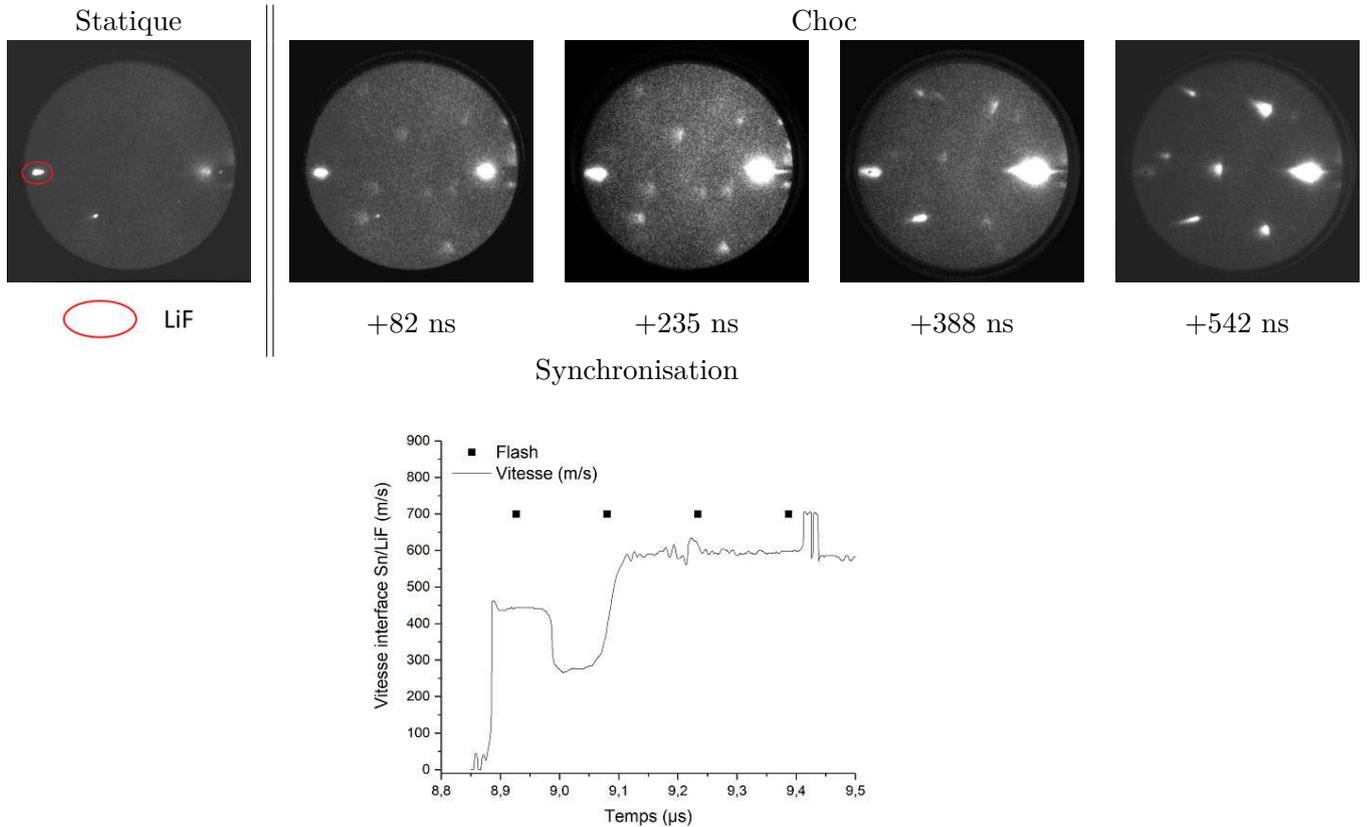


FIGURE IV.50 – Résultats obtenus pour l’essai 10, les temps correspondent au retard par rapport au débouché de l’onde de choc à l’interface ($\approx 8,85 \mu\text{s}$ sur le signal de vitesse)

Cet essai a été mené dans des conditions similaires à l’essai 6. La première image a été acquise pendant le plateau de choc. La deuxième image acquise à la fin du plateau de choc présente elle aussi une figure de diffraction similaire à la première. Il est possible d’y discerner à nouveau la figure caractéristique évoquée précédemment. Là encore, les simulations du phénomène de maillage n’ont pas permis de reproduire cette figure. Celle-ci n’est d’ailleurs plus visible sur les images suivantes mettant là aussi en doute le phénomène de maillage. Compte tenu de la chronométrie des images entre cet essai et l’essai 6, on constate que l’image 2 de l’essai 6 (+352 ns) renseigne sur l’état cristallin entre les images 2 et 3 de l’essai 10 (+235 ns et +388 ns respectivement). La figure ambiante seule n’est pas observée ici contrairement à l’essai 6, indiquant que sa durée de présence serait inférieure au temps entre deux acquisitions d’images, à savoir 153,4 ns.

La troisième image comporte, en plus de la figure de diffraction statique, les prémices des points de diffraction intenses observés sur l’image suivante correspondant à la phase β recristallisée (Figure IV.51). Son temps d’apparition peut être estimé à 388 ns après le débouché de l’onde à l’interface. On observe toutefois la conservation de la figure de diffraction ambiante dans l’image 4 témoignant d’une microstructure comprenant à la fois le monocristal ambiant et des cristallites formées durant la détente.

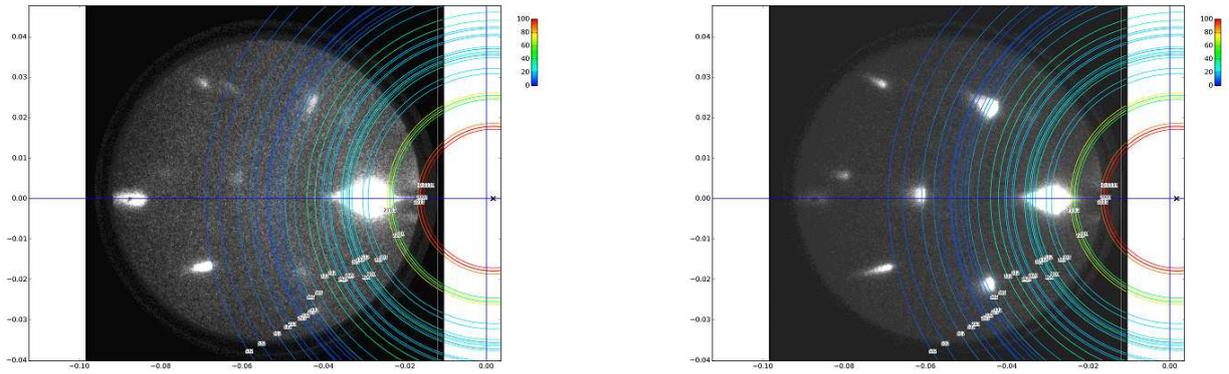


FIGURE IV.51 – Essai d'indexation pour l'essai 10 (+388 ns et +542 ns) en considérant une phase β polycristalline pour l'image 3 (gauche) et 4 (droite)

Essai 7

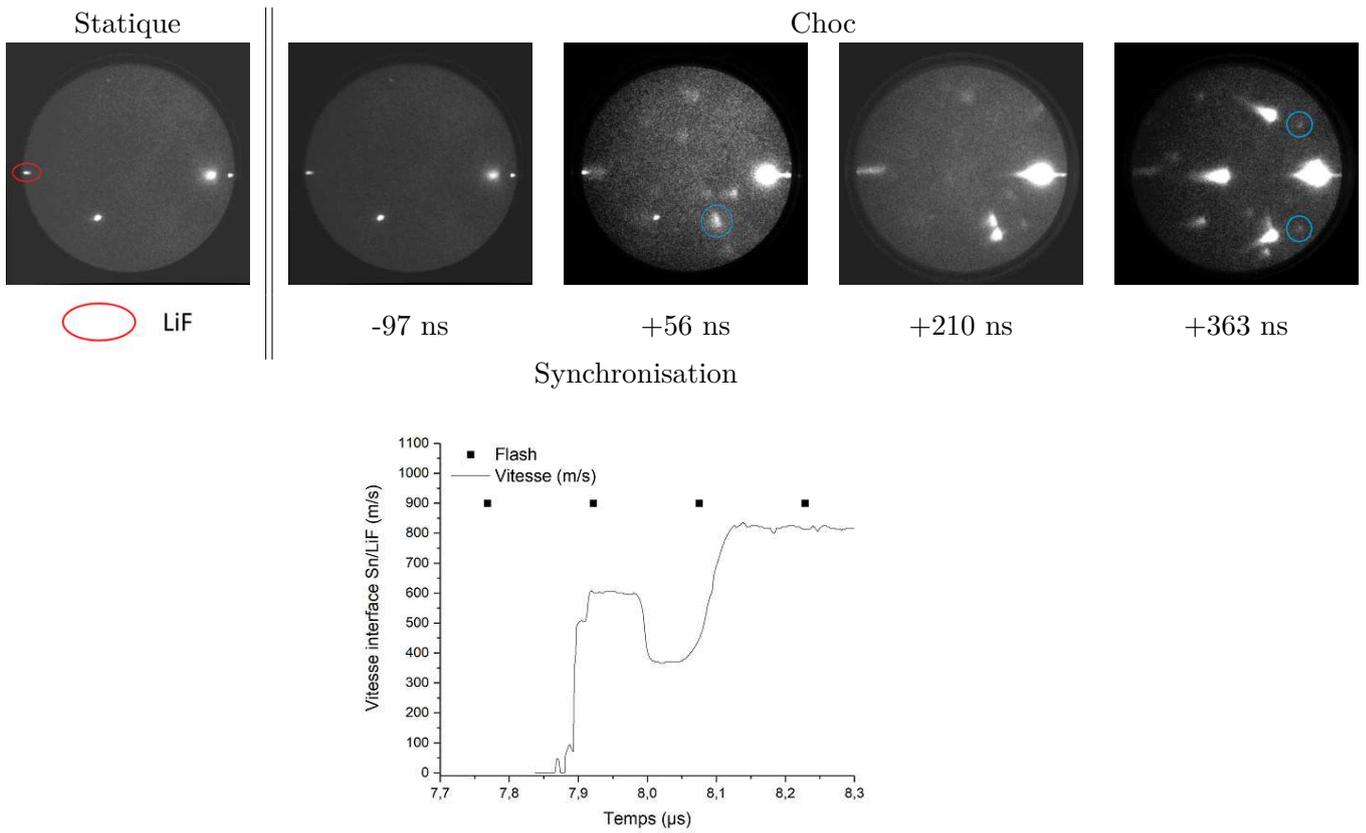


FIGURE IV.52 – Résultats obtenus pour l'essai 7, les temps correspondent au retard par rapport au débouché de l'onde de choc à l'interface ($\approx 7,87 \mu s$ sur le signal de vitesse)

Le pallier caractéristique du changement de phase est observable sur le profil vélocimétrique pour une vitesse comprise entre 500 et 550 m/s correspondant des pressions comprises entre 7,7 et 8,5 GPa. Ces pressions de transition semblent être plus basses que celles estimées lors des essais au CEA Gramat. Les échantillons d'étain étudiés provenant de lots différents, il est possible de penser que le processus de fabrication a induit un nombre de défauts différents dans le cristal (dislocations, impuretés). Un nombre plus important de défauts faciliterait la transition de phase induisant un niveau de sollicitation plus faible.

La deuxième image de cet essai a été acquise pendant l'état de choc, la pression atteinte à l'interface est très proche de celle du changement de phase. Cette figure rassemble à la fois la figure de diffraction caractéristique des essais à bas niveau (image 2) associé à un potentiel maclage mais aussi l'apparition d'un point de diffraction intense à une position semblable aux essais 3 et 8 à haut niveau (cercle bleu). Il pourrait alors s'agir d'une phase de mélange entre la phase β et la phase γ . Une analyse similaire à celle de l'essai 3 a été menée afin d'associer l'apparition du point à la phase γ (Figures IV.53 et IV.54). La localisation semble correspondre à l'emplacement attendu en considérant la relation d'orientation. Cependant, les figures de diffraction polycristallines β et γ possèdent aussi des raies de diffraction proches à ces angles pouvant indiquer la présence d'une cristallite orientée.

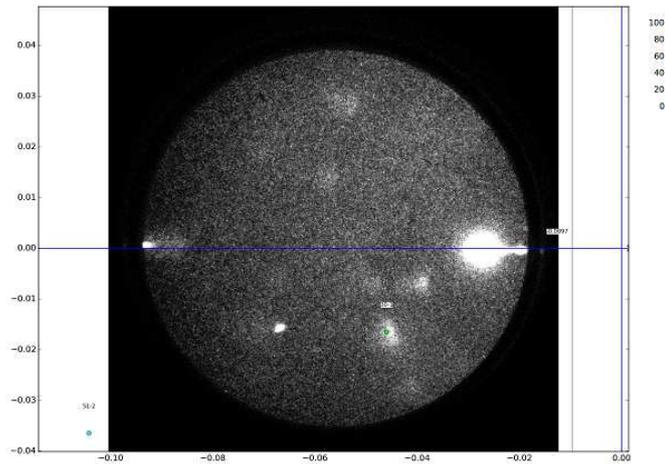


FIGURE IV.53 – Essais d'indexation pour l'essai 7 (+56 ns) en considérant un monocristal γ

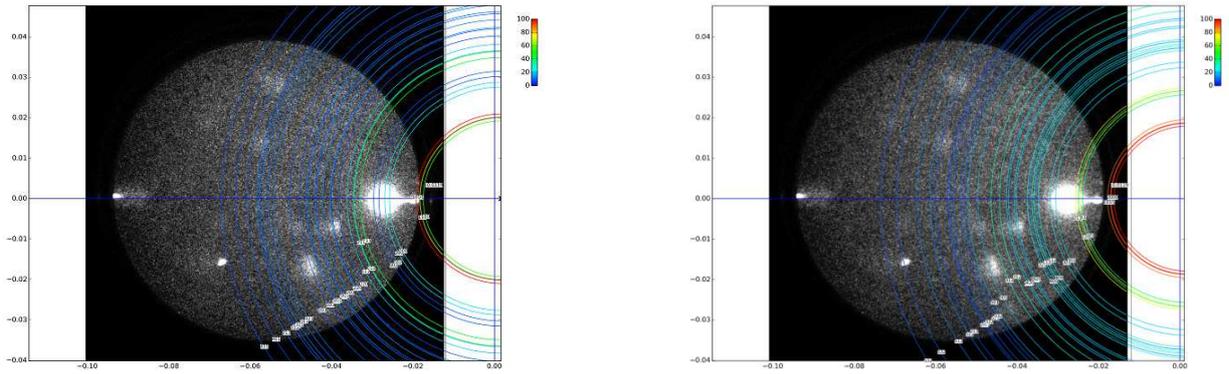


FIGURE IV.54 – Essais d’indexation pour l’essai 7 (+56 ns) en considérant un polycristal γ (gauche) ou β comprimé (droite)

A partir des résultats à haut niveau, lorsque la transition de phase a eu lieu, une figure de diffraction caractéristique devrait être observée en détente. On observe seulement l’apparition d’un point intense sur les trois normalement attendus dans l’image 3. A la vue du temps auquel le cliché a été pris, il est possible de considérer que la recristallisation est en cours et devrait être complète à un temps plus tardif comme observé dans l’image 4. On observe seulement la formation de deux points symétriques peu intenses aux faibles angles (cercles bleus). Il semble par ailleurs que le point intense apparu sous choc dans l’image 2 soit encore discernable dans l’image 4. Il est donc possible de penser que la formation de la microstructure particulière soit encore en cours et ne sera complète que lorsque le point apparu sous choc ne sera plus discernable (Figure IV.55).

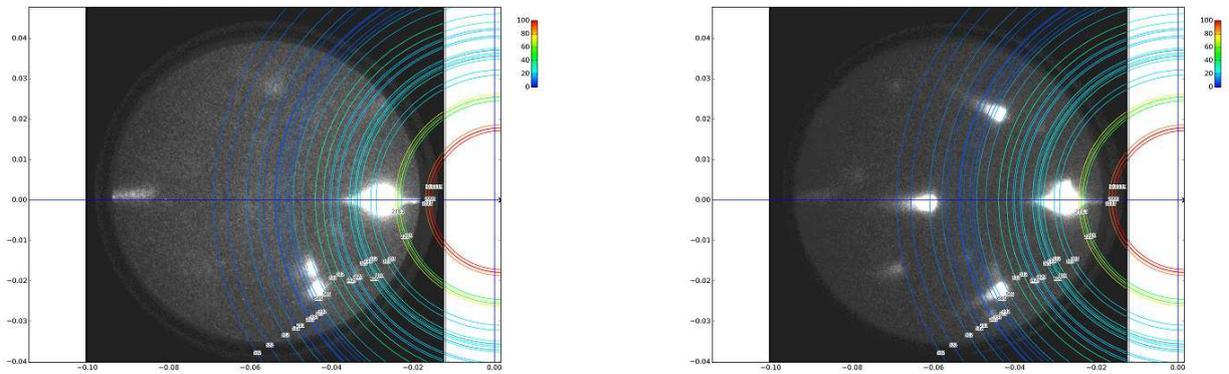


FIGURE IV.55 – Essai d’indexation pour l’essai 7 (+210 ns et +363 ns) en considérant une phase β polycristalline pour l’image 3 (gauche) et 4 (droite)

IV.2.B.a Bilan des essais à basse pression

Les essais à basse pression ont permis de mettre en évidence certains phénomènes reproductibles :

- Tout d'abord une figure de diffraction spécifique, non symétrique et reproductible est identifiée lors du choc. Ce phénomène pourrait être associé au maillage du matériau selon un système spécifique, cependant les simulations à partir du système de maillage connu ne sont pas parvenues à reproduire la figure de diffraction. Cette hypothèse peut être remise en question lors de l'essai n°2 où la figure de diffraction ambiante est à nouveau identifiable sur l'image suivante. Si le matériau est réellement maillé, cette figure correspondrait à un retour au monocristal ambiant annulant le maillage. Cette hypothèse semble peu probable du fait de la déstructuration du matériau maillé.
- Une élongation franche des points de la figure de diffraction ambiante semble se produire lors de la détente. Ce phénomène est moins perceptible lors de la montée en pression au profit de l'apparition plus précoce des trois points de diffraction intenses associés à une recristallisation. La présence simultanée de ces deux figures est observée à des temps longs indiquant une probable coexistence des deux microstructures. Le temps d'apparition des trois points intenses semble diminuer lors de la montée en pression comme présenté dans la table IV.8. Une valeur fixe ne peut pas être déterminée dans certains essais du fait de la présence d'une figure intense sur l'image. On peut supposer son apparition entre l'image observée et l'image antérieure. Il semble donc que l'étain subisse aussi une recristallisation en détente par l'apparition de trois points intenses symétriques qui ne peuvent pas être corrélés à l'occurrence de la transition de phase.

	Essai 3	Essai 5	Essai 8	Essai 7	Essai 10	Essai 6	Essai 2	Essai 1
$P_{Interface}$ (GPa)	14	14	11	10	7	7	5	5
Temps (ns)	< +262	< +196	< +295	≈ 210	≈ 388	< 505	∅	< 635

TABLE IV.8 – Tableau récapitulatif du temps de détection de l'apparition des trois points intenses pour les différents essais. Les inégalités correspondent à un temps d'apparition compris entre l'image précédente et l'image observée.

- L'apparition en détente de points de diffraction aux faibles angles pour l'essai 7, où la transition de phase est détectée sur le profil de vitesse, laisse à penser qu'elle pourrait être un marqueur de l'occurrence de la transition.

A la vue des résultats obtenus pour ces essais à basse pression, il semble que la microstructure adoptée en détente pourrait être influencée par l'occurrence du changement de phase. Les phénomènes associés à la transition ont été observés dans le matériau dont la pression sous choc a dépassé la limite de changement de phase. Deux essais supplémentaires ont été menés à des pressions de choc supérieures à la transition en utilisant des fenêtres enclumes en PMMA de basse impédance induisant une pression inférieure à l'interface.

IV.2.C Essais de retour en détente (fenêtres en PMMA)

La théorie de la transmission des ondes de choc entre deux matériaux laisse à penser que le matériau présent à l'interface Sn/PMMA va demeurer à une pression inférieure à la transition. Le temps de sollicitation du matériau à haute pression sera d'autant plus faible qu'il sera proche de l'interface. Il est alors possible de se demander si le matériau transformé ayant subi l'onde de choc peut avoir une influence sur la microstructure de la zone sondée. Il n'est pas possible de mesurer la profondeur de pénétration du faisceau dans l'étain. Une atténuation de 63% de l'intensité est calculée pour des profondeurs de l'ordre de la dizaine de μm pour les longueurs d'ondes du faisceau. Le rayonnement étant intense, des essais seraient nécessaires pour déterminer à partir de quelle profondeur de pénétration il n'est plus détectable. Ces essais permettront de sonder l'évolution de la structure de matériaux sollicités sur une courte échelle de temps.

Essai	Imp.	V_{Imp} (m/s)	P_{Choc}^{Sn} (GPa)	$u_{Sn/LiF}$ (m/s)	$P_{Meth.1}^{Sn/LiF}$ (GPa)	$P_{Meth.2}^{Sn/LiF}$ (GPa)
9	Ta	797	14,4	951	3,7	4,4
4	Ta	1005	19,0	1158	5,5	5,9

TABLE IV.9 – Tableau récapitulatif des essais de transition inverse avec fenêtre en PMMA pour les monocristaux (110)

Une simulation a été menée afin de déterminer quelle pression pourrait être obtenue dans le matériau pour une profondeur de $10\ \mu\text{m}$ correspondant à la pénétration supposée du faisceau (Figure IV.56). Pour cette profondeur, une pression avoisinant 10 GPa pourrait être atteinte quelques nanosecondes avant de revenir à l'état de détente pour l'essai 4. Dans l'essai 8, une pression avoisinant 5 GPa serait maintenue comme calculé dans la table IV.9.

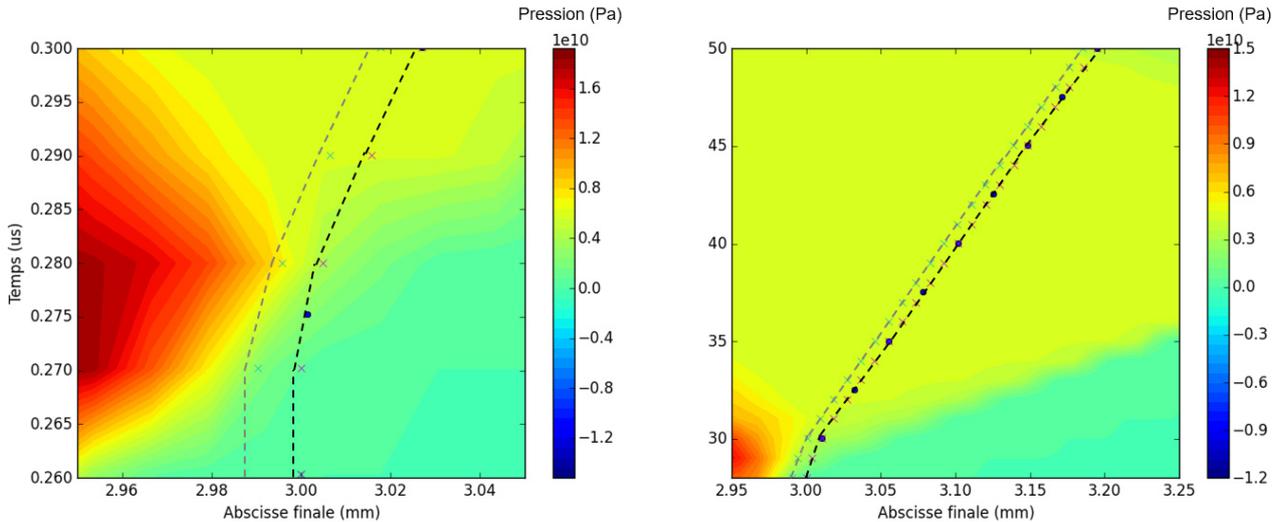


FIGURE IV.56 – Diagramme de marche obtenu par simulation d'un impact de tantale sur une cible Sn/PMMA pour des vitesses d'impact de 1000 m/s (gauche) et 800 m/s (droite). La ligne pointillé noire représente l'interface Sn/PMMA et la ligne pointillé grise la profondeur maximale sondée en théorie par la diffraction X.

Essai 9

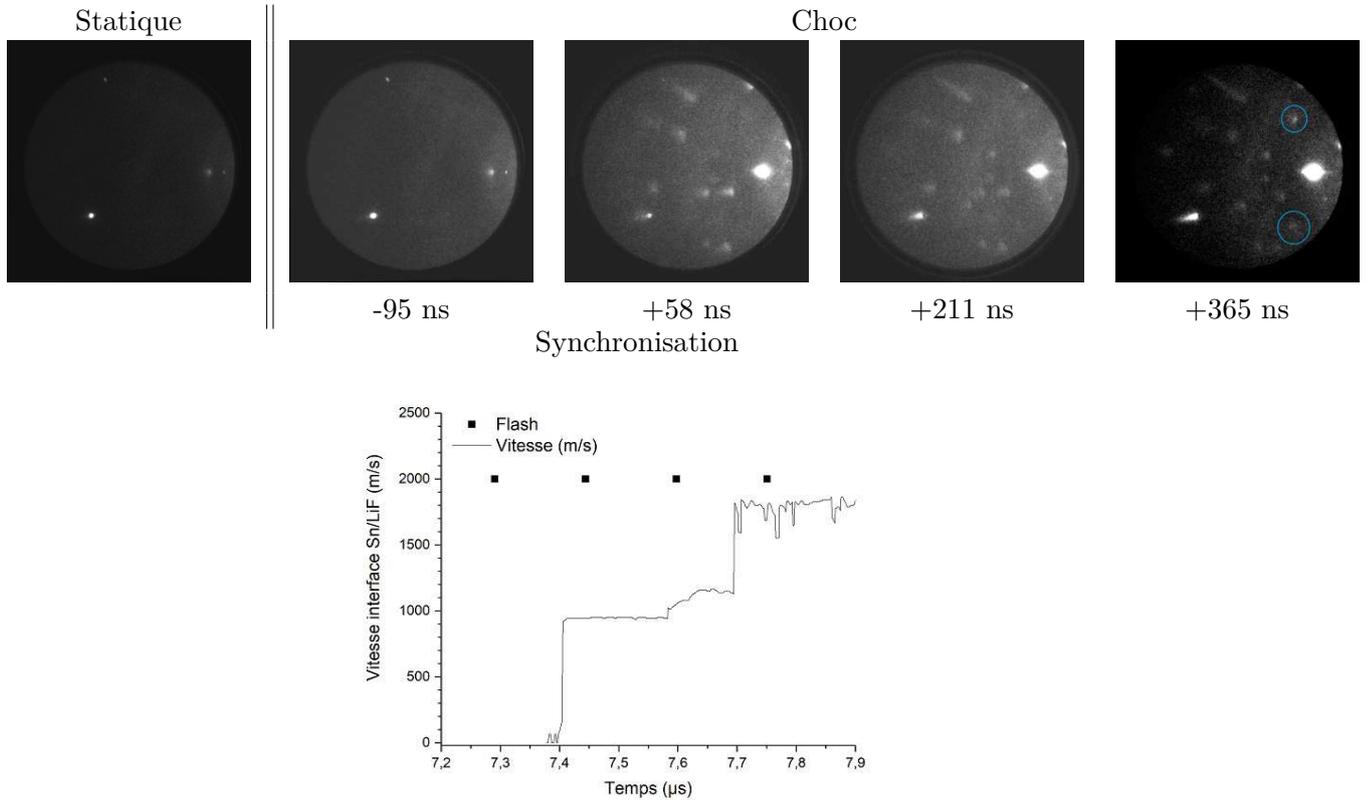


FIGURE IV.57 – Résultats obtenus pour l'essai 9, les temps correspondent au retard par rapport au débouché de l'onde de choc à l'interface ($\approx 7,4 \mu\text{s}$ sur le signal de vitesse)

La deuxième image a été prise sur l'état correspondant au choc. On observe là encore la figure de diffraction caractéristique des essais à basse pression. Le matériau à l'interface semble donc se comporter comme le monocristal sollicité à bas niveau. On observe encore une figure identique pour la troisième image. Contrairement aux essais avec une fenêtre en LiF, on ne remarque pas l'apparition des trois points intenses symétriques. Cette absence pourrait être reliée au faible niveau de pression atteinte à l'interface qui induirait un temps d'apparition important similaire aux essais 1 et 2. La dernière image présente à la fois la figure précédente mais aussi l'apparition de points qui semblent se répartir en arc de cercle (cercles bleus) tout comme l'essai 3 (Figure IV.58). Il pourrait alors s'agir d'un indicateur de l'occurrence de la transition, malgré l'absence de l'apparition d'un point intense sous choc à une position similaire aux essais 3, 7 et 8 du fait de l'orientation similaire du monocristal de départ.

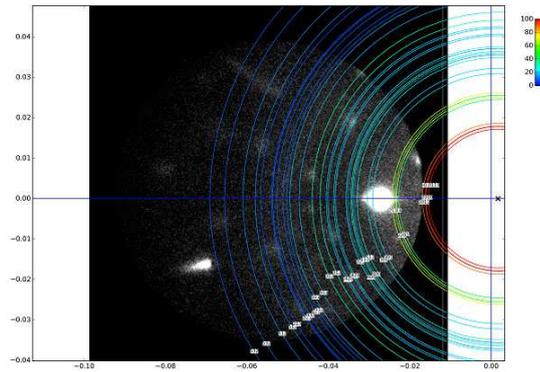


FIGURE IV.58 – Essais d'indexation pour l'essai 9 (+431 ns) en considérant un polycristal β

Essai 4

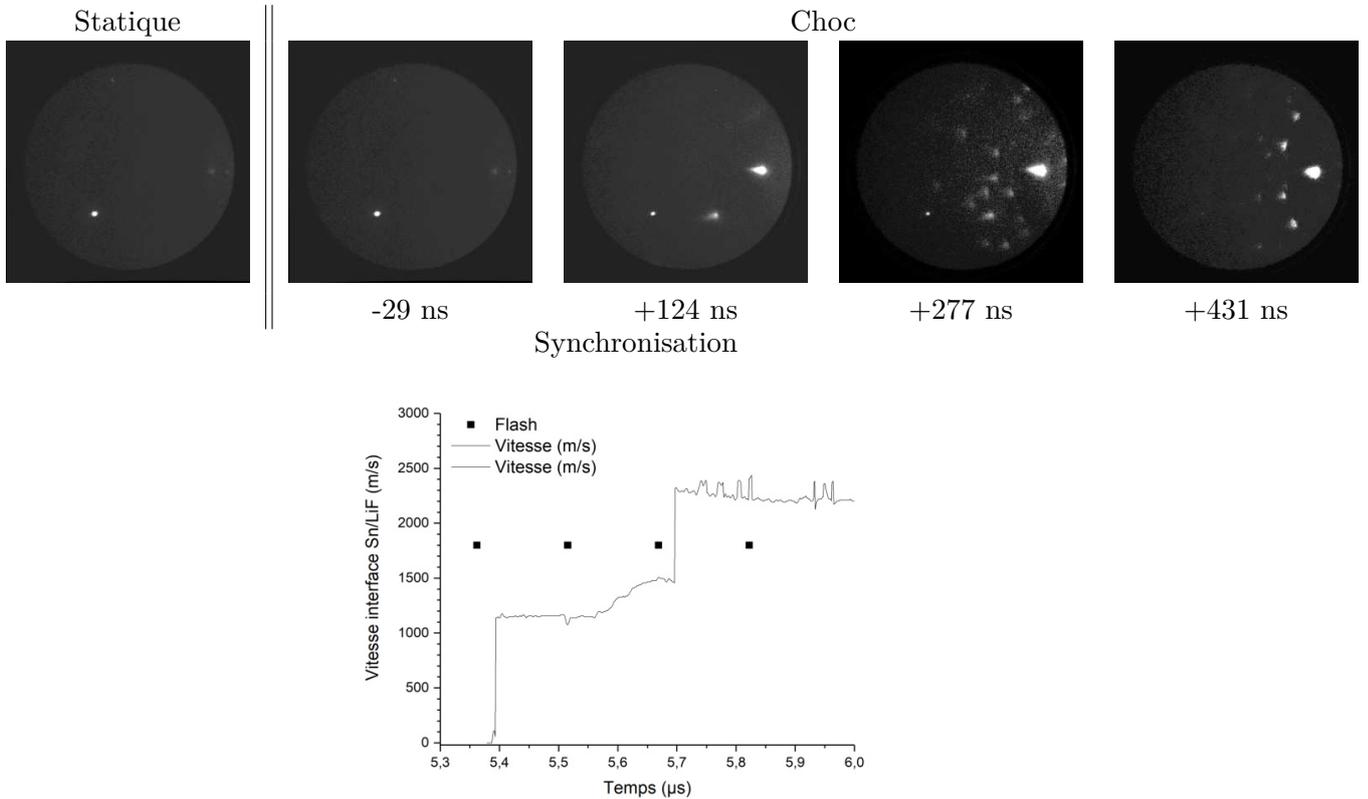


FIGURE IV.59 – Résultats obtenus pour l'essai 4, les temps correspondent au retard par rapport au débouché de l'onde de choc à l'interface ($\approx 5,4 \mu\text{s}$ sur le signal de vitesse)

L'image 2 a été acquise lors du plateau de choc et ne présente pas une figure de diffraction similaire à l'essai précédent. On observe un unique point intense à une position rappelant celle des essais 3,7 et 8 sous choc où la phase γ pourrait être supposée. L'hypothèse de la présence de la phase γ pourrait être expliquée par une plus grande pression atteinte dans la zone sondée en comparaison avec les simulations. L'image 3 possède une figure rappelant l'image 4 de l'essai précédent avec une combinaison de la figure de diffraction récurrente des essais à bas niveau ainsi que l'apparition de points périphériques dont l'intensité croît sur l'image 4 et qui se répartissent sur des arcs de cercle. Un essai d'indexation a été mené dans la figure IV.60 pour l'image 4.

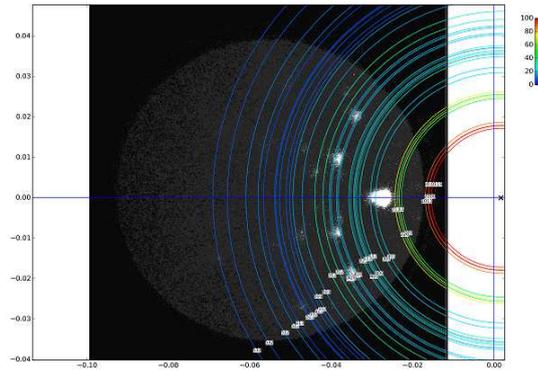


FIGURE IV.60 – Essai d'indexation pour l'essai 4 (+431 ns) en considérant une phase β polycristalline pour l'image 4

IV.2.C.a Bilan des essais de transition inverse

Seulement deux essais ont été menés à des pressions de choc différentes et ceux-ci apportent des résultats différents. Les images obtenues sous choc diffèrent malgré la faible différence de pression à l'interface. Cette différence pourrait provenir de la zone sondée derrière l'interface du fait de la profondeur de pénétration du faisceau. L'état de pression n'est alors pas homogène dans la zone sondée et une superposition de figures de diffraction serait alors détectée chacune correspondant à un état particulier. Le faible niveau de sollicitation calculé par les simulations pour l'essai 8 semble correspondre à la figure de diffraction observée qui rappelle celle des essais à bas niveau. Au contraire, les caractéristiques des figures issues de l'essai 9 rappellent les essais à des pressions supérieures à la transition comme le prévoit la simulation. On remarque cependant pour des temps longs l'apparition de points rassemblés en arc de cercle aux faibles angles qui pourrait encore être reliés à l'occurrence de la transition. Une étude sur la pénétration du rayonnement permettrait de mieux appréhender ce type de figure par le biais de simulations afin de déterminer les états sondés lors du plateau de choc.

IV.2.D Conclusion des essais menés au DCS

Les essais menés au DCS ont permis de proposer des hypothèses quant au comportement de l'étain sous choc malgré les incertitudes expérimentales. Un ajustement a dû être effectué entre chaque essai du fait du repositionnement du détecteur afin d'optimiser la figure de diffraction monocristalline empêchant une comparaison rigoureuse des essais. Par ailleurs, le profil d'émission de la source rend difficile l'analyse des figures de diffraction lorsque la présence simultanée d'un monocristal ou d'un polycristal avec orientation préférentielle est considérée. En effet, dans le premier cas, le rayonnement diffracté illuminera une zone plus petite du détecteur induisant une énergie surfacique déposée plus importante.

Cela va permettre la détection de rayons diffractés dans la partie la moins intense du spectre. Une large gamme spectrale a donc été considérée. A l'inverse, la formation d'un polycristal va permettre d'éclairer plusieurs zones de l'écran simultanément, réduisant de fait l'énergie surfacique déposée sur le détecteur. On peut donc penser que seules les longueurs d'ondes intenses diffractées seront détectées, réduisant la gamme spectrale d'intérêt.

- Lors de pressions de choc sous la transition, une figure de diffraction particulière et reproductible a été obtenue. L'hypothèse du maillage a été envisagée mais n'a pas pu être confirmée à partir du système supposé. La disparition de cette figure dans certains essais remet d'ailleurs en question cette hypothèse. La modification de la figure de diffraction indique cependant un phénomène de déformation du cristal lui faisant perdre son aspect monocristallin. La détente présente une élongation importante des points de la figure de diffraction associée à l'apparition de texturation avec un angle faible, de l'ordre du degré. On peut donc penser que différents phénomènes participent à la déformation du cristal selon la sollicitation : le maillage lors de la compression et de la texturation lors de la détente. Lors de temps longs, on observe l'apparition de trois points intenses symétriques qui ont été associés à la recristallisation de la phase β en un polycristal avec orientation préférentielle. Cette apparition semble de plus en plus précoce pour des essais à pression croissante. La coexistence de cette figure avec d'autres laisse à penser que seulement une partie du matériau subit ce phénomène.
- Les pressions de choc au-dessus de la transition montrent l'apparition d'un point de diffraction lors de l'état de choc ne correspondant pas à la phase ambiante. Compte tenu des incertitudes expérimentales et du point unique obtenu, à la fois les phases γ et β peuvent être supposées. Dans le premier cas la relation d'orientation n'est pas vérifiée pour l'essai 5 dont l'orientation de départ du monocristal est différente, celle-ci ne peut donc pas être confirmée. Cette figure semble cependant attester de la formation d'une cristallite dont l'orientation semble dépendante de l'orientation du monocristal de départ. Cet unique point de diffraction est alors observé lors de la détente jusqu'à des pressions proches de l'ambiante, indiquant la présence de cette cristallite. La présence de la phase γ impliquerait alors une cinétique de transition inverse très lente se prolongeant sur plusieurs centaines de nanosecondes. Cette cinétique serait alors très différente de la transition directe où l'apparition du point est observée dès la première image sous choc. Cette hypothèse peut donc être fortement remise en question. Les images en détente présentent à chaque fois l'apparition de trois points intenses comme observé lors des essais à bas niveau. Cette figure associée à la recristallisation de la phase β pourrait indiquer un comportement similaire aux essais à bas niveau, indiquant que la transition n'a pas été complète. La fraction de la phase β transformée adopterait quant à elle aussi une microstructure polycristalline avec une orientation préférentielle différente de celle associée à la recristallisation de la phase β (points peu intenses aux faibles angles) comme illustré dans la figure IV.61. La difficulté à observer cette figure pour des pressions de sollicitation faibles pourrait indiquer que le taux de phase serait dépendant du niveau de sollicitation.
- Les essais avec une fenêtre enclume de basse impédance sont difficiles à interpréter du fait de la potentielle superposition des états dans la zone sondée. Les phénomènes sous choc semblent cohérents avec les états indiqués dans la simulation pour les profondeurs de pénétration. Cependant, les figures obtenues lors des états de détente ne possèdent pas toutes les caractéristiques observées dans les essais antérieurs. On remarque l'apparition de points localisés sur un arc de cercle. Là encore cette figure pourrait être le marqueur de l'occurrence de la phase γ suite à la transition inverse. On n'observe cependant pas l'apparition des trois points intenses, mais la figure associée au maillage. La phase β non transformée ne subirait alors pas la même évolution de microstructure que pour les autres essais, du moins, pas pour ces échelles de temps.

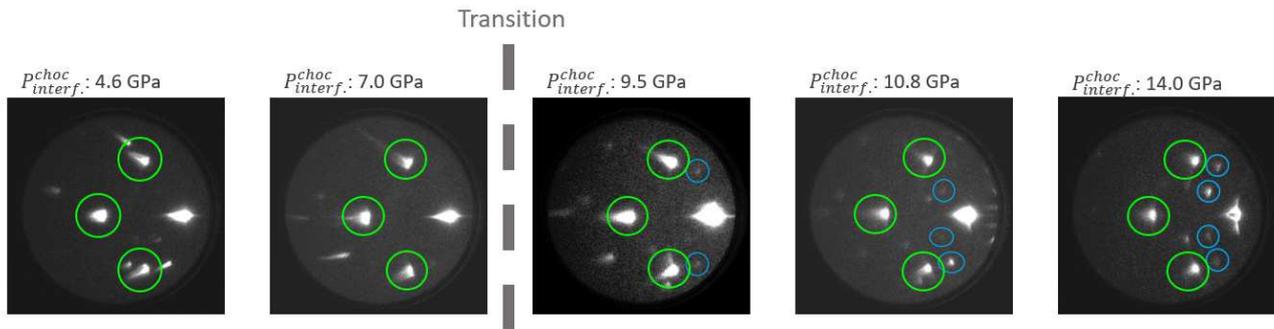


FIGURE IV.61 – Comparaison des différentes figures en détente obtenues au DCS pour des pressions de choc en-dessous et au-dessus de la transition

IV.3 Hypothèses de comportement

A partir des différents essais menés à la fois au CEA Gramat et au DCS, plusieurs hypothèses de comportement ont pu être proposées en fonction du niveau de sollicitation. Les temps d'observation en diffraction X étant sensiblement différents, les figures obtenues au CEA Gramat permettent de caractériser un état moyen sur toute la durée d'illumination (~ 100 ns) tandis que les figures obtenues au DCS permettent une caractérisation plus ponctuelle ($\sim 0,1$ ns). Un schéma représentatif des différentes figures obtenues pour l'orientation (110) dans le diagramme de phase sont illustrées dans les figures IV.62 (CEA Gramat) et IV.63 (DCS).

IV.3.A Essais à bas niveau

Certains phénomènes ont été observés pour les essais à bas niveau :

- Le monocristal semble globalement se conserver lors de l'état de choc même si celui-ci subit une certaine détérioration associée à de la texturation d'après les essais du CEA Gramat. Une figure de diffraction particulière peu intense est néanmoins détectable sur les essais du DCS indiquant une microstructure particulière. L'hypothèse du maclage du matériau est proposée même si elle n'a pas pu être vérifiée par l'utilisation d'outils d'indexation. Par ailleurs cette figure semble disparaître pour les temps longs indiquant la disparition de la microstructure correspondante. La faible intensité de la figure observée au DCS pourrait expliquer qu'elle n'ait pas été détectée au CEA Gramat où son intensité serait inférieure au niveau de bruit du détecteur.
- Lors de la détente, deux figures de diffraction particulières sont observées. On constate à la fois la présence de la figure de diffraction ambiante dont les points ont pu être générés par la texturation. On observe aussi l'apparition de trois points intenses symétriques assimilés à une recristallisation de la phase β en cristallites dont l'orientation semble dépendre de l'orientation de départ. Cette apparition semble de plus en plus tardive lorsque la pression de sollicitation diminue.

Il est donc possible d'envisager que l'échantillon subisse des mécanismes de déformation différents lors de la sollicitation. Une déformation plastique par maclage peut être proposée lors de l'état de choc. Lors de la détente, une texturation d'une partie du monocristal ambiant ainsi que la formation de cristallites serait envisagée.

IV.3.B Essais à haut niveau

Des phénomènes caractéristiques ont pu être observés lors d'essais à haut niveau :

- Concernant les états sous choc, les essais au CEA Gramat n'ont permis d'observer l'apparition de points de diffraction que pour l'orientation (110) pour des temps correspondant à la fin de l'état de choc et au début de l'état de détente. Un essai a aussi permis de proposer la présence de phase γ polycristalline, avec des réserves compte tenu de la synchronisation précoce. Les figures de diffraction sur l'état de choc au DCS ont aussi permis d'identifier l'apparition d'un point intense. Dans les deux cas il n'est pas possible de pouvoir affirmer qu'il s'agisse de la phase γ du fait des incertitudes expérimentales. La relation d'orientation proposée permet de simuler des points de diffraction de cette nouvelle phase dans certains essais mais pas dans d'autres. Il pourrait alors s'agir de la formation d'une cristallite d'orientation différente β ou γ . L'orientation de celle-ci semble néanmoins dépendre de l'orientation du monocristal de départ. La rotation différente des échantillons (110) entre les essais au CEA Gramat et au DCS ne permet pas de conclure s'il s'agit du même phénomène qui est observé. Celui-ci n'a pas été confirmé pour les autres orientations testées au CEA Gramat du fait de la localisation des points à des positions similaires à celles du monocristal de départ pour les orientations (100) et (001). Si la formation de ces cristallites est dépendante de l'orientation du monocristal de départ, il serait envisageable que la rotation des échantillons ne permette pas leur détection : une rotation du monocristal pourrait permettre de détecter ce phénomène. Ces résultats diffèrent de ceux obtenus récemment en diffraction sous choc laser où une phase γ polycristalline a été observée sous choc à partir d'un quasi-monocristal. [78]
- Les figures observées lors de la détente semblent adopter une allure particulière lorsque la pression de transition est dépassée. Une seule figure a été obtenue au CEA Gramat pour des temps longs indiquant une probable phase β polycristalline. Cependant ce résultat reste à nuancer du fait des essais infructueux de diffraction de polycristaux de taille connue en régime statique. Il pourrait alors s'agir d'une taille de cristaux inférieure, cette hypothèse doit encore être approfondie. Les résultats au DCS ont permis d'identifier la formation de deux figures de diffraction lors de la détente. La première est composée de trois points intenses similaires aux essais à bas niveau. Il pourrait alors s'agir d'un comportement similaire à savoir la formation de cristallites de phase β n'ayant pas subi de transformation. Des points peu intenses sont aussi observés pour de faibles angles, ceux-ci n'étant pas observés à bas niveau. Il pourrait alors s'agir de la phase β ayant subi un changement de phase et dont la microstructure en détente serait différente de la phase β non transformée. La transition de phase serait alors incomplète dans la zone sondée proche de l'interface. Ces points semblent apparaître lors de la disparition progressive du point intense apparu lors de l'état de choc. S'il s'agit effectivement de la phase γ , la cinétique de transition serait alors différente entre les états de choc et de détente.

Ainsi, la phase γ n'a pas pu être confirmée lors de l'étude, néanmoins l'observation de certains éléments au sein des figures de diffraction spécifiques à ces essais semble montrer que la transition de phase même partielle pourrait influencer sur la microstructure en détente.

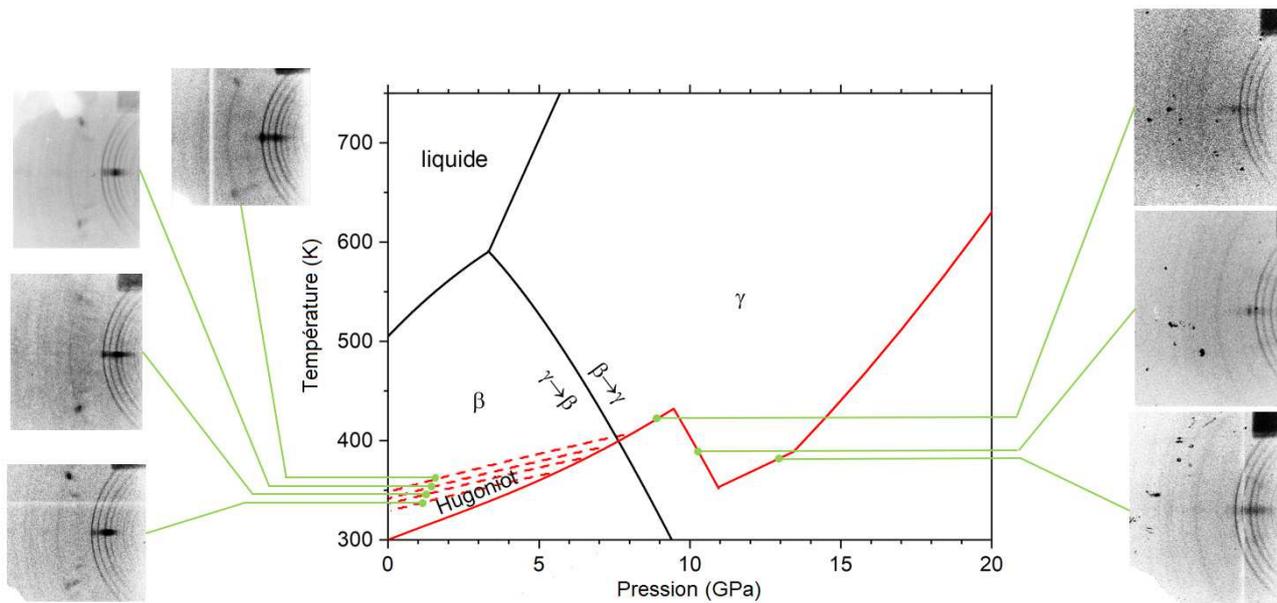


FIGURE IV.62 – Schéma représentant les figures de diffraction correspondant à l'état de choc à l'interface Sn (110)/B₄C sur l'Hugoniot dans le diagramme de phase. Les pointillés représentent l'isentrope correspondant à la détente. Il est à noter que l'état de l'étain présent avant l'interface correspond à une détente ou un re-choc à partir de l'état initial de choc pour arriver à cet état et ne se situe pas sur la courbe d'Hugoniot.

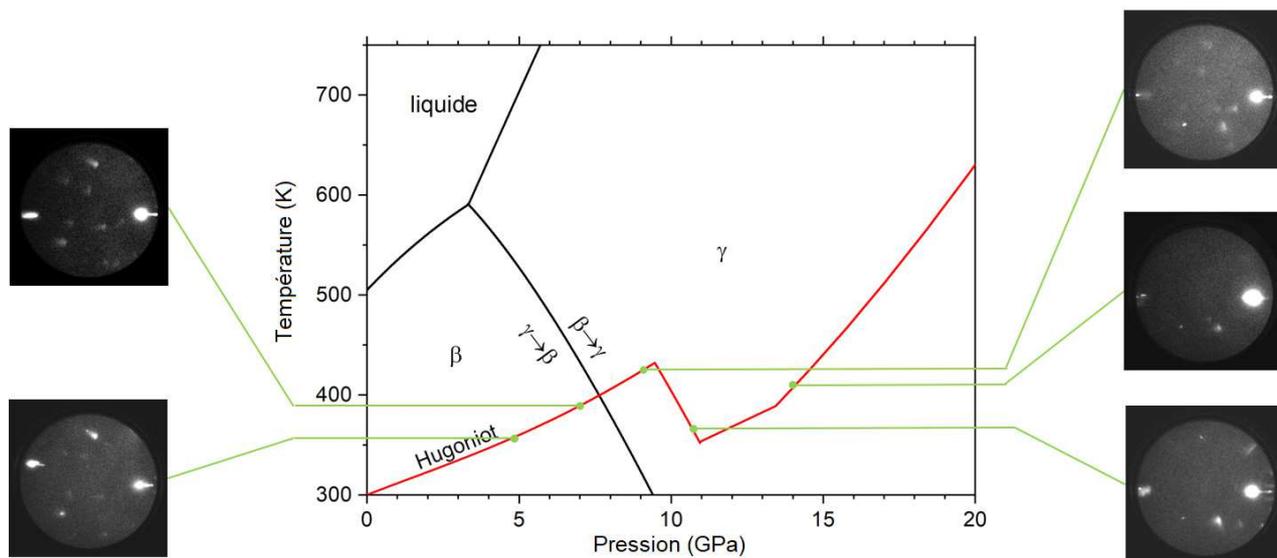


FIGURE IV.63 – Schéma représentant les figures de diffraction correspondant à l'état de choc à l'interface Sn (110)/LiF sur l'Hugoniot dans le diagramme de phase. Il est à noter que l'état de l'étain présent avant l'interface correspond à une détente ou un re-choc à partir de l'état initial de choc pour arriver à cet état et ne se situe pas sur la courbe d'Hugoniot.

IV.4 Perspectives

Les premières hypothèses proposées permettent de proposer diverses configurations expérimentales à tester dans des essais futurs :

- CEA Gramat
 - Des essais supplémentaires à des pressions proches de la transition (8 - 11 GPa) permettraient de sonder un éventuel hystérésis et l'influence de l'orientation du monocristal.
 - Des essais supplémentaires à des niveaux de sollicitation identiques pour des temps de synchronisation différents pour chaque orientation permettraient de retracer l'évolution cristalline du matériau au cours du choc mais aussi lors de la détente. Un chemin complet β - γ - β permettrait ainsi d'identifier les différentes phases.
 - La diffraction à un temps long correspondant à la détente pourrait être employée afin d'essayer de retrouver les phénomènes intenses observés au DCS.
 - Des essais à haut niveau de monocristaux avec une rotation différente pourrait permettre de faire apparaître une figure de diffraction pour chaque orientation et de mettre en évidence l'éventuelle dépendance de l'orientation de la figure observée sous choc.
 - Une optimisation de la configuration de diffraction pourrait elle aussi être envisagée par exemple en utilisant des fils de nature différente. Elle permettrait, entre autres, l'identification de figures issues de polycristal. La diminution du temps d'illumination permettrait de faciliter la synchronisation et de sonder plus facilement l'état de choc. Une fenêtre enclume plus épaisse pourrait aussi être utilisée pour augmenter le temps d'observation.
 - L'implémentation d'un système de préchauffage permettrait de sonder l'étain à partir de diverses températures et d'explorer la frontière de transition de phase.
 - Le remplacement des plaques images par un détecteur électronique piloté à distance permettrait la comparaison directe entre les essais. Il est cependant primordial de mettre en place des protections physiques du fait des éclats et de s'assurer d'une sensibilité égale ou supérieure à celle des plaques images. Un support de plaque image fixe est aussi en cours d'élaboration pour permettre un placement des plaques identique entre les essais.
- DCS
 - L'utilisation d'un plus grand détecteur permettrait de recueillir plus d'informations concernant les figures de diffraction, en particulier si la coexistence entre monocristaux et polycristaux a lieu. En effet, pour des échantillons de très faible taille de grain, la figure de diffraction est la plus intense aux petits angles. Ceux-ci n'étaient pas accessibles du fait de l'ajustement de la position du détecteur pour la figure du monocristal.
 - L'utilisation de monocristaux de différentes orientations permettrait de mettre en évidence l'influence de la direction de sollicitation sur les phénomènes identifiés. L'utilisation de polycristaux pourrait permettre une identification plus facile de la phase γ mais pas de déceler une éventuelle orientation.
 - Des essais à plus haut niveau pourraient permettre d'observer une influence sur la figure de diffraction. En effet, si la transition n'est pas complète, une pression de choc supérieure pourrait agir sur le taux de phase et modifier la figure de diffraction.
 - L'adaptation d'un système de préchauffage permettrait de sonder la frontière de transition sous choc en température.

- La fabrication d'échantillons polycristallins d'étain de faible taille de grain est envisagée. En effet, du fait de la faible zone sondée, un nombre suffisant de grains doit être sondé pour obtenir des ellipses de diffraction comme observé pour la fenêtre enclume en B_4C .
- Des essais de récupération pourraient être envisagés afin de caractériser l'état cristallin suite au choc. La structure serait alors la conséquence des nombreuses interactions d'ondes mais pourrait renseigner sur l'évolution du cristal, en particulier si un monocristal est toujours observé.
- Une étude sur la cinétique de transition de l'étain pourrait être menée sur des systèmes de sollicitation plus lente, par exemple sur enclume diamant. L'utilisation de monocristaux permettrait d'observer une éventuelle relation d'orientation entre les phases. Une étude temporelle permettrait aussi d'approfondir la cinétique de transition et de la comparer directement au temps de sollicitation sous choc. Bien que les résultats obtenus ne seraient pas représentatifs du chemin thermodynamique sous choc, ils permettraient de poser des pistes de recherche et de concevoir des configurations expérimentales en conséquence.
- Une étude de l'influence de défauts cristallins (impuretés, densité de dislocation) pourrait aussi être entreprise afin de déceler une potentielle influence sur la transformation que ce soit en la favorisant ou en la freinant. De plus, leur influence pourrait aussi être analysée dans le cadre des déformations selon une sollicitation sur une direction cristallographique particulière (plan de glissement, texturation, maclage).
- Une étude de l'influence de la vitesse de déformation pourrait être entreprise en comparant les résultats avec ceux issus d'autres moyens de sollicitation plus lentes (compression isentropique) ou plus rapides (choc laser).

Conclusion générale

Ce travail de thèse avait pour but de proposer une étude cristallographique afin d'étudier le comportement de l'étain sous choc, en particulier les transformations polymorphiques à travers l'utilisation de la diffraction X. Les données récoltées sont destinées à parvenir à une meilleure compréhension des mécanismes de transition de phase et à proposer une cinétique à intégrer dans les modèles de simulation numérique. L'étude s'est plus particulièrement portée sur la transformation polymorphique β - γ sur une gamme de pression inférieure à 20 GPa.

Une étude bibliographique a tout d'abord été menée afin de construire une base de données des différentes études sur l'étain sollicité en conditions quasi-statiques à travers diverses méthodes de caractérisation. Un diagramme de phase expérimental a pu être construit afin de discerner les différentes frontières et de comparer les modèles proposés. Il existe peu de données expérimentales permettant de tracer le domaine d'existence de la phase γ en température que ce soit la frontière avec la phase β aussi bien que le liquidus. La transition β - γ a néanmoins été caractérisée de nombreuses fois lors d'expériences isothermes faisant apparaître une phase de mélange pouvant s'étendre sur plusieurs GPa. Le type de transition de phase et les mécanismes impliqués semblent toutefois actuellement mal connus.

Cette étude de l'état de l'art s'est ensuite portée sur la caractérisation dynamique de l'étain où des comportements différents ont été observés par rapport aux sollicitations quasi-statiques. Dans ce type d'expérience, l'étain atteint des états thermodynamiques particuliers caractéristiques déterminés par les relations de Rankine-Hugoniot. La forte contrainte temporelle de ce type d'expérience nécessite la mise en œuvre d'une instrumentation spécifique, la mesure plus couramment utilisée étant la vélocimétrie. Un écart non négligeable de pression pour la transition β - γ est alors observé, habituellement un dépassement pouvant avoisiner 2 GPa, créant un phénomène d'hystérésis. Les mesures utilisées ne permettent que de déterminer des paramètres macroscopiques de l'étain et ne sont pas suffisantes pour étudier l'origine de ce phénomène. Les progrès dans la génération des rayonnements X ont permis de développer des sources permettant d'étudier la l'évolution de la structure cristallographique des matériaux sur des échelles de temps compatibles avec les expériences sous choc.

Afin d'approfondir l'étude de l'étain, des expériences de diffraction X ont été envisagées sur deux installations différentes, au CEA Gramat et au DCS.

Le CEA Gramat s'est doté d'une source dont les caractéristiques de rayonnement permettent d'effectuer de la diffraction X sous choc. Cette source utilise un générateur de rayons X de type X-Pinch qui repose sur l'implosion de fils traversés par un fort courant. La capacité d'utiliser ce type de source pour procéder à de la diffraction X a été démontrée lors de travaux antérieurs et une configuration expérimentale a pu être conçue. Une première caractérisation de cette source a été menée afin de vérifier sa reproductibilité. Malgré une intensité et un profil d'émission variable, les caractéristiques géométriques et spectrales semblent reproductibles. Un système de synchronisation entre un lanceur à gaz et le générateur de rayonnement X a été conçu lors d'études antérieures. Il repose sur l'utilisation d'une cible et d'un système de déclenchement permettent d'initier la séquence de rayonnement pendant le passage des ondes de choc dans la cible. Divers paramètres expérimentaux ont été identifiés et leur influence évaluée dans le dispositif mis en place.

Les autres essais se sont déroulés au synchrotron de l'Advanced Photon Source, au sein du Dynamic Compression Sector. Cette installation est spécialisée dans l'étude des matériaux sous choc et propose divers moyens de sollicitation à combiner avec l'intense rayonnement synchrotron afin de réaliser des expériences de diffraction aussi bien que de radiographie. Tout comme au CEA Gramat, la source a été associée à un lanceur afin de mettre en place la diffraction de l'étain. Des études amont ont permis de déterminer les meilleurs paramètres à utiliser pour obtenir des figures de diffraction exploitables.

Pour cela a été entreprise la conception d'un outil permettant de simuler les figures de diffraction dans de nombreuses configurations expérimentales. En effet, les logiciels de traitement existants qui ont été identifiés ne permettaient pas de pouvoir analyser les figures de diffraction issues de monocristaux en tenant compte des conditions expérimentales. Une méthode de calcul a donc été développée pour simuler les figures dans diverses configurations. Un fichier de données du matériau passé en paramètre permet de déterminer l'ensemble des plans cristallins intervenant dans la diffraction. La prise en compte des paramètres expérimentaux et de l'orientation du cristal va ensuite permettre de tracer le chemin parcouru par le rayonnement diffracté jusque l'écran. Des fonctionnalités supplémentaires ont été ajoutées pour simuler des phénomènes physiques. Des comparaisons effectuées avec les logiciels existants et des résultats d'étude ont montré la pertinence des résultats.

Une variante de cette méthode de calcul a été élaborée pour simuler les figures de diffraction de matériaux polycristallins dans des configurations équivalentes. Les principales différences résident dans la distinction des plans diffractants et dans la méthode de tracé des rayons diffractés. Des comparaisons ont là encore pu être menées entre les figures simulées et les figures expérimentales.

Les essais de diffraction sous choc au CEA Gramat ont été menés sur des monocristaux d'étain de différentes orientations à des pressions supérieures à la transition de phase. La fenêtre temporelle d'observation est de l'ordre de grandeur du temps d'émission du rayonnement X. Ainsi, du fait des incertitudes de synchronisation, l'étain a pu être sondé avant l'arrivée de l'onde de choc (conditions ambiantes), pendant l'état de choc et pendant la détente le ramenant à pression ambiante. Seule l'orientation (110) a permis de discerner l'apparition d'une figure ne correspondant pas à l'état ambiant. Les autres orientations ayant produit des figures rappelant la figure ambiante, voire la disparition de toute figure. Il semble que ce phénomène ait été observé lorsque l'échantillon se trouvait à la fin de l'état de choc et au début de la détente. Il n'a pas été possible de conclure quant à la phase en présence lors de ces essais.

Des essais à pression croissante ont permis d'identifier la disparition progressive de la figure de diffraction ambiante. Cette étude a été exclusivement menée sur l'orientation (110). Le dernier essai à une pression légèrement supérieure à la transition a permis d'observer un phénomène similaire à celui observé à savoir l'apparition de points ne correspondant pas à la figure ambiante. Bien qu'il ne soit pas possible de conclure sans équivoque s'il s'agit de la phase γ , ce phénomène semble reproductible.

Les essais de diffraction menés sur synchrotron ont permis de générer quatre figures de diffraction pendant l'essai. L'état de l'étain a pu être sondé à la fois avant le choc, pendant l'état de choc et lors de la détente. L'apparition d'un point de diffraction a été constaté lors de l'état de choc d'une manière similaire à celle obtenue au CEA Gramat. Cependant, selon la rotation du monocristal, la relation d'orientation n'a pas pu être vérifiée tout comme l'identification claire de la phase β ou γ du fait des incertitudes expérimentales. Les figures obtenues pendant l'état de détente ont montré des caractéristiques particulières qui peuvent potentiellement informer sur l'occurrence de la transformation.

Des essais à des niveaux de pression croissante ont aussi été menés afin de comparer les figures obtenues à celles observées au CEA Gramat. On observe alors une figure de diffraction caractéristique et reproductible semblant indiquer une modification de la microstructure. Ce phénomène a été associé au maillage mais n'a pas pu être confirmé par le biais des simulations. La figure en détente présente certains points communs avec celle des essais menés à haute pression. Les différences observées ont donc pu être associées à des marqueurs de l'occurrence de la transition bien que la phase γ n'ait pas pu être identifiée.

Les résultats obtenus dans cette thèse ont permis de proposer des hypothèses de comportement de l'étain sous choc. Le manque d'information présente dans les figures de diffraction n'a pas permis d'identifier formellement la formation de la phase γ ni sa microstructure. En revanche, l'occurrence de figures de diffraction caractéristiques que ce soit sous choc ou en détente témoigne d'une certaine reproductibilité des résultats. Là encore, des hypothèses de comportement ont pu en être déduites. Des essais supplémentaires sont requis pour approfondir la compréhension de ce matériau et confirmer les hypothèses. De nombreuses perspectives ont été proposées pour approfondir cette étude aussi bien sur la compréhension du comportement dynamique de l'étain que sur les dispositifs expérimentaux. La capacité d'étudier les matériaux sous choc par diffraction X en réflexion a été démontrée que ce soit à l'échelle du laboratoire via l'utilisation de la source X-Pinch ou bien sur grande installation en utilisant un rayonnement synchrotron.

Bibliographie

- [1] PW Bridgman. Compressions and polymorphic transitions of seventeen elements to 100,000 kg/cm². *Physical Review*, 60(4) :351, 1941.
- [2] J Duane Dudley and H Tracy Hall. Experimental fusion curves of indium and tin to 105 000 atmospheres. *Physical Review*, 118(5) :1211, 1960.
- [3] RA Stager, AS Balchan, and HG Drickamer. High-Pressure Phase Transition in Metallic Tin. *The Journal of Chemical Physics*, 37(5) :1154–1154, 1962.
- [4] HD Stromberg and DR Stephens. Effects of pressure on the electrical resistance of certain metals. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 25(9) :1015–1022, 1964.
- [5] ST Weir, MJ Lipp, S Falabella, G Samudrala, and YK Vohra. High pressure melting curve of tin measured using an internal resistive heating technique to 45 GPa. *Journal of Applied Physics*, 111(12) :123529, 2012.
- [6] Marvin L McDaniel, Stanley E Babb Jr, and Gene J Scott. Melting curves of five metals under high pressure. *The Journal of Chemical Physics*, 37(4) :822–828, 1962.
- [7] Stanley E Babb Jr. Melting Curves of Tin and Selenium to 10 000 Bar. *The Journal of Chemical Physics*, 37(4) :922–923, 1962.
- [8] J Dean Barnett, Roy B Bennion, and H Tracy Hall. X-ray diffraction studies on tin at high pressure and high temperature. *Science*, 141(3585) :1041–1042, 1963.
- [9] J Dean Barnett, Vern E Bean, and H Tracy Hall. X-ray diffraction studies on tin to 100 kilobars. *Journal of Applied Physics*, 37(2) :875–877, 1966.
- [10] H Oliynyk and WB Holzapfel. Phase transitions in Si, Ge and sn under pressure. *Le Journal de Physique Colloques*, 45(C8) :C8–153, 1984.
- [11] Ming Liu and LING-GUN LIU. Compressions and phase transitions of tin to half a megabar. *High Temperatures. High Pressures*, 18(1) :79–85, 1986.
- [12] Mark E Cavaleri, Thomas G Plymate, and James H Stout. A pressure-volume-temperature equation of state for sn (β) by energy dispersive x-ray diffraction in a heated diamond-anvil cell. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 49(8) :945–956, 1988.
- [13] Thomas G Plymate, James H Stout, and Mark E Cavaleri. Pressure-volume-temperature behavior and heterogeneous equilibria of the non-quenchable body-centered tetragonal polymorph of metallic tin. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 49(11) :1339–1348, 1988.
- [14] B Kiefer, TS Duffy, T Uchida, and Y Wang. Melting of Tin at High Pressures. *APS User Activity Report*, 2002.

- [15] Catherine Mabire. *Transformation polymorphique et fusion de l'étain sous choc dans la gamme 0-100 GPa ; étude expérimentale et modélisation*. PhD thesis, Poitiers, 1999.
- [16] S Bernard and JB Maillet. First-principles calculation of the melting curve and Hugoniot of tin. *Physical Review B*, 66(1) :012103, 2002.
- [17] N Rambert, B Sitaud, and P Faure. Equation d'état multiphase et courbe de fusion de l'étain sous pression : une nouvelle approche expérimentale. Technical report, CEA, 2003.
- [18] Richard James Briggs. *In Situ Study of Polymorphism and Melting of Metals and Compounds under Extreme Conditions of High Pressure and High Temperature*. PhD thesis, UCL (University College London), 2013.
- [19] Ashkan Salamat, Richard Briggs, Pierre Bouvier, Sylvain Petitgirard, Agnès Dewaele, Melissa E Cutler, Furio Cora, Dominik Daisenberger, Gaston Garbarino, and Paul F McMillan. High-pressure structural transformations of sn up to 138 GPa : Angle-dispersive synchrotron x-ray diffraction study. *Physical Review B*, 88(10) :104104, 2013.
- [20] Serge Desgreniers, Yogesh K Vohra, and Arthur L Ruoff. Tin at high pressure : An energy-dispersive x-ray-diffraction study to 120 GPa. *Physical Review B*, 39(14) :10359, 1989.
- [21] Ashkan Salamat, Gaston Garbarino, Agnes Dewaele, Pierre Bouvier, Sylvain Petitgirard, Chris J Pickard, Paul F McMillan, and Mohamed Mezouar. Dense close-packed phase of tin above 157 GPa observed experimentally via angle-dispersive x-ray diffraction. *Physical Review B*, 84(14) :140104, 2011.
- [22] R Briggs, D Daisenberger, OT Lord, Ashkan Salamat, E Bailey, MJ Walter, and PF McMillan. High-pressure melting behavior of tin up to 105 GPa. *Physical Review B*, 95(5) :054102, 2017.
- [23] AI Kingon, KINGON AI, and CLARK JB. A REDETERMINATION OF THE MELTING CURVE OF TIN TO 3.7 GPa. *High Temperatures. High Pressures*, 12 :75–79, 1980.
- [24] Beate Schwager, Marvin Ross, Stefanie Japel, and Reinhard Boehler. Melting of Sn at high pressure : Comparisons with Pb. *The Journal of chemical physics*, 133(8) :084501, 2010.
- [25] Liang Xu, Yan Bi, Xuhai Li, Yuan Wang, Xiuxia Cao, Lingcang Cai, Zhigang Wang, and Chuanmin Meng. Phase diagram of tin determined by sound velocity measurements on multi-anvil apparatus up to 5 GPa and 800 K. *Journal of Applied Physics*, 115(16) :164903, 2014.
- [26] John Francis Cannon. Behavior of the elements at high pressures. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 3(3) :781–824, 1974.
- [27] David A Young. Phase diagrams of the elements. Technical report, California Univ., 1975.
- [28] E Yu Tonkov and EG Ponyatovsky. Transformations of Elements Under High Pressure. pages 116–121, 2005.
- [29] BH Cheong and Kee-Joo Chang. First-principles study of the structural properties of sn under pressure. *Physical Review B*, 44(9) :4103, 1991.
- [30] R Ravelo and M Baskes. Equilibrium and thermodynamic properties of grey, white, and liquid tin. *Physical Review Letters*, 79(13) :2482, 1997.
- [31] GA Cox. A Multi-Phase Equation of State and Strength Model for Tin. In *AIP Conference Proceedings*, volume 845, pages 208–211. American Institute of Physics, 2006.

- [32] Xi Feng and Cai Ling-Cang. Theoretical study of a melting curve for tin. *Chinese Physics B*, 18 (7) :2898, 2009.
- [33] KS Vahvaselkä. X-ray diffraction analysis of liquid Hg, Sn, Zn, Al and Cu. *Physica Scripta*, 18 (4) :266, 1978.
- [34] Jianbo Hu, Xianming Zhou, Chengda Dai, Hua Tan, and Jiabo Li. Shock-induced bct-bcc transition and melting of tin identified by sound velocity measurements. *Journal of Applied Physics*, 104(8) :083520, 2008.
- [35] Alexandr Mikhailovich Molodets and Sergei Sergeevich Nabatov. Thermodynamic potentials, diagram of state, and phase transitions of tin on shock compression. *High Temperature*, 38(5) : 715–721, 2000.
- [36] John M Walsh, Melvin H Rice, Robert G McQueen, and Frederick L Yarger. Shock-wave compressions of twenty-seven metals. Equations of state of metals. *Physical Review*, 108(2) :196, 1957.
- [37] Stanley P Marsh. *LASL shock Hugoniot data*, volume 5. Univ of California Press, 1980.
- [38] V.E. Kogan, P.R. Levashov, and I.N. Lomov. Shock wave database, 2003. URL <http://ihed.ras.ru/rusbank>. Consultation : 2019-2021.
- [39] Dane V Morgan, Don Macy, and Gerald Stevens. Real-time x-ray diffraction measurements of shocked polycrystalline tin and aluminum. *Review of Scientific Instruments*, 79(11) :113904, 2008.
- [40] Catherine Mabire and Pierre L Hereil. Shock induced polymorphic transition and melting of tin. In *AIP Conference Proceedings*, volume 505, pages 93–96. American Institute of Physics, 2000.
- [41] SD Gilev and VS Prokop'ev. Electrical resistance of high-pressure phases of tin under shock compression. *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, 51(4) :482–487, 2015.
- [42] RG McQueen and SP Marsh. Equation of state for nineteen metallic elements from shock-wave measurements to two megabars. *Journal of Applied Physics*, 31(7) :1253–1269, 1960.
- [43] P Elias, P Chapron, and B Laurent. Detection of melting in release for a shock-loaded tin sample using the reflectivity measurement method. *Optics communications*, 66(2-3) :100–106, 1988.
- [44] William W Anderson, Frank Cverna, Robert S Hixson, John Vorthman, Mark D Wilke, George T Gray III, and Karl L Brown. Phase transition and spall behavior in β -Tin. In *AIP Conference Proceedings*, volume 505, pages 443–446. American Institute of Physics, 2000.
- [45] PL Héreil and C Mabire. Temperature measurement of tin under shock compression. *JOURNAL DE PHYSIQUE 4*, 10(9) :Pr9–799, 2000.
- [46] Jianbo Hu, Xianming Zhou, Hua Tan, Jiabo Li, and Chengda Dai. Successive phase transitions of tin under shock compression. *Applied Physics Letters*, 92(11) :111905, 2008.
- [47] MV Zhernokletov, AE Kovalev, VV Komissarov, MG Novikov, MA Zocher, and FJ Cherne. Measurement of the sound velocities behind the shock wave front in tin. *Combustion, Explosion, and Shock Waves*, 48(1) :112–118, 2012.
- [48] Camille Chauvin, Zakaria Bouchkour, Frédéric Sinatti, and Jacques Petit. Shock-induced phase transition of Tin : experimental study with velocity and temperature measurements. In *AIP Conference Proceedings*, volume 1793, page 060013. AIP Publishing LLC, 2017.

- [49] Ping Song, Ling-cang Cai, Tian-jiong Tao, Shuai Yuan, Hong Chen, Jin Huang, Xin-wen Zhao, and Xue-jun Wang. Melting along the Hugoniot and solid phase transition for Sn via sound velocity measurements. *Journal of Applied Physics*, 120(19) :195101, 2016.
- [50] Amy Lazicki, JR Rygg, Federica Coppari, Ray Smith, Dayne Fratanduono, RG Kraus, GW Collins, R Briggs, DG Braun, DC Swift, et al. X-ray diffraction of solid tin to 1.2 TPa. *Physical review letters*, 115(7) :075502, 2015.
- [51] R Briggs, R Torchio, A Sollier, F Occelli, L Videau, N Kretzschmar, and M Wulff. Observation of the shock-induced β -sn to bct-sn transition using time-resolved X-ray diffraction. *Journal of synchrotron radiation*, 26(1) :96–101, 2019.
- [52] Jean-Paul Davis and Dennis B Hayes. MEASUREMENT OF THE DYNAMIC β - γ PHASE BOUNDARY IN TIN. In *AIP Conference Proceedings*, volume 955, pages 159–162. American Institute of Physics, 2007.
- [53] CT Seagle, J-P Davis, MR Martin, and HL Hanshaw. Shock-ramp compression : Ramp compression of shock-melted tin. *Applied Physics Letters*, 102(24) :244104, 2013.
- [54] L Soulard and O Durand. Observation of phase transitions in shocked tin by molecular dynamics. *Journal of Applied Physics*, 127(16) :165901, 2020.
- [55] G Robert, L Pillon, G Seisson, and C Chauvin. Full multiphase description of materials : Application on tin. In *AIP Conference Proceedings*, volume 2272, page 070040. AIP Publishing LLC, 2020.
- [56] Pascal Bauer, Ashwin Chinnayya, and Thibaut De Ressaiguiet. *Ondes et matière : ondes de choc et détonations : de la théorie aux applications*. 2015. ISBN 9782340-005563.
- [57] Jacques Thouvenin. Les mécanismes élémentaires de la détonique. Technical report, 1985.
- [58] Hannelore Katzke and Pierre Toledano. Structural mechanisms of the high-pressure phase transitions in the elements of group IVA. *Journal of Physics : Condensed Matter*, 19(27) :275204, 2007.
- [59] Debojyoti Mukherjee, KD Joshi, and Satish C Gupta. Pressure induced phase transition in tin : Ab-initio calculations. In *Journal of Physics : Conference Series*, volume 215, page 012106. IOP Publishing, 2010.
- [60] Pierre-Louis Hereil, Frederic Sinatti, Camille Chauvin, and Christian Loupias. Pyrene : a new small launcher for dynamic materials studies. 2006.
- [61] Frédéric Zucchini, Simon N Bland, Camille Chauvin, P Combes, David Sol, Arnaud Loyer, B Roques, and Julien Grunenwald. Characteristics of a molybdenum X-pinch X-ray source as a probe source for X-ray diffraction studies. *Review of Scientific Instruments*, 86(3) :033507, 2015.
- [62] Lev Iosifovich Mirkin. *Handbook of X-ray analysis of polycrystalline materials*. 1964.
- [63] Albert Thomson, David Attwood, Eric Gullikson, Malcolm Howells, Kwang-Je Kim, Janos Kirz, Jeffrey Kortright, Ingolf Lindau, Piero Pianetta, Arthur Robinson, James Scofield, James Underwood, Douglas Vaughan, Gwyn Williams, and Herman Winick. *X-ray data booklet*. 2009.
- [64] AL Meadowcroft, CD Bentley, and EN Stott. Evaluation of the sensitivity and fading characteristics of an image plate system for x-ray diagnostics. *Review of Scientific Instruments*, 79(11) : 113102, 2008.

- [65] Discussion interne avec F. Zucchini.
- [66] P Mercier, J Benier, A Azzolina, JM Lagrange, and D Partouche. Photonic doppler velocimetry in shock physics experiments. In *Journal de Physique IV (Proceedings)*, volume 134, pages 805–812. EDP sciences, 2006.
- [67] P Mercier, J Bénier, PA Frugier, G Contencin, J Veaux, S Lauriot-Basseuil, and M Debruyne. Heterodyne velocimetry and detonics experiments. In *28th International Congress on High-Speed Imaging and Photonics*, volume 7126, page 71261O. International Society for Optics and Photonics, 2009.
- [68] Clemens Prescher and Vitali B Prakapenka. DIOPTAS : a program for reduction of two-dimensional x-ray diffraction data and data exploration. *High Pressure Research*, 35(3) :223–230, 2015.
- [69] PJ Brown, AG Fox, EN Maslen, MA O’keefe, and BTM Willis. Intensity of diffracted intensities. *International tables for crystallography*, 2006.
- [70] Koichi Momma and Fujio Izumi. VESTA 3 for three-dimensional visualization of crystal, volumetric and morphology data. *Journal of applied crystallography*, 44(6) :1272–1276, 2011.
- [71] Bruce Chalmers. The twinning of single crystals of tin. *Proceedings of the Physical Society (1926-1948)*, 47(4) :733, 1935.
- [72] Saiyu Maruyama and Hiroshi Kiho. Intersections of $\{301\}$, $\{101\}$ twin bands in tin. *Journal of the Physical Society of Japan*, 11(5) :516–521, 1956.
- [73] Ken-ichiro Ishii. Deformation twinning of tin single crystals under impact loading. *Journal of the Physical Society of Japan*, 14(10) :1315–1321, 1959.
- [74] Stefan J Turneaure, P Renganathan, JM Winey, and YM Gupta. Twinning and dislocation evolution during shock compression and release of single crystals : real-time X-ray diffraction. *Physical review letters*, 120(26) :265503, 2018.
- [75] ME Kipp and RJ Lawrence. WONDY V : a one-dimensional finite-difference wave-propagation code. *NASA STI/Recon Technical Report N*, 83 :10396, 1982.
- [76] Rapport interne. UNIDIM : un code monodimensionnel aux différences finies. Technical report, A paraitre.
- [77] Dayne Eric Fratanduono. *The Index of refraction of lithium fluoride at pressures in excess of 100 GPa*. PhD thesis, Citeseer, 2010.
- [78] A Sollier, C Pepin, and C Chauvin. Résultats obtenus lors d’une campagne d’essais à l’ESRF en mai 2021, non publié.
- [79] WH Gust and EB Royce. Dynamic yield strengths of B4C, BeO, and Al2O3 ceramics. *Journal of Applied Physics*, 42(1) :276–295, 1971.
- [80] Marlin E Kipp and Dennis E Grady. Shock compression and release in high-strength ceramics. Technical report, Sandia National Labs., Albuquerque, NM (USA), 1989.
- [81] NS Brar, Z Rosenberg, and SJ Bless. Dynamic properties of porous B4C. Technical report, DAYTON UNIV OH RESEARCH INST, 1990.

- [82] T Mashimo and M Uchino. Shock compression behavior of boron carbide B₄C. In *AIP Conference Proceedings*, volume 370, pages 531–533. American Institute of Physics, 1996.
- [83] Dattatraya P Dandekar. Shock response of boron carbide. Technical report, Army Research Lab Aberdeen Proving Ground MD, 2001.
- [84] TJ Vogler, WD Reinhart, and LC Chhabildas. Dynamic behavior of boron carbide. *Journal of applied physics*, 95(8) :4173–4183, 2004.
- [85] Y Zhang, T Mashimo, Y Uemura, M Uchino, M Kodama, K Shibata, K Fukuoka, M Kikuchi, T Kobayashi, and T Sekine. Shock compression behaviors of boron carbide B₄C. *Journal of applied physics*, 100(11) :113536, 2006.

Annexes

A.1 Profil d'atténuation des filtres utilisés dans la caractérisation de source

Dans cette annexe sont présentés les profils d'atténuation de différents filtres. Le profil est calculé théoriquement à partir de la nature du matériau et de son épaisseur. La combinaison de plusieurs matériaux est possible dans le cas d'un filtre composé.

Les intitulés "Incidence 18°" et "Incidence 11°" font référence à l'atténuation théorique de l'intensité émise suite à la traversée de la cloche à vide (250 μm de mylar) et à celle de la fenêtre enclume en tenant compte de l'angle d'incidence correspondant.

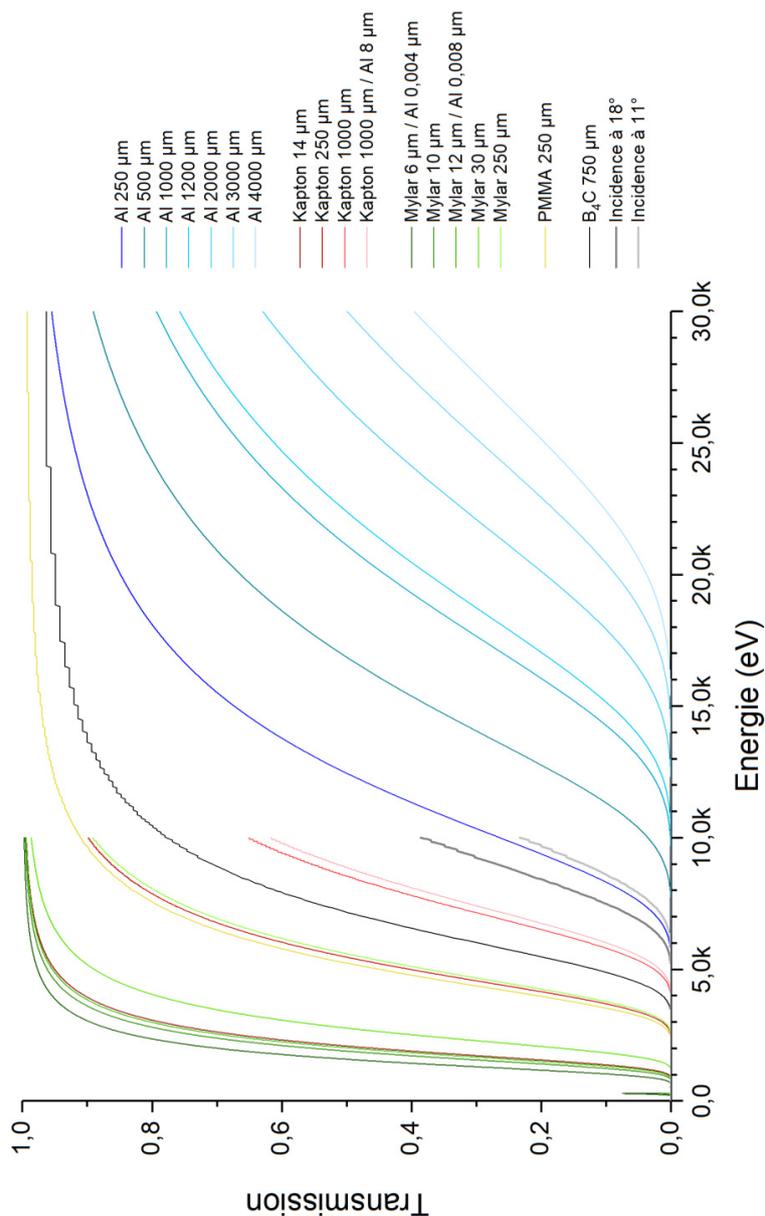


FIGURE A.1 – Profil d'atténuation théorique de différents filtres

A.2 Calcul de la taille de source à partir des paramètres expérimentaux

Pour rappel, on considère la configuration géométrique suivante :

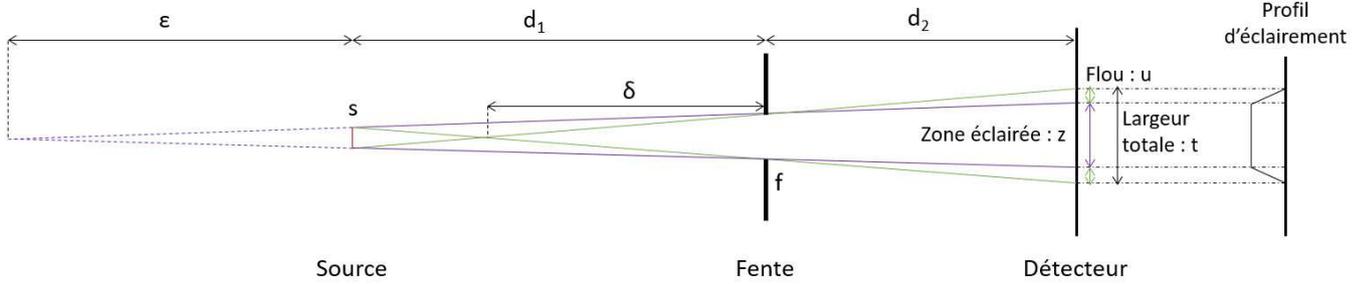


FIGURE A.2 – Configuration considérée pour la mesure de la taille de source

On considère une source uniforme de diamètre s isotrope dont le rayonnement est occulté par une fente de taille f telle que $s < f$. Par tracé des rayons issus des deux extrémités de la source, on remarque un chevauchement de la zone illuminée. En sommant la contribution de chaque élément de source, on peut logiquement s'attendre à un profil trapézoïdal de l'intensité mesurée. À partir de ce profil, il est possible d'estimer la taille de la source à travers la mesure de la zone pleinement éclairée, du flou et de la largeur totale.

A.2.a Calcul à partir de la zone pleinement éclairée

À partir du théorème de Thalès, on obtient le système suivant :

$$\begin{cases} \frac{f}{z} = \frac{\epsilon + d_1}{\epsilon + d_1 + d_2} \\ \frac{s}{z} = \frac{\epsilon}{\epsilon + d_1 + d_2} \end{cases} \Rightarrow \begin{cases} \epsilon = \frac{d_1 \cdot (z - f) - d_2 \cdot f}{f - z} \\ s = \frac{z \cdot \epsilon}{\epsilon + d_1 + d_2} = z \cdot \frac{d_1 \cdot (z - f) - d_2 \cdot f}{f - z} \cdot \frac{1}{\frac{d_1 \cdot (z - f) - d_2 \cdot f}{f - z} + d_1 + d_2} \end{cases} \quad (1)$$

En développant et en simplifiant, on obtient :

$$s = \frac{d_2 \cdot f - d_1 \cdot (z - f)}{d_2} \quad (2)$$

A.2.b Calcul à partir de la zone de flou

À partir du théorème de Thalès, on obtient l'égalité suivante :

$$\frac{s}{u} = \frac{d_1}{d_2} \Rightarrow s = u \cdot \frac{d_1}{d_2} \quad (3)$$

A.2.c Calcul à partir de la largeur totale

À partir du théorème de Thalès, on obtient le système suivant :

$$\begin{cases} \frac{f}{t} = \frac{\delta}{\delta + d_2} \\ \frac{s}{f} = \frac{d_1 - \delta}{\delta} \end{cases} \Rightarrow \begin{cases} \delta = \frac{f \cdot d_2}{t - f} \\ s = f \cdot \left(\frac{d_1}{\delta} - 1 \right) = f \cdot \left(\frac{d_1 \cdot (t - f)}{f \cdot d_2} - 1 \right) \end{cases} \quad (4)$$

En développant et en simplifiant, on obtient :

$$s = t \cdot \frac{d_1}{d_2} - f \cdot \frac{d_1 + d_2}{d_2} \quad (5)$$

Ces résultats sont valables quelque soit la position de la source par rapport à la fente tant que l'on considère que la source, l'écran et la fente demeurent parallèles, la source étant considérée comme sphérique.

A.3 Outil de simulation du profil d'éclairage des sources

Cet outil va permettre de simuler le profil linéique de trois sources de taille et de profil différents espacées dans l'espace à partir de paramètres expérimentaux passés en paramètres. Dans le calcul, on va considérer la configuration illustrée en figure A.3.

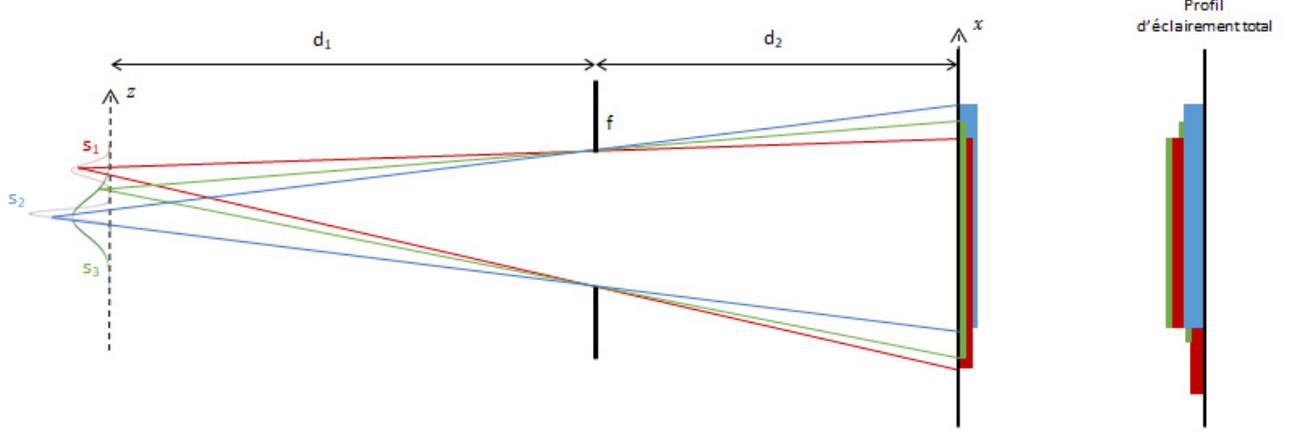


FIGURE A.3 – Configuration considérée pour la simulation du profil d'éclairage de multiples sources

A.3.a Profil des sources

Chaque source étant considérée comme ayant un profil symétrique, sa position sera déterminée au milieu de son profil. On va considérer un axe de coordonnées z dans le plan de la source dont l'origine est située au centre de la fente. Chaque source de diamètre d aura donc une position z_0 sur ce profil et son intensité à chaque position sera donnée par le type de profil considéré :

- Profil porte

$$I(z) = \begin{cases} I_0 & \text{si } z_0 - d/2 \leq z \leq z_0 + d/2 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (6)$$

- Profil triangle

$$I(z) = \begin{cases} I_0 \cdot \left(\frac{2}{d} \cdot z + \frac{1 - 2 \cdot z_0}{d} \right) & \text{si } z_0 - d/2 \leq z \leq z_0 \\ I_0 \cdot \left(-\frac{2}{d} \cdot z + \frac{1 + 2 \cdot z_0}{d} \right) & \text{si } z_0 \leq z \leq z_0 + d/2 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (7)$$

- Profil cercle

$$I(z) = \begin{cases} I_0 \cdot \sin \left(\arccos \left(\frac{z - z_0}{d/2} \right) \right) & \text{si } z_0 - d/2 \leq z \leq z_0 + d/2 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (8)$$

- Profil parabole

$$I(z) = \begin{cases} I_0 \cdot \left(1 - \left(\frac{2(z - z_0)}{d} \right)^2 \right) & \text{si } z_0 - d/2 \leq z \leq z_0 + d/2 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (9)$$

- Profil gaussien

$$I(z) = \begin{cases} I_0 \cdot \exp\left(-\frac{(z - z_0)^2}{2\sigma^2}\right) & \text{si } z_0 - d/2 \leq z \leq z_0 + d/2 \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (10)$$

Un profil gaussien n'atteignant 0 qu'asymptotiquement, la largeur du profil doit être déterminée d'une autre manière. Cette largeur sera déterminée à un certain pourcentage du maximum à travers la coefficient σ . Pour une taille de source d donnée et à un seuil α , on calcule σ via la formule :

$$\sigma = \frac{d}{2 \cdot \sqrt{-2 \cdot \ln \alpha}} \text{ avec } \alpha \in]0; 1[\quad (11)$$

Par défaut, le diamètre de la source est défini pour un seuil de 10% pour un profil gaussien.

A.3.b Construction du profil

La construction du profil d'éclairement total va se faire pas à pas en sommant la contribution de chaque source (Figure A.4). Lors de l'initialisation du calcul, connaissant les profils de chaque source, il est possible de déterminer les extremums de la source totale $[z_{min}^{stot}; z_{max}^{stot}]$ de telle sorte que n'importe quelle position en dehors de cet intervalle n'appartienne à aucune source. Cet intervalle va ensuite être subdivisé en un nombre entier d'éléments constituant autant de sources ponctuelles virtuelles. Pour chaque incrément de position z_i , l'intensité de cette source virtuelle est déterminée en sommant l'intensité respective de chaque source à cette position $I_{tot}(z_i) = I_{s_1}(z_i) + I_{s_2}(z_i) + I_{s_3}(z_i)$. La zone éclairée $[x_{min}^i; x_{max}^i]$ peut alors être déterminée géométriquement à chaque incrément.

Connaissant les coordonnées maximales et minimales de la source, les coordonnées extrêmes de la zone éclairée peuvent être construites définissant un intervalle $[x_{min}^{stot}; x_{max}^{stot}]$. Cet intervalle sera lui aussi divisé en sous-éléments chacun contenant l'intensité totale reçue à la position x_i correspondante. Pour chaque élément de source z_i , chaque point de l'écran appartenant à la zone éclairée va voir son intensité associée augmentée de $I_{tot}(z_i)$.

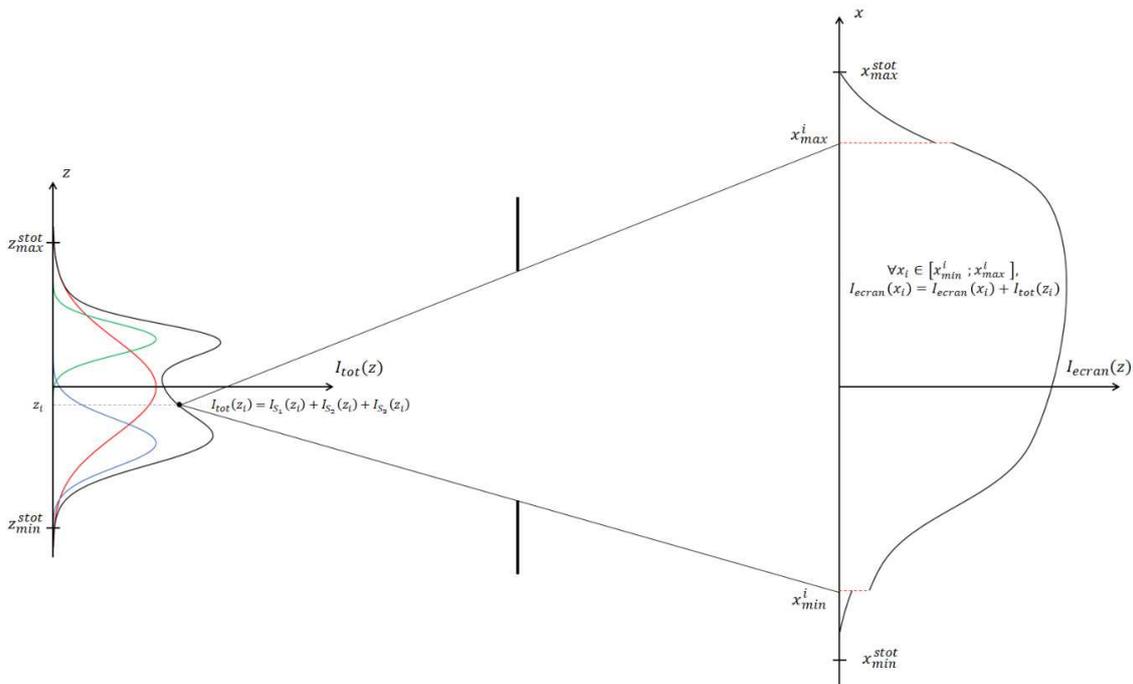


FIGURE A.4 – Schéma de principe de calcul du profil total d'éclairement

Les valeurs de x_{min}^i et x_{max}^i sont calculées pour chaque valeur de z_i à partir des considérations géométriques présentées dans la figure A.5. On considère que les origines de chaque repère sont alignées avec le centre de la fente.

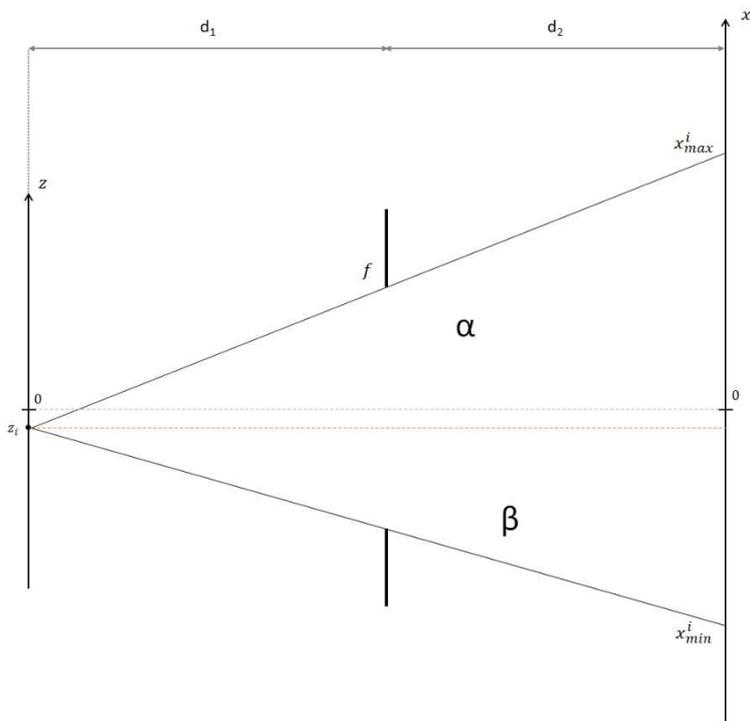


FIGURE A.5 – Configuration considérée pour le calcul des positions extrêmes de la zone éclairée par la source virtuelle z_i

Avec les règles de trigonométrie, on obtient :

$$\left\{ \begin{array}{l} x_{max}^i = (d_1 + d_2) \cdot \tan \alpha \text{ avec : } \tan \alpha = \frac{\frac{f}{2} - z_i}{d_1} \\ x_{min}^i = -(d_1 + d_2) \cdot \tan \beta \text{ avec : } \tan \beta = \frac{\frac{f}{2} + z_i}{d_1} \end{array} \right. \Rightarrow \left\{ \begin{array}{l} x_{max}^i = \frac{d_1 + d_2}{d_1} \cdot \left(\frac{f}{2} - z_i \right) \\ x_{min}^i = -\frac{d_1 + d_2}{d_1} \cdot \left(\frac{f}{2} + z_i \right) \end{array} \right. \quad (12)$$

A.4 Proposition d'une méthode de mesure d'une source gaussienne

Une étude plus approfondie a été entreprise pour mieux caractériser l'erreur de mesure de la taille d'une source et observer si elle est reproductible. Ainsi, il serait possible de construire un abaque afin de mesurer d'erreur commise lors de la mesure de la source. Les profils d'éclairement de sources gaussiennes de diverses tailles entre 10 et 5500 μm ont été simulés et pour chacune, la mesure l'estimation de la taille de source effectué à un seuil de 10% sur le minimum et le maximum (Figure A.6). Les simulations ont été effectuées pour la configuration expérimentale utilisée pour la source X-Pinch, à savoir des tailles de fente respectives de 1, 1,5 et 2 mm avec une distance d_1 fixée à 21 mm et d_2 à 72 mm.

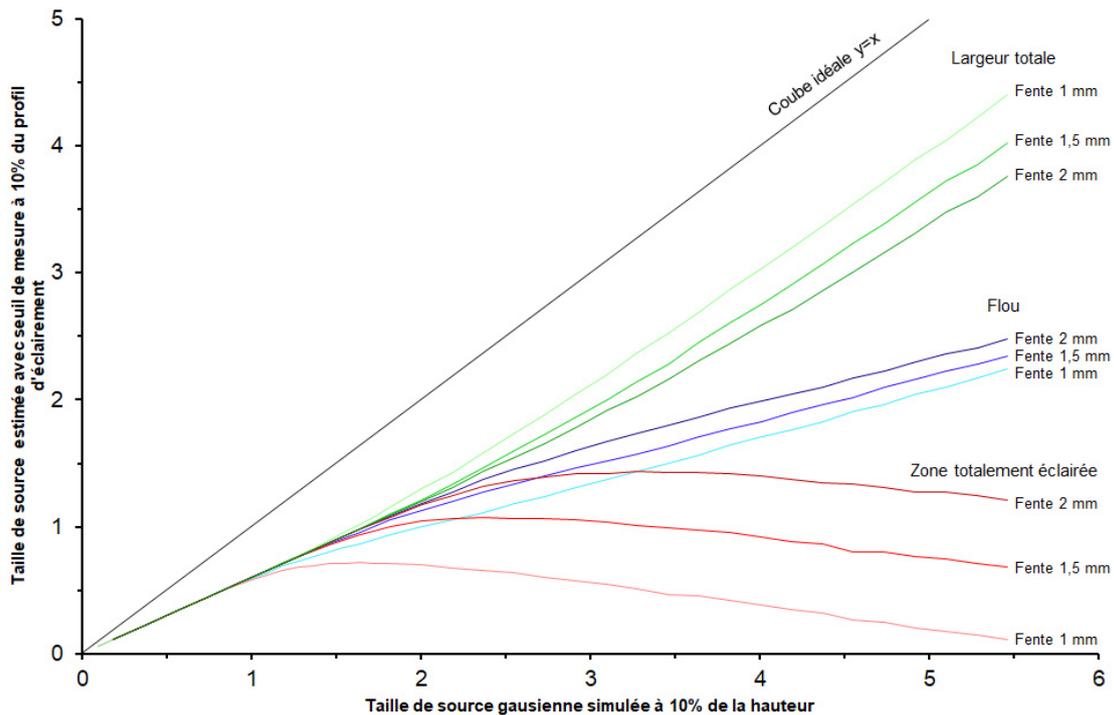


FIGURE A.6 – Graphique présentant la taille de source estimée à partir du profil d'éclairement à 10% en fonction de la taille de la source gaussienne simulée

A la vue du graphe, en première approche, on constate que l'estimation de la taille de la source sous-estime dans tous les cas la taille de la source réelle. L'erreur commise est la même quelque soit la méthode et la taille de la fente jusqu'à une taille de source de 1 mm où les premières différences sont observées. On remarque dans le graphique plusieurs tendances différentes. En effet, selon la méthode utilisée, l'estimation de la taille de la source ne varie pas de la même manière. Là où on observe une tendance strictement croissante pour la méthode de la largeur totale et du flou, la mesure de la zone totalement éclairée semble décroître à partir du moment où la source atteint une taille similaire à celle de la fente. Les deux autres méthodes de mesure semblent aussi connaître un changement de pente à l'approche d'une taille de source similaire à celle de la fente. L'estimation de la source à partir de la largeur totale paraît être la plus précise. Il semble que la taille relative de la source par rapport à la fente influe fortement sur l'estimation de la taille de la source et donc l'erreur commise. Afin de s'affranchir de ce phénomène, la comparaison a cette fois-ci été faite non pas en fonction de la taille de la source mais du ratio source/fente, les résultats sont présentés en figure A.7.

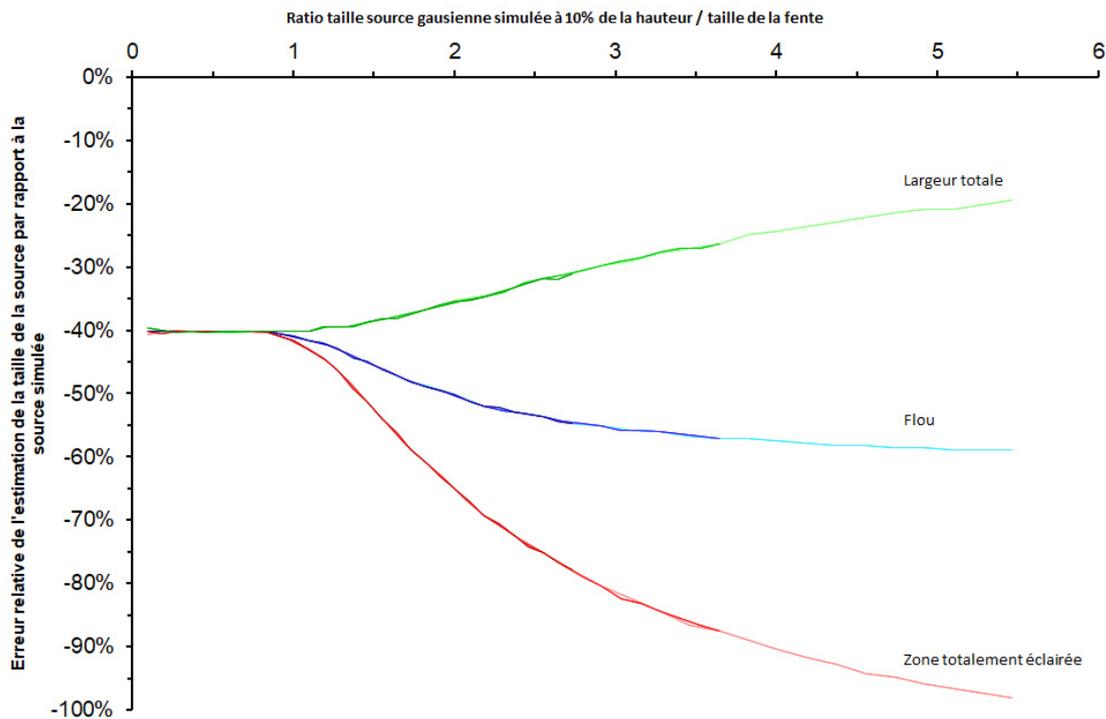


FIGURE A.7 – Graphique présentant l’erreur d’estimation de la taille de source simulée en fonction du ratio source/fente

On observe alors que le profil de l’erreur d’estimation ne dépend plus de la taille de la fente et possède un caractère monotone. Comme suggéré précédemment, on observe que cette erreur est constante avoisinant 40% tant que la source est plus petite que la fente (ratio inférieur à 1). L’erreur diverge alors selon les méthodes au-delà. Cependant, la variation étant monotone, l’erreur est unique pour un ratio source/fente donné. Expérimentalement, il n’est pas possible de connaître à l’avance la taille de la source pour savoir l’erreur commise sur son estimation à partir des méthodes citées précédemment. Il est plus pertinent de connaître l’erreur commise en fonction des données mesurées. Pour s’affranchir de ce problème, il a été décidé d’étudier l’erreur commise en fonction du ratio source estimée/fente. De ce fait, en mesurant ce ratio, il serait possible de s’estimer l’erreur commise dans la mesure et de la corriger. Cette estimation est illustrée dans la figure A.8

On remarque que l’erreur est elle aussi constante jusqu’à un ratio de 0,6 avec une sous-estimation de 40%. Avec la correction, on retrouve bien cette divergence pour un ratio de 1 entre la source réelle et la fente. L’utilisation de la zone totalement éclairée ne semble pas pertinente car deux valeurs d’erreur sont possibles pour un même ratio. Pour rappel, pour de grandes sources, l’estimation de la taille diminue de telle sorte qu’il n’est pas possible de savoir quelle est la taille réelle de source (Figure A.6). La variation de l’erreur est plus importante concernant la mesure du flou que la mesure de la largeur totale éclairée. Ces deux méthodes ne présentent pas de valeur double sur tout l’intervalle étudié et pourraient servir d’abaque à l’estimation d’une taille de source gaussienne. En effet, en mesurant le flou et la largeur totale d’éclairement, connaissant les distances d_1 et d_2 ainsi que le diamètre de la fente, il serait possible de faire une première estimation de la source. En calculant le ratio entre la source estimée et la fente, l’erreur commise sur l’estimation pourrait être retrouvée en utilisant ces courbes. La taille de source estimée peut être ensuite corrigée pour retrouver la valeur réelle. Il est à noter que si la taille de la fente est très inférieure à la taille de la source, le profil obtenu sera directement l’image de la source avec un certain grossissement. L’estimation de sa taille pourra alors directement être effectuée en mesurant la largeur du profil et en le corrigeant avec la valeur du grossissement.

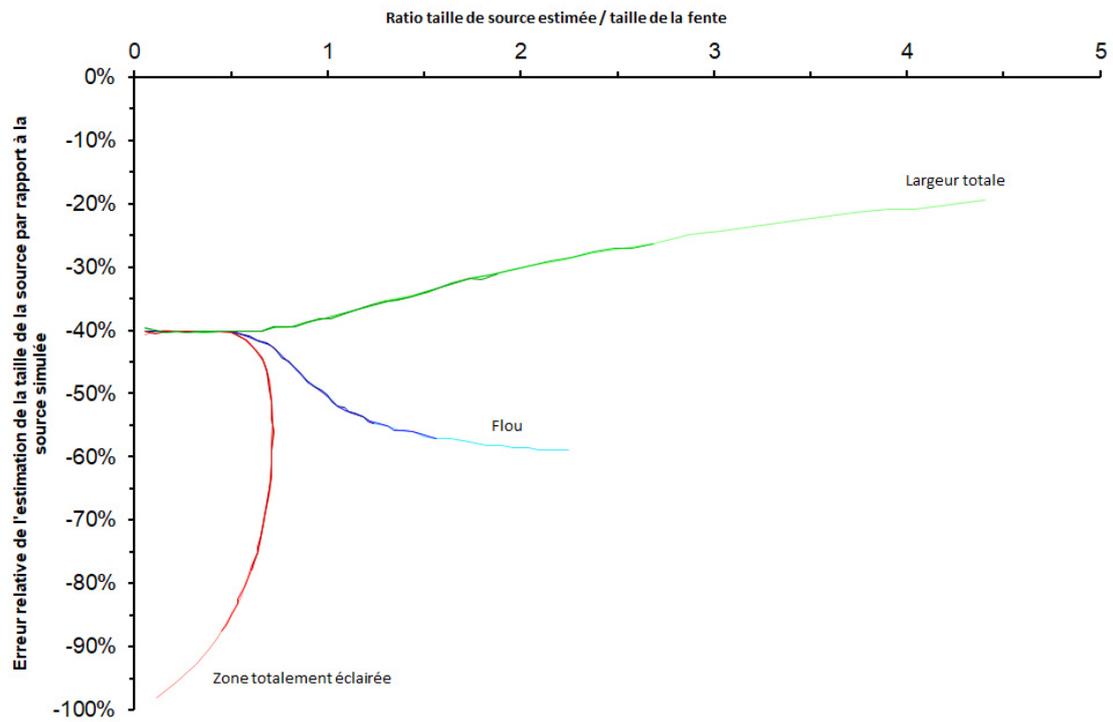


FIGURE A.8 – Graphique présentant l'erreur d'estimation de la taille de source simulée en fonction du ratio source/fente

Cette technique n'a pas pu être vérifiée expérimentalement pour l'instant. En effet, il serait nécessaire d'utiliser une source de taille connue éclairant des fentes de diverses tailles afin d'estimer la taille de source et vérifier si la technique est applicable.

A.5 Calcul de la zone de l'échantillon éclairée par la source à travers la fente lors de la diffraction

Le rayonnement étant isotrope, il va être nécessaire de le mettre en forme pour sonder uniquement la zone d'intérêt de l'échantillon. Cette mise en forme est permise par la mise en place de fentes en tungstène de hauteur et de largeur réglable. Un système de caméras est utilisé pour aligner le croisement des fils, où la source est générée, et la zone à sonder dans l'échantillon. Une fois cet alignement effectué, la fente réglable est placée sur le trajet optique afin de bloquer tout le rayonnement considéré comme parasite. La zone sondée doit être la plus faible possible tout en s'assurant que l'alignement soit correct compte tenu des incertitudes expérimentales pouvant compromettre l'alignement pour atteindre la zone à sonder. La surface de cette zone est grandement influée à la fois par les dimensions de la fente mais aussi la distance à laquelle elle est placée de l'échantillon et de la source sur le trajet optique. La largeur de la zone sondée est aussi influencée par l'angle d'incidence de l'échantillon qui va d'autant plus étaler le faisceau que l'angle d'incidence sera faible.

Un calcul des dimensions de la zone pleinement éclairée par la source peut être effectuée géométriquement comme illustré dans la figure A.9. On va considérer une source sphérique homogène et isotrope dont le rayonnement va passer à travers une fente rectangulaire, opaque, excepté dans son ouverture.

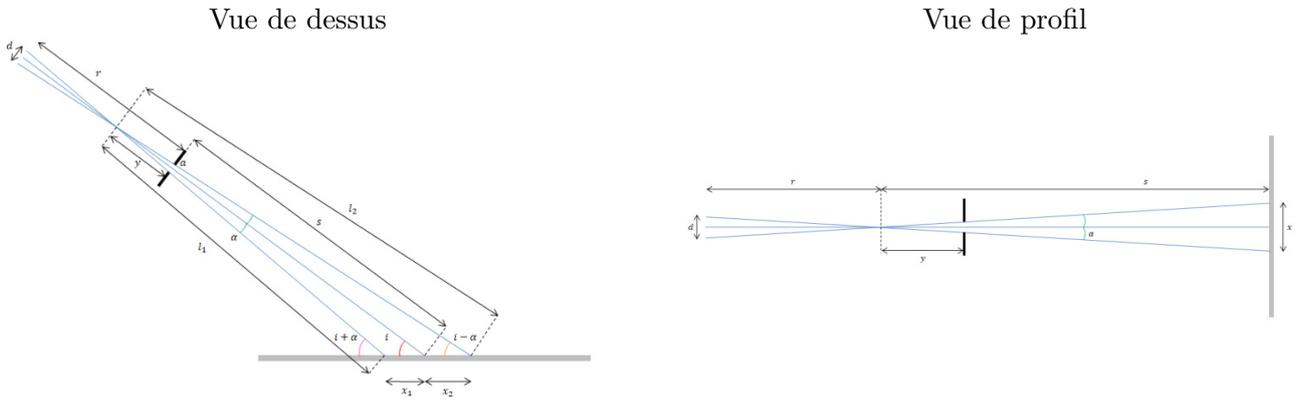


FIGURE A.9 – Schéma géométrique pour le calcul de la largeur (gauche) et de la hauteur de la zone pleinement éclairée (droite)

Dimensions de la zone pleinement éclairée

A partir des données disponibles, la largeur de la zone pleinement éclairée va pouvoir être calculée.

D'après la figure A.9, on a : $\tan \alpha = \frac{d}{2(r-y)} = \frac{a}{2y}$, on en déduit : $y = \frac{a \cdot r}{d+a}$.

On pose : $R = s + y = s + \frac{a \cdot r}{d+a}$

- Calcul de x_1

$$\begin{cases} x_1 = l_1 \cdot \cos(180 - (i + \alpha)) + R \cdot \cos i \\ l_1 = x_1 \cdot \cos(180 - (i + \alpha)) + R \cdot \cos \alpha \end{cases} \Rightarrow x_1 = \frac{R \cdot [\cos i - \cos \alpha \cdot \cos(-i - \alpha)]}{\sin^2(-i - \alpha)} \quad (13)$$

- Calcul de x_2

$$\begin{cases} x_2 = l_2 \cdot \cos(i - \alpha) + R \cdot \cos(180 - i) \\ l_2 = x_2 \cdot \cos(i - \alpha) + R \cdot \cos \alpha \end{cases} \Rightarrow x_2 = \frac{R \cdot [-\cos i + \cos \alpha \cdot \cos(i - \alpha)]}{\sin^2(-i - \alpha)} \quad (14)$$

- Calcul de h

$$\frac{h}{2} = R. \tan \alpha \Rightarrow h = R. \frac{d+a}{r} \quad (15)$$

Les dimensions de la zone éclairée peuvent alors être déterminées lors du dimensionnement de l'expérience pour faire en sorte que la zone sondée illumine uniquement le centre de l'échantillon afin de négliger l'effet des détente latérales portant le matériau à un état non désiré.

A.6 Caractérisation des fenêtres enclume en B_4C

Le carbure de bore est un matériau céramique de faible densité possédant une dureté parmi les plus grandes connues. Ses caractéristiques sous choc sont particulièrement adaptés à l'étude de l'étain par diffraction X. Une certaine porosité a été supposée à la vue des spécification du fournisseur aussi une étude plus approfondie de ce matériau a été entreprise.

A.6.a Etude bibliographique

Ce matériau a été caractérisé sous choc à travers plusieurs études brièvement résumées par la suite. Les valeurs d'intérêt de sont récapitulées dans la table A.9. Dans le régime élastique, tant que la HEL n'est pas atteinte, l'onde de choc se propage à une vitesse C_L correspondant à la vitesse du son longitudinale du matériau.

Gust et al. [79] ont étudié le comportement élastique de plusieurs céramiques dont le B_4C polycristallin sous choc généré par un explosif en contact avec une plaque de transfert sur lequel sont fixés les échantillons. La méthode du miroir incliné est utilisée pour des pressions inférieures à 50 GPa. Une courbe d'Hugoniot a ainsi pu être construite mettant en évidence la transition vers un comportement plastique.

Le rapport de Kipp et al. [80] se concentre sur le comportement sous choc de quatre céramiques, dont le B_4C polycristallin, à travers deux expériences d'impact de plaques couplées à une mesure VISAR permettant de mesure la HEL.

Brar et al. [81] ont étudié le comportement dynamique d'échantillons de B_4C polycristallin poreux par impact de plaques. La HEL a été déterminée par l'utilisation d'une jauge manganin à l'interface avec une fenêtre enclume. Des modèles sont proposés pour calculer l'influence de la porosité sur certains paramètres du matériau tel que la HEL.

Mashimo et al. [82] ont proposé une étude du B_4C polycristallin par impact de plaques à travers l'utilisation des méthodes de miroir incliné et miroir plat.

Le rapport de Dandekar [83] propose de nouvelles données concernant le B_4C et les compare à celles d'autres études recensées. Des impacts de plaques ont été réalisés sur une cible en B_4C avec un impacteur en carbure de tungstène ou en B_4C et couplées à une mesure VISAR. Une étude plus particulière a été menée sur l'écaillage et le cisaillement de ce matériau pour établir des équations d'état.

Vogler et al. [84] ont proposé divers types d'expériences dans des configurations de choc, re-choc et de détente. Une mesure VISAR a permis de mesurer la vitesse à l'interface entre la cible en B_4C et une fenêtre en LiF. Une transition de phase est supposée pour des pressions avoiant 40 GPa.

Zhang et al. [85] ont mené une étude du B_4C polycristallin pour observer la transition élasto-plastique et un potentiel changement de phase via impact de plaques. La HEL a pu être déterminée ainsi que les relations $D(u)$ au sein du régime plastique à travers l'utilisation de la méthode du miroir incliné.

En première approche, la vitesse du son longitudinale du matériau non poreux est comprise entre 13,42 et 14,07 km/s tandis que la HEL est comprise entre 14,4 et 19,4 GPa. On observe une plus grande dispersion sur cette dernière valeur sans doute due à la méthode de mesure qui peut différer entre les études. On remarque aussi que les vitesses de l'onde de choc D mesurées expérimentalement sont légèrement supérieures à C_L mais restent cependant proches ce qui concorde avec la théorie.

En combinant les résultats de l'étude de Brar et al. sur les matériaux poreux avec ceux ayant une porosité négligeable, une première approche de l'influence de la porosité peut-être effectuée. Les résultats concernant la vitesse du son longitudinale C_L et la HEL sont présentés en figure A.10.

ρ (g/cm ³)	α	C_L (km/s)	HEL (GPa)	D (km/s)	Ref.
2,50	1,01	13,78	15,3	13,8	[79]
2,516	1,00	14,04	14,4	Ø	[80]
2,11	1,19	11,83	9,6	Ø	[81]
2,24	1,13	12,52	13,5	Ø	[81]
2,4	1,05	13,01	16,3	Ø	[81]
2,46	1,02	13,31	17,1	Ø	[81]
2,52	1	13,42	19,4	Ø	[81]
2,508	1,00	Ø	>17	15	[82]
2,5	1,01	13,90	15,0	Ø	[83]*
2,512	1,00	14,07	16,7	Ø	[83]*
2,506	1,01	14,07	17 - 19	Ø	[83]*
2,508	1,00	13,49	16	Ø	[83]
2,508	1,00	13,49	16,1	14,0	[84]
2,516	1,00	13,42	19,5	14,3	[85]

* Valeurs reportées d'autres études

TABLE A.9 – Tableau récapitulatif des données du B₄C en régime élastique issues de la bibliographie. Lorsque l'étude comporte plusieurs essais, les résultats moyennés sont présentés.

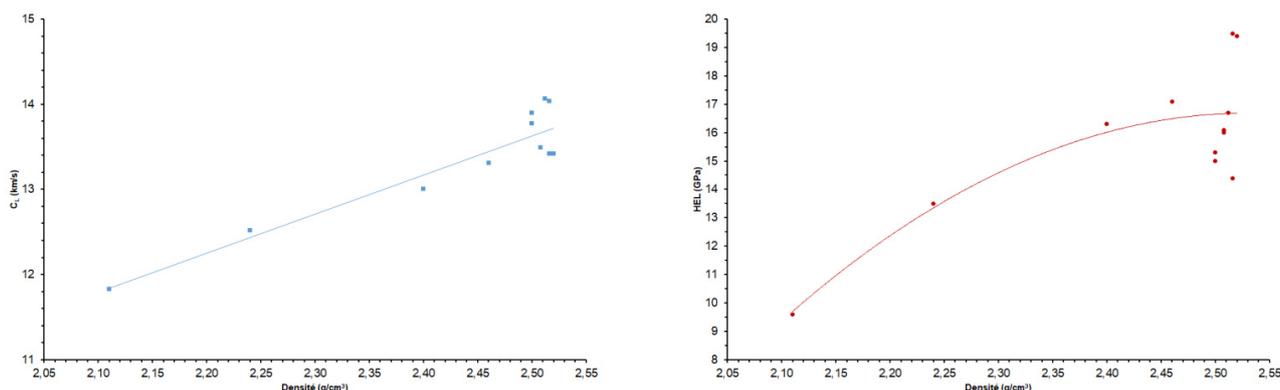


FIGURE A.10 – Graphes récapitulatifs de l'influence de la porosité sur la vitesse du son longitudinale (gauche) et la HEL (droite)

Dans le cas de la variation de C_L , une régression linéaire a été effectuée tandis qu'une régression polynomiale d'ordre 2 a été appliquée à la variation de la HEL :

- C_L (km/s) = $4,58 \cdot \rho(\text{g/cm}^3) + 2,16$ ($R^2 = 0,86$)
- HEL (GPa) = $-39,44 \cdot \rho^2(\text{g/cm}^3) + 199,6 \cdot \rho(\text{g/cm}^3) - 235,9$ ($R^2 = 0,65$)

La forte disparité des résultats pour les matériaux peu poreux influe grandement sur le coefficient de corrélation des deux régressions.

A.6.b Mesure de la porosité des fenêtres enclume

Les fenêtres enclumes en B_4C ont été caractérisées sous choc afin de mieux connaître leur comportement. En effet, le fournisseur annonce une densité pouvant varier entre 2,3 et 2,5 g/cm^3 laissant à penser qu'une porosité pourrait être présente.

Un matériau poreux est constitué du matériau dense dans lequel sont inclus des pores. Pour un même volume, le matériau poreux aura donc une masse plus faible que le matériau dense en négligeant la masse de la matière contenue dans ces pores (gaz). Le volume total du matériau poreux sera donc la somme du volume du matériau dense (V_{mat}) et du volume des pores (V_p). On peut donc définir la porosité de la manière suivante : [56]

$$\alpha = \frac{V_{tot}}{V_{mat}} = \frac{V_{mat} + V_p}{V_{mat}} = 1 + \frac{V_p}{V_{mat}} \quad (16)$$

Si on considère une masse m identique entre le matériau dense et poreux, il est possible de ramener la formule précédente à un rapport de densité :

$$\alpha = \frac{V_{tot}}{V_{mat}} = \frac{V_{tot} \cdot m}{V_{mat} \cdot m} = \frac{\rho_{dense}}{\rho_{poreux}} \text{ avec : } \rho = m/V \quad (17)$$

Une estimation de la porosité a été effectuée sur différents échantillons de disque de B_4C pour l'assemblage des cibles. Ces disques provenant de deux lots différents, chacun a été testé pour estimer la porosité à partir du calcul de la densité. Chaque échantillon a été pesé, l'épaisseur a été mesurée en plusieurs endroits avec un micromètre. Le diamètre a ensuite été aussi mesuré en plusieurs endroits au pied à coulisse. La moyenne des résultats obtenus pour chaque lot est présentée dans les tables A.10 et A.10. La densité du matériau dense est donnée entre 2,51 et 2,52 g/cm^3 .

Echantillon	Moy. Ep. (mm)	Moy. Diam. (mm)	Masse (g)	ρ (g/cm^3)	α
07/3	0,746	19,96	0,530	2,27	1,11
07/4	0,747	19,94	0,539	2,31	1,09
07/8	0,744	19,94	0,507	2,18	1,15
07/12	0,752	19,94	0,504	2,15	1,17
07/16	0,748	19,97	0,515	2,20	1,14
07/18	0,751	19,94	0,527	2,25	1,12

TABLE A.10 – Détermination de la porosité pour les disques de B_4C du lot 1

Echantillon	Moy. Ep. (mm)	Moy. Diam. (mm)	Masse (g)	ρ (g/cm^3)	α
02/9	0,771	20,00	0,605	2,50	1,00
02/10	0,769	19,99	0,605	2,51	1,00
02/11	0,769	19,98	0,605	2,51	1,00
01/20	0,788	20,00	0,621	2,51	1,00
01/21	0,800	20,00	0,630	2,51	1,00
01/22	0,792	20,00	0,624	2,51	1,00

TABLE A.10 – Détermination de la porosité pour les disques de B_4C du lot 2

La valeur de porosité mesurée diffère entre les deux lots, les échantillons du premier possèdent une porosité avoisinant 1,13 tandis que ceux du deuxième lot possèdent une porosité négligeable. En se rapportant aux données précédentes, on peut essayer d'estimer la vitesse du son longitudinale ainsi que la HEL pour de telles valeurs de porosité. Pour le matériau non poreux, on obtient une valeur C_L de 13,7 km/s et une HEL de 16,7 GPa. Quant au matériau ayant une porosité à 1,13, on peut estimer sa valeur de C_L à 12,4 km/s et sa HEL à 13,1 GPa.

A.6.c Caractérisation dynamique

Des essais d'impact de plaques ont été réalisés afin confirmer ou d'infirmer les estimations basées sur les données bibliographiques. La configuration expérimentale est présentée en figure A.11 (gauche). Les essais ont été effectués sur le lanceur Pyrène. Les disques de B_4C de diamètre 20 mm et d'épaisseur 0,5 ou 0,75 mm ont été collés sur une réhausse en mousse Airex, elle-même collée sur le sabot en PVC. La cible était constituée d'un disque de fluorure de lithium LiF de diamètre 40 mm et d'épaisseur 10 mm métallisé en face arrière. Une mesure de vitesse IDF est effectuée sur la face métallisée permettant de mesurer la vitesse de l'interface B_4C/LiF au moment de l'impact. La mesure du plateau de vitesse suite au choc à l'interface permet, en connaissant les caractéristiques du LiF, de déterminer la pression de choc dans le B_4C . La vitesse correspondant à cette pression pour la polaire de choc du B_4C s'obtient à partir de la mesure de la vitesse d'impact et de la vitesse à l'interface B_4C/LiF : $u_{B_4C} = u_{impact_B_4C} - u_{B_4C_LiF}$ (fig. A.11 (droite)). En effectuant plusieurs essais à des vitesses d'impact différentes, on peut ainsi calculer plusieurs points de cette polaire de choc et effectuer une régression linéaire par la suite.

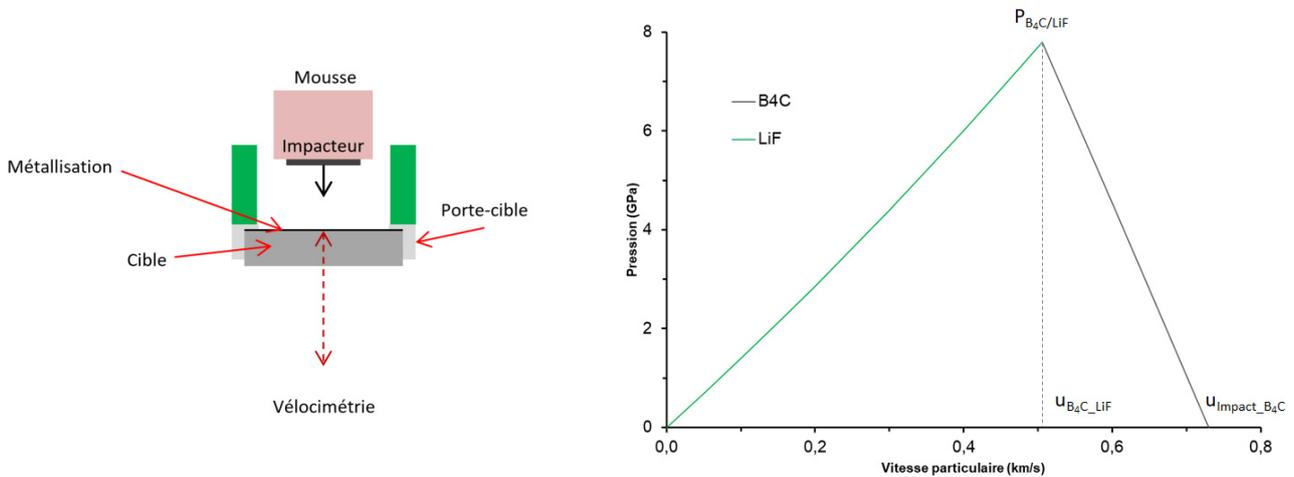


FIGURE A.11 – Configuration expérimentale de la campagne de caractérisation du B_4C (gauche) et schéma de déroulement de choc via les polaires (droite)

Pour chaque lot, trois essais d'impact à des vitesses similaires ont été effectués. Les paramètres de tirs et les résultats obtenus sont présentés dans la table A.11.

Lot 1				Lot 2			
ρ_0 (g/cm ³)	v_{impact} (m/s)	$u_{plateau}$ (m/s)	P (GPa)	ρ_0 (g/cm ³)	v_{impact} (m/s)	$u_{plateau}$ (m/s)	P (GPa)
2,28	362	208,9	3,0	2,51	370	224,8	3,2
2,20	555	316,5	4,7	2,51	553	340,0	5,0
2,31	696	417,3	6,3	2,51	736	448,3	6,8

TABLE A.11 – Tableau récapitulatif des essais de caractérisation du B_4C

A partir de ces données, les polaires pour chaque lot ont pu être tracées. Les résultats sont présentés en figure A.12.

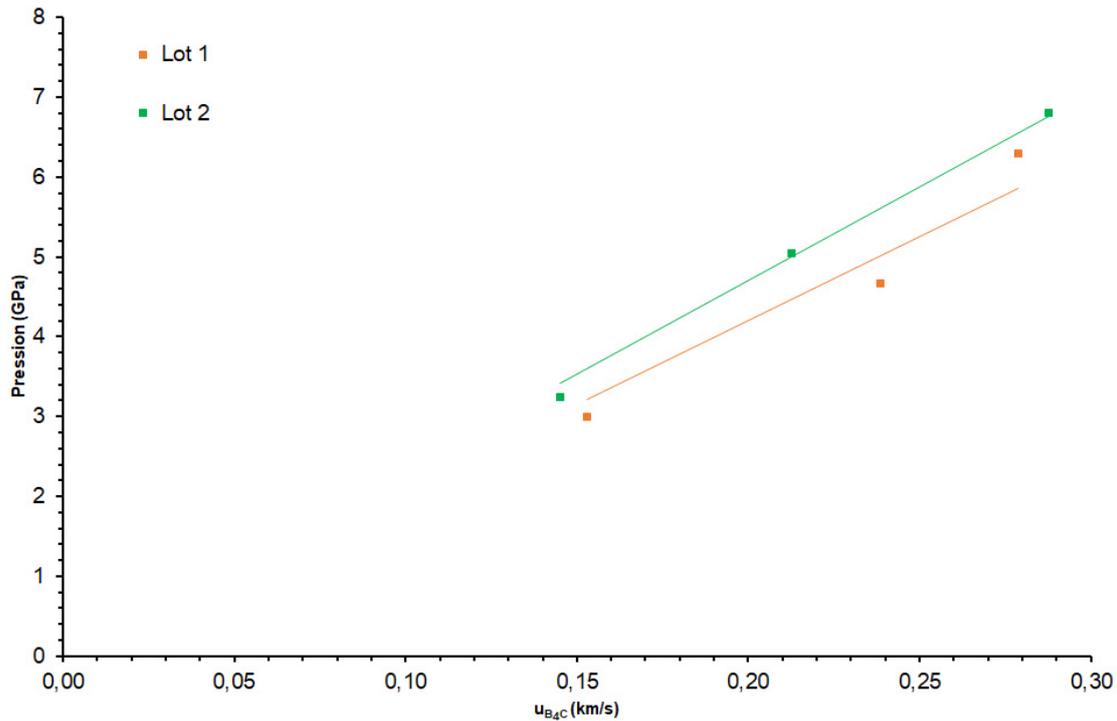


FIGURE A.12 – Tracé des polaires de choc du B_4C à partir des données expérimentales pour les lots 1 et 2. Les droites représentent les régressions linéaires effectuées pour chaque série de données.

On constate en effet une différence de comportement entre les deux lots. L'allure des droites semble linéaire comme attendu et une régression linéaire de la forme $P = \rho_0 C_L \cdot u$ a pu être effectuée :

- Lot 1 : P (GPa) = $21,03 \cdot u_{B_4C}$ ($R^2 = 0,9334$), on en déduit $C_L = 9,30$ km/s
- Lot 2 : P (GPa) = $23,50 \cdot u_{B_4C}$ ($R^2 = 0,9946$), on en déduit $C_L = 9,37$ km/s

Les valeurs obtenues sont très inférieures à celle attendue avec un écart de 32% par rapport au matériau non poreux et 25% par rapport au matériau poreux. L'origine de cette différence n'est pas expliquée, seules deux mesures sont effectuées pour reconstruire la polaire de choc : la mesure de la vitesse d'impact et la mesure de vitesse à l'interface B_4C/LiF . En prenant en compte la vitesse d'impact mesurée, il est possible de calculer la vitesse normalement attendue à l'interface pour le B_4C non poreux (Table A.12). La vitesse d'interface est corrigée pour prendre en compte la perturbation de longueur d'onde induite par l'indice optique du LiF (coefficient correcteur de 1,2669).

v_{impact} (m/s)	$u_{théorique}$ (m/s)	u_{mesure} (m/s)
736	508	448,3
553	385	340,0
370	260	224,8

TABLE A.12 – Tableau comparatif des vitesses d'interface B_4C non poreux/LiF théoriques et expérimentales pour les vitesses d'impact mesurées

Les mesures d'interface mesurées sont trop faibles par rapport à celles attendues. La pression d'interface induite est alors elle aussi inférieure aux valeurs de pressions attendues. Des essais supplémentaires sont nécessaires afin de vérifier la reproductibilité des résultats sur plus d'essais. On va alors considérer les valeurs de vitesse du son longitudinale estimées à partir de la bibliographie pour estimer la pression dans les essais de diffraction X avec étain en considérant la HEL correspondante.

A.7 Rappels sur les calculs de changement de base

On considère le cas de la figure A.13 comprenant deux bases orthonormées $\mathcal{B} : (\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$ et $\mathcal{B}' : (\vec{a}, \vec{b}, \vec{c})$. On va chercher à exprimer une relation matricielle permettant d'exprimer les coordonnées de n'importe quel vecteur d'une base dans l'autre tel que :

$$V_{\mathcal{B}'} = A.V_{\mathcal{B}} \quad (18)$$

$$V_{\mathcal{B}} = B.V_{\mathcal{B}'} \quad (19)$$

La matrice de passage A se construit en exprimant les coordonnées des vecteurs de la base \mathcal{B} dans la base \mathcal{B}' et est appelée $P_{\mathcal{B}',\mathcal{B}}$. À l'inverse, la matrice de passage B se construit en exprimant les coordonnées des vecteurs de la base \mathcal{B}' dans la base \mathcal{B} que l'on note $P_{\mathcal{B},\mathcal{B}'}$. En combinant les équations 18 et 19, on en déduit :

$$V_{\mathcal{B}'} = P_{\mathcal{B}',\mathcal{B}}.V_{\mathcal{B}} = P_{\mathcal{B}',\mathcal{B}}.(P_{\mathcal{B},\mathcal{B}'} . V_{\mathcal{B}'}) \quad (20)$$

d'où :

$$P_{\mathcal{B}',\mathcal{B}}.P_{\mathcal{B},\mathcal{B}'} = Id \Rightarrow P_{\mathcal{B},\mathcal{B}'} = P_{\mathcal{B}',\mathcal{B}}^{-1} \quad (21)$$

Les deux matrices étant inverses, il suffit uniquement de déterminer les coordonnées des vecteurs d'une base dans l'autre pour construire une matrice de passage et de l'inverser.

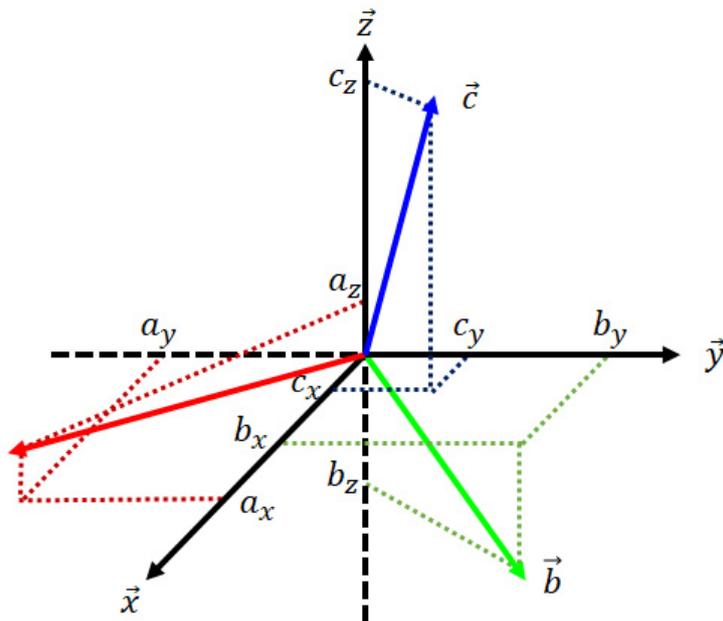


FIGURE A.13 – Schéma représentatif d'un changement de base

A partir de la figure A.13, on peut déterminer les coordonnées des vecteurs de la base \mathcal{B}' dans \mathcal{B} :

Vecteur	Coordonnées dans \mathcal{B}'	Coordonnées dans \mathcal{B}
\vec{a}	$\begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} a_x \\ a_y \\ a_z \end{pmatrix}$
\vec{b}	$\begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} b_x \\ b_y \\ b_z \end{pmatrix}$
\vec{c}	$\begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}$	$\begin{pmatrix} c_x \\ c_y \\ c_z \end{pmatrix}$

TABLE A.13 – Coordonnées des vecteurs de la base \mathcal{B}' dans \mathcal{B}

Il est donc possible de construire la matrice de passage $P_{\mathcal{B},\mathcal{B}'}$ en exprimant les coordonnées des vecteurs de la base \mathcal{B}' en colonnes. N'importe quel vecteur de \mathcal{B}' est une combinaison linéaire des vecteurs de la base \mathcal{B}' . Ses coordonnées dans \mathcal{B} sont donc toujours combinaison linéaire des vecteurs de la base \mathcal{B}' dont on connaît les coordonnées dans \mathcal{B} .

$$P_{\mathcal{B},\mathcal{B}'} = \begin{pmatrix} a_x & b_x & c_x \\ a_y & b_y & c_y \\ a_z & b_z & c_z \end{pmatrix} \quad (22)$$

$P_{\mathcal{B}',\mathcal{B}}$ s'obtient en inversant la matrice.

Exemple : On considère les coordonnées suivantes $(4/5, -3/5, 0)$, $(3/5, 4/5, 0)$, $(0, 0, 1)$ respectivement pour les coordonnées de \vec{a} , \vec{b} et \vec{c} dans la base orthonormée \mathcal{B} . On construit la matrice $P_{\mathcal{B},\mathcal{B}'}$:

$$P_{\mathcal{B},\mathcal{B}'} = \begin{pmatrix} \frac{4}{5} & \frac{3}{5} & 0 \\ -\frac{3}{5} & \frac{4}{5} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \text{ et } P_{\mathcal{B}',\mathcal{B}} = P_{\mathcal{B},\mathcal{B}'}^{-1} = \begin{pmatrix} \frac{4}{5} & -\frac{3}{5} & 0 \\ \frac{3}{5} & \frac{4}{5} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (23)$$

Le vecteur $V_{\mathcal{B}} = (1, 1, 1)$ aura pour coordonnées dans \mathcal{B}' :

$$V_{\mathcal{B}'} = P_{\mathcal{B}',\mathcal{B}} \cdot V_{\mathcal{B}} = \begin{pmatrix} \frac{4}{5} & -\frac{3}{5} & 0 \\ \frac{3}{5} & \frac{4}{5} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{1}{5} \\ \frac{7}{5} \\ 1 \end{pmatrix} \quad (24)$$

On procède de la même manière pour les coordonnées d'un vecteur $W_{\mathcal{B}'} = (1, 1, 1)$ dans \mathcal{B} avec $P_{\mathcal{B},\mathcal{B}'}$:

$$W_{\mathcal{B}} = P_{\mathcal{B},\mathcal{B}'} \cdot W_{\mathcal{B}'} = \begin{pmatrix} \frac{4}{5} & \frac{3}{5} & 0 \\ -\frac{3}{5} & \frac{4}{5} & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{7}{5} \\ \frac{1}{5} \\ 1 \end{pmatrix} \quad (25)$$

A.8 Exemple de fichier de configuration de l'outil de simulation des figures de diffraction

Dans cette annexe, un exemple de fichier de configuration est donné pour un cristal de carbure de bore (B_4C). La maille du B_4C est illustrée dans la figure A.14 (gauche). Dans cette maille, on peut distinguer 3 atomes de carbone et 12 atomes de bore (sommet des icosaèdres).

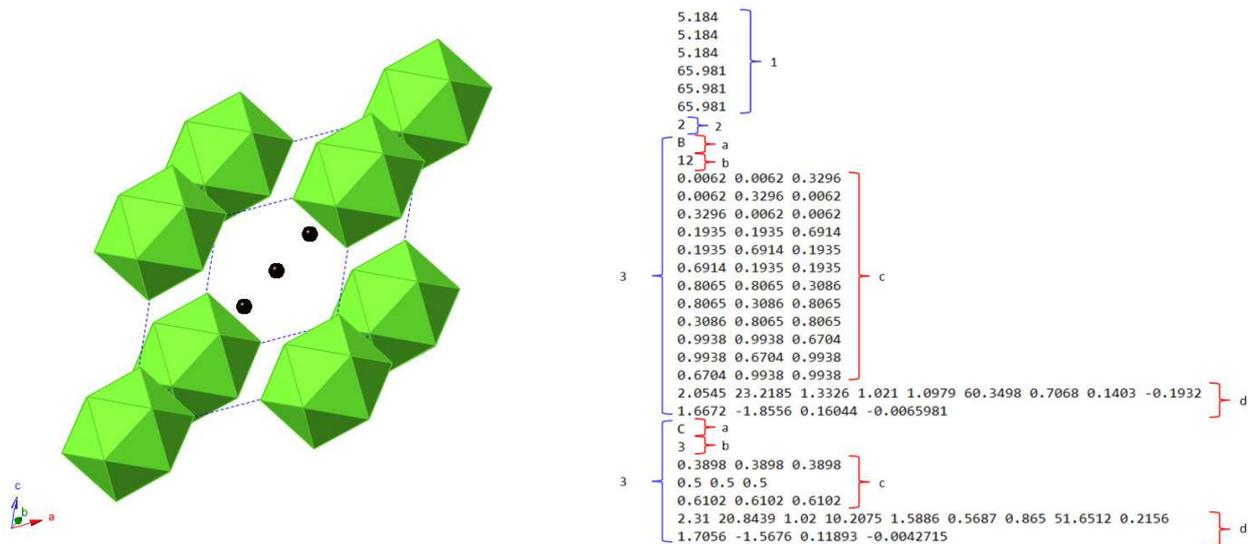


FIGURE A.14 – Représentation de la maille du B_4C (gauche) et fichier de configuration correspondant (droite)

Le fichier de configuration doit contenir plusieurs paramètres caractéristiques de ce cristal, un exemple de fichier concernant le B_4C est donné dans la figure A.14 (droite).

1. Paramètres de maille a , b , c , α , β , γ : le B_4C possède une maille trigonale avec $a = b = c = 5,184$ Å et $\alpha = \beta = \gamma = 65,98^\circ$
2. Nombre d'éléments différents dans la maille : la maille possède deux éléments à savoir le carbone (C) et le bore (B)
3. Caractéristiques de l'élément : pour chaque élément, quatre informations sont nécessaires pour configurer les calculs
 - a. Symbole de l'élément
 - b. Nombre d'atomes dans la maille : correspond au nombre complet d'atomes présents dans la maille, on distingue 3 atomes de carbone et 12 atomes de bore
 - c. Coordonnées relatives des atomes dans la maille
 - d. Coefficients polynomiaux de l'élément permettant de calculer le facteur de structure d'après le travail de Brown et al. [69]

A.9 Détermination du symétrique d'un vecteur par rapport à un autre dans l'espace

Pour les besoins du calcul de l'outil de simulation des figures de diffraction, il est nécessaire de pouvoir déterminer le symétrique d'un vecteur par rapport à un autre dans l'espace. Pour cela, on considère que les coordonnées des deux vecteurs sont connues.

Dans une première approche, on va se placer dans un plan pour établir la méthode de calcul comme illustré dans la figure A.15.

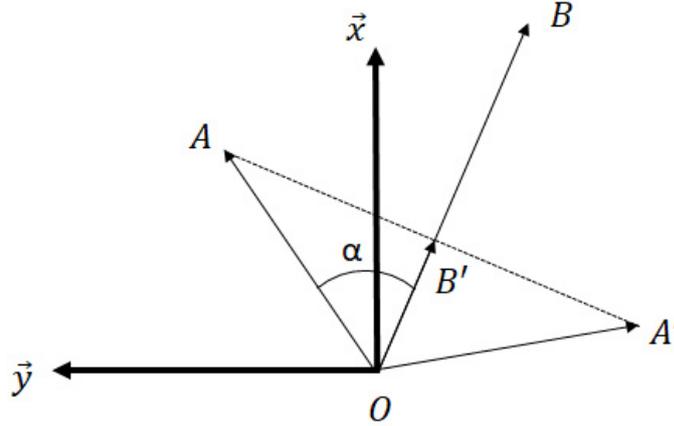


FIGURE A.15 – Détermination du symétrique d'un vecteur par rapport à un autre vecteur

On va chercher à déterminer le vecteur \vec{OA}' , symétrique du vecteur \vec{OA} par rapport au vecteur \vec{OB} . On pose \vec{OB}' , la projection du vecteur \vec{OA} sur \vec{OB} . On en déduit :

$$\begin{aligned}\vec{OA}' &= \vec{OA} + 2\vec{AB}' = \vec{OA} + 2(-\vec{OA} + \vec{OB}') \\ &= \vec{OA} - 2\vec{OA} + 2\vec{OB}' \\ &= -\vec{OA} + 2\vec{OB}'\end{aligned}\quad (26)$$

En posant $\vec{OB}' = \frac{\|\vec{OA}\| \cdot \cos \alpha}{\|\vec{OB}\|} \cdot \vec{OB} = \frac{\vec{OA} \cdot \vec{OB}}{\|\vec{OB}\|^2} \cdot \vec{OB}$, on en déduit :

$$\begin{aligned}\vec{OA}' &= -\vec{OA} + 2 \cdot \frac{\vec{OA} \cdot \vec{OB}}{\|\vec{OB}\|^2} \cdot \vec{OB} \\ \begin{pmatrix} x_{OA'} \\ y_{OA'} \end{pmatrix} &= - \begin{pmatrix} x_{OA} \\ y_{OA} \end{pmatrix} + 2 \cdot \frac{x_{OA} \cdot x_{OB} + y_{OA} \cdot y_{OB}}{x_{OB}^2 + y_{OB}^2} \cdot \begin{pmatrix} x_{OB} \\ y_{OB} \end{pmatrix}\end{aligned}\quad (27)$$

En suivant le même raisonnement vectoriel en trois dimensions, il est possible d'obtenir le vecteur symétrique d'un vecteur par rapport à un autre vecteur. Soit $\vec{V} = (v_x, v_y, v_z)$ et $\vec{W} = (w_x, w_y, w_z)$. Le symétrique de \vec{V} par rapport à \vec{W} aura pour coordonnées :

$$\vec{V}' = \begin{pmatrix} v'_x \\ v'_y \\ v'_z \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} v_x \\ v_y \\ v_z \end{pmatrix} + 2 \cdot \frac{v_x \cdot w_x + v_y \cdot w_y + v_z \cdot w_z}{w_x^2 + w_y^2 + w_z^2} \cdot \begin{pmatrix} w_x \\ w_y \\ w_z \end{pmatrix}\quad (28)$$

A.10 Présentation de l'interface graphique pour l'outil d'indexation de figures de monocristaux

Dans cette annexe est présentée l'interface graphique de l'outil de simulation des figures de diffraction issues d'un monocristal.

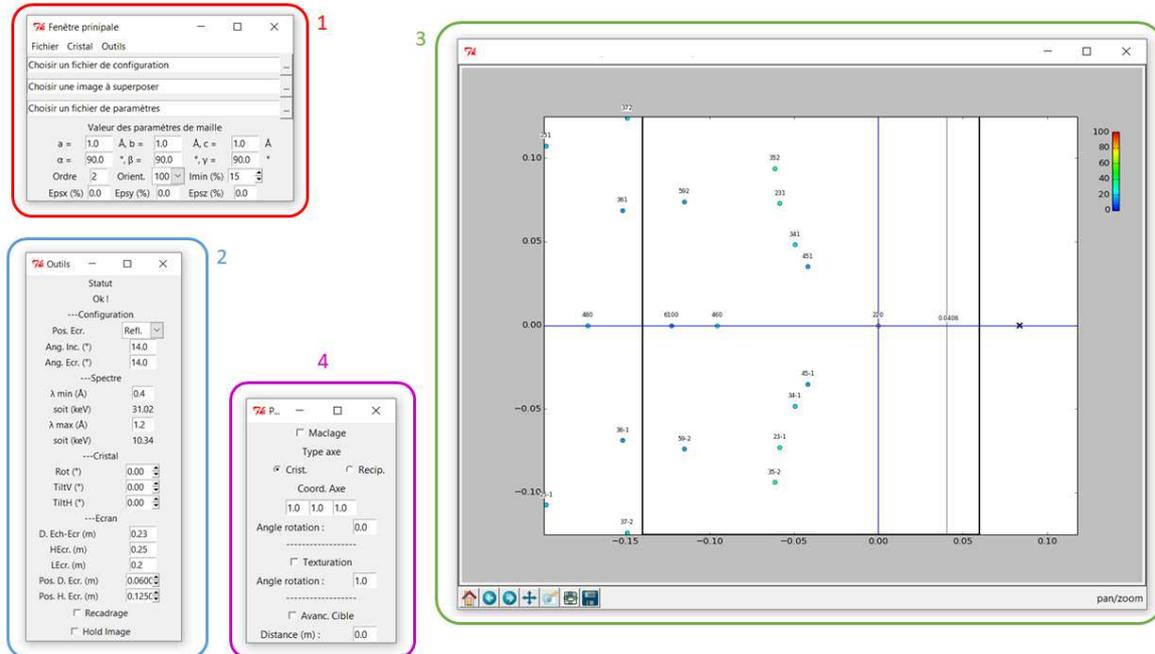


FIGURE A.16 – Différentes fenêtres composant l'interface graphique de l'outil d'indexation de matériaux monocristallins

1. Fenêtre principale lors de l'ouverture du programme
 - Chargement des fichiers concernant les données du cristal, l'image à superposer ou une configuration antérieure
 - Visualisation des informations vis à vis du cristal
 - Export d'informations que ce soit l'image actuellement affichée, la configuration simulée ou les coordonnées actuelle des points
 - Ouverture d'outils supplémentaires pour la modification de paramètres
 - Modification des caractéristiques du cristal : paramètres de maille, indice maximal des plans simulés, l'orientation prédéfinie, l'intensité minimale des points affichés et la déformation de la maille
2. Fenêtre de modification des paramètres expérimentaux
 - Modification de l'angle d'incidence du faisceau et de l'angle de l'écran dans le repère du laboratoire
 - Personnalisation des caractéristiques du spectre considéré comme blanc
 - Rotation du cristal dans les trois axes du laboratoire
 - Positionnement du détecteur dans le plan de détection
3. Fenêtre d'affichage des résultats de la simulation
 - Positionnement de l'intersection des faisceaux diffractés avec le détecteur avec les indices de plans correspondants, la couleur de chaque point correspond à son intensité relative sur l'échelle de la légende
 - Positionnement du détecteur dans le plan symbolisé par le cadre noir, l'image importée sera affichée dans ce cadre
 - Affichage de la "ligne d'horizon" de l'échantillon, ligne à partir de laquelle les faisceaux passent derrière ou devant l'échantillon selon la configuration expérimentale symbolisée par la ligne grise
 - Affichage de l'intersection du rayonnement incident dans le plan de détection, symbolisée par la croix.
4. Fenêtre d'ajout de perturbations supplémentaires
 - Simulation de l'effet de maillage du matériau par la rotation de celui-ci autour d'un axe cristallographique
 - Simulation de la texturation du matériau par l'indication de la rotation aléatoire maximale des normales
 - Simulation de l'effet de l'avancée du cristal

A.11 Présentation de l'interface graphique pour l'outil d'indexation de figures de polycristaux

Dans cette annexe est présentée l'interface graphique de l'outil de simulation des figures de diffraction issues d'un polycristal.

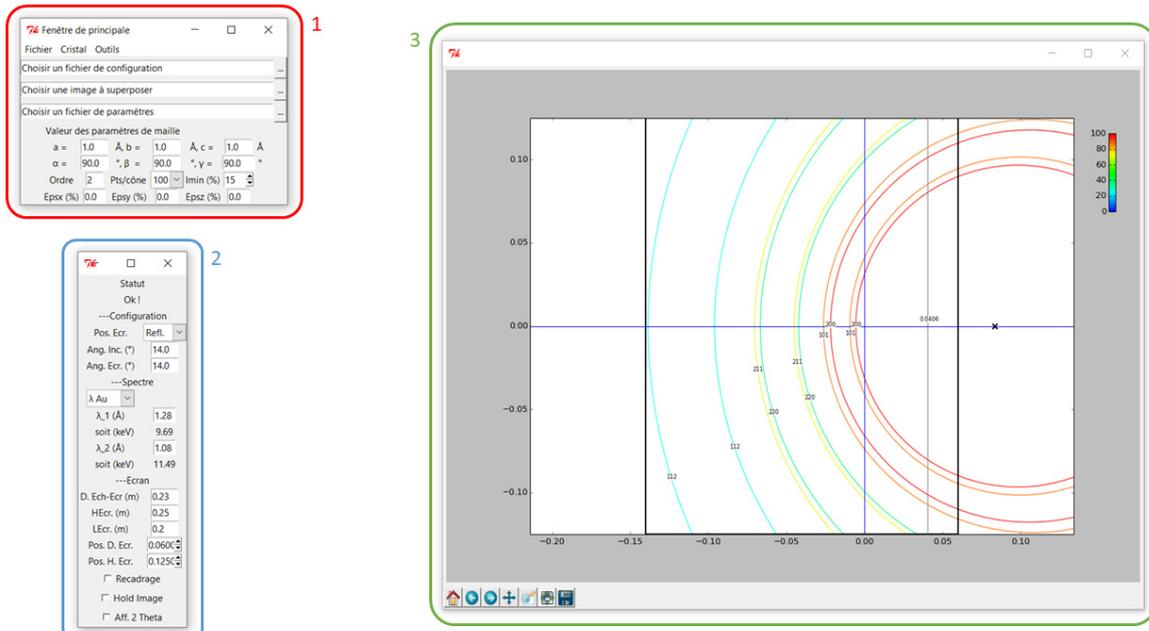


FIGURE A.17 – Différentes fenêtres composant l'interface graphique de l'outil d'indexation de matériaux polycristallins

1. Fenêtre principale lors de l'ouverture du programme

- Chargement des fichiers concernant les données du cristal, l'image à superposer ou une configuration antérieure
- Visualisation des informations vis à vis du cristal
- Export d'informations que ce soit l'image actuellement affichée, la configuration simulée ou les coordonnées actuelle des points
- Modification des caractéristiques du cristal : paramètres de maille, indice maximal des plans simulés, nombre de points de chaque figure de diffraction, l'intensité minimale des points affichés et la déformation de la maille

2. Fenêtre de modification des paramètres expérimentaux

- Modification de l'angle d'incidence du faisceau et de l'angle de l'écran dans le repère du laboratoire
- Personnalisation des caractéristiques du spectre, deux longueurs d'ondes différentes peuvent être réglées dont les raies de certains matériaux pré-enregistrées
- Positionnement du détecteur dans le plan de détection

3. Fenêtre d'affichage des résultats de la simulation

- Positionnement de l'intersection des faisceaux diffractés avec le détecteur avec les indices de plans correspondants, la couleur de chaque tracé correspond à son intensité relative sur l'échelle de la légende
- Positionnement du détecteur dans le plan symbolisé par le cadre noir, l'image importée sera affichée dans ce cadre
- Affichage de la "ligne d'horizon" de l'échantillon, ligne à partir de laquelle les faisceaux passent derrière ou devant l'échantillon selon la configuration expérimentale symbolisée par la ligne grise
- Affichage de l'intersection du rayonnement incident dans le plan de détection, symbolisée par la croix

A.12 Facteurs expérimentaux pouvant influencer les figures de diffraction

Plusieurs paramètres expérimentaux ont été identifiés pouvant avoir une influence sur les motifs de la figure de diffraction que ce soit pour un matériau monocristallin ou polycristallin. Dans cette partie, des simulations ont été effectuées avec l'outil de simulation afin d'estimer si cette influence est significative dans les conditions expérimentales sous choc.

A.12.a Collimation du faisceau

Le faisceau doit être mis en forme pour sonder une zone spécifique de l'échantillon à travers l'utilisation d'une fente réglable opaque. La source étant isotrope et de taille connue, le rayonnement traversant la fente sera divergent. La zone éclairée sera alors d'autant plus grande que l'angle d'incidence sera faible et l'ouverture de la fente grande. Une faible ouverture de fente permettra de sonder une zone de petite dimension avec une faible divergence, permettant d'obtenir une figure de diffraction avec des motifs résolus. En contrepartie, l'intensité diffractée sera très faible. Une ouverture plus grande permettra de sonder un plus grand volume de matière et donc d'obtenir une plus grande intensité mesurée. Cependant les motifs de la figure de diffraction perdront en résolution. Expérimentalement, l'ouverture de la fente a été déterminée pour permettre de sonder la plus petite zone possible de l'échantillon en conservant la possibilité d'effectuer l'alignement aisé des différents éléments. La divergence du faisceau ainsi que les dimensions de la zone sondée peuvent être calculées géométriquement (Annexe A.5). En considérant un diamètre de source de $900 \mu\text{m}$, et une largeur de fente de 1 mm , on calcule une divergence α de $0,39^\circ$ pour le faisceau. L'angle d'incidence sur l'échantillon sera donc compris entre $i + \alpha$ et $i - \alpha$ sur les bords de la zone éclairée.

Aucune méthode de simulation de cet effet n'a pour l'heure été trouvée pour être implémentée dans l'outil de simulation. On peut cependant calculer géométriquement la largeur d'un point dans le plan d'incidence du rayonnement pour le plan de surface pour une configuration tel que $\omega = i$ comme illustré dans la figure A.18.

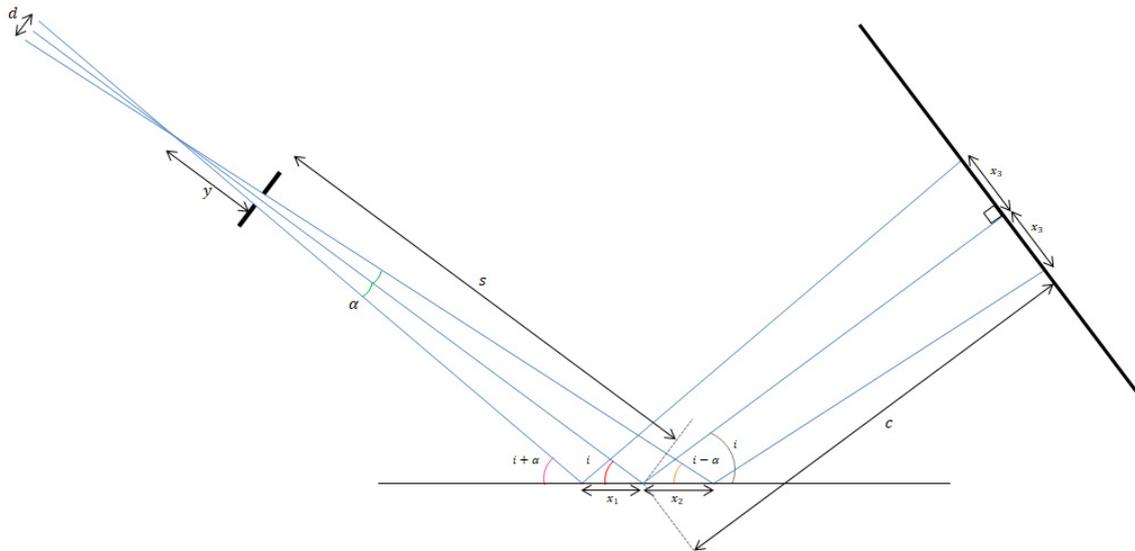


FIGURE A.18 – Calcul géométrique de la largeur d'illumination sur l'écran pour le rayonnement diffracté par le plan de surface

On obtient alors :

$$2.x_3 = 2.(s + y + c). \tan \alpha \quad (29)$$

Dans cette configuration, la largeur de la tache ne semble pas influencée par l'angle d'incidence. En considérant un angle α de $0,39^\circ$ et une distance $s + y$ et c de 23 cm, la largeur totale est estimée à environ 5,3 mm. En fonction du plan illuminé, le rayonnement diffracté n'interceptera pas l'écran avec le même angle d'incidence. En effet, plus l'angle sera rasant, plus l'étalement du rayonnement sera important. L'énergie déposée sur la plaque par unité de surface sera donc plus faible tout comme l'intensité de la tache détectée. On peut penser que plus le rayon diffracté interceptera l'écran à une grande distance de l'origine du repère, plus celui-ci sera étale sur l'écran et moins les taches seront visibles. Ce phénomène ne va pas dépendre du régime de sollicitation de l'échantillon. Il sera à la fois présent lors des images statiques et dynamiques. Il va imposer une taille limite de la tache pour un cristal parfait. Une élongation des points sous choc ne pourra donc pas être attribuée à la collimation du faisceau.

A.12.b Pénétration du faisceau

La pénétration du faisceau dans l'échantillon va induire une émission du rayonnement diffracté dans tout le volume illuminé. Plus ce volume sera important, plus la zone éclairée sur l'écran sera importante. Dans le cadre de monocristaux parfaits, le rayonnement diffracté peut lui aussi être à nouveau diffracté par les plans traversés jusqu'à la surface libre. Concernant le cas d'un monocristal d'étain, on estime la profondeur de pénétration du faisceau à quelques micromètres sous la surface pour les longueurs d'ondes considérées. Cet effet sera donc négligé dans notre étude.

A.12.c Mouvement de l'échantillon

Le mouvement de l'échantillon pendant l'illumination peut engendrer un allongement des points et créer un effet de flou. En effet, la zone sondée ne sera pas à la même position relative par rapport à l'écran qui demeure fixe. Un essai de simulation de cet effet a été expérimenté sur l'outil de simulation. Cet outil ne permet de simuler que la diffraction issue d'un point fixe. Cependant il est possible de déplacer l'écran dans son plan pour simuler l'avancée de l'échantillon comme expliqué dans le chapitre III. Le décalage entre les figures indiquera le point de départ et d'arrivée des différents composants la constituant.

Nous allons nous intéresser au cas extrême rencontré dans l'étude c'est à dire avec la vitesse particulière la plus haute avec un temps d'illumination de 100 ns correspondant au rayonnement du générateur X-Pinch. Les plus hautes vitesses particulières atteintes avoisinent 1000 m/s et concernent les fenêtres enclumes. Les résultats issus des simulations à la fois pour une figure issue d'un monocristal et d'un polycristal sont présentées dans la figure A.19. En considérant un vitesse particulière de 1000 m/s sous une illumination de durée 100 ns, la distance parcourue est de 100 μm . Lors des essais au DCS, le temps d'illumination est de l'ordre de 100 ps. On remarque une différence négligeable dans les deux figures de diffraction. Pendant les deux campagnes expérimentales au CEA Gramat et au DCS, l'effet du mouvement de l'échantillon sera alors négligé.

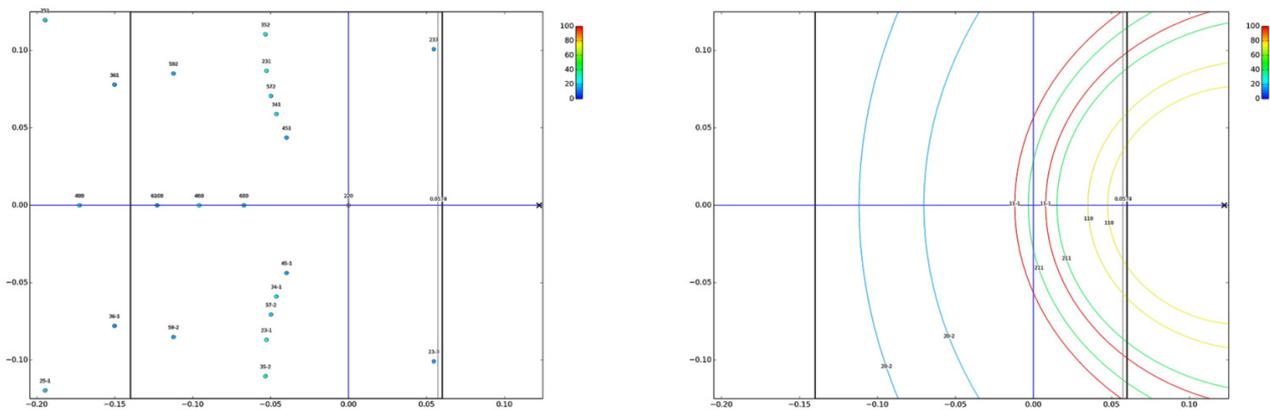


FIGURE A.19 – Simulation de l’avancée de l’échantillon dans le cas d’un monocristal (110) (gauche) et d’un polycristal (droite). Dans les deux cas, la figure statique et en mouvement sont superposées.

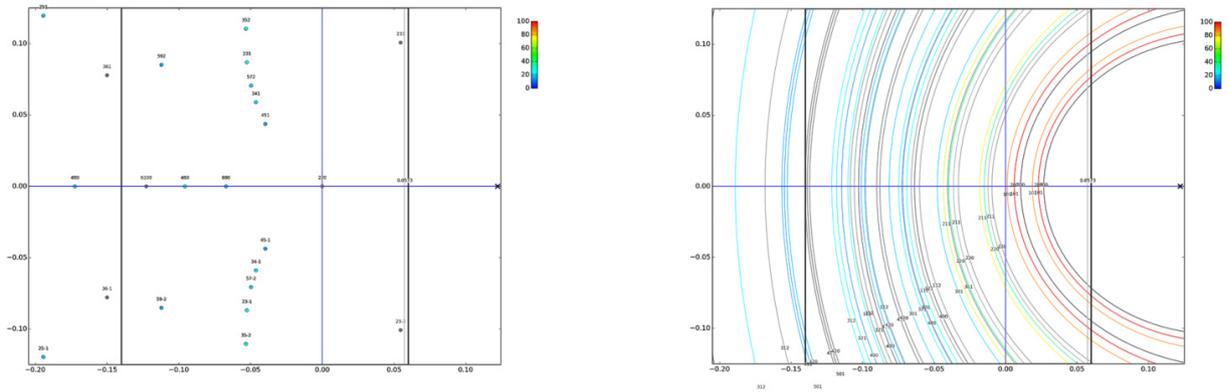
A.12.d Sollicitation du cristal

La sollicitation du cristal va pouvoir influencer sur la figure de diffraction lors de l’échantillon. En comparant ces différences il est alors possible d’essayer de déterminer comment le cristal évolue au cours du temps. Deux paramètres majeurs peuvent être identifiés pouvant avoir un impact sensible sur la figure de diffraction.

A.12.d.a Modification du paramètre de maille

La compression ou la dilatation du cristal va influencer sur la distance inter atomique et donc la distance interréticulaire. En considérant la loi de Bragg, la modification de cette distance va impliquer une variation de l’angle d’incidence et/ou de la longueur permettant de remplir les conditions de diffraction. Si on considère un monocristal illuminé par un spectre polychromatique ou un polycristal illuminé par un rayonnement monochromatique, l’effet observé ne sera pas le même. Une simulation a été menée dans la figure A.20 pour simuler la figure de diffraction de l’étain ambiant et à une pression proche de la transition de phase à partir des données de paramètre de maille issue de la bibliographie (données issues de Salamat et al. [19]).

Pratiquement aucune différence n’est observée concernant la figure monocristalline. En effet, la déformation du cristal étant quasiment isotrope, l’angle d’incidence de chaque plan varie de manière négligeable du fait de la géométrie du cristal. La principale différence est alors observée pour la longueur d’onde du rayonnement diffracté. Le spectre étant considéré comme blanc dans la simulation, seuls les points en bordure du spectre pourront alors disparaître du fait d’une longueur d’onde en dehors de la gamme spectrale. A l’inverse, la figure polycristalline révèle un décalage sensible de la figure de diffraction. Dans cette configuration, la longueur d’onde étant unique, seuls les cristaux correctement orientés pourront diffracter avec un angle d’incidence différent des cristaux ambiants. La variation du paramètre de maille peut avoir une influence notable sur la figure de diffraction. Si celle-ci a lieu entre deux images, un décalage sera observé. A l’inverse si celle-ci a lieu pendant l’illumination, une trace sera observée sur la figure.



Paramètres de maille de l'étain ambiant : $a = 5,83 \text{ \AA}$ et $c = 3,18 \text{ \AA}$

Paramètres de maille de l'étain à 9,5 GPa [19] : $a = 5,59 \text{ \AA} (-4,12\%)$ et $c = 3,04 \text{ \AA} (-4,40\%)$

FIGURE A.20 – Simulation comparative de la figure de diffraction de l'étain monocristallin (110) (gauche) et polycristallin (droite) entre l'état ambiant (figure grise) et un état proche de la transition de phase (figure colorée)

A.12.d.b Texturation

On va considérer ici que la texturation implique la subdivision d'un monocristal original en domaines dont l'orientation est voisine de quelques degrés. Si le monocristal de départ est alors illuminé par un spectre polychromatique, on va observer une élongation des points de la figure de diffraction. Celle-ci sera d'autant plus importante que le rayonnement diffracté arrive de manière rasante sur le détecteur (Figure A.21 (gauche)). Si on considère maintenant un spectre plus resserré, les extrémités de cette élongation ne seront plus visibles, on peut s'attendre alors à obtenir des figures en forme d'arc tendant vers des arcs de cercle plus le spectre se resserre (Figure A.21 (droite)) se rapprochant de la figure d'un polycristal.

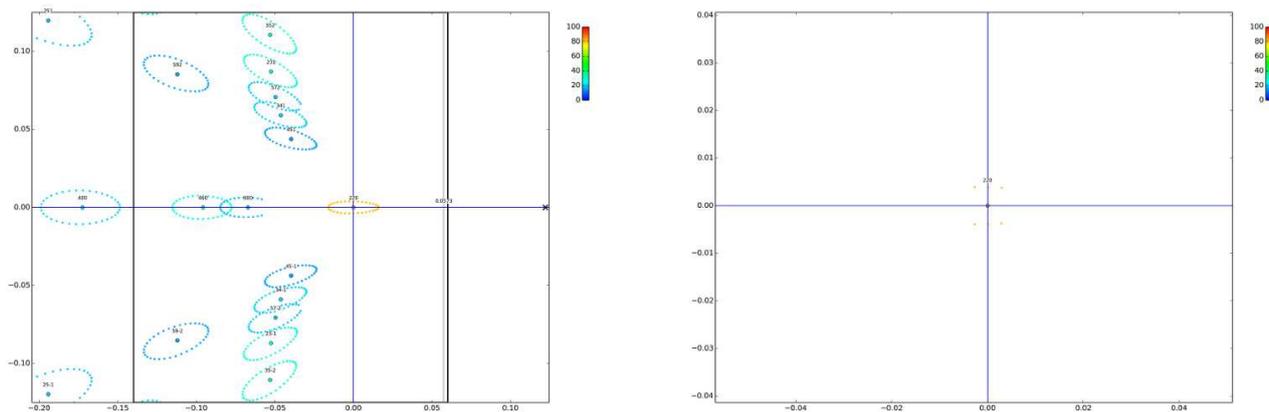


FIGURE A.21 – Simulation d'une texturation d'un angle de 2° d'un monocristal d'étain (110) avec un spectre large (gauche) et un spectre resserré autour des longueurs d'onde de diffraction du plan (220)

A.13 Synchronisation des essais menés au CEA Gramat

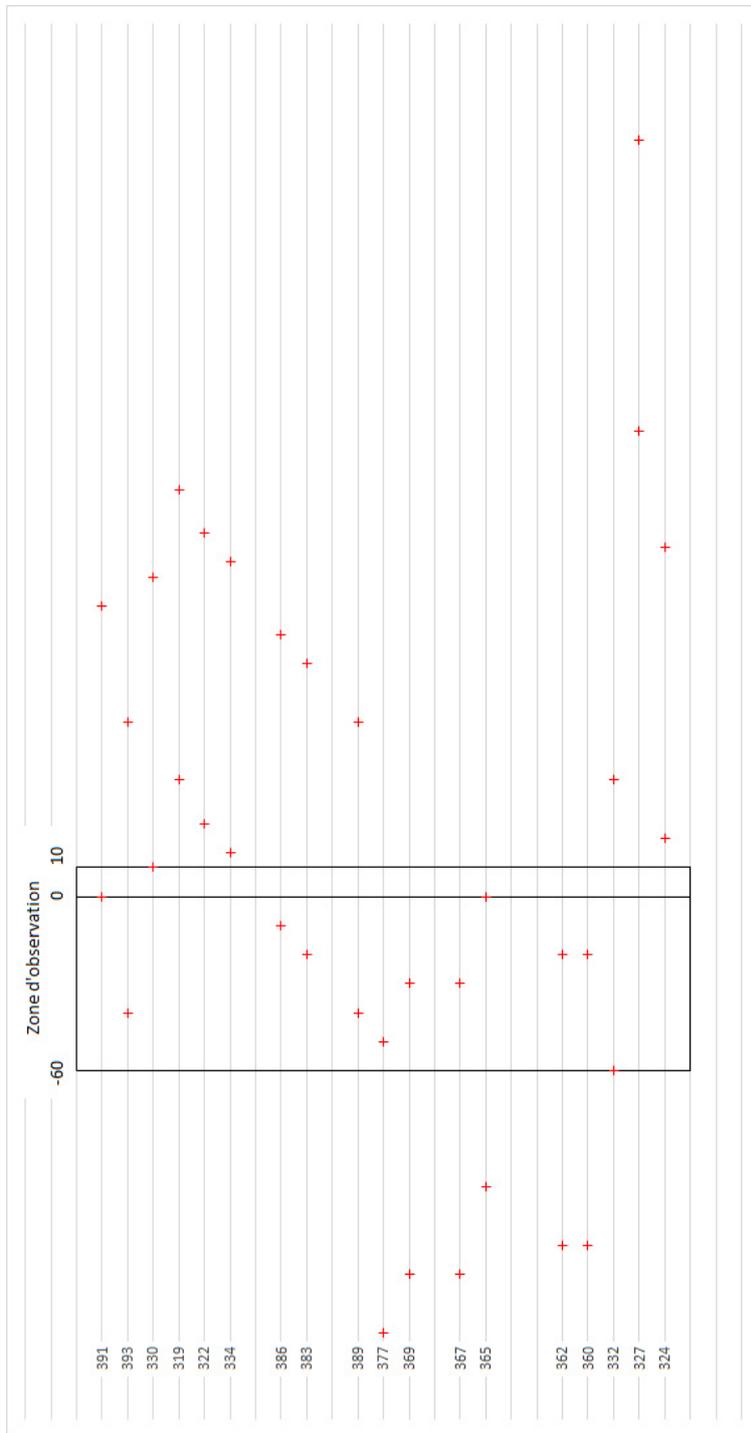


FIGURE A.22 – Schéma récapitulatif de la synchronisation des différents essais menés au CEA Gramat. Le rayonnement est détecté entre les croix rouges. Les intervalles noirs correspondent à la fenêtre temporelle visée par rapport au plateau de vitesse de surface libre de la fenêtre enclume.

A.14 Explication de l'anomalie du profil de vitesse observée pour les essais DCS

Une anomalie a été observée dans les profils de vélocimétrie à l'interface (figure IV.31 du chapitre IV) pour l'ensemble des essais du DCS utilisant des fenêtres en LiF d'épaisseur 0,5 mm. Un essai de reproductibilité mené au CEA Gramat sur une configuration similaire a permis de reproduire ce phénomène. Les simulations numériques menées n'ont pas permis de mettre en évidence ce phénomène, il est alors probable de l'imputer à un facteur expérimental. Un rappel des différents profils obtenus est présenté en figure A.23.

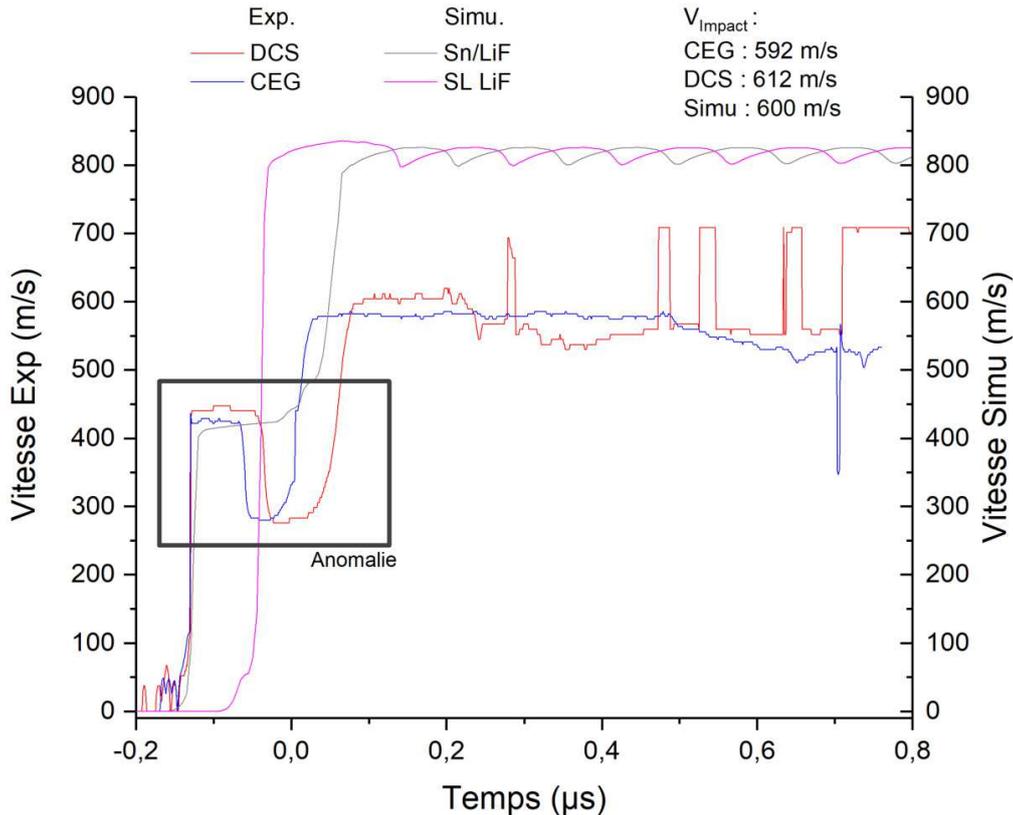
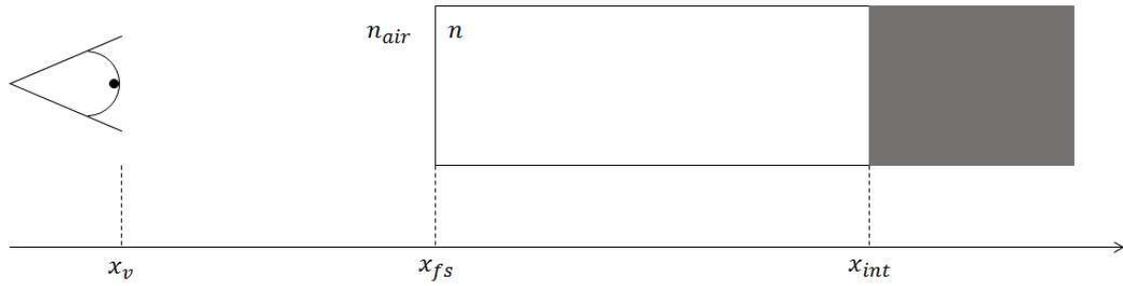


FIGURE A.23 – Profils vélocimétriques numériques et expérimentaux obtenus à l'interface Sn/LiF pour un impact d'un projectile en cuivre à 600 m/s sur une cible composée d'étain de 1 mm d'épaisseur et d'une fenêtre enclume en LiF de 0,5 mm d'épaisseur. Les profils vélocimétriques expérimentaux ont été obtenus à la fois au DCS et au CEA Gramat. Les profils vélocimétriques simulés permettent de calculer le profil vélocimétrique à la fois à l'interface Sn/LiF et en surface libre de la fenêtre en LiF.

Expérimentalement, cette anomalie semble se produire lors de la mise en vitesse de la surface libre du LiF. Une explication de ce phénomène a été apportée par Fratanduono [77] dans sa thèse portant sur l'étude de l'évolution de l'indice du LiF sous sollicitation dynamique.

La mesure vélocimétrique à l'interface entre deux matériaux implique que l'un des deux est transparent à la longueur d'onde du rayonnement utilisé. Ce matériau possède lui-même un indice optique $n \geq 1$ défini comme le rapport entre la célérité de la lumière dans le vide (c_0) et dans le milieu (c) tel que $n = c_0/c$. Dans le cadre d'une mesure vélocimétrique à l'interface entre deux matériaux, le trajet parcouru par la lumière peut être représenté selon l'auteur par le schéma dans la figure A.24.



x_v : position de l'observateur, x_{fs} : position de la surface libre, x_{int} : position de l'interface

FIGURE A.24 – Schéma de principe d'une mesure de vitesse par interférométrie à l'interface entre deux matériaux

Dans ce cas, il est possible d'introduire la notion de chemin optique comme étant la distance qu'aurait parcouru la lumière dans le vide dans le même intervalle de temps que celui de la traversée du matériau :

$$Z = n \cdot \Delta x \quad (30)$$

Cette formule peut être mise sous forme intégrale dans le cas d'un indice variant avec la position :

$$Z = \int_{x_0}^{x_1} n(x) dx \quad (31)$$

Le chemin optique total d'après le schéma de la figure A.24 est donné par l'équation suivante :

$$Z_{tot} = \int_{x_v}^{x_{fs}} n_{air} \cdot dx + \int_{x_{fs}}^{x_{int}} n(x) \cdot dx \quad (32)$$

Si l'on considère maintenant que l'interface se déplace à la vitesse $U(t)$. La présence du matériau transparent dans lequel se propage la lumière ne va permettre qu'une mesure une vitesse de propagation apparente à cause de son indice optique. Cette vitesse de propagation apparente est donnée par la dérivée par rapport au temps du chemin optique suivi par le rayonnement :

$$U_{app} = \frac{d}{dt} \left[\int_{x_v}^{x_{fs}} n_{air} \cdot dx + \int_{x_{fs}}^{x_{int}} n(x, t) \cdot dx \right] \quad (33)$$

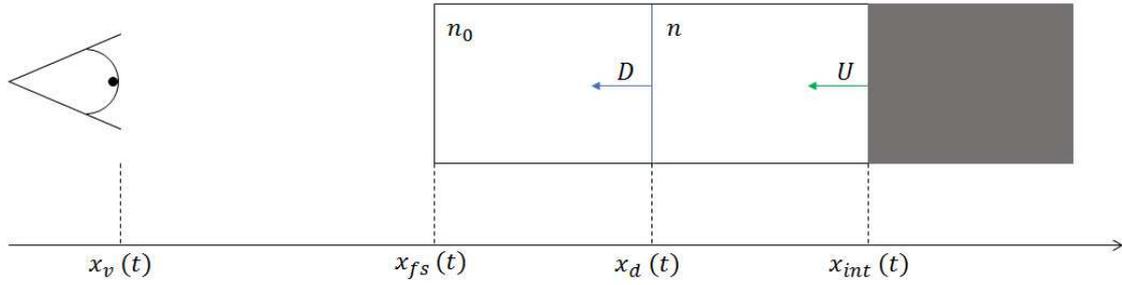
Avec $n_{air} = 1$ et $x_v = \text{constante}$:

$$\begin{aligned} U_{app} &= \frac{d}{dt} \left[\int_{x_{fs}}^{x_{int}} n(x, t) \cdot dx \right] + \frac{d}{dt} (x_{fs} - x_v) \\ &= \frac{d}{dt} \left[\int_{x_{fs}}^{x_{int}} n(x, t) \cdot dx \right] + U_{fs} \end{aligned} \quad (34)$$

Si maintenant l'on considère qu'une onde de choc se propage dans le milieu à une vitesse D (figure A.25), elle va porter le milieu traversé de l'indice n_0 à n . Cette onde n'ayant pas atteint la surface libre ($t < t_{deb}$), on considère alors que $U_{fs} = 0$. En considérant des indices optiques constants de part et d'autre du front d'onde, l'équation 34 devient :

$$\begin{aligned} U_{app}(t < t_{deb}) &= \frac{d}{dt} \left[\int_{x_{fs}}^{x_d} n_0 \cdot dx + \int_{x_d}^{x_{int}} n \cdot dx \right] \\ &= \frac{d}{dt} [n_0 \cdot (x_d - x_{fs}) + n(x_{int} - x_d)] \\ &= n_0 \cdot D + n \cdot (U - D) \end{aligned} \quad (35)$$

La vitesse réelle peut alors être retrouvée par rapport à la vitesse apparente : $U = \frac{U_{app} + (n - n_0) \cdot D}{n}$. Dans le cadre d'un faible changement d'indice ($n \approx n_0$), la vitesse réelle peut être approximée à la vitesse apparente via un facteur $\frac{1}{n}$.



x_v : position de l'observateur, x_{fs} : position de la surface libre, x_d : position de l'onde de choc, x_{int} : position de l'interface

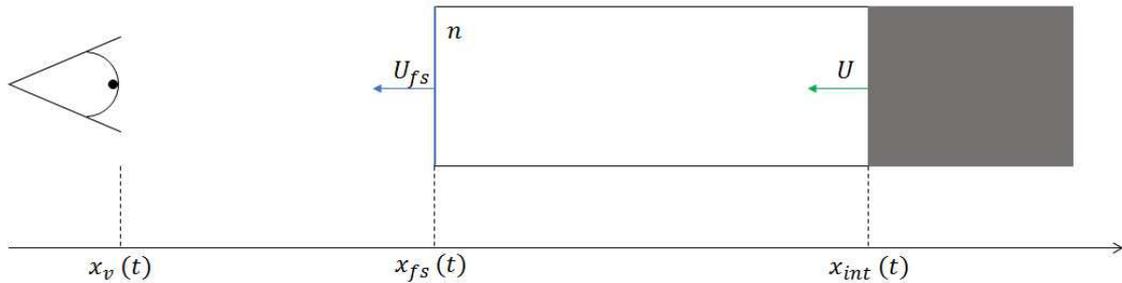
FIGURE A.25 – Schéma de principe lors de la propagation d'une onde de choc dans la fenêtre

Lors du débouché ($t = t_{deb}$), l'onde de choc atteint la surface libre qui va se mettre en mouvement ($U_{fs} \neq 0$), portant l'ensemble du matériau à l'indice n (figure A.26). L'équation 34 devient :

$$U_{app}(t = t_{deb}) = \frac{d}{dt} \left[\int_{x_{fs}}^{x_{int}} n \cdot dx \right] + U_{fs} \quad (36)$$

En développant l'intégrale et en faisant intervenir la dérivée de l'indice optique par rapport au temps, on obtient :

$$U_{app}(t = t_{deb}) = n(U - U_{fs}) + U_{fs} + D(n - n_0) \quad (37)$$



x_v : position de l'observateur, x_{fs} : position de la surface libre, x_{int} : position de l'interface

FIGURE A.26 – Schéma de principe lors du débouché de l'onde de choc en surface libre de la fenêtre

En calculant la différence Δ entre les équations 37 et 35 pour un temps proche du débouché, on obtient :

$$\begin{aligned}\Delta &= U_{app}(t = t_{deb}) - U_{app}(t = t_{deb} - \epsilon) \\ &= U_{fs} \cdot (1 - n) + 2 \cdot D(n - n_0)\end{aligned}\quad (38)$$

On observe alors un saut de la vitesse apparente lors du débouché du choc en surface libre ($\Delta \neq 0$). Une expérience mettant en évidence ce phénomène a été mise en oeuvre par l'auteur. Dans celle-ci, deux fenêtres enclumées en LiF de différentes épaisseurs sont utilisées. Une des deux épaisseurs est dimensionnée pour que l'onde de choc n'atteigne pas la surface libre durant le temps d'acquisition. Le résultat obtenu est illustré en figure A.27.

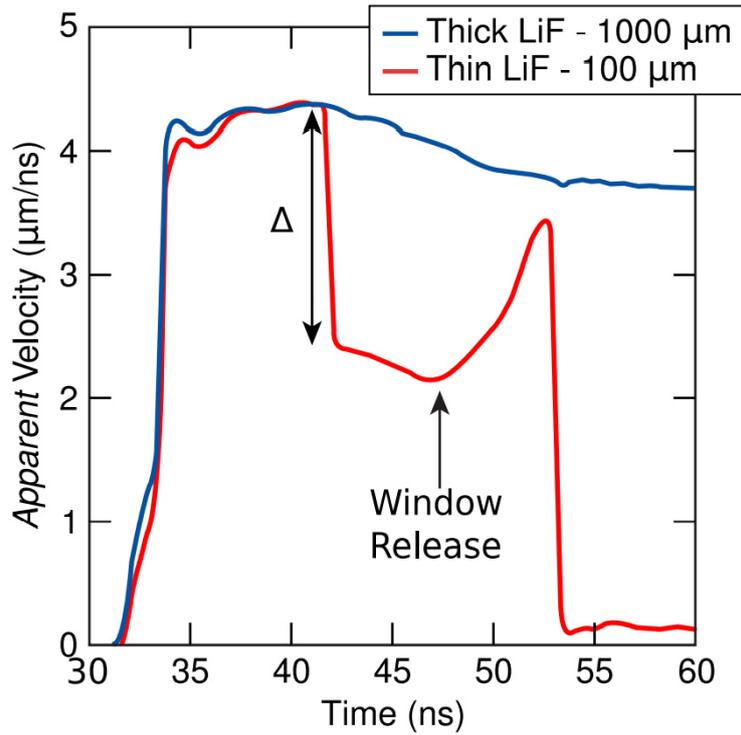


FIGURE A.27 – Profils velocimetriques obtenus par Fratanduono à l'interface entre un matériau et deux fenêtres enclumées en LiF d'épaisseur différente lors d'une même expérience de choc. L'accélération finale observée dans le profil rouge correspond au retour des ondes de détente issues de la surface libre à l'interface.

La formule 38 peut être appliquée aux résultats expérimentaux obtenus lors des essais au DCS. Un traitement des signaux de vitesse a été effectué sans tenir compte de la correction due au LiF afin de déterminer le saut de vitesse apparente expérimental. La vitesse de surface libre a elle été déterminée par approximation de la vitesse en surface libre tel que $U_{fs} = 2.U_{interface}$ sur le premier plateau de vitesse issu du signal traité. En utilisant les polaires de choc, il est possible d'approximer la valeur de la vitesse de l'onde de choc D dans le LiF. Les dernières valeurs manquantes concernant les indices optiques du LiF sous choc ont été déterminées à partir des données fournies par Fratanduono reliant l'indice optique du LiF à sa densité et par les équations de Rankine-Hugoniot ($\rho(D - u) = \rho_0.D$). Les valeurs théoriques et expérimentales obtenues pour Δ sur trois essais différents menées au DCS sont présentées dans la table A.27.

Matériau	V_{impact} (m/s)	$\Delta_{exp.}$	$\Delta_{th.}$
Cu	600	208	209
Ta	1000	454	420
Al	600	132	130

TABLE A.27 – Tableau comparatif du saut de vitesse apparent expérimental et théorique (Δ) pour trois essais menés au DCS

Les valeurs du saut de vitesse apparent correspondent aux valeurs théoriques, de plus, ce saut semble également se produire lors de la mise en vitesse en surface libre du LiF. Il est donc possible de conclure que l'anomalie observée dans le profil de vitesse provienne du système de mesure. Le premier plateau de vitesse correspondant à un état homogène se prolonge donc jusqu'à l'accélération observée à la fin de l'anomalie correspondant au retour des ondes de détente issues de la surface libre.

Diffraction X in-situ sous sollicitation dynamique : caractérisation cristallographique des transformations polymorphiques de l'étain

Résumé :

L'objectif de cette thèse était de collecter des données expérimentales dans le but d'améliorer les modèles numériques décrivant le comportement des matériaux subissant un changement de phase sous sollicitation dynamique. Cette étude porte plus particulièrement sur la transformation solide-solide de l'étain entre les phases β et γ . Une étude bibliographique a permis de dresser l'évolution de divers paramètres physiques du matériau, et notamment les transitions de phase, d'abord sous chargement quasi-statique puis sous sollicitation dynamique. Expérimentalement, on observe des écarts significatifs entre les conditions de pression et de température où se produit la transition de phase β - γ en dynamique et la frontière correspondante sur le diagramme de phase. Les moyens de mesure actuellement utilisés sous choc ne sont pas suffisants pour expliquer l'origine de cette différence. La diffraction X est une technique complémentaire qui permet d'analyser l'état cristallin des matériaux ainsi que leur microstructure. Les progrès dans la génération des rayons X ont permis de développer des sources capables de générer un rayonnement suffisamment bref et intense pour pratiquer la diffraction X sous choc. Nos expériences ont été menées sur deux installations : le CEA Gramat avec un générateur X-Pinch et le synchrotron de l'Advanced Photon Source à Chicago. Les chocs ont été générés par impact de plaques sur des lanceurs à gaz. Un système de synchronisation spécifique a permis le couplage de la source X avec le lanceur afin de sonder l'état de choc atteint dans le matériau. En complément de cette technique, une mesure de vitesse par interférométrie a été utilisée pour estimer la pression de choc atteinte et s'assurer de la synchronisation. Afin de permettre à la fois de pré-dimensionner les essais et d'identifier les structures cristallines, un outil de simulation des figures de diffraction a été conçu et développé. Des essais à des pressions de choc supérieures à la transition de phase ont été menés afin d'identifier la nouvelle phase γ . Des essais à des pressions de choc inférieures ont aussi été effectués afin d'étudier l'évolution de la phase β . Des résultats similaires ont été obtenus entre le CEA Gramat et l'Advanced Photon Source. Les figures de diffraction de monocristaux d'orientation (100), (110), (001) et (111) choqués au-dessus du changement de phase montrent la disparition de la phase β , mais elles ne permettent pas de confirmer la détection de la nouvelle phase. De nouvelles données ont été obtenues concernant la compression de la phase β (110) pour des pressions de choc croissantes avant sa disparition. L'analyse des figures de diffraction obtenues en détente a également permis de mettre en avant des différences notables entre les essais à haute et basse pression. Sur la base de toutes ces mesures, des hypothèses de comportement ont pu être proposées. Enfin, de nombreuses perspectives d'études ont été identifiées sur les différentes installations afin d'approfondir ce travail et de confirmer les diverses hypothèses émises.

Mots clés : Choc (mécanique), Cristallisation, Diagrammes de phases, Étain, Interférométrie, Macles (cristallographie), Matériaux--Essais dynamiques, Monocristaux, Polycristaux, Polymorphisme (cristallographie), Rayonnement synchrotron, Rayons X--Diffraction, Recristallisation (métallurgie), Simulation par ordinateur, Texture (cristallographie), X-Pinch, Impact de plaques

In-situ X-ray diffraction under shock loading: crystallographic characterization of tin polymorphic transitions

Abstract:

The purpose of this thesis is to collect experimental information about materials undergoing phase transitions under dynamic loading in order to improve current models and numerical simulations. More specifically, we focus on the polymorphic transformation of tin between β and γ phases. A review of the literature enabled to draw the evolution of several physical parameters, including phase transitions, under both quasi-static and dynamic loading. Significant discrepancies are observed on the pressure and temperature conditions for the β - γ transition between dynamic loading and the static phase diagram. Current measurement techniques usually implemented for this type of experiment are not sufficient to explain the origin of this phenomenon. X-ray diffraction is a complementary technique which enables to investigate the crystallographic configuration as well as the microstructure of a material. The continuous improvement of X-ray generation techniques has provided X-ray sources capable of generating intense short pulses to perform X-ray diffraction under shock loading. X-ray diffraction experiments were carried out in two facilities: CEA Gramat, using an X-Pinch generator, and the Advanced Photon Source in Chicago, using a synchrotron beam. Shocks were generated by plate impact experiments with a gas gun launcher. In both cases, a specific synchronization system was designed to probe the shocked state reached by the material under investigation. This technique was coupled with time-resolved velocity measurements to estimate the shock pressure state reached during the experiment and verify the synchronization. A specific tool was designed and developed to simulate diffraction patterns. It facilitates the experiment design and helps to better identify the crystallographic configuration behind the diffraction pattern. Shocks were performed both above the transition pressure, to identify the γ phase, and below the transition to study the evolution of the β structure. Similar results were obtained at both CEA Gramat and the Advanced Photon Source. Diffraction patterns recorded in from (100), (110), (001) and (111) single crystals above the expected phase transition showed that the diffraction pattern of the β phase was observed to disappear, but no clear evidence of the formation of the γ phase could be detected. Diffraction patterns for shocks of increasing pressure enabled to observe new phenomena concerning the (110) β phase before its disappearance. The comparison of the release diffraction patterns enlightened significant differences between high and low pressure experiments. On this new experimental basis, some hypothesis could be proposed regarding the material dynamic behavior. Finally, several prospects were identified, including new tests in the different facilities to deeper investigate this behavior and hopefully confirm the different hypotheses.

Keywords: Shock (Mechanics), Crystallization, Phase diagrams, Tin, Interferometry, Twinning (Crystallography), Materials--Dynamic testing, Single Crystals, Polycrystals, Polymorphism (Crystallography), Synchrotron radiation, X-rays--Diffraction, Recrystallization (Metallurgy), Computer simulation, Texture (Crystallography), X-Pinch, Plate impact