

**Titre:** La sonde atomique assistée par laser à large champ de vision :  
Title: traitement de données tomographiques et analyses  
cristallographiques

**Auteur:** Guillaume Nadal  
Author:

**Date:** 2025

**Type:** Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

**Référence:** Nadal, G. (2025). La sonde atomique assistée par laser à large champ de vision :  
Citation: traitement de données tomographiques et analyses cristallographiques [Mémoire  
de maîtrise, Polytechnique Montréal]. PolyPublie.  
<https://publications.polymtl.ca/67872/>

 **Document en libre accès dans PolyPublie**  
Open Access document in PolyPublie

**URL de PolyPublie:** <https://publications.polymtl.ca/67872/>  
PolyPublie URL:

**Directeurs de  
recherche:** Oussama Moutanabbir  
Advisors:

**Programme:** Génie physique  
Program:

**POLYTECHNIQUE MONTRÉAL**

affiliée à l'Université de Montréal

**La sonde atomique assistée par laser à large champ de vision: Traitement de données tomographiques et analyses cristallographiques**

**GUILLAUME NADAL**

Département de génie physique

Mémoire présenté en vue de l'obtention du diplôme de *Maîtrise ès sciences appliquées*  
Génie physique

Août 2025

**POLYTECHNIQUE MONTRÉAL**

affiliée à l'Université de Montréal

Ce mémoire intitulé :

**La sonde atomique assistée par laser à large champ de vision: Traitement de données tomographiques et analyses cristallographiques**

présenté par **Guillaume NADAL**

en vue de l'obtention du diplôme de *Maîtrise ès sciences appliquées*

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

**Sean MOLESKY**, président

**Oussama MOUTANABBIR**, membre et directeur de recherche

**Raynald GAUVIN**, membre externe

## REMERCIEMENTS

Je tiens tout d'abord à exprimer ma profonde gratitude au Professeur Oussama Moutanabbir, qui m'a offert ma première opportunité de recherche lors de mon stage de baccalauréat, puis m'a accueilli en maîtrise. Merci pour votre confiance et pour la liberté que vous m'avez laissée dans mon travail.

Je remercie tout particulièrement Sebastian Koelling, avec qui j'ai eu le privilège de collaborer étroitement tout au long de cette aventure. Son expertise technique, sa franchise et sa rigueur ont été des sources constantes d'apprentissage et d'inspiration. Sans lui, ce mémoire n'aurait pas été possible.

Je souhaite également remercier mes collègues et compagnons de projet Luc Montpetit, Éloïse Rahie et Sudershan Singh, pour leur soutien, leur bonne humeur et les nombreux moments partagés durant ces deux dernières années. Merci aussi à l'ensemble des membres du laboratoire, pour leur bonne humeur, leur disponibilité et les discussions enrichissantes qui ont rythmé le quotidien et rendu l'environnement de travail aussi agréable que stimulant.

Je tiens également à remercier le Professeur Shawn Molesky, ainsi que le Professeur Raynald Gauvin, pour le temps qu'ils ont consacré à l'évaluation de ce mémoire.

## RÉSUMÉ

Ce mémoire s'inscrit dans le développement de la sonde atomique, un domaine actuellement en pleine expansion qui s'annonce incontournable pour la caractérisation des matériaux à l'échelle atomique. Cette technique consiste à faire évaporer les atomes d'un matériau un par un afin de reconstruire son volume en trois dimensions. Ainsi, il est possible d'obtenir une image tomographique 3D du matériau à une résolution presque atomique.

La tomographie par sonde atomique (APT) permet non seulement de localiser chaque atome, mais aussi d'identifier son isotope. Cette technique présente cependant un taux de détection limité (entre 60 et 80%) et ne permet pas directement d'identifier la structure cristalline du matériau. Toutefois, les phénomènes physiques qui interviennent lors de l'évaporation permettent d'extraire des informations indirectes sur cette structure.

Ce mémoire présente les avancées réalisées dans la compréhension des données APT, notamment en lien avec la structure cristalline des matériaux analysés. Ces travaux s'appuient sur les progrès récents des sondes atomiques à large champ de vision, qui permettent une meilleure observation des effets cristallins sur les mesures. Cette nouvelle génération de systèmes introduit également des différences significatives dans les reconstructions 3D, comparativement aux versions précédentes, lesquelles sont analysées ici.

Cette amélioration est rendue possible par l'introduction d'un système optique qui réoriente les ions hors champ vers le détecteur à l'aide d'une série d'électrodes créant un champ électrique. Ce système génère néanmoins des aberrations optiques qui sont également étudiées.

La méthodologie repose sur l'utilisation d'informations cristallines présentes dans les données pour améliorer la reconstruction et proposer une méthode de calibration du nouveau système optique. Pour ce faire, nous avons développé un algorithme basé sur la transformée de Fourier permettant de détecter la position des plans cristallins ainsi que leur distance inter-planaire. Ces deux nouvelles informations ouvrent la voie à de nombreuses techniques de reconstruction et de calibration.

À partir de ces données, trois méthodes ont été développées :

- Analyse de la variation du diamètre de la pointe au cours de la mesure, exploitant une propriété reliant des valeurs mesurables dans les données APT. Cela permet d'estimer une taille absolue dans un système où tout est normalement proportionnel à un paramètre arbitraire.
- Caractérisation de l'optique des systèmes à large champ, par l'observation des dé-

formations radiales causées par l'introduction de l'optique, ce qui offre une meilleure possibilité de calibration instrumentale.

- Détermination du centre de reconstruction de la pointe, basée sur la variation de la distance inter-planaire en fonction du rayon, permettant d'améliorer significativement la reconstruction 3D.

Ces méthodes, fondées sur l'analyse de la position des plans cristallins et de leurs distances inter-planaires, permettent une meilleure connaissance du matériau, une reconstruction plus fiable et une calibration plus précise de la machine.

## ABSTRACT

This thesis focuses on atom probe tomography (APT), which is a characterization method combining field ion microscopy and time of flight spectrometry. The working principle of this technique consists of evaporating atoms one by one from a material using a strong electric field. These evaporated ions are then detected, and through reconstruction algorithms, a 3D image of the material is generated. Additionally, the time-of-flight spectrometry allows identification of the isotopic nature of each ion. However, APT faces two major limitations: an in-plane spatial resolution of about 1 nanometer and a detection efficiency ranging between 60% and 80%. These constraints make it difficult to resolve the crystalline structure of the material using reconstruction alone.

Nevertheless, the evaporation process is governed by physical phenomena that leave residual signatures of the crystal structure in the data. These effects, particularly visible in the atomic planes, can be exploited to enhance reconstruction. To study them effectively, a large number of crystallographic planes must be captured within the field of view of the instrument. Recent APT INVIZO systems offer double the field of view compared to the widely used LEAP systems, making such analysis even more relevant.

With this expanded view, we can explore the crystallographic information embedded in the data of these new-generation instruments. This is enabled by an optical system integrated into the device, consisting of electrodes that generate electric fields to redirect off-axis ions back toward the detector. However, this setup also introduces optical aberrations, which can distort the reconstruction.

To address this, we developed an algorithm based on the Fourier Transform to detect crystallographic planes within the data. This algorithm not only identifies the positions of these planes but also calculates the interplanar spacing from the frequencies found in the FFT. This approach is unique because it leverages interplanar distances to identify crystallographic planes, opening up new possibilities for improving reconstruction accuracy and for calibrating the optical system.

Based on this, three approaches were developed:

- The first uses the variation in the tip diameter during analysis, linked to measurable features in APT data. This provides a unique way to determine absolute scale in a typically relative measurement system.
- The second method aims to characterize the optics of wide field-of-view systems by analyzing radial distortions caused by the optical insert, enabling improved instrument

calibration.

- The third method determines the reconstruction center of the tip by analyzing how the interplanar distance varies with radial position, providing a way to optimize the reconstruction.

Altogether, these techniques—based on the position and spacing of crystallographic planes—enable improved knowledge of the material, more accurate reconstructions, and better calibration of the APT system.

## TABLE DES MATIÈRES

REMERCIEMENTS . . . . .	iii
RÉSUMÉ . . . . .	iv
ABSTRACT . . . . .	vi
TABLE DES MATIÈRES . . . . .	viii
LISTE DES FIGURES . . . . .	xi
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS . . . . .	xiii
CHAPITRE 1 INTRODUCTION . . . . .	1
CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE . . . . .	3
2.1 Aperçu historique de l'APT . . . . .	3
2.1.1 Microscopie ionique à effet de champ . . . . .	4
2.1.2 Sonde atomique . . . . .	5
2.1.3 Tomographie par sonde atomique . . . . .	6
2.1.4 Sonde atomique à électrode local (Local Electrode Atom Probe (LEAP)) . . . . .	6
2.2 Montage expérimental de la sonde atomique . . . . .	7
2.2.1 Les composants de la machine . . . . .	7
2.2.2 Préparation de l'échantillon . . . . .	10
2.2.3 Principe de fonctionnement . . . . .	11
2.3 Paramètres importants . . . . .	11
2.3.1 ICF . . . . .	12
2.3.2 Angle de la pointe . . . . .	12
2.4 Traitement des données . . . . .	14
2.4.1 Identification de l'élément . . . . .	14
2.4.2 Reconstruction spatiale . . . . .	16
2.4.3 Données obtenues . . . . .	19
2.5 Structure cristalline dans les mesures APT . . . . .	19
2.6 Carte de densité . . . . .	21
2.7 Structure de plan dans le volume . . . . .	24

CHAPITRE 3	CARACTÉRISTIQUES DE LA TOMOGRAPHIE À LARGE CHAMP DE VISION . . . . .	26
3.1	Composant de la machine . . . . .	26
3.1.1	Laser . . . . .	26
3.1.2	Electrode . . . . .	27
3.1.3	Système optique . . . . .	28
3.1.4	Détecteur . . . . .	28
3.2	Expérimentation . . . . .	29
3.2.1	Types de mesures effectuées . . . . .	30
3.2.2	Préparation des pointes . . . . .	30
3.3	Reconstruction avec IVAS 6 . . . . .	31
3.4	Méthodologie . . . . .	31
3.4.1	Observation initiale des résultats . . . . .	32
3.4.2	Extraction de nouvelles informations structurelles . . . . .	32
3.4.3	Analyses avancées basées sur les données extraites . . . . .	32
CHAPITRE 4	RÉSULTATS THÉORIQUES ET EXPÉRIMENTAUX . . . . .	34
4.1	Observation avec IVAS . . . . .	35
4.1.1	Champs de vision . . . . .	35
4.1.2	Interfaces . . . . .	39
4.2	Modification de la librairie Python . . . . .	39
4.2.1	Importation des données . . . . .	41
4.2.2	Implémentation de l'optique . . . . .	41
4.3	Analyse par transformée de Fourier . . . . .	42
4.3.1	Observation des plans résiduels . . . . .	43
4.3.2	FFT suivant $z$ . . . . .	43
4.3.3	Détection des pics . . . . .	51
4.4	Identification des pôles . . . . .	51
4.4.1	Calcul de la distance interplanaire . . . . .	53
4.4.2	Génération des directions théoriques . . . . .	56
4.4.3	Projection APT . . . . .	57
4.4.4	Assignation des pôles . . . . .	59
4.5	Longueur de reconstruction . . . . .	63
4.5.1	Erreurs sur les extrémités du détecteur . . . . .	63
4.5.2	Considération géométrique de l'angle de la pointe . . . . .	64
4.5.3	Calcul de l'angle . . . . .	69

4.6	Caractérisation de l'optique . . . . .	69
4.6.1	Calcul de l'ICF . . . . .	70
4.6.2	Distribution de l'ICF . . . . .	71
4.7	Pole centrale . . . . .	72
4.7.1	Calcul . . . . .	73
4.7.2	Résultats . . . . .	74
CHAPITRE 5 CONCLUSION . . . . .		78
5.1	Synthèse des travaux . . . . .	78
5.2	Limitations de la solution proposée . . . . .	79
5.3	Améliorations futures . . . . .	80
RÉFÉRENCES . . . . .		81

## LISTE DES FIGURES

Figure 2.1	Schéma des montage FEEM et FIM . . . . .	4
Figure 2.2	Montage expérimental du système LEAP, présentant les différents composants de la machine, ainsi que la trajectoire des ions. . . . .	8
Figure 2.3	Schéma du calcul de l'ICF . . . . .	13
Figure 2.4	Evolution de rayon de la pointes pour un echantillon présentant un angle de pointe $\alpha$ . . . . .	13
Figure 2.5	Spectre de masse d'un échantillon d'aluminium analysé par APT . . .	16
Figure 2.6	Schéma de la trajectoire d'un ion entre l'exication par un pulse laser et l'impact sur le détecteur. . . . .	17
Figure 2.7	Reconstruction 3D d'un volume de CdZnTe obtenue par APT : Cd (orange), Te (bleu), Zn (noir) . . . . .	20
Figure 2.8	Illustration des plans atomiques dans une structure cristalline 2D . .	20
Figure 2.9	Répartition des atomes observés sur le détecteur selon la structure du cristal avec la séquence d'évaporation . . . . .	22
Figure 2.10	Carte de densité d'un échantillon d'aluminium par APT . . . . .	23
Figure 2.11	Projection azyimuthal sur la carte de densité de l'Aluminium . . . . .	25
Figure 3.1	Schéma des composants de la machine INVIZO 6000. La trajectoire des ions dans le système est représentée en rouge. . . . .	27
Figure 3.2	Différence de chemin optique entre les système LEAP et INVIZO . .	29
Figure 3.3	Nombre de détections pour sur chaque pixel du détecteur . . . . .	29
Figure 4.1	Superposition des cartes de densité obtenues avec les systèmes LEAP (en gris) et INVIZO (en couleur) . . . . .	36
Figure 4.2	Différence de champ de vision entre les systèmes LEAP (orange) et INVIZO (orange + bleu ) selon une coupe XZ . . . . .	38
Figure 4.3	Distorsion des interfaces planes en bord de champ après reconstruction	40
Figure 4.4	Zones d'impact des ion sur le détecteur sélectionner pour faire la Figure 4.5 . . . . .	44
Figure 4.5	Détection mesurer dans le temps sur une mesure d'Aluminium dans la direction 002-114 . . . . .	45
Figure 4.6	Schéma de découpage des données en grille de $n \times m \times 1$ dans un volume 3D (a) et sur la carte de densité projeté suivant z (b) . . . . .	47
Figure 4.7	Schéma du déplacement de la fenêtre de reconstruction de la FFT et de la grille de pixel $n \times m \times 1$ (proportion non conservé) . . . . .	48

Figure 4.8	Signaux de transformé de Fourier pour les plan 002 et 111 . . . . .	49
Figure 4.9	Carte des maximum de pics de FFT . . . . .	50
Figure 4.10	Signaux observés pour différentes positions sur le détecteur . . . . .	52
Figure 4.11	Signaux observés pour différentes positions sur le détecteur . . . . .	53
Figure 4.12	Carte des pics trouvés. La couleur représente le nombre d'harmoniques	54
Figure 4.13	Schéma des distances observé sur le détecteur . . . . .	55
Figure 4.14	Projection stéréographique sur une surface sphérique de rayon 1nm d'une structure CFC . . . . .	58
Figure 4.15	. . . . .	60
Figure 4.16	Projection stéréographique sur une surface sphérique de rayon 1nm d'une structure CFC avec rotation de $\psi = 10^\circ$ et $\phi = 45^\circ$ . . . . .	60
Figure 4.17	Projection des plans cristallin aligné avec le détecteur . . . . .	61
Figure 4.18	Tous les pixels possédant un pics sont identifier par une croix noir. Chaque pixel est assigné a son plan correspondant . . . . .	62
Figure 4.19	Assignation finale des plans . . . . .	63
Figure 4.20	Profondeur de reconstruction . . . . .	65
Figure 4.21	Géométrie de la pointe en considérant un angle de pointe non nul . .	66
Figure 4.22	2 types de géométrie d'intersection de la surface de la pointe entre le coté (orange) et l'extrémité (cercle) . . . . .	68
Figure 4.23	Prise en compte de la géométrie pour différent angles . . . . .	70
Figure 4.24	Distribution de l'ICF dans une mesure d'Aluminium . . . . .	71
Figure 4.25	Comparaison de plusieurs ICF . . . . .	72
Figure 4.26	Pole central . . . . .	74
Figure 4.27	Projection suivant la direction [002] des différents centre de reconstruc- tion obtenue par regroupement de 3 pôles . . . . .	75
Figure 4.28	Distribution des composantes de direction principale . . . . .	76

**LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS**

AP	Sonde atomique (Atom Probe)
APT	Sonde atomique tomographique (Atom Probe Tomography)
FIB	Sonde ionique focalisée (Focused Ion Beam)
FIM	Microscope ionique à effet de champ (Field ion microscope)
FOV	Champ de vision (Field of View)
LEAP	Sonde atomique à électrode local (Local Electrode Atom Probe)
MCP	Microchannel plate
MRP	Pouvoir de Résolution en Masse (Mass Resolving Power)
SEM	Microscopie électronique à balayage (Scanning electron microscope)
TEM	Microscopie électronique en transmission (Transmission electron microscopy)
TOF	Temps de Vol (Time-of-Flight)
TOF-MS	Spectrométrie de masse par temps de vol (Time-of-Flight Mass Spectrometry)
UHV	Pression ultra-basse (Ultra High Vacuum)
UV	Ultraviolet

## CHAPITRE 1 INTRODUCTION

Le présent projet vise à établir un lien entre les propriétés cristallines des matériaux et les données issues de l'analyse par sonde atomique tomographique (APT), en tirant parti d'un nouvel instrument doté d'un large champ de vision. Depuis l'invention de la sonde atomique, cette relation a été largement explorée afin de mieux comprendre la structure atomique des matériaux [1]. L'APT s'est révélée être une technique essentielle pour l'identification des structures cristallines et des défauts [2].

Aujourd'hui en pleine expansion, l'APT est utilisée dans de nombreux laboratoires de recherche et environnements industriels. L'amélioration des méthodes d'extraction et d'interprétation des données revêt donc une importance stratégique : chaque information supplémentaire permet d'optimiser l'exploitation d'un outil coûteux et de mieux comprendre les matériaux à l'échelle atomique.

L'APT n'est toutefois pas une méthode d'observation directe. Elle repose sur une étape de reconstruction tridimensionnelle, consistant à convertir une suite de positions détectées en une image atomique du matériau analysé. Cette reconstruction repose sur des équations de calibration visant à modéliser les phénomènes physiques ayant influencé les trajectoires des ions. Bien que ces modèles aient été développés dès les débuts de la sonde atomique [3] et régulièrement affinés depuis, ils ne permettent pas encore d'atteindre une résolution à l'échelle de la maille cristalline. Les erreurs de position, de l'ordre de quelques fractions de nanomètre, limitent l'accès à la structure atomique fine, tandis que le taux de détection, compris entre 60 et 80% pour les instruments actuels, rend impossible l'observation des défauts ponctuels.

Cependant, malgré ces limitations, des indices de structure cristalline subsistent dans les reconstructions APT. En particulier, certains matériaux présentent des résidus de plans atomiques visibles dans les volumes reconstruits [4, 5]. Ces plans, lorsqu'ils sont suffisamment nombreux et bien définis, constituent une source d'information précieuse. En effet, alors que les reconstructions sont généralement réalistes à un facteur d'agrandissement près, la géométrie des plans peut servir de référence interne pour ajuster les dimensions, sans apport d'information extérieure. La position et l'espacement de ces plans ont notamment été exploités par S. Koelling [6], à l'aide d'outils algorithmiques basés sur la transformée de Fourier, pour améliorer la reconstruction.

Pour que ces approches soient pleinement efficaces, il est indispensable qu'un grand nombre de plans cristallins soient visibles dans le volume analysé. Cela implique d'augmenter le champ de vision (FOV) de la sonde. Depuis les débuts de la technique, cet élargissement a représenté un

défi technologique majeur. La dernière génération d'instruments, commercialisée sous le nom d'INVIZO, introduit un champ de vision considérablement élargi par rapport aux machines précédentes [7], permettant l'observation simultanée de très nombreux plans cristallins dans un même volume.

Ce progrès ouvre de nouvelles perspectives analytiques : il devient possible de tirer parti de l'information cristallographique résiduelle pour affiner les méthodes de reconstruction, ajuster les paramètres de calibration et renforcer la précision des mesures. Une question centrale émerge alors : comment exploiter efficacement l'information contenue dans les plans cristallins partiellement visibles pour améliorer la fidélité des reconstructions atomiques, en particulier sur les nouveaux instruments à large champ de vision ?

Ce projet est ainsi structuré autour de trois objectifs principaux :

- Améliorer la détection des plans cristallins à partir des données APT, en s'appuyant notamment sur l'algorithme de Koelling.
- Exploiter cette information structurale pour affiner les reconstructions tridimensionnelles et mieux reproduire la géométrie du matériau d'origine.
- Développer des méthodes de calibration spécifiques aux instruments de nouvelle génération, afin de rendre la reconstruction plus robuste, précise, et indépendante de données externes.

Pour atteindre ces objectifs, ce mémoire est organisé en trois grandes parties.

Dans un premier temps, la revue de littérature retrace l'évolution du champ de vision dans les instruments APT et son impact sur l'accès à l'information cristalline. Cette section introduit également les principaux composants d'un microscope APT, son fonctionnement, ainsi que les fondements théoriques de la reconstruction tridimensionnelle. Elle développe enfin les types d'informations cristallographiques potentiellement accessibles dans les données APT et les méthodes d'extraction associées.

La deuxième partie est consacrée aux améliorations technologiques apportées par la nouvelle machine à large champ de vision. Elle décrit leur influence sur la qualité et la quantité de données collectées, ainsi que les expérimentations menées pour analyser ces apports. Cette section présente également la méthodologie adoptée pour le développement de cette maîtrise, tant sur le plan expérimental qu'algorithmique.

Enfin, la troisième partie expose les résultats obtenus en lien avec les objectifs définis. Elle présente l'amélioration de la méthode de détection des plans cristallins, ainsi que les techniques développées pour optimiser la reconstruction et proposer de nouvelles approches de calibration adaptées aux machines de dernière génération.

## CHAPITRE 2 REVUE DE LITTÉRATURE

L'APT est une méthode issue de l'évolution de la microscopie ionique à effet de champ, permettant l'observation d'atomes individuels. Elle tire également ses fondements de la spectrométrie de masse, qui permet d'identifier la nature isotopique des atomes. La combinaison de ces deux approches a donné naissance à la sonde atomique. L'aspect tomographique de cette technologie repose sur l'utilisation de méthodes mathématiques exploitant les données issues de la microscopie et de la spectrométrie afin de reconstruire une image tridimensionnelle de l'échantillon analysé.

Dans cette revue de littérature, nous commencerons par retracer l'évolution historique des développements ayant conduit à l'émergence de l'APT. Cette première partie servira à introduire les concepts fondamentaux de la physique sous-jacente à la technologie, jusqu'à la description de l'instrument tel qu'il est utilisé aujourd'hui.

Nous aborderons ensuite les méthodes de reconstruction des images tridimensionnelles à partir des données brutes, ainsi que les différentes façons dont ces données peuvent être exploitées.

Une part importante des techniques développées dans le cadre de ce travail repose sur l'analyse des propriétés cristallines des matériaux étudiés et sur la manière dont celles-ci se manifestent dans les données APT. Nous développerons donc une section consacrée aux propriétés cristallines des matériaux utilisés pour nos démonstrations, ainsi qu'aux motifs observables dans les résultats expérimentaux.

### 2.1 Aperçu historique de l'APT

De nombreux ouvrages [2, 8–11] ainsi que plusieurs articles de revue [12–14] retracent en détail l'évolution de l'AP et les différentes déclinaisons qu'elle a connues au fil du temps. Dans ce travail, nous nous focaliserons sur les étapes clés ayant conduit au développement de la technologie telle qu'elle est utilisée aujourd'hui.

Dans les années 1930, Erwin W. Müller met au point une méthode permettant d'arracher un électron à un atome à l'aide d'un champ électrique intense. Les travaux théoriques de Fowler et Nordheim suggèrent qu'un champ de l'ordre de  $10^9 \text{V/m}$  est requis pour provoquer une telle émission [15]. Pour atteindre cette intensité, Müller utilise une pointe métallique d'un diamètre de quelques micromètres servant d'électrode. L'application d'un potentiel négatif de plusieurs dizaines de kilovolts permet alors l'émission d'électrons. En plaçant un écran fluorescent en face de l'échantillon, ces électrons deviennent visibles, révélant ainsi l'image du

champ d'émission (voir Figure 2.1a et b). Cette technique, présentée par Müller en 1936 [16], est désignée sous le nom de microscopie par émission à effet de champ (Field Electron Emission Microscopy, FEEM).

### 2.1.1 Microscopie ionique à effet de champ

Pour provoquer l'émission d'atomes, un champ électrique encore plus intense est requis, de l'ordre de  $10^{10}$  V/m. Pour atteindre une telle intensité, Müller et Bahadur développèrent la microscopie ionique à effet de champ (Field Ion Microscopy, FIM) [17, 18]. Plusieurs modifications furent apportées par rapport à la FEEM : le rayon de la pointe fut réduit à environ  $0,1 \mu\text{m}$  afin d'augmenter le champ électrique local, et la polarité de la tension appliquée à l'échantillon fut inversée, passant de négative à positive, afin de permettre la désorption d'ions positifs.

L'évaporation spontanée des ions à partir de la surface étant extrêmement faible, l'intro-

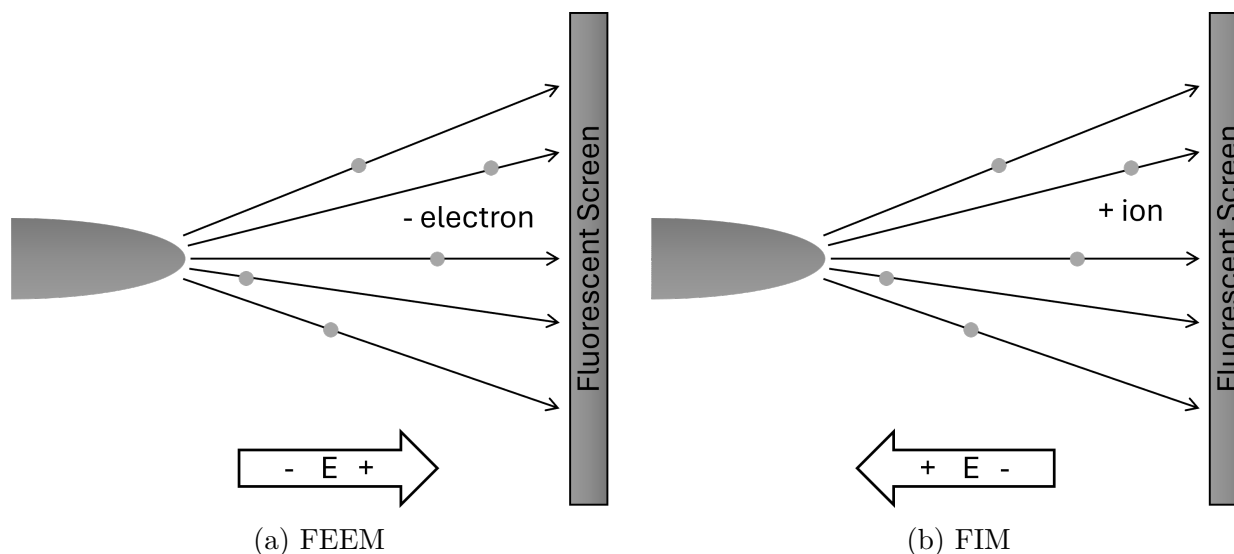


FIGURE 2.1 Schéma des montage FEEM et FIM

duction d'un gaz image fut nécessaire pour améliorer la qualité d'imagerie. Le principe de fonctionnement repose sur l'ionisation du gaz image au voisinage immédiat de la pointe métallique. Les ions ainsi formés sont ensuite accélérés vers le détecteur sous l'effet du champ électrique, générant une image de haute résolution de la surface atomique.

Par ailleurs, un refroidissement cryogénique de l'échantillon s'avère indispensable pour sta-

biliser le processus d'évaporation et réduire la mobilité atomique en surface.

Cette technique a permis, pour la première fois, d'observer directement les atomes, ainsi que la structure cristalline des matériaux analysés. La répartition des atomes sur le détecteur révèle des motifs en cercles concentriques, correspondant aux principales directions des plans cristallins. Ce phénomène résulte de la séquence d'évaporation des atomes en fonction de l'orientation cristalline, un mécanisme qui sera détaillé dans la section 2.5.

C'est précisément cette propriété que nous chercherons à exploiter au cours de cette maîtrise.

### 2.1.2 Sonde atomique

L'étape suivante vers la conception de la sonde atomique consista à identifier la nature chimique des ions détectés. La spectrométrie de masse par temps de vol (Time-of-Flight Mass Spectrometry, TOF-MS) fut introduite par Muller, Panitz et McLane, permettant d'identifier les ions en fonction de leur temps de vol [19,20]. Pour ce faire, une tension continue, combinée à des pulses de tension très élevées, était appliquée à l'échantillon afin d'ioniser les atomes présents en surface.

Le détecteur utilisé comportait un orifice central offrant un champ de vision de quelque nanomètre au centre de la pointe. Les ions étaient ensuite détectés à l'aide d'un multiplicateur d'électrons à plusieurs étages, constitué de dynodes, et le signal correspondant était enregistré au moyen d'un oscilloscope. Cette méthode repose sur le principe selon lequel le temps de vol d'un ion est proportionnel à sa masse et inversement proportionnel à sa charge. L'utilisation de cette technique nécessitait de vider la chambre à vide du gaz image, car l'ion que l'on souhaite détecter est directement celui du matériau.

Les deux techniques, FIM et TOF-MS, pouvaient être intégrées sur une même machine [19], bien qu'utilisées de manière indépendante. La combinaison de ces deux méthodes donna naissance à la sonde atomique.

Miller exploita cette technique pour caractériser une grande variété de matériaux [2]. Ses travaux portèrent aussi bien sur les métaux que sur les semi-conducteurs, les alliages multiphasés ordonnés et même certaines molécules biologiques. Son analyse portait notamment sur les défauts cristallins tels que les dislocations, les lacunes, les défauts interstitiels ou encore les joints de grains.

La TOF-MS consiste à ioniser les atomes de surface en appliquant un champ électrique très élevé. Cependant, cela s'avère difficile sur les semi-conducteurs et les molécules biologiques, en raison de leur résistivité plus élevée. Pour surmonter cette limite, Miller utilisa une technique développée par Kellogg et Tsong : la sonde atomique par impulsions laser [21]. L'utilisation d'un laser pour générer des impulsions possédant une énergie suffisante pour ioniser les

atomes en surface est aujourd'hui un standard en AP.

### 2.1.3 Tomographie par sonde atomique

Le développement des plaques à microcanaux (microchannel plates, MCP) a constitué une avancée majeure pour la sonde atomique. En effet, Panitz a mis au point un système capable de détecter simultanément la position d'impact des ions et leur temps de vol, ouvrant ainsi la voie à l'analyse tridimensionnelle des matériaux à l'échelle atomique [22].

À ses débuts, la détection du temps de vol ne pouvait se faire que pour des ions préalablement sélectionnés. Ce n'est qu'en 1988, avec l'introduction de la sonde atomique à détection positionnelle (position-sensitive atom probe), que la technique a permis une acquisition simultanée et complète des informations spatiales et temporelles pour chaque ion détecté [23, 24]. La reconstruction tridimensionnelle des volumes atomiques à partir des données issues de la sonde atomique a nécessité le développement de modèles mathématiques dédiés, exploitant à la fois l'ordre d'arrivée des ions et leur position d'impact sur le détecteur. Ces aspects seront abordés en détail dans la section 2.4.

### 2.1.4 Sonde atomique à électrode local (LEAP)

En 1996, l'introduction d'une électrode locale placée à proximité de l'échantillon a marqué une avancée majeure dans le fonctionnement de la sonde atomique, qualifiée par Kelly et Larson de « seconde révolution » de cette technique [14]. Cette technologie consiste à rapprocher la source de tension grâce à une électrode percée positionnée près de l'échantillon, tandis que le détecteur est placé plus en retrait [25]. Ce dispositif permet d'augmenter le champ électrique appliqué tout en maintenant une tension constante. Il en résulte une amélioration significative du FOV, passant d'environ 15 nanomètres à plus de 200 nanomètres, une augmentation du taux de détection des ions, de quelques centaines à plusieurs millions d'atomes par minute, ainsi qu'une amélioration notable de la résolution du spectre de masse [26]. Cette technique est devenue un standard pour l'analyse par sonde atomique. Elle a été industrialisée dans les années 2000 et est désormais utilisée aussi bien dans la recherche que dans l'industrie [27]. Depuis, de nombreuses améliorations ont été apportées, mais les composants fondamentaux restent standards dans toutes les machines.

## 2.2 Montage expérimental de la sonde atomique

L'APT à large champ de vision, étudiée dans le cadre de ce mémoire, constitue une amélioration directe du système à sonde locale. Afin de bien comprendre les évolutions apportées, nous décrirons d'abord en détail les composants essentiels du système à sonde locale.

Les types de composants fondamentaux ont été conservés d'un système à l'autre, mais chacun a fait l'objet d'optimisations ou d'adaptations technologiques.

Le chapitre suivant (Chapitre 3) présentera de manière exhaustive les modifications apportées, ainsi que les nouveaux éléments intégrés dans le cadre du développement du système à large champ de vision.

### 2.2.1 Les composants de la machine

La Figure 2.2 présente un schéma des différents composants constituant le système LEAP. Ce dernier se compose de cinq éléments principaux, chacun jouant un rôle essentiel dans le fonctionnement et les performances de l'instrument. Les éléments présentés ci-après résultent d'une compilation des données issues de la littérature scientifique et technique relative au système LEAP [9–14, 22, 25, 26].

#### L'échantillon

L'élément central du dispositif d'analyse est l'échantillon, qui constitue à la fois l'objet d'étude et un composant fonctionnel du système expérimental. Celui-ci doit être usiné avec une grande précision afin de former une pointe de rayon nanométrique, typiquement de l'ordre de 100 à 200 nm. Cette géométrie est essentielle pour assurer un champ électrique localement intense sous des tensions appliquées raisonnables.

Durant l'acquisition, la pointe est progressivement érodée par le processus de désorption ionique : les atomes constituant l'échantillon sont arrachés un à un sous l'effet du champ électrique. La pointe doit ainsi résister à des conditions extrêmes : pression ultra-basse (UHV), contraintes mécaniques dues à la tension appliquée, et parfois à des variations thermiques importantes.

La qualité de l'usinage, la stabilité thermique et la résistance mécanique de la pointe conditionnent directement la qualité des données acquises en APT.

#### Électrode

Ensuite, vient l'électrode. Celle-ci permet de créer un champ électrique très intense entre l'électrode et l'échantillon. L'électrode est un cône métallique avec une ouverture de 10-60

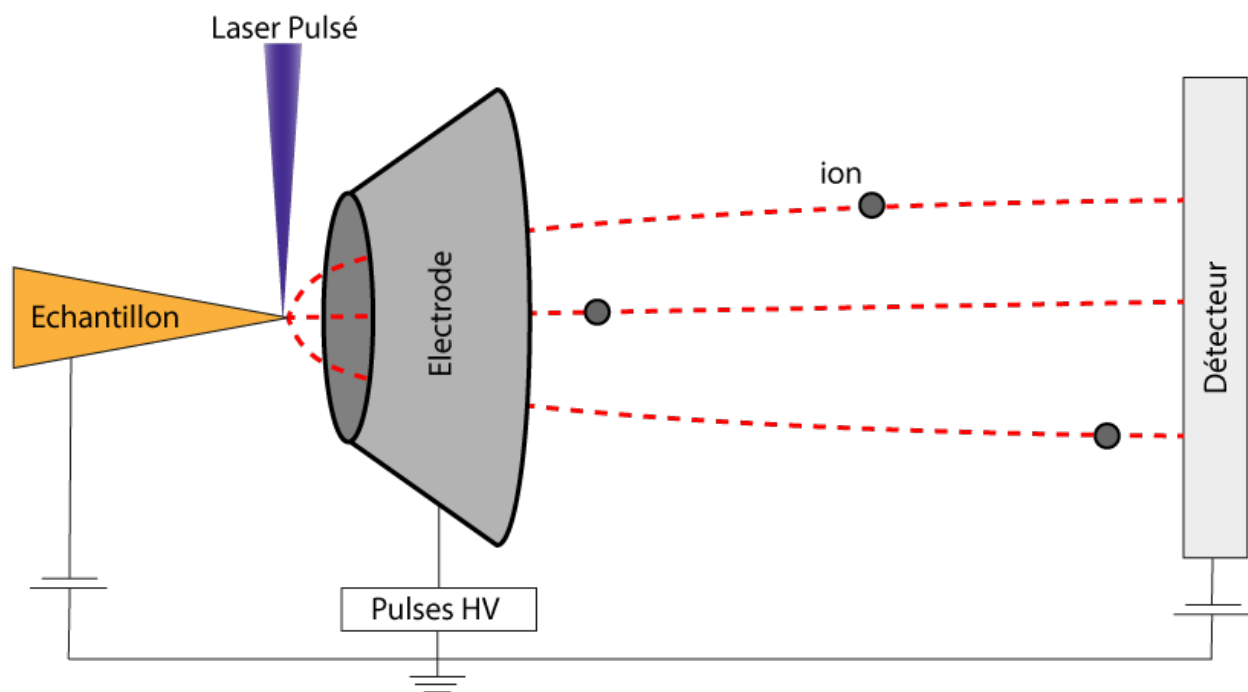


FIGURE 2.2 Montage expérimental du système LEAP, présentant les différents composants de la machine, ainsi que la trajectoire des ions.

microns. Le potentiel est généré par une source de tension capable d'atteindre plus d'une dizaine de kilovolts. La tension est finement contrôlée afin de s'adapter à la géométrie de la pointe ainsi qu'aux propriétés du matériau analysé. Le potentiel appliqué est ajusté de manière à amener les atomes situés à la surface de la pointe à la limite de l'évaporation. Cette approche vise à minimiser la contribution énergétique du pulse, en plaçant les atomes dans un état proche de l'instabilité, prêts à être évaporés par une excitation supplémentaire.

### Pulse

Pour envoyer les ions, il faut ajouter un pulse, soit laser, soit de tension. Le pulse permet de fournir juste l'énergie nécessaire à l'évaporation d'un atome.

S'il s'agit d'une impulsion de tension, une tension négative est appliquée sur l'électrode ou positive sur l'échantillon pendant quelques picosecondes.

S'il s'agit d'un pulse laser, celui-ci n'a pas la précision nécessaire pour cibler un seul atome ; il est donc utilisé pour chauffer localement la pointe avec des pulses de quelques nanosecondes. Cet excès d'énergie thermique est alors suffisant pour déclencher l'évaporation d'un atome. La pointe étant connectée à une source froide, la température est contrôlée tout au long de la procédure.

En pratique, le pulse ne provoque pas l'évaporation d'un ion à chaque fois. Dans les machines actuelles, on observe en moyenne une évaporation tous les 100 pulses. Cette limitation est due aux statistiques d'évaporation : il arrive qu'un seul pulse déclenche l'évaporation de plusieurs ions en même temps. Ces évaporations multiples réduisent la précision de la reconstruction 3D et sont donc à éviter autant que possible.

## Détecteur

Le détecteur permet de mesurer la position d'impact des ions. La détection repose sur l'utilisation de MCP, qui transforment l'impact d'un ion en une cascade d'électrons. Ces électrons viennent ensuite frapper une anode à ligne à retard (delay line anode, DLA) disposée en serpent. Lors du contact avec un fil, un courant est induit dans les deux directions du fil. En mesurant la différence de temps d'arrivée du signal aux extrémités, on peut remonter à la position d'impact initiale. Pour améliorer la précision, on utilise au minimum deux, et parfois jusqu'à trois couches de fils serpentins, ce qui permet une triangulation plus fine de la position sur le détecteur. L'analyse des signaux induits dans ces câbles permet d'obtenir la position d'impact  $D_x$  et  $D_y$ , mais également de déterminer le TOF. Le détecteur est généralement un disque, dont le diamètre varie selon les spécifications de la machine. Plus le diamètre est grand, plus il permet de collecter des ions provenant de grands angles d'émission, augmentant ainsi le FOV. Dans les LEAP commerciaux, le FOV est d'environ 60°.

## Autre composants

La technique de sonde atomique impose des conditions opératoires particulièrement strictes afin d'assurer une analyse optimale. La pression et la température doivent être maintenues dans une fenêtre de fonctionnement bien définie. Un UHV est requis pour minimiser les interactions entre les ions évaporés et les contaminants résiduels. À cet effet, l'analyse est réalisée dans une chambre à vide où la pression est maintenue typiquement autour de  $10^{-11}$  à  $10^{-10}$  torr.

La température joue également un rôle critique, en particulier sur la stabilité du processus d'évaporation. Le matériau analysé doit être maintenu à une température aussi proche que possible du zéro absolu, afin de favoriser l'émission contrôlée d'un seul atome à la fois. En pratique, en raison des contraintes techniques et des autres paramètres de fonctionnement de l'instrument, une température d'environ 20 K est généralement utilisée. Cette température est atteinte grâce à un porte-échantillon cryogénique, refroidi par circulation d'hélium liquide.

### 2.2.2 Préparation de l'échantillon

On peut considérer que la préparation d'échantillons pour la sonde atomique constitue une discipline à part entière, en raison de sa complexité et de la technicité qu'elle implique, souvent décrite comme un savoir-faire quasi artisanal. En effet, la préparation des pointes a été largement étudiée, tant son influence sur la qualité des mesures est déterminante. Nous décrivons ici brièvement les deux principales techniques utilisées pour la préparation de pointes destinées à l'analyse en sonde atomique.

#### Préparation par électropolissage

L'électropolissage fut la première technique utilisée pour la fabrication de pointes, initialement mise en œuvre par Müller pour les matériaux métalliques [28], et elle reste encore employée aujourd'hui. Cette méthode repose sur le passage d'un courant électrique à travers un fil du matériau étudié, d'environ 1 mm de diamètre, plongé dans une solution électrolytique adaptée. L'échantillon est connecté en tant qu'anode et un anneau de cuivre en tant que cathode l'entoure à environ 1 cm de distance, ce qui permet son affûtage progressif sous l'effet de la dissolution électrochimique [2]. Elle permet ainsi, avec un contrôle adapté des paramètres, d'obtenir une pointe de rayon de courbure nanométrique, compatible avec l'analyse en sonde atomique et conforme aux critères géométriques requis.

Toutefois, cette méthode présente certaines limitations : elle est restreinte aux matériaux conducteurs, ne permet pas un contrôle précis de la zone analysée, et produit des pointes souvent peu homogènes. Malgré cela, elle est encore couramment utilisée pour la fabrication rapide de pointes de test, notamment en aluminium.

#### Préparation par sonde ionique focalisée (FIB)

La technique de préparation par sonde ionique focalisée (Focused Ion Beam, FIB) est beaucoup plus longue à mettre en place et requiert des équipements coûteux, mais elle permet de cibler précisément la zone d'analyse et de produire des pointes de très haute qualité. Les étapes principales consistent à découper la région d'intérêt à l'aide d'un faisceau d'ions, à la fixer sur une pointe en tungstène préformée, puis à affiner la géométrie finale par des étapes successives de dépôt, de gravure et de polissage [29, 30].

Cette méthode, bien que complexe, a ouvert la voie à l'analyse par sonde atomique de nombreux matériaux non métalliques, comme les semi-conducteurs, les oxydes ou encore les matériaux biologiques, jusqu'alors inaccessibles par électropolissage [31].

### 2.2.3 Principe de fonctionnement

Après la préparation, l'échantillon est introduit dans la chambre d'analyse de la sonde atomique. Une fois en position, une tension comprise entre 1 kV et 15 kV est appliquée entre l'échantillon et l'électrode. Cette tension est ajustée en fonction de la nature du matériau et de la géométrie de la pointe. En pratique, la tension est progressivement augmentée jusqu'à ce que les premiers ions soient détectés, puis légèrement réduite afin de se situer juste en dessous du seuil d'ionisation. L'objectif est que ce soit le pulse (de tension ou laser) qui fournisse l'énergie suffisante pour franchir ce seuil.

Au cours de l'analyse, la pointe est progressivement détruite par l'évaporation des atomes de surface. Idéalement, la pointe aurait une forme cylindrique parfaite, mais en réalité, elle est conique et arrondie à son extrémité. À mesure que le rayon de courbure de la pointe augmente, la tension nécessaire pour maintenir un champ électrique constant doit être ajustée. Ainsi, la tension appliquée est continuellement régulée en fonction du taux de détection : elle augmente lorsque le taux diminue, et diminue lorsque ce dernier devient trop élevé.

L'émission d'un ion nécessite de lui fournir une énergie supérieure à son énergie de liaison. L'objectif est de limiter les événements d'évaporation multiple, qui nuisent à la précision de la reconstruction tridimensionnelle. Les pulses sont donc calibrés pour favoriser l'émission d'un seul atome à la fois. Par ailleurs, plus les pulses sont espacés dans le temps, moins la probabilité d'une évaporation multiple est élevée. Cependant, afin d'atteindre un nombre total d'ions détectés de l'ordre de plusieurs centaines de millions dans un délai raisonnable, la fréquence de pulse doit être choisie de manière optimale pour concilier résolution et cadence d'analyse.

Une fois émis, les ions sont accélérés vers le détecteur, où leur position d'impact ( $D_x$  et  $D_y$ ) est enregistrée. Le TOF est mesuré entre le moment du pulse (laser ou de tension) et celui de la détection de l'ion, fournissant ainsi l'information sur le rapport masse/charge de l'atome.

## 2.3 Paramètres importants

Avant d'effectuer la reconstruction des données, nous allons présenter les différents phénomènes physiques se produisant dans la machine et ayant un impact sur la reconstruction. Nous expliquerons également comment ces phénomènes sont traduits mathématiquement afin d'être intégrés au processus de reconstruction. Nous présenterons également les paramètres permettant de caractériser l'efficacité de la machine.

### 2.3.1 ICF

Le premier phénomène considéré est lié à la trajectoire des ions juste après leur désorption. Les ions sont initialement émis perpendiculairement à la surface de la pointe. Toutefois, en raison du champ électrique élevé, ils suivent les lignes de champ, ce qui entraîne une déviation de leur trajectoire.

Plusieurs méthodes ont été développées pour modéliser la projection effectuée par la machine entre les angles d'émission et leur position sur le détecteur [32–35]. La Figure 2.3 illustre le modèle actuellement le plus utilisé, dans lequel un point de projection est situé sur l'axe principal de la pointe à une distance  $(m + 1)R$  de la surface.

En utilisant les relations géométriques et en supposant de faibles angles d'émission, on obtient la relation suivante pour le facteur de compression d'image (ICF) :

$$ICF = \frac{\theta_{\text{cristal}}}{\theta_{\text{détecteur}}} \quad (2.1)$$

où  $\theta_{\text{cristal}}$  représente l'angle entre deux directions d'émission à la surface de la pointe.

La démonstration complète de cette relation est présentée dans l'annexe C de l'ouvrage de Larson et al. [10]. L'ICF est un paramètre crucial dans le processus de reconstruction, car la déformation de l'image due à la déviation des trajectoires ioniques n'est pas négligeable.

La valeur de l'ICF dépend de la géométrie de l'instrument, mais elle se situe toujours entre la projection gnomonique (ICF = 1) et la projection stéréographique (ICF = 2). En pratique, sa valeur s'approche de 1,5 [32, 33].

### 2.3.2 Angle de la pointe

Un autre paramètre important à prendre en compte lors de la reconstruction est l'évolution du diamètre de la pointe au cours de la mesure. En effet, la mesure étant destructrice, et la pointe n'étant pas un cylindre parfait, le rayon à l'extrémité de la pointe évolue progressivement.

Cependant, cette variation n'est pas directement visible sur le détecteur. En effet, les ions émis selon un même angle d'émission atteignent la même position sur le détecteur. Étant donné les dimensions extrêmement réduites de la pointe par rapport à la taille du détecteur, une variation de position de quelques nanomètres est négligeable comparée aux effets angulaires sur l'ensemble de la trajectoire. La variation du rayon est souvent assez régulière et peut être décrite par un angle  $\alpha$ , comme illustré dans la Figure 2.4. Ce paramètre est essentiel dans la reconstruction, car l'évolution du rayon a un impact significatif sur la conservation du volume ainsi que sur la fidélité géométrique de la reconstruction.

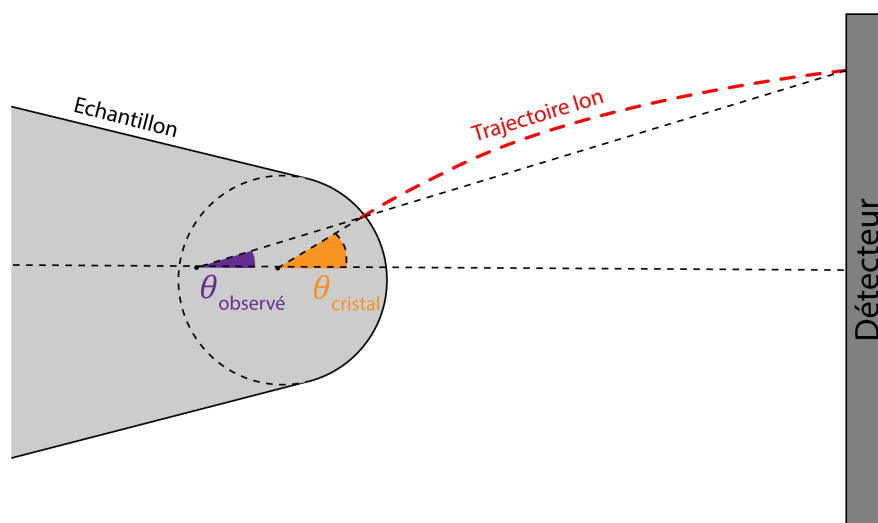
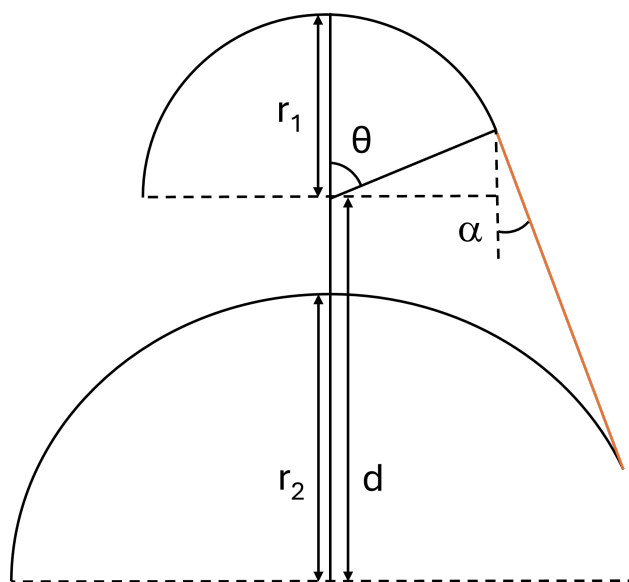


FIGURE 2.3 Schéma du calcul de l'ICF

FIGURE 2.4 Evolution de rayon de la pointes pour un echantillon présentant un angle de pointe  $\alpha$

Ce paramètre peut être estimé de deux manières. La première consiste à utiliser une image prise en SEM avant la mesure, permettant d’obtenir des dimensions approximatives. Cette méthode est précise, d’autant plus que les échantillons sont souvent usinés par FIB, ce qui permet de disposer facilement d’images. Toutefois, la calibration doit être effectuée manuellement.

La seconde méthode repose sur une estimation du rayon de la pointe à partir de la tension appliquée. Comme précisé précédemment, le rayon de la pointe est directement relié à la tension appliquée selon l’équation suivante :

$$R = \frac{V}{k F} \quad (2.2)$$

où  $R$  est le rayon de la pointe,  $F$  le champ électrique théorique d’évaporation du matériau, et  $k$  un facteur sans dimension représentant la déviation du champ électrique par rapport au champ théorique [36].

Cette approche permet donc d’estimer l’évolution du rayon au cours de l’expérience. Cependant, cette méthode reste peu précise et très dépendante du matériau analysé. Elle donne de bons résultats pour les métaux monophasés, mais se révèle moins fiable pour les autres matériaux, notamment ceux présentant des couches multiples ou de fortes variations de tension.

## 2.4 Traitement des données

La reconstruction est l’étape qui permet de transformer les données brutes obtenues par l’AP, à savoir les coordonnées détecteur ( $D_x$ ,  $D_y$ ) et TOF, en une image tridimensionnelle de l’échantillon. Pour exploiter pleinement toute l’information contenue dans ces données, de nombreuses étapes sont nécessaires.

### 2.4.1 Identification de l’élément

L’une des étapes du traitement des données consiste à identifier chaque ion détecté. L’identification repose sur la détermination de sa masse  $m$  et de sa charge  $n$ , à partir du TOF. Le TOF correspond, comme précisé précédemment, au temps écoulé entre l’impulsion et l’arrivée de l’ion sur le détecteur.

La majeure partie du temps mesuré correspond à la trajectoire de l’ion depuis sa désorption jusqu’à son impact sur le détecteur. D’autres contributions, comme le délai d’émission du photon laser ou le temps d’évaporation de l’ion à la surface, ne sont pas prises en compte explicitement, mais peuvent introduire des artefacts dans le spectre.

Le système peut donc être approximé par un ion se déplaçant dans un champ électrique sta-

tionnaire. En supposant la conservation de l'énergie, l'énergie potentielle de l'ion est convertie en énergie cinétique selon la relation :

$$neV = \frac{1}{2}mv^2 \quad (2.3)$$

où  $e$  est la charge élémentaire,  $V$  la tension appliquée,  $n$  la charge de l'ion,  $m$  sa masse, et  $v$  sa vitesse.

En exprimant la vitesse en fonction de la distance  $L$  (entre la pointe et le détecteur) et du TOF :

$$v = \frac{L}{TOF} \quad (2.4)$$

on obtient finalement le rapport masse sur charge :

$$\frac{m}{n} = 2eV \cdot \frac{TOF^2}{L^2} \quad (2.5)$$

Les valeurs de  $TOF$  et de la tension  $V$  au moment de la détection sont mesurées par la machine, tandis que la distance  $L$  est connue.

Ce rapport  $\frac{m}{n}$  (masse sur charge) est la grandeur fondamentale utilisée pour identifier les ions. En effet, plus un ion est massif, plus son temps de vol est long. Inversement, plus sa charge est élevée, plus il est accéléré et atteint rapidement le détecteur. C'est pourquoi on construit les spectres de masse en fonction du rapport  $\frac{m}{n}$ , qui permet de différencier les espèces atomiques ou moléculaires détectées. L'identification des éléments présents dans l'échantillon repose sur l'analyse du spectre de masse. Pour chaque expérience, il est nécessaire de calibrer le TOF à partir d'un ou plusieurs éléments de référence connus. Il est donc indispensable d'avoir une connaissance minimale de la composition de l'échantillon pour pouvoir attribuer correctement les pics du spectre.

En général, la chambre de mesure contient de l'hydrogène résiduel, ce qui fournit un repère fiable : l'hydrogène ionisé une fois ( $^1\text{H}^+$ ) produit un pic à 1 unité de masse atomique pour une charge élémentaire (1 uma/e), soit un rapport  $\frac{m}{n} = 1$ . Cette unité (uma/e) est utilisée pour tracer le spectre, comme illustré à la Figure 2.5.

L'identification des autres éléments peut ensuite être réalisée. Par exemple, un pic situé à  $\frac{m}{n} = 4$  correspondra vraisemblablement à un atome d'hélium ionisé une fois ( $^4\text{He}^+$ ). Toutefois, certains pics peuvent se superposer, rendant leur interprétation plus complexe.

Au final, pour chaque ion détecté, le système peut attribuer un élément chimique, son état de charge, et son numéro atomique, permettant ainsi une reconstruction chimique tridimensionnelle de l'échantillon analysé.

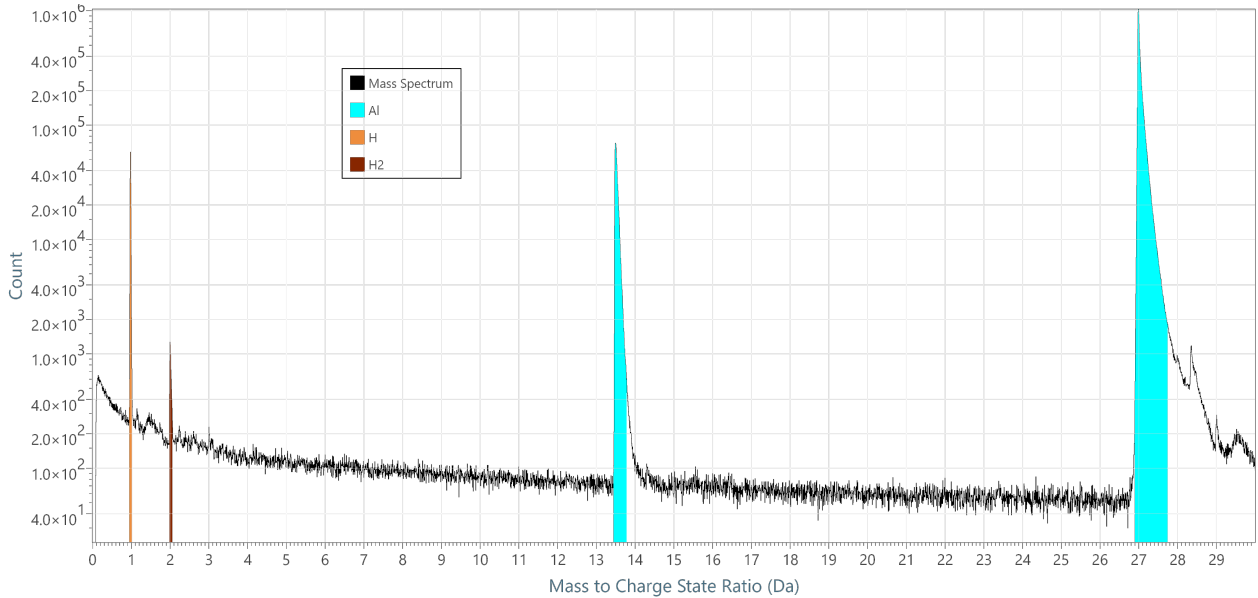


FIGURE 2.5 Spectre de masse d'un échantillon d'aluminium analysé par APT

### 2.4.2 Reconstruction spatiale

L'autre étape essentielle de la reconstruction consiste à déterminer la position spatiale de chaque atome à partir des coordonnées détecteur  $D_x$  et  $D_y$ . Le premier protocole de reconstruction a été proposé par Bas et al. en 1995 [3], et il constitue encore aujourd'hui la base des algorithmes de reconstruction en microscopie à AP [37–40].

Par convention, l'axe  $z$  est défini comme étant aligné avec l'axe principal de la pointe. Les axes  $x$  et  $y$  sont choisis de manière à former un repère orthonormé, en correspondance directe avec les coordonnées  $D_x$  et  $D_y$  du détecteur (voir Figure 2.6).

Le calcul des coordonnées  $(x, y)$  à partir des positions détecteur est indépendant du calcul de la coordonnée  $z$ , qui est déterminée séparément à partir de la séquence d'évaporation des ions.

### Coordonnées X et Y

La position initiale d'un atome dans le plan  $(x, y)$  peut être déduite à partir de la position de son impact sur le détecteur, en exploitant la propriété décrite précédemment concernant l'ICF. En effet, chaque position détectée correspond de manière bijective à un angle d'émission, ce qui permet de remonter à la position d'origine à la surface de la pointe.

Pour déterminer les coordonnées  $(x, y)$ , on utilise le facteur de grossissement  $G_0$ , qui est

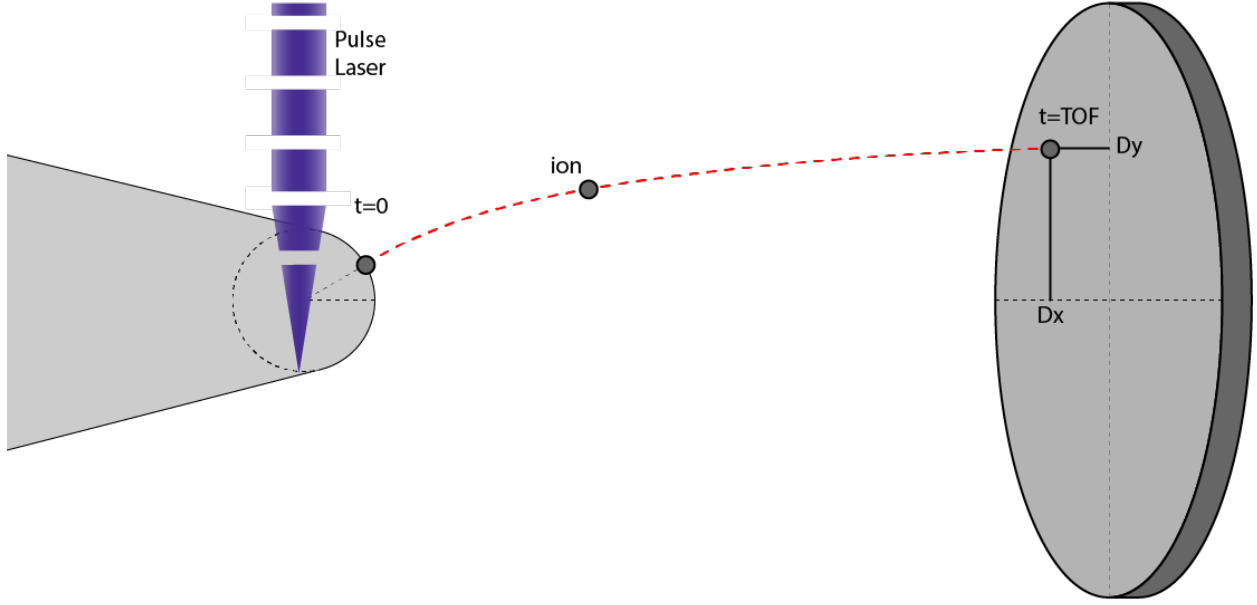


FIGURE 2.6 Schéma de la trajectoire d'un ion entre l'excitation par un pulse laser et l'impact sur le détecteur.

directement lié à l'ICF. Il est défini par la relation suivante :

$$G_0 = \frac{L + \xi R}{\xi R} \approx \frac{L}{\xi R} \quad (2.6)$$

où  $\xi$  est l'ICF,  $L$  la distance pointe-détecteur, et  $R$  le rayon de courbure de la pointe au moment de l'évaporation [3].

Les coordonnées spatiales dans le plan sont ensuite calculées à partir des coordonnées détecteur  $(D_x, D_y)$  selon :

$$x = \frac{D_x}{G_0} \quad (2.7)$$

$$y = \frac{D_y}{G_0} \quad (2.8)$$

On remarque que cette transformation dépend des paramètres  $L$  et  $R$ . Le paramètre  $L$  est généralement considéré comme constant, car la variation de la taille de la pointe reste négligeable face à la distance totale pointe-détecteur. En revanche, le rayon  $R$  évolue tout au long de la mesure. Sa variation est estimée à l'aide des méthodes décrites précédemment, notamment par l'utilisation de l'angle  $\alpha$  ou d'approches géométriques issues de la topographie de la pointe.

## Coordonnée Z

Les coordonnées bidimensionnelles issues du détecteur ne permettent pas, à elles seules, d'obtenir l'information tridimensionnelle nécessaire à la reconstruction tomographique complète. En particulier, la coordonnée  $z$  de chaque ion ne peut pas être directement mesurée. Pour cela, il est nécessaire d'utiliser un modèle de reconstruction basé sur une hypothèse géométrique concernant la forme de la pointe.

On suppose que l'extrémité de la pointe présente une forme hémisphérique, dont le rayon  $R$  est connu et évolue au cours de la mesure, comme décrit dans la section relative à l'angle de la pointe. En se basant sur cette forme idéale, la reconstruction dans la direction  $z$  repose sur deux composantes principales.

### Composante liée à l'ordre d'évaporation

La première contribution à la coordonnée  $z$  provient de l'ordre d'évaporation des ions. On considère que chaque ion évaporé successivement occupe un volume élémentaire  $\Omega$ , qui doit être réparti uniformément sur la surface active disponible  $S_a$ . On suppose ainsi que l'évaporation progresse couche par couche.

La profondeur est initialisée à  $z = 0$  pour le premier ion. Pour chaque ion suivant, on incrémente la profondeur  $z$  d'une valeur  $dz$  donnée par :

$$dz = \frac{\Omega}{\eta S_a} \quad (2.9)$$

où  $\eta$  est le taux de détection de la machine (typiquement autour de 0,8), et  $S_a$  représente la surface active d'évaporation, supposée circulaire :

$$S_a = \pi R^2 \quad (2.10)$$

Ainsi, à chaque ion évaporé, on ajoute une hauteur proportionnelle à son volume, corrigée par la surface d'évaporation et l'efficacité de détection.

### Composante liée à la courbure de la pointe

La seconde contribution à la coordonnée  $z$  tient compte de la forme sphérique de l'extrémité de la pointe. Pour chaque position  $(x, y)$ , on corrige la coordonnée  $z$  par :

$$dz' = R \left( 1 - \sqrt{1 - \frac{x^2 + y^2}{R^2}} \right) \quad (2.11)$$

Cette expression permet de repositionner les atomes sur une surface sphérique, en cohérence

avec la géométrie initiale de la pointe.

### Formule finale

En combinant ces deux contributions, la coordonnée finale  $z$  de chaque ion est donnée par :

$$z = dz' + \sum_{i=1}^n dz_i \quad (2.12)$$

### 2.4.3 Données obtenues

En combinant les coordonnées calculées  $(x, y, z)$  avec l'identification chimique de chaque ion, il devient possible de reconstruire une image tridimensionnelle de la pointe, comme illustré dans la Figure 2.7. L'ensemble de cette méthode est connu sous le nom de tomographie par sonde atomique. La décomposition en élément est la première chose à regarder une fois la reconstruction terminée. Il est possible de voir la composition de chaque élément dans le matériau. On peut ainsi identifier la distribution relative de chaque élément. Ces informations renseignent sur la présence de défauts, de diffusion de dopants, de tailles de couches, ... [10].

Il est possible d'obtenir de nombreuses informations sur les structures nanoscopiques, telles que les nano-inclusions ou les couches minces, grâce à cette technique. Elle fournit des données précieuses pour la caractérisation des matériaux et connaît aujourd'hui un essor considérable dans le domaine de la recherche en science des matériaux.

## 2.5 Structure cristalline dans les mesures APT

Lors de l'application d'un champ électrique, la séquence d'évaporation des ions dépend à la fois de la force d'adhésion des atomes au sein du matériau et du champ local appliqué à leur position. En début de mesure, la forme de la pointe n'est généralement pas parfaitement circulaire, ce qui entraîne des variations du champ local selon les zones de la surface. Ce sont les ions soumis au champ le plus élevé qui ont le plus de chances de s'évaporer en premier. Lorsque le champ devient plus homogène sur l'ensemble de la pointe, ce sont principalement les forces de cohésion atomique qui déterminent l'ordre d'évaporation. On observe alors une évaporation par couches atomiques, avec une répétition périodique du motif d'évaporation tout au long de la mesure. De nombreuses études ont été réalisées sur le sujet [41–44], notamment au moyen de simulations, afin de mieux comprendre les phénomènes d'émission observés lors des mesures en APT.

Dans le cas d'un matériau cristallin, les forces d'interaction entre les atomes varient selon la direction cristallographique. Cela dépend de l'agencement des plans, comme illustré à la

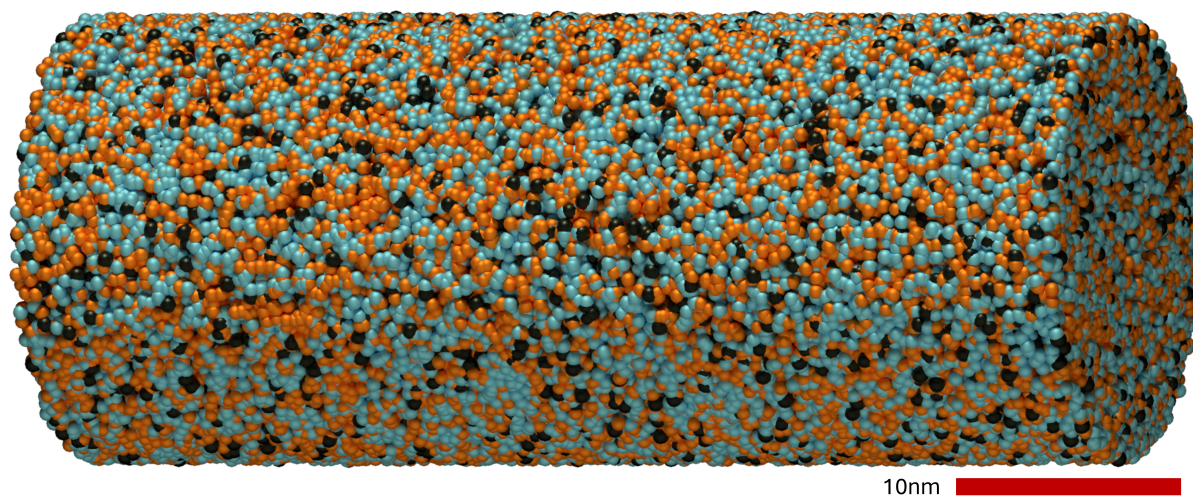


FIGURE 2.7 Reconstruction 3D d'un volume de CdZnTe obtenue par APT : Cd (orange), Te (bleu), Zn (noir)

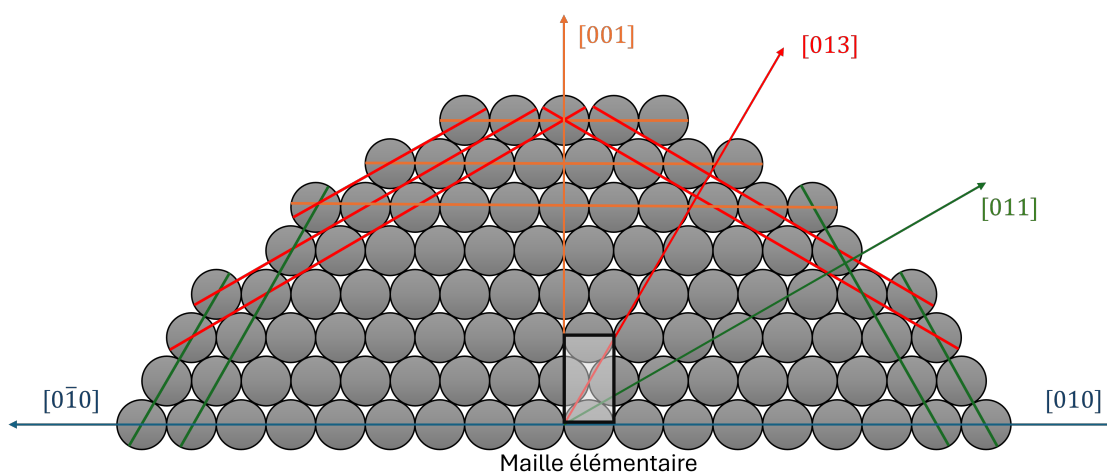


FIGURE 2.8 Illustration des plans atomiques dans une structure cristalline 2D

figure 2.8. En effet, les atomes organisés selon les plans cristallins possèdent une énergie de liaison plus élevée que les autres atomes. À l'inverse, ceux situés en bordure de ces plans présentent une énergie de liaison plus faible que ceux au centre. Ce phénomène entraîne une évaporation non uniforme (Figure 2.9b), ce qui empêche la pointe d'avoir une forme parfaitement circulaire et conduit à la formation de plateaux au niveau des plans, comme le montre la figure 2.8.

## 2.6 Carte de densité

La carte de densité est la visualisation la plus utilisée dans l'analyse APT après la reconstruction. Elle représente la répartition du nombre d'atomes détectés par zones du détecteur. Les atomes reçus peuvent être mesurés par l'un des plusieurs millions de pixels du détecteur. Pour des mesures standards, le nombre d'atomes détectés par pixel varie généralement de quelques unités à quelques dizaines. Une image de plusieurs millions de pixels avec une échelle allant de 0 à  $n_{max}$  ne permet pas une bonne représentation visuelle des données.

Nous préférons donc utiliser une grille de  $n \times m$  pixels, dans laquelle chaque pixel agrège le nombre total d'atomes détectés dans les pixels correspondants du détecteur. Cette méthode permet d'obtenir une carte de densité plus lisible, comme illustrée à la Figure 2.10.

Cette carte correspond à une mesure effectuée sur un échantillon d'aluminium. Elle permet de constater que la répartition de la densité atomique n'est pas homogène sur l'ensemble du détecteur. On observe également que les défauts de densité présentent une organisation structurée, marquée par des symétries.

Ces symétries reflètent celles du réseau cristallin de l'aluminium, et chaque zone de faible densité correspond à un pôle cristallin.

La figure 2.9 illustre la différence de distribution en deux dimensions observée entre un matériau cristallin et un matériau amorphe. On constate que la présence d'une structure cristalline entraîne une déplétion d'atomes au centre des pôles, tandis que, dans le cas d'un matériau amorphe, la densité atomique est homogène.

Pour les matériaux présentant des pôles cristallographiques visibles, il est possible d'identifier chacun d'eux en s'appuyant sur les propriétés de symétrie du réseau cristallin. Comme illustré à la Figure 2.10, la disposition des pôles observée correspond étroitement à la projection stéréographique d'une structure cristalline cubique à faces centrées (CFC).

La Figure 2.11 présente une carte de densité issue d'une mesure d'aluminium, sur laquelle a été superposée la projection théorique des directions cristallographiques attendues pour

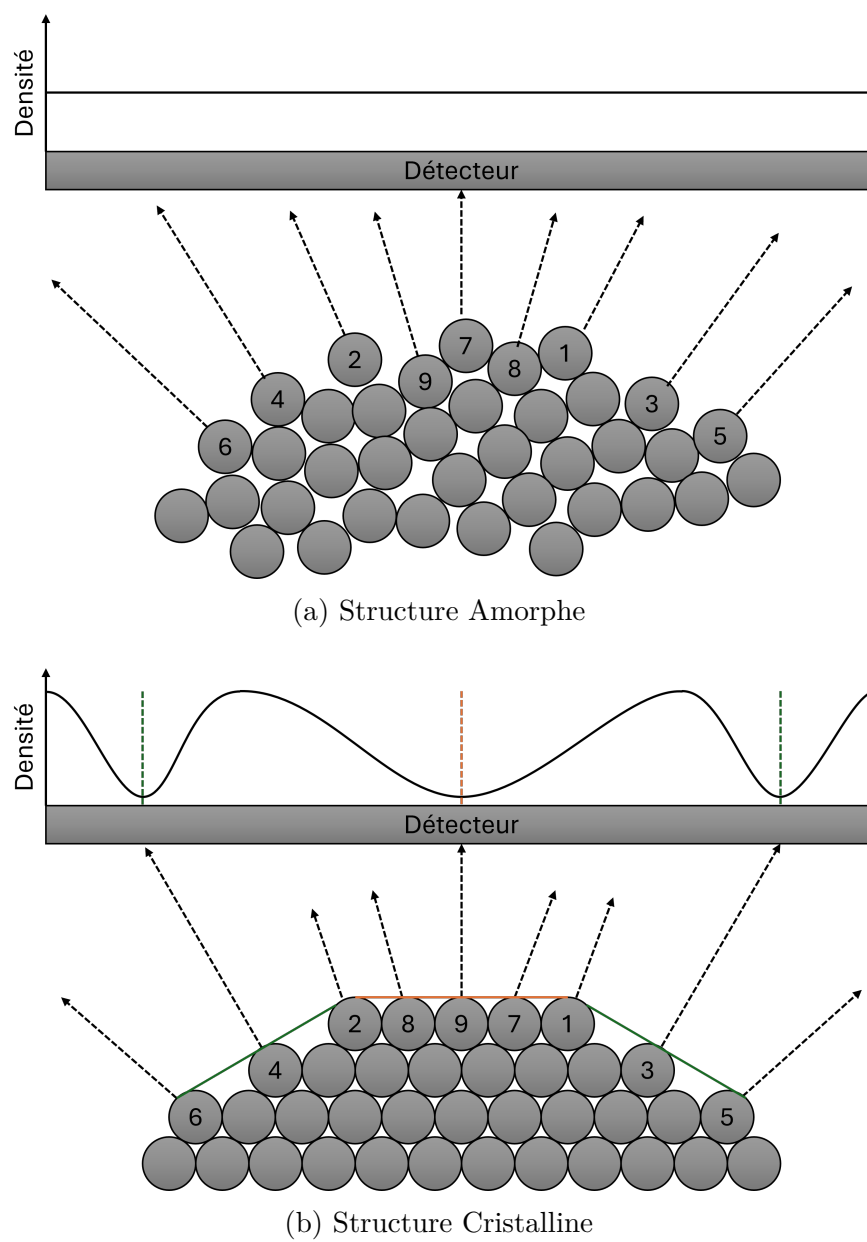


FIGURE 2.9 Répartition des atomes observés sur le détecteur selon la structure du cristal avec la séquence d'évaporation

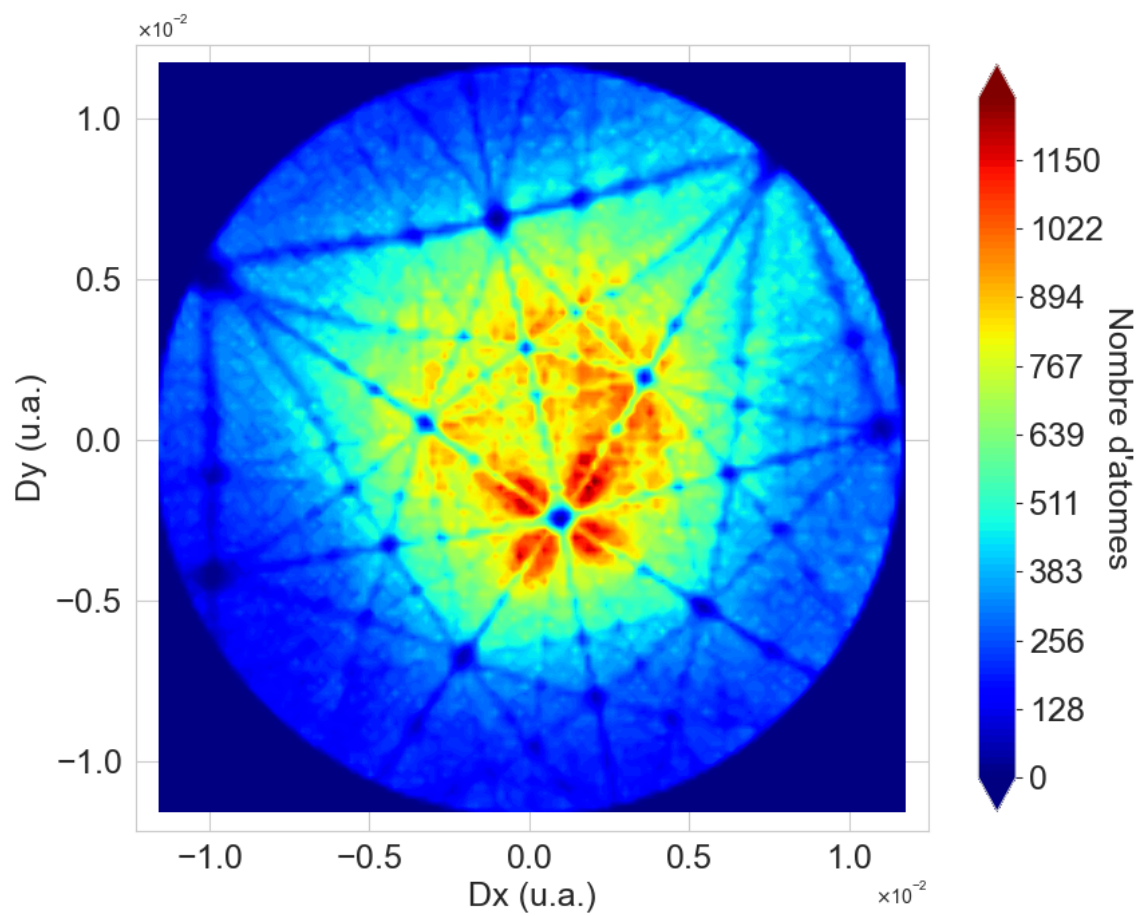


FIGURE 2.10 Carte de densité d'un échantillon d'aluminium par APT

cette structure. Cette correspondance permet d'identifier les pôles et de valider l'orientation cristallographique de l'échantillon reconstruit.

## 2.7 Structure de plan dans le volume

Un autre effet de la séquence d'évaporation a été observé dans les mesures APT, cette fois-ci dans les données reconstruites en 3D. En effet, il a été constaté que des résidus de plans atomiques sont visibles dans le volume reconstruit [4–6]. Ces traces de plans cristallins contiennent des informations précieuses, utiles pour améliorer la reconstruction et la calibration des données. Cette propriété a été exploitée au cours des dernières années par S. Koelling, et j'ai eu l'occasion de participer au développement de techniques numériques associées. L'objectif de cette maîtrise est précisément d'extraire un maximum d'informations à partir de ces résidus de structure cristalline et de développer des méthodes permettant d'optimiser la reconstruction et la calibration des volumes atomiques obtenus par sonde atomique tomographique.

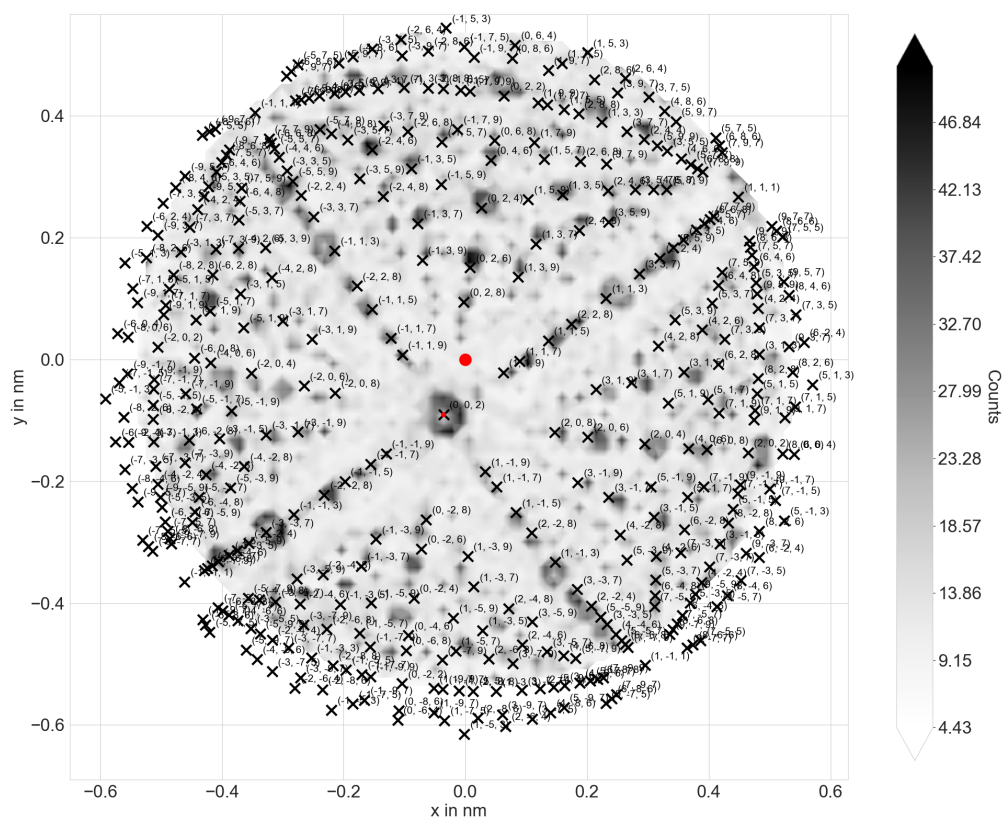


FIGURE 2.11 Projection azyimuthal sur la carte de densité de l'Aluminium

## CHAPITRE 3 CARACTÉRISTIQUES DE LA TOMOGRAPHIE À LARGE CHAMP DE VISION

La tomographie à large champ de vision est une nouvelle technologie permettant d’observer une plus grande partie de l’échantillon. Cela a pour but d’améliorer l’observation des structures nanoscopiques et de moyenner sur plus de volumes les caractéristiques observées du matériau. La machine INVIZO 6000 est la dernière génération de système de tomographie par sonde atomique et c’est la seule qui possède ce système à champ de vision large. Cette machine est actuellement installée dans les locaux de Polytechnique Montréal. Depuis son installation en 2024, de nombreuses mesures ont été effectuées sur cette machine. Au cours de son utilisation, nous avons observé les nouvelles capacités disponibles, mais également les problématiques ajoutées par ce changement de technologie.

Tout d’abord, nous allons expliquer les nouveaux composants de la technologie INVIZO.

### 3.1 Composant de la machine

La machine INVIZO est développée par l’entreprise CAMECA. Le fait qu’elle soit produite par une entreprise limite les connaissances sur les composants aux communications que l’entreprise nous a fournies à ce sujet. En effet, tous les composants ne sont pas expliqués en détail, ce qui rend l’analyse compliquée. Un partenariat nous a permis d’avoir plus d’informations pour compléter notre analyse. Voici l’ensemble des informations que nous avons pu obtenir à la lumière de nos expériences et des informations qui nous ont été communiquées.

#### 3.1.1 Laser

Le premier atom probe à laser, développé par Tsong, utilisait une longueur d’onde dans l’ultraviolet (UV) de 337 nm [45]. Par la suite, les systèmes LEAP ont initialement adopté un laser vert de 532 nm, principalement pour des raisons de stabilité [46]. Dans les versions ultérieures, un laser UV de 355 nm a été privilégié, car la réduction de la longueur d’onde permettait d’améliorer le pouvoir de résolution en masse (MRP) [47].

Le système INVIZO, plus récent, utilise un laser dans les UV profonds à 257.5 nm, ce qui permet une amélioration supplémentaire du MRP [48].

Les systèmes LEAP disposent d’un faisceau laser unique, ce qui entraîne un échauffement non homogène de la pointe. Il a été démontré qu’une telle inhomogénéité thermique induit une diminution de la résolution spatiale [49]. Le système INVIZO corrige cet effet grâce à un

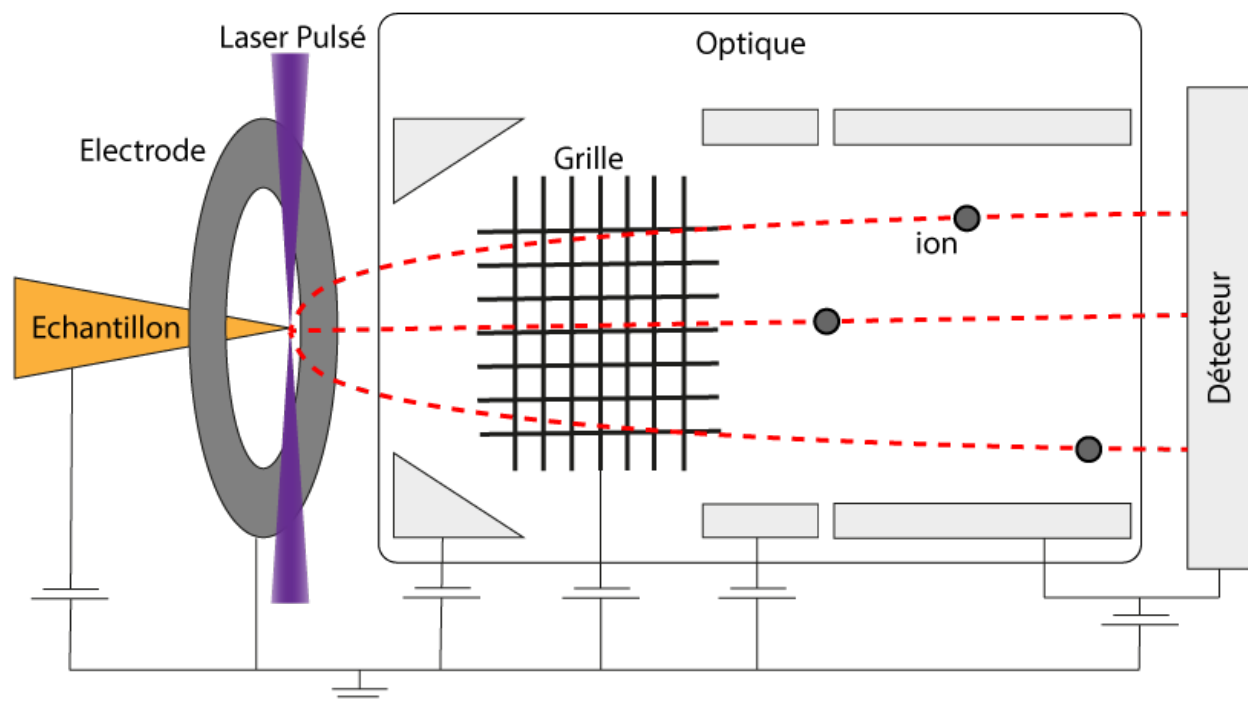


FIGURE 3.1 Schéma des composants de la machine INVIZO 6000. La trajectoire des ions dans le système est représentée en rouge.

agencement optique particulier : le faisceau laser est divisé en deux, puis redirigé symétriquement de part et d'autre de la pointe à l'aide de miroirs. Cette configuration permet une évaporation plus homogène des atomes.

Cependant, cette architecture optique plus complexe nécessite une calibration fine. L'outil de calibration n'étant pas parfaitement fiable, il peut arriver que le point focal du laser ne soit plus centré sur la pointe. Malgré cette complexité accrue, ces améliorations représentent une avancée prometteuse pour l'avenir de la sonde atomique.

### 3.1.2 Electrode

Dans le système INVIZO, l'électrode est plate avec un trou en son centre. Contrairement au LEAP où elle est de forme conique. Ce changement pourrait être dû à l'apparition du système optique et à la nécessité de changer la forme de l'électrode pour participer au système optique. Le fait que l'électrode soit plate implique qu'il est impossible de charger plusieurs pointes à la fois comme il est possible dans le système LEAP. Le chargement de matrice de pointes est utilisé principalement dans les systèmes industriels pour vérifier beaucoup de zones du matériau à la fois. L'électrode peut désormais être changée plus facilement en cas

de problème d'opération.

### 3.1.3 Système optique

Le système optique est la plus grande boîte noire de cette machine. En effet, elle n'est pas visible par l'utilisateur, on sait seulement que le système est à l'intérieur. Le système a été breveté [7] et la Figure 3.1 montre ce qu'il est possible d'avoir à l'intérieur de la machine. Ni la géométrie des pièces, ni les tensions appliquées ne sont fournies. Il est établi que cette partie contribue de manière significative à l'efficacité de la machine. En effet, selon le brevet, les ions qui n'étaient pas détectés avec la technologie LEAP sont redirigés vers le détecteur grâce à cet élément optique. Celui-ci est constitué d'un agencement complexe d'électrodes, numérotées 1008, 120, 130, 120 et 110 dans le schéma du brevet. L'ensemble de ces électrodes permet de moduler la direction et la vitesse des ions émis. Étant donné que le détecteur possède des limites physiques, il ne peut collecter tous les ions émis dans toutes les directions. Le principe de cette optique est donc de faire converger les ions vers le centre du détecteur, afin d'augmenter la quantité d'ions détectés.

La Figure 3.2 illustre schématiquement la différence de trajectoire des électrons induite par l'ajout du système optique. Les rayons orange sont détectés dans les deux configurations, mais dans le système INVIZO, ils sont recentrés vers le milieu du détecteur. Les rayons verts, dont la trajectoire est directe dans le système LEAP, manqueraient le détecteur ; cependant, dans le système INVIZO, ils sont redirigés et détectés grâce au système optique. Enfin, les rayons noirs ne sont pas détectés dans la configuration LEAP ni dans celle de l'INVIZO.

L'ajout de cet élément optique permet de couvrir une plage angulaire plus large. La variation du champ de vision entre les deux systèmes sera quantifiée dans la section dédiée aux résultats.

### 3.1.4 Détecteur

Le détecteur est l'élément ayant le moins évolué. Il est toujours composé d'un système à microcanaux couplé à un scintillateur. Nous avons analysé la distribution des pixels sur le détecteur ainsi que leur nombre total. La Figure 3.3 présente le nombre de détections enregistrées par chaque pixel dans deux régions différentes du détecteur.

Chaque point de couleur correspond à un pixel du détecteur. Bien que chaque pixel couvre une surface plus large que celle représentée dans la Figure, la position d'impact d'un ion est enregistrée comme étant celle du centre du pixel. Le détecteur comporte 2,78 millions de pixels, ce qui confère une résolution angulaire élevée.

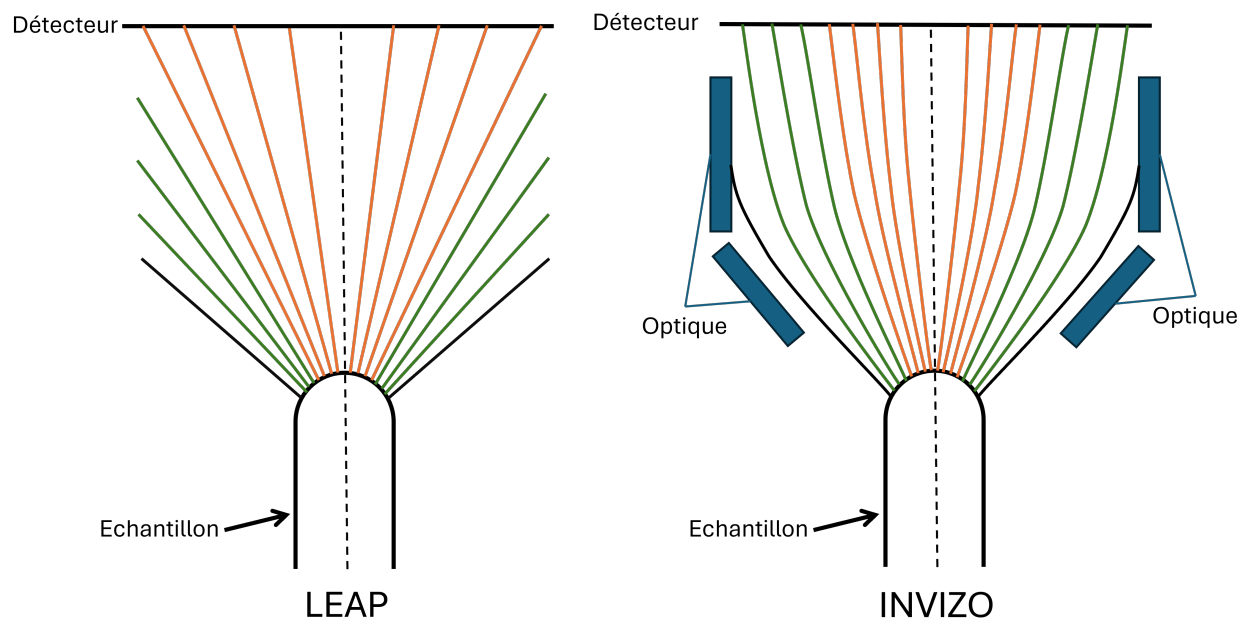
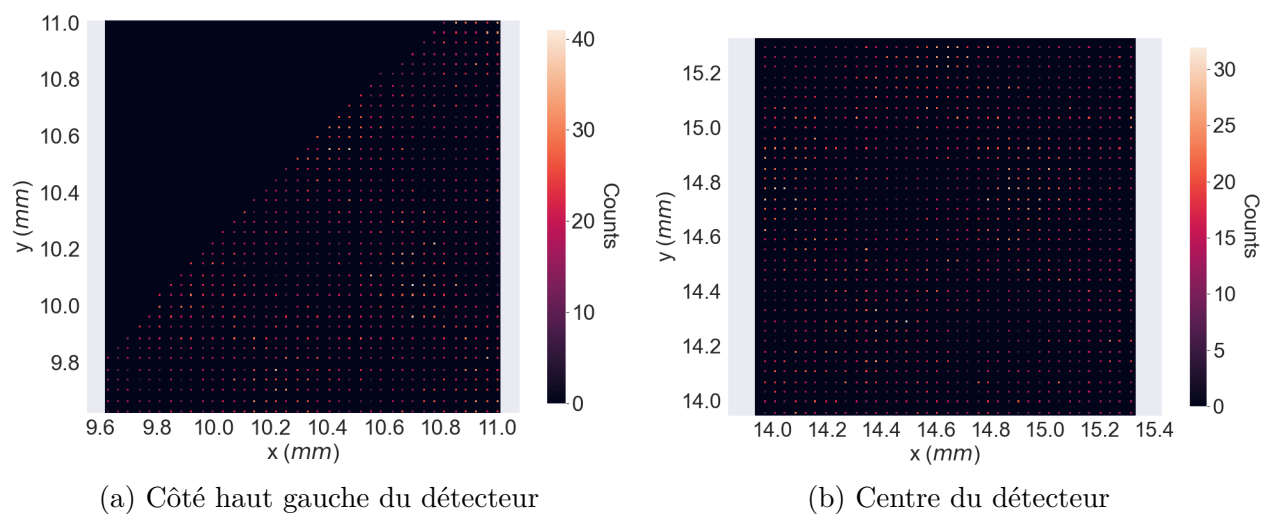


FIGURE 3.2 Différence de chemin optique entre les système LEAP et INVIZO



(a) Côté haut gauche du détecteur

(b) Centre du détecteur

FIGURE 3.3 Nombre de détections pour sur chaque pixel du détecteur

### 3.2 Expérimentation

Après deux ans d'utilisation, plus de 1000 mesures ont été effectuées avec l'INVIZO 6000. De nombreux types d'échantillons ont été analysés, et différentes techniques de préparation ont été développées. Certaines se sont révélées plus utiles que d'autres dans le cadre de ce projet.

### 3.2.1 Types de mesures effectuées

Le laboratoire se spécialise dans les semi-conducteurs, qui constituent donc la majorité des échantillons analysés. Cela comprend : des substrats en silicium, des puits quantiques à base de germanium, des détecteurs infrarouges en germanium-étain, des nanofils de germanium, etc. Une grande partie de ces échantillons sont des matériaux cristallins, dont les mesures ont été particulièrement utiles pour les résultats présentés dans ce mémoire.

Les pointes en aluminium sont utilisées pour la calibration de la machine ; de nombreuses mesures ont ainsi été réalisées avec ce matériau. Ces pointes, en aluminium monocristallin, présentent une structure avec de nombreux pôles visibles lors de l'évaporation, ce qui en fait un excellent choix pour l'analyse et la calibration. Le tungstène possède des propriétés similaires, mais les mesures que nous avons effectuées avec ce matériau se sont révélées moins prometteuses pour l'analyse.

Des matériaux organiques ont également été testés. Cependant, en raison de leur structure poreuse et désordonnée, les mesures obtenues ne sont ni reproductibles ni stables. Ces matériaux ne seront donc pas retenus pour l'analyse de la machine, bien qu'ils aient permis de mieux cerner certaines limites d'utilisation.

### 3.2.2 Préparation des pointes

Les matériaux réagissent différemment dans la sonde atomique, et leur préparation doit être adaptée en conséquence pour obtenir les meilleurs résultats possibles. Au cours des campagnes de mesure, certaines méthodes spécifiques ont été développées pour stabiliser les matériaux et produire des résultats exploitables.

La procédure standard, telle que présentée dans la revue de littérature, repose sur l'utilisation du FIB. Celui-ci permet de façonner les pointes, mais aussi de déposer des couches de protection. C'est la technique privilégiée pour les matériaux semi-conducteurs. Cependant, il reste nécessaire de s'adapter à chaque matériau pour choisir le bon métal de protection et ajuster son épaisseur.

Les métaux sont les plus simples à analyser du fait de leur structure très stable. Les pointes en aluminium utilisées pour la calibration sont fournies par le fabricant de la machine. Elles sont constituées uniquement d'aluminium, sans couche de protection. Pour le tungstène, nous avons utilisé une méthode de gravure électrochimique, suivie d'un affinement au FIB.

### 3.3 Reconstruction avec IVAS 6

IVAS est un logiciel fourni par CAMECA permettant la reconstruction de la pointe à partir des fichiers de sortie générés par l'ensemble des systèmes de sonde atomique. Ces fichiers contiennent toutes les données brutes enregistrées par les différentes sondes de la machine. IVAS permet de lire l'intégralité de ces données et d'en proposer des représentations visuelles pertinentes.

Ce logiciel dispose d'une interface utilisateur qui facilite la visualisation des différentes étapes de reconstruction ainsi que les calibrations nécessaires. De nombreux paramètres peuvent être ajustés afin d'optimiser la qualité de la reconstruction. En suivant ces étapes, et grâce aux équations pré-intégrées dans le logiciel, une reconstruction 3D de la pointe peut être obtenue. Ces étapes permettent également d'obtenir de nombreuses informations sur l'échantillon et le déroulement de l'expérience, constituant ainsi une première phase essentielle de l'analyse des données APT.

Notre laboratoire dispose d'une bibliothèque logicielle qui permet de reproduire les étapes de reconstruction effectuées par IVAS, tout en offrant un contrôle plus poussé sur les différents paramètres. Toutefois, il est indispensable de pouvoir récupérer les données dans un format lisible par notre programme. IVAS permet justement de générer des fichiers exploitables par notre bibliothèque pour des analyses complémentaires.

Avec l'arrivée de la version 6 d'IVAS, le format des fichiers générés a évolué. Ils sont désormais plus versatiles et peuvent contenir davantage d'informations. Cette évolution facilite l'analyse de notre côté et enrichit les possibilités d'exploration des données expérimentales.

### 3.4 Méthodologie

La sonde atomique à large champ de vision, intégrant un système optique inédit, constitue une première dans ce domaine. Elle ouvre la voie à de nouvelles possibilités pour l'étude des matériaux, tant en termes d'acquisition que d'interprétation des données.

L'objectif de cette étude est double : dans un premier temps, il s'agit de caractériser précisément le fonctionnement de l'INVIZO 6000. Dans un second temps, en s'appuyant sur cette avancée technologique, nous développons de nouveaux outils d'analyse permettant d'extraire une information plus riche à partir des données brutes. Ces outils ont pour vocation de mieux cerner les limites instrumentales, d'optimiser la calibration, et d'améliorer la qualité des reconstructions.

### 3.4.1 Observation initiale des résultats

La première phase consiste à observer les données générées à l'aide des outils de visualisation fournis avec le système. Ce logiciel permet une exploration des mesures sous différents angles et perspectives, et constitue une base essentielle pour une évaluation qualitative des résultats. L'objectif principal est d'identifier les effets concrets des améliorations instrumentales sur la qualité des reconstructions. Une attention particulière est également portée à la détection des limites du système. En collectant un ensemble varié d'observations, nous cherchons à comprendre jusqu'à quel point les données peuvent être interprétées de manière physiquement cohérente au regard des caractéristiques techniques de la machine.

### 3.4.2 Extraction de nouvelles informations structurelles

Nous avons ensuite décidé d'exploiter l'avantage offert par le large champ de vision pour effectuer de la détection de structures cristallines. Le fait d'observer une zone plus étendue du matériau implique qu'un plus grand nombre de pôles cristallins sont visibles sur le détecteur. Ce changement est loin d'être négligeable, car la relation entre la structure cristalline du matériau et les observations réalisées par la sonde atomique fournit des informations particulièrement intéressantes.

Dans le cas d'une utilisation standard, il est possible de déterminer la structure cristalline du matériau en analysant les motifs observés sur le détecteur, comme présenté dans la revue de littérature. Cependant, ici, grâce au large FOV, cette analyse gagne en précision. Un autre avantage important est la possibilité de calibrer la machine à partir d'une structure connue. Nous avons essentiellement exploité cette approche pour caractériser l'instrument en utilisant des pointes en aluminium, matériau dont le nombre de pôles visibles est particulièrement élevé. Dans notre cas, le FOV élargi fournit encore plus d'informations exploitables.

Par ailleurs, nous avons observé dans les données que des arrangements de plans atomiques deviennent visibles au niveau des pôles. Nous souhaitons tirer parti de ces informations pour extraire automatiquement la position des pôles ainsi que les distances interplanaires associées. Une fois collectées, ces informations pourront être utilisées à la fois pour approfondir notre compréhension du fonctionnement de la sonde atomique, pour améliorer les procédures de calibration et pour optimiser le processus de reconstruction.

### 3.4.3 Analyses avancées basées sur les données extraites

La troisième partie de notre méthodologie consiste à exploiter les informations précédemment obtenues pour réaliser de nouvelles analyses. L'utilisation d'échantillons en aluminium

est toujours pertinente, car connaître le matériau permet de déduire le fonctionnement de la machine.

Après avoir examiné les résultats à l'aide du logiciel de visualisation, nous avons constaté que certaines couches supposées planes présentent une déformation notable selon l'axe  $z$ . Nous avons donc analysé plus en détail la fiabilité des distances reconstruites dans cette direction, en nous appuyant sur les distances interplanaires extraites à l'aide de notre algorithme. Cette analyse nous a permis de découvrir qu'il est également possible, à partir des données obtenues, d'estimer l'angle de la pointe.

Nous avons également cherché à évaluer l'impact de l'optique sur les trajectoires. Pour ce faire, nous avons comparé les positions mesurées avec celles issues d'une projection théorique. Cela permet de vérifier si l'équation de correction qui y est utilisée pour corriger les déviations générées par l'optique est correcte.

Grâce aux nouvelles informations, il est également possible de calculer le centre de reconstruction, un paramètre de référence essentiel dans le processus de reconstruction. Cet ajout est loin d'être négligeable, car il pourra contribuer à améliorer la reconstruction de tout matériau cristallin.

## CHAPITRE 4 RÉSULTATS THÉORIQUES ET EXPÉRIMENTAUX

L'APT est une technique en constante évolution, dont chaque amélioration permet d'accéder à des informations toujours plus riches sur les matériaux. Ces avancées sont d'abord matérielles, comme le démontre le système INVIZO, qui intègre un nouveau dispositif optique augmentant notamment le FOV. Toutefois, l'acquisition de données plus étendues ou plus complexes n'a de réelle valeur que si la reconstruction spatiale est suffisamment fidèle à la réalité atomique du matériau.

Sur le plan mathématique, la reconstruction peut être considérée comme une fonction inverse : elle associe à chaque impact détecté la position initiale de l'atome dans l'échantillon. L'introduction de nouvelles interactions physiques, issues des évolutions instrumentales, complexifie ce processus. Il devient alors nécessaire de faire évoluer le modèle de reconstruction afin de garantir la cohérence des résultats.

Il est essentiel de garder à l'esprit que la reconstruction APT ne cherche pas à atteindre une précision absolue à l'échelle de l'angström pour chaque atome. Son objectif est plutôt d'offrir une cartographie fidèle de la distribution des éléments et de la géométrie des structures à l'échelle nanoscopique. Une reconstruction de qualité est donc celle qui conserve au mieux les positions relatives des atomes. Nous allons dans ce chapitre analyser la reconstruction des données de l'INVIZO.

Ce chapitre est structuré avec les sections suivantes :

- Analyse initiale des données INVIZO reconstruites à l'aide du logiciel IVAS 6, afin d'identifier les apports du nouveau système mais aussi ses limites.
- Adaptation de notre outil de reconstruction, développé au sein du laboratoire, pour prendre en compte les spécificités du système INVIZO.
- Développement d'une méthode par transformée de Fourier, permettant d'identifier les plans cristallins et d'évaluer les distances interplanaires.
- Vérification de la conservation des longueurs suivant la direction  $z$  dans la reconstruction.
- Évaluation des distorsions géométriques suivant  $xy$  associé à l'insertion de l'optique dans la machine.
- Développement d'un algorithme pour obtenir le centre de reconstruction de la mesure.

Cette approche nous permettra de développer une méthode d'analyse des données, mieux adaptée aux données issues des systèmes APT de nouvelle génération.

## 4.1 Observation avec IVAS

Le logiciel IVAS, présenté dans la partie précédente, est la première étape du processus d'analyse de données APT. Ce logiciel permet de reconstruire rapidement la structure du matériau à partir des données collectées, en ajustant quelques paramètres clés. Il est utilisé pour traiter les données issues aussi bien des machines LEAP que du système INVIZO. L'une des améliorations majeures attendues avec le système INVIZO est l'extension du FOV, que nous avons comparée à celui du LEAP.

### 4.1.1 Champs de vision

La différence attendue entre les systèmes LEAP et INVIZO concerne le FOV comme présenté dans la section 3.1.4. Le FOV correspond à la plage angulaire observable par la machine. En effet, les limites de détection de la machine sont déterminées non pas par un volume maximal d'atomes, mais par l'angle d'émission maximal dont la trajectoire sera sur le détecteur. Pour un FOV identique, un échantillon dont le diamètre est plus grand permettra d'observer un plus grand nombre d'atomes. Le nombre d'atomes ne permet donc pas d'évaluer le FOV.

Pour évaluer le FOV, il est nécessaire de disposer de repères angulaires d'émission sur le matériau, permettant de déterminer la plage d'angle observé sur le détecteur. Cette analyse s'appuie sur l'utilisation de matériaux cristallins qui, au niveau des directions cristallines, vont présenter un défaut de masse sur le détecteur (Section 2.5). Il est donc possible de vérifier quel angle du cristal est observé sur le détecteur. Pour un matériau dont les paramètres de maille sont connus il est donc possible de calculer les angles relatifs entre les directions cristallines. Nous allons donc utiliser un matériau connu possédant un grand nombre de pôles visibles pour faire cette analyse, l'aluminium.

La carte de densité, représentant la répartition des impacts d'ions sur le détecteur, permet ainsi de visualiser la plage angulaire couverte par la machine. La Figure 4.1 présente une superposition d'une mesure LEAP et INVIZO de l'aluminium. Pour cette superposition, nous avons choisi des mesures dont la position du pôle central (002) par rapport au centre du détecteur est similaire. Nous avons également orienté et proportionné les cartes pour superposer tous les pôles des 2 mesures.

On constate, à l'aide de l'alignement, une augmentation significative du FOV. Sur la mesure réalisée avec le système LEAP, de nombreux pôles peuvent être identifiés en comparant le motif obtenu à une projection stéréographique de l'aluminium. En sélectionnant arbitrairement l'une des quatre orientations possibles de cette projection, on observe que les plans  $\bar{1}\bar{1}3$  et 224 apparaissent aux extrémités du détecteur LEAP.

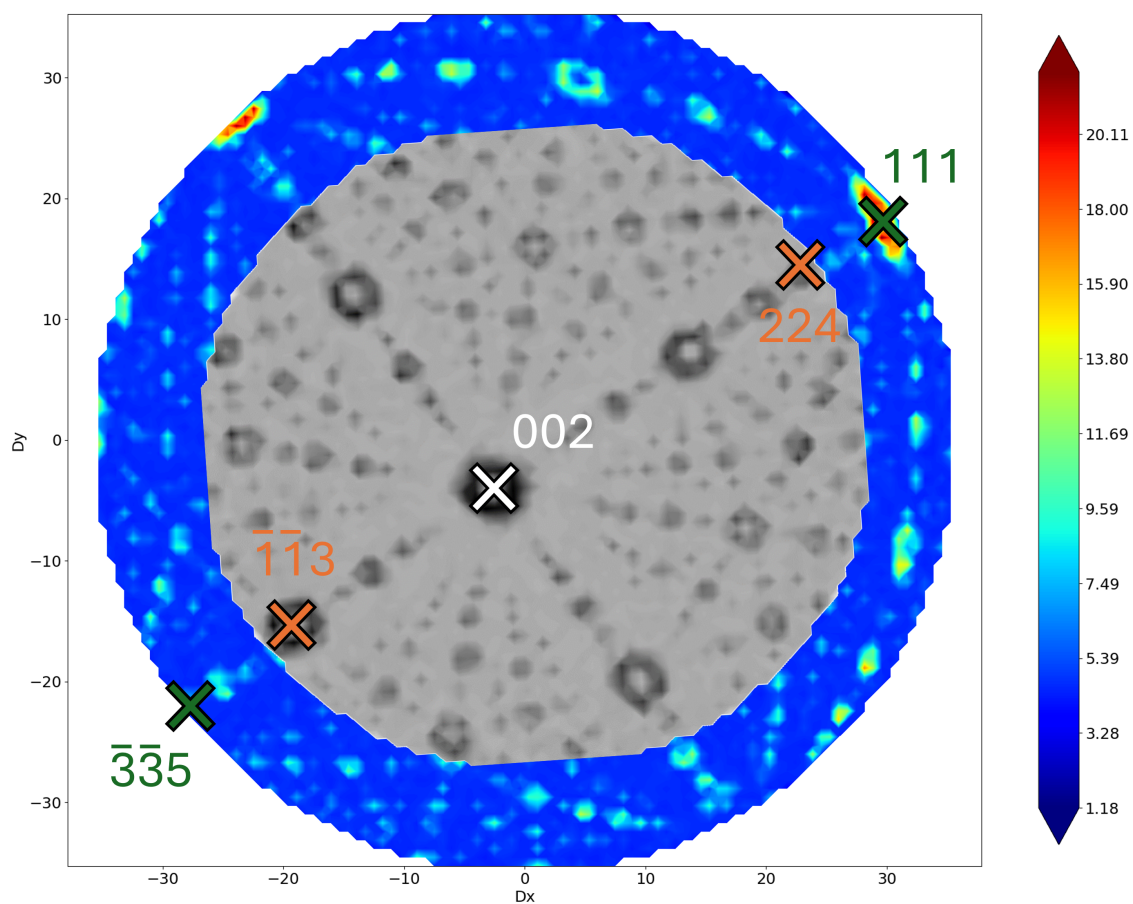


FIGURE 4.1 Superposition des cartes de densité obtenues avec les systèmes LEAP (en gris) et INVIZO (en couleur)

En revanche, sur le détecteur du système INVIZO, les plans les plus éloignés observés sont  $\bar{3}\bar{3}5$  et 111, ce qui traduit une couverture angulaire plus étendue. Étant donné que les paramètres de maille de l'aluminium sont bien connus, il est possible de calculer l'angle entre deux pôles cristallographiques. L'équation suivante permet de déterminer cet angle pour une structure cubique :

$$\cos \theta = \frac{h_1 h_2 + k_1 k_2 + l_1 l_2}{\sqrt{(h_1^2 + k_1^2 + l_1^2)(h_2^2 + k_2^2 + l_2^2)}} \quad (4.1)$$

Les valeurs  $h_i, k_i, l_i$  représentent les indices de Miller de la direction  $i$ , et l'angle  $\theta$  correspond à l'angle entre les 2 directions. Cet angle  $\theta$  permet d'estimer la plage angulaire visible par l'instrument, c'est-à-dire le champ de vision effectif. À partir de notre analyse, nous avons estimé cet angle à environ  $60^\circ$  pour le système LEAP et à  $95^\circ$  pour le système INVIZO. Bien que ces valeurs soient approximatives, elles offrent un ordre de grandeur pertinent pour comparer la plage angulaire des deux systèmes.

Pour évaluer l'impact de cet angle sur la quantité d'atomes détectés, il est nécessaire de modéliser comment cette ouverture angulaire influe sur le volume effectivement reconstruit. La Figure 4.2 illustre cette différence selon une coupe dans le plan  $xz$ , mettant en évidence l'augmentation significative du volume observable avec l'augmentation de l'angle  $\theta$ . Le rayon du disque de détection  $r_i$ , correspondant à cette ouverture, peut être calculé à partir de l'angle maximal  $\theta_i$  selon la relation suivante :

$$\sin\left(\frac{\theta_i}{2}\right) = \frac{r_i}{R} \quad (4.2)$$

On peut ensuite calculer le rapport entre les volumes observés pour les deux systèmes en modélisant le volume détecté comme un cylindre dont la hauteur est identique mais dont le rayon dépend de l'angle  $\theta$ . En supposant une hauteur  $h$  constante (correspondant à la profondeur analysée), le volume  $V$  observé peut être exprimé comme :

$$V = \pi r_i^2 h \quad (4.3)$$

Le rapport entre les volumes observés par les systèmes INVIZO et LEAP est donc approximativement :

$$\frac{V_{\text{INVIZO}}}{V_{\text{LEAP}}} = \frac{h\pi d_{\text{INVIZO}}^2}{h\pi d_{\text{LEAP}}^2} = \frac{\sin\left(\frac{\theta_{\text{INVIZO}}}{2}\right)^2}{\sin\left(\frac{\theta_{\text{LEAP}}}{2}\right)^2} \quad (4.4)$$

On obtient une augmentation de 114 % du volume du matériau observé avec le système INVIZO par rapport au LEAP. Cependant, cette amélioration du volume d'analyse s'accompagne d'une réduction de la détection due à l'insertion d'une partie optique qui obstrue une partie de la trajectoire de vol des ions. Le système INVIZO offre une détection de 62%, contre

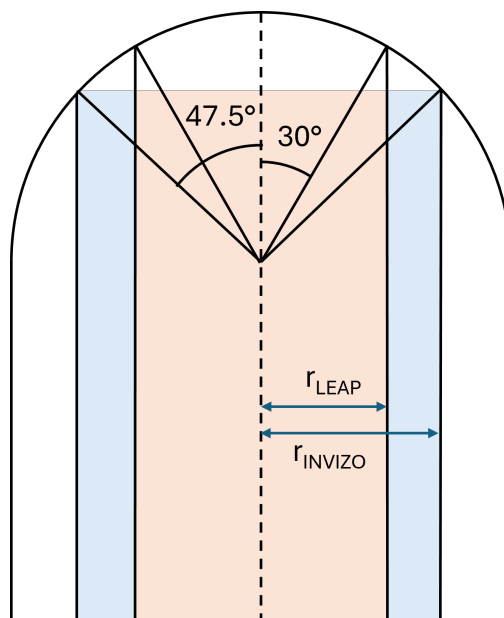


FIGURE 4.2 Différence de champ de vision entre les systèmes LEAP (orange) et INVIZO (orange + bleu ) selon une coupe XZ

80 % pour le LEAP 5000 XS.

Ainsi, en tenant compte de cette perte de détection, le rapport final du nombre d'atomes détectés est donné par :

$$\frac{2.14 \times 0.62}{0.8} = 1.66$$

Ce qui implique une augmentation de 66 % du nombre d'atomes observés. Le système INVIZO permet donc d'analyser un volume beaucoup plus grand d'atomes. Le large champ de vision permettra d'observer une plus grande portion des structures atomiques (nanoparticules, interfaces, etc.). Cette capacité accrue offre plusieurs avantages, à savoir :

- Vérifier un plus grand volume d'échantillon simultanément.
- Améliorer l'observation des interfaces.
- Permettre une meilleure analyse des nanoparticules.
- Réduire le temps de préparation nécessaire pour observer une quantité équivalente de matériau.
- Approcher la limite de l'analyse totale du matériau.

En conséquence, cette technologie permet une analyse plus précise des microstructures grâce à un volume d'échantillonnage plus grand. De ce fait, le système INVIZO constitue un atout majeur pour la recherche.

### 4.1.2 Interfaces

Cette avancée majeure permet d'obtenir un champ de vision élargi, mais elle requiert des équations de reconstruction fiables pour exploiter pleinement les données. Or, une anomalie a été observée lors de la reconstruction de matériaux présentant des interfaces planes.

Nous utilisons des matériaux déposés en couches successives, dont les interfaces sont, en réalité, quasi rectilignes. Ce constat a également été confirmé par des analyses en MET (Microscopie Électronique en Transmission). Ces matériaux servent donc de références pour cette analyse. Pourtant, après reconstruction, une distorsion des interfaces est visible, comme le montre la Figure 4.3. La reconstruction ne reflète donc pas fidèlement la réalité. Cette divergence n'avait pas été observée auparavant, car elle restait en dehors du champ d'observation du système LEAP. Le système INVIZO met ainsi en évidence une faiblesse intrinsèque de la technique APT. Cette erreur pourrait provenir soit des équations employées lors de la reconstruction, soit d'un artefact lié au processus d'évaporation à l'interface qui n'est pas pris en compte dans la reconstruction.

En effet, il avait déjà été observé, lors de mesures réalisées avec le système LEAP, que la présence d'une interface modifie la séquence d'évaporation, générant ainsi des artefacts de reconstruction. Plus la différence d'intensité d'évaporation entre les matériaux est marquée, plus ces artefacts deviennent importants.

Afin d'analyser plus en détail cette erreur de reconstruction ainsi que d'éventuelles autres anomalies générées, nous avons développé un algorithme en langage Python permettant une analyse approfondie des données.

## 4.2 Modification de la librairie Python

Afin d'approfondir l'analyse du processus de reconstruction, notre laboratoire dispose d'une bibliothèque Python complète dédiée à la reconstruction des données APT. Cette librairie possède déjà l'ensemble des équations nécessaires, ainsi que de nombreuses fonctions facilitant l'analyse des résultats. Elle permet d'exécuter chaque étape du processus de reconstruction tout en offrant un contrôle précis sur chaque étapes, afin de vérifier la cohérence des résultats. Pour ce faire, il est indispensable d'avoir accès aux données générées par l'APT, telles que la position d'impact sur le détecteur ou encore les paramètres associés à chaque évaporation (tension, énergie du pulse, temps de vol, etc.). Or, les fichiers de sortie produits par les systèmes APT ".HITS" sont codés en binaire et leur structure n'est pas open source. Nous utilisons donc les fichiers de sortie générés par le logiciel IVAS, qui regroupent toutes les informations nécessaires à notre traitement.

L'arrivée du système INVIZO 6000 couplé à la version IVAS 6 a introduit plusieurs modifi-

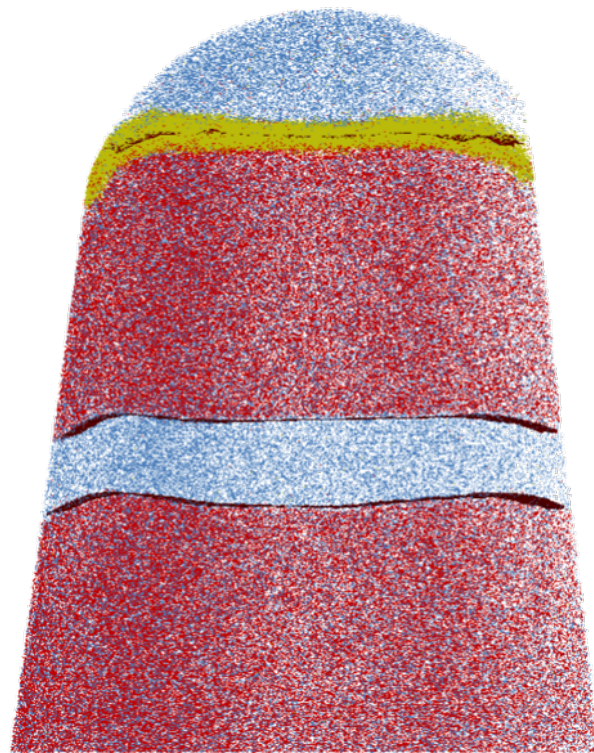


FIGURE 4.3 Distorsion des interfaces planes en bord de champ après reconstruction

cations dans les formats de données et les paramètres de reconstruction. Nous avons ainsi dû adapter notre bibliothèque Python en conséquence, en modifiant et en ajoutant des modules pour prendre en charge ces évolutions.

### 4.2.1 Importation des données

L'ancienne version du logiciel IVAS utilisait des fichiers au format ".epos", contenant l'ensemble des informations nécessaires à la reconstruction ainsi que les données expérimentales issues de la machine, soit un total de huit paramètres. Avec l'introduction de la version IVAS 6, un nouveau format de fichier .apt a été introduit. Celui-ci conserve les mêmes informations de base que le .epos, mais peut désormais contenir jusqu'à 42 paramètres supplémentaires, tels que la position des lasers, la pression dans la chambre, la fréquence des pulses, etc. Ces données enrichies sont particulièrement utiles en recherche, car elles permettent une analyse fine des variables susceptibles d'influencer la qualité de la mesure.

Contrairement au format ".HITS", la structure des fichiers ".epos" et ".apt" est partagée publiquement, ce qui autorise une analyse en dehors de l'environnement logiciel IVAS. Dans notre laboratoire, les données sont extraites et manipulées en Python, en les convertissant en objets de type numpy pour faciliter leur traitement.

La bibliothèque Python développée en interne comprend plusieurs objets permettant de lire, écrire et combiner ces fichiers. Ces objets servent ensuite d'arguments à la majorité des fonctions de reconstruction et d'analyse. Afin d'assurer la compatibilité entre les différentes versions de fichiers, les noms des paramètres ont été normalisés dans le code. Cela permet une intégration homogène des fichiers ".epos" et ".apt" au sein des traitements, malgré les différences de structure ou de vocabulaire.

### 4.2.2 Implémentation de l'optique

L'ajout du système optique dans la machine INVIZO constitue une avancée majeure, mais il introduit également une complexité supplémentaire dans le processus de reconstruction. Jusqu'à présent, notre bibliothèque de reconstruction ne prenait pas en compte cette composante optique. Grâce à une collaboration avec la société CAMECA, nous avons pu accéder aux équations décrivant la trajectoire des ions entre l'échantillon et le détecteur.

Ces équations, d'origine empirique, sont issues d'ajustements réalisés à partir de mesures expérimentales et prennent la forme de polynômes de degrés élevés. CAMECA nous a fourni l'ensemble des paramètres nécessaires à leur application, ce qui nous a permis d'implémenter un modèle de reconstruction compatible avec les spécificités de l'INVIZO. En contrepartie, notre retour d'expérience contribue à l'amélioration de leur technologie. Les expressions

suivantes illustrent les variables d’entrée et de sortie manipulées dans ce module :

$$(\phi, \psi) = \text{OpticalProjection}(D_x, D_y, \text{params}) \quad (4.5)$$

Les variables  $D_x$  et  $D_y$  représentent les positions d’impact de chaque ion sur le détecteur. Les angles  $\phi$  et  $\psi$  sont les angles d’émission (en coordonnée cylindrique) des atomes avant qu’ils ne passent par le système optique. Ce calcul doit être effectué pour chaque ion détecté. Cette correction optique n’est pas liée au facteur de compression d’image (ICF), qui est spécifiquement dû à la compression qui se produit juste après l’émission, avant le passage dans le système optique.

Ces équations sont appliquées à toutes les mesures APT pour corriger la déviation induite par l’optique et rendre les données compatibles avec les équations de reconstruction déjà implémentées.

Une fois les directions  $(\theta, \psi)$  obtenues, celles-ci doivent être projetées sur une surface afin de pouvoir être analysées. La carte de densité est un outil permettant de représenter les données sous la forme du nombre d’impacts par unité de surface. Elle consiste à compter le nombre d’ions détectés dans chaque zone d’une grille de résolution définie, généralement de  $n \times m$  pixels. Plusieurs représentations de cette carte sont possibles :

- Observation directe sur le détecteur, sans correction optique : les positions d’impact  $(D_x, D_y)$  sont utilisées telles quelles, ce qui permet de visualiser les données brutes.
- Projection à partir des angles  $(\theta, \psi)$  sur un détecteur imaginaire, plat ou sphérique, situé à une distance donnée : cette méthode permet une visualisation plus fidèle de la distribution angulaire réelle des ions.

Pour les analyses suivantes, la seconde méthode sera utilisée par défaut, sauf mention explicite du contraire.

### 4.3 Analyse par transformée de Fourier

Maintenant que le code a été adapté pour intégrer les nouveaux paramètres ainsi que les corrections optiques, nous allons développer une nouvelle technique d’analyse des données APT. Le cœur de cette méthode repose sur une approche introduite par le Dr Sebastian Koelling, visant à extraire les plans cristallins à partir des données d’une analyse par sonde atomique. Les premiers résultats ont été publiés dans un article auquel j’ai participé [50].

Il a été constaté que des résidus d’informations liés aux plans cristallins sont présents dans les données. L’évaporation périodique des atomes engendre l’apparition de structures dans la reconstruction. À l’aide de méthodes de calcul, il est possible d’extraire la localisation des

pôles cristallins et de calculer les distances interplanaires correspondantes.

Actuellement, la technique utilisée pour identifier la structure cristalline dans les mesures APT consiste à superposer des projections cristallines connues, en espérant trouver celle qui correspond à la bonne orientation. Cependant, comme les distances interplanaires des pôles sur la mesure ne sont pas connues, il faut supposer une structure cristalline ainsi que son orientation et faire un ajustement manuel.

L'objectif ici est d'aller au-delà de la simple comparaison avec des projections stéréographiques, en utilisant les positions obtenues pour automatiser l'identification et les distances comme un outil supplémentaire d'identification. Cela permet une reconnaissance plus fiable de l'orientation cristalline, même en présence d'un nombre limité de pôles visibles.

#### 4.3.1 Observation des plans résiduels

Il est possible d'observer les plans cristallins résiduels dans les données en utilisant des projections spécifiques. Pour cela, il faut dans un premier temps faire une reconstruction simple des données en 3D, ne prenant aucune considération géométrique en compte. Cette reconstruction est appelée reconstruction du point de vue du détecteur.

La reconstruction est faite de la manière suivante : les coordonnées  $D_x$  et  $D_y$  des atomes sur le détecteur sont utilisées respectivement comme  $x$  et  $y$  dans l'espace 3D. Pour la coordonnée  $z$ , qui correspond au temps, le premier atome détecté est défini comme arrivant à  $t = 0$ , et se voit attribuer une position  $z = 0$  dans la reconstruction. Chaque atome suivant est ensuite placé avec un incrément constant en  $z$ , reflétant l'ordre d'arrivée sur le détecteur. Cette méthode permet de visualiser en 3D la séquence d'évaporation des atomes.

Ensuite, seuls les atomes ayant frappé le détecteur dans la zone sélectionnée (Figure 4.4) ont été retenus. Ces atomes ont été projetés sur le côté le plus long de la zone définie, afin d'obtenir une visualisation 2D. La visualisation 2D obtenue correspond à l'image de la Figure 4.5. On constate avec les grossissements sur les plans 002 et 024 qu'il y a une répétition d'atomes présents et absents suivant la direction  $z$ . L'identification des plans 002 et 024 a été faite ultérieurement à l'aide de l'ensemble des données obtenues.

Étant donné la périodicité des positions des plans dans la reconstruction, l'utilisation de la transformée de Fourier s'impose naturellement pour analyser ces structures.

#### 4.3.2 FFT suivant $z$

Dans un volume, il est possible d'effectuer une transformée de Fourier dans toutes les directions de l'espace en trois dimensions. L'idée initiale consistait à calculer la transformée de

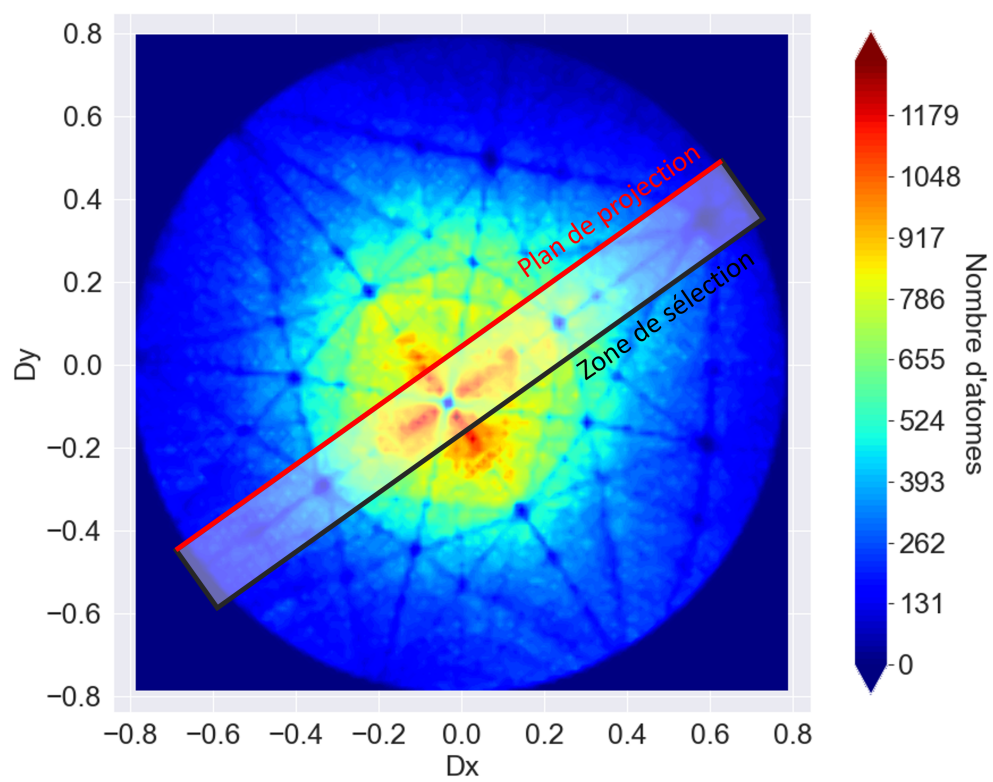


FIGURE 4.4 Zones d'impact des ion sur le détecteur sélectionner pour faire la Figure 4.5



FIGURE 4.5 Détection mesurer dans le temps sur une mesure d'Aluminium dans la direction 002-114

Fourier 3D de l'ensemble du cristal. On espérait ainsi pouvoir extraire davantage d'informations en recherchant des plans selon toutes les directions possibles.

Cependant, aucun signal n'a été observé. En effet, les atomes sont trop éloignés de leur position d'origine pour que des plans puissent être détectés dans toutes les orientations. De plus, la précision de la machine étant inférieure à la taille de la maille cristalline, aucun signal net ne peut être observé globalement.

Nous avons donc choisi de nous concentrer sur les plans visibles dans le signal observé précédemment, en partitionnant le volume. Cette segmentation permet d'isoler localement certains plans et d'effectuer les transformées de Fourier sur ces sous-volumes, dans l'objectif de mieux faire ressortir les structures cristallines.

L'analyse nécessite de très nombreux calculs de transformée de Fourier et le temps de calcul pour chacun est très élevé. L'utilisation de FFT a été privilégiée. Pour obtenir la transformée de Fourier, il est nécessaire de diviser le volume analysé en sous-volumes contenant les atomes évaporés. Concrètement, nous créons une grille de taille  $n \times m \times 1$  dans le volume, comme illustré à la Figure 4.6. Cette grille correspond à une division du volume selon les axes  $x$  et  $y$ , chaque cellule conservant l'ensemble des coordonnées selon  $z$ . On obtient ainsi une série de sous-volumes en forme de parallélépipèdes s'étendant sur toute la hauteur du volume.

La transformée de Fourier doit être effectuée sur une reconstruction préliminaire des données, car la coordonnée  $z$  doit être connue. Afin de minimiser l'influence de la reconstruction sur les résultats et d'améliorer la robustesse de l'analyse statistique, nous avons choisi d'effectuer plusieurs reconstructions sur différentes zones de l'échantillon. La fenêtre de reconstruction, illustrée à la Figure 4.7, correspond à la région utilisée pour chaque reconstruction locale. Pour tous les pixels entièrement contenus dans cette fenêtre, une FFT est calculée. Ensuite, la fenêtre est déplacée d'un pas fixe, et une nouvelle FFT est effectuée. Ce processus est répété selon un motif en serpent, parcourant progressivement l'ensemble de la mesure. Chaque pixel est ainsi inclus dans plusieurs fenêtres successives, et la FFT associée à ce pixel est obtenue en moyennant l'ensemble des FFT calculées sur les fenêtres le contenant. Chaque FFT se calcul ainsi. Pour chaque pixel, on extrait uniquement les coordonnées  $z$  des atomes, ce qui donne une distribution de positions entre 0 et  $z_{\max}$ . Cependant, une FFT ne peut pas être appliquée directement à une simple liste de positions : il est nécessaire d'avoir une fonction définie sur un intervalle régulier. Pour cela, nous utilisons un histogramme qui compte le nombre d'atomes dans 1000 intervalles réguliers. Cette résolution assure un bon compromis entre finesse spatiale et statistique (quelques atomes par intervalle en moyenne). La transformée de Fourier est ensuite appliquée sur cet histogramme. Les signaux obtenus, présentés à la Figure 4.8, révèlent la présence de motifs périodiques dans la distribution des ions selon  $z$ . La fréquence fondamentale extraite de la transformée de Fourier correspond

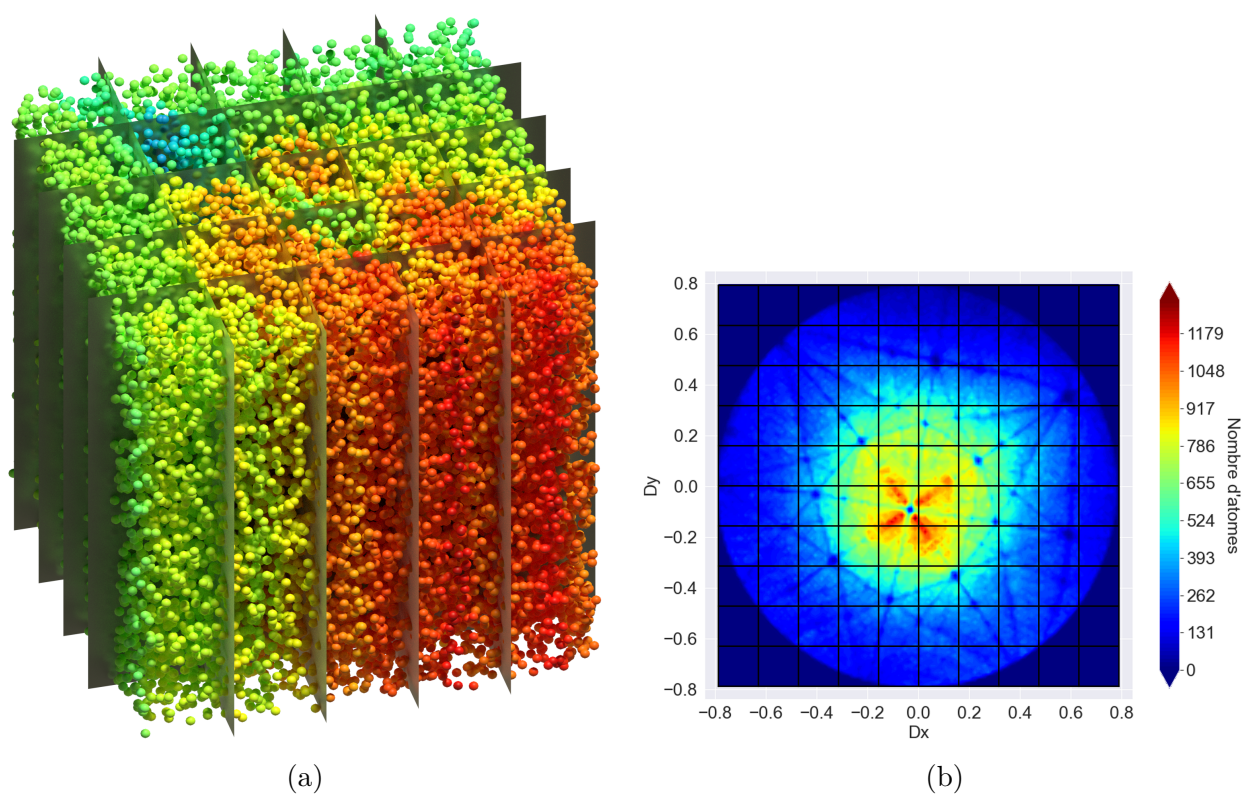


FIGURE 4.6 Schéma de découpage des données en grille de  $n \times m \times 1$  dans un volume 3D (a) et sur la carte de densité projeté suivant  $z$  (b)

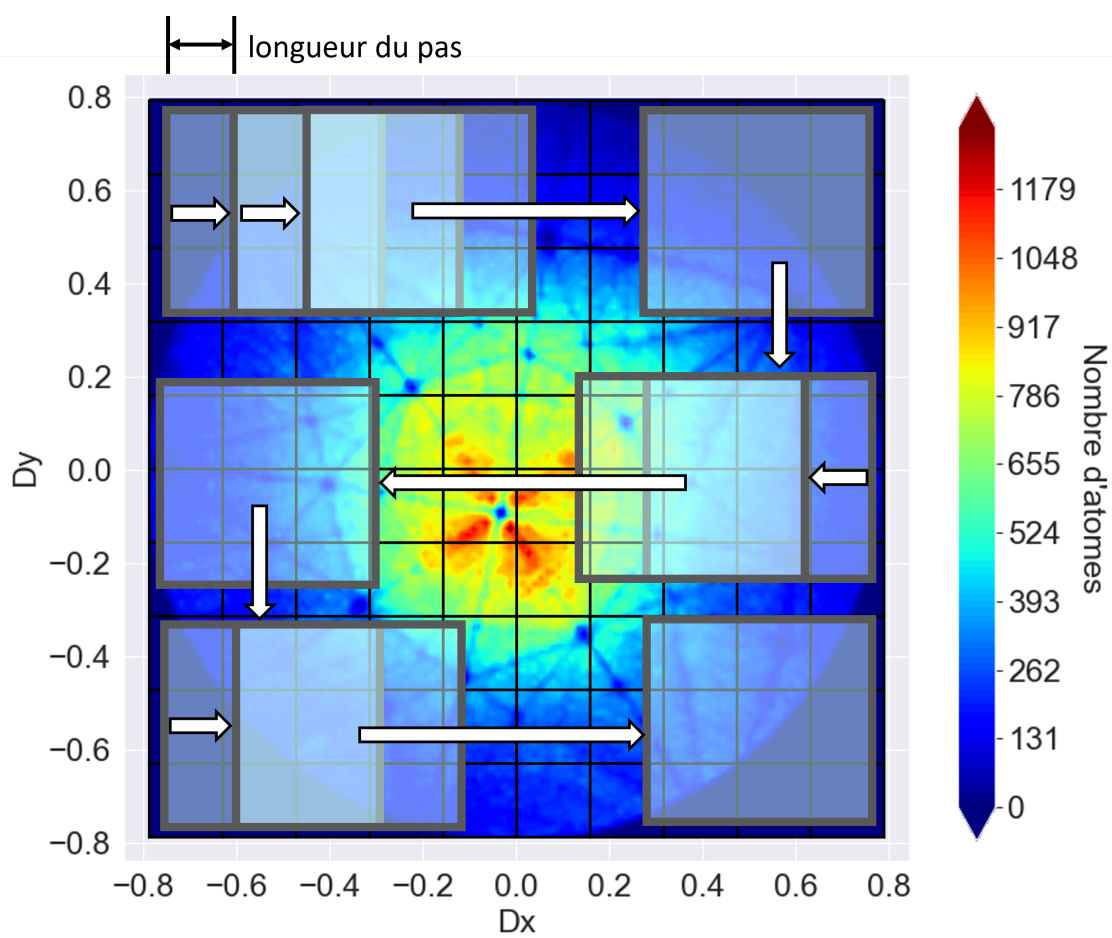
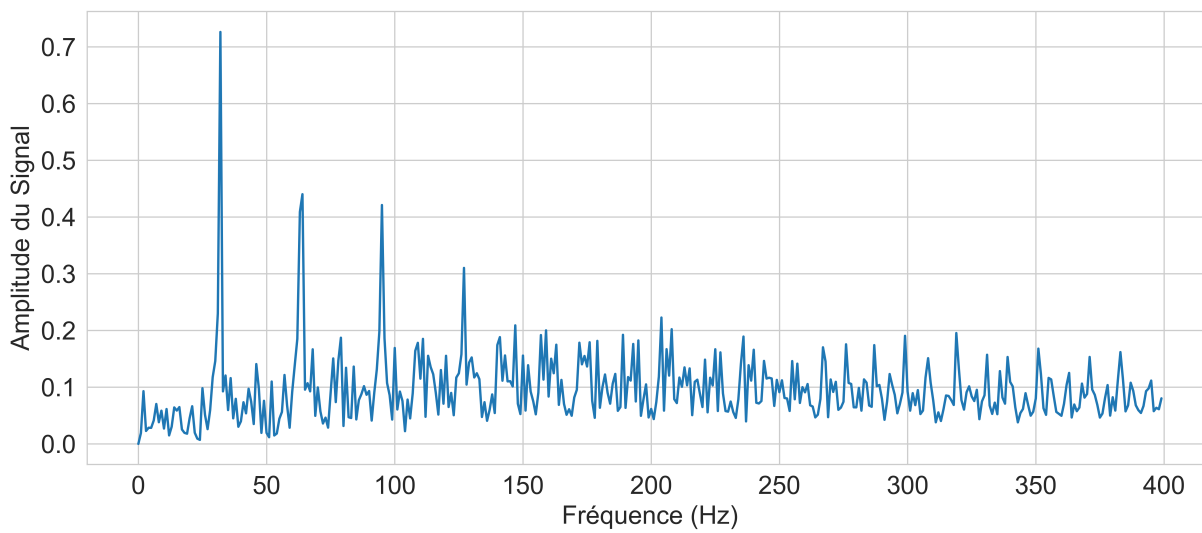
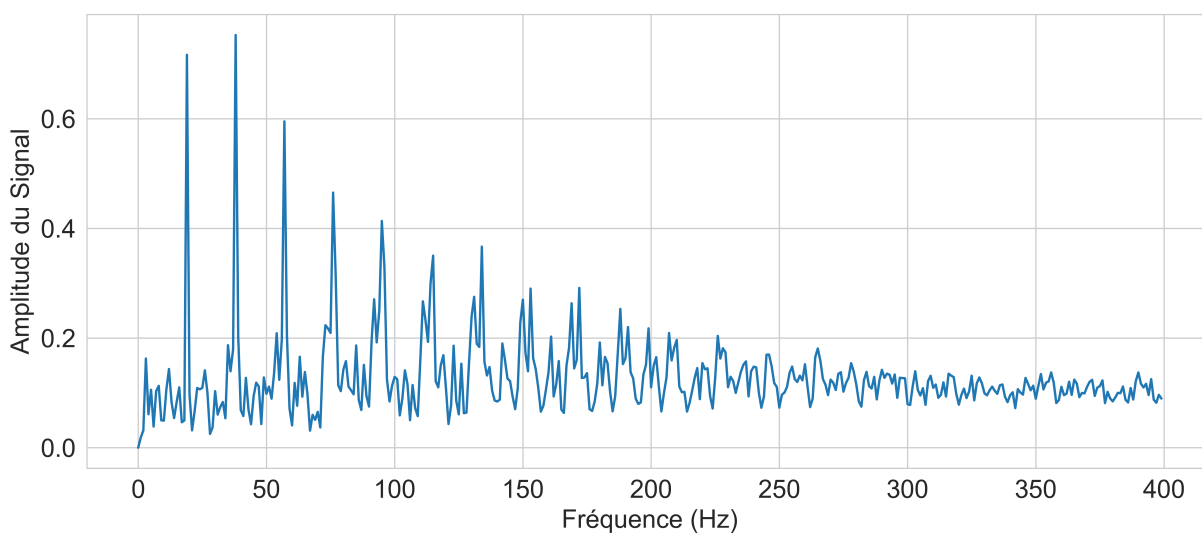


FIGURE 4.7 Schéma du déplacement de la fenêtre de reconstruction de la FFT et de la grille de pixel  $n \times m \times 1$  (proportion non conservé)



(a) 002



(b) 111

FIGURE 4.8 Signaux de transformé de Fourier pour les plan 002 et 111

alors à l'inverse de la distance interplanaire. Cette approche permet ainsi de mesurer avec précision la périodicité atomique locale et met en évidence la conservation des plans cristallins à travers le volume. La figure 4.9 représente la carte des maxima de la transformée de Fourier pour chaque pixel. Nous avons utilisé une carte de niveaux (ou carte isoniveaux) pour en faciliter la lecture et améliorer la lisibilité. Cette carte montre que les positions des maxima des signaux coïncident avec celles du défaut de masse observé sur la carte de densité (Figure 4.4). Nous avons constaté qu'il est préférable dans un premier temps de découper

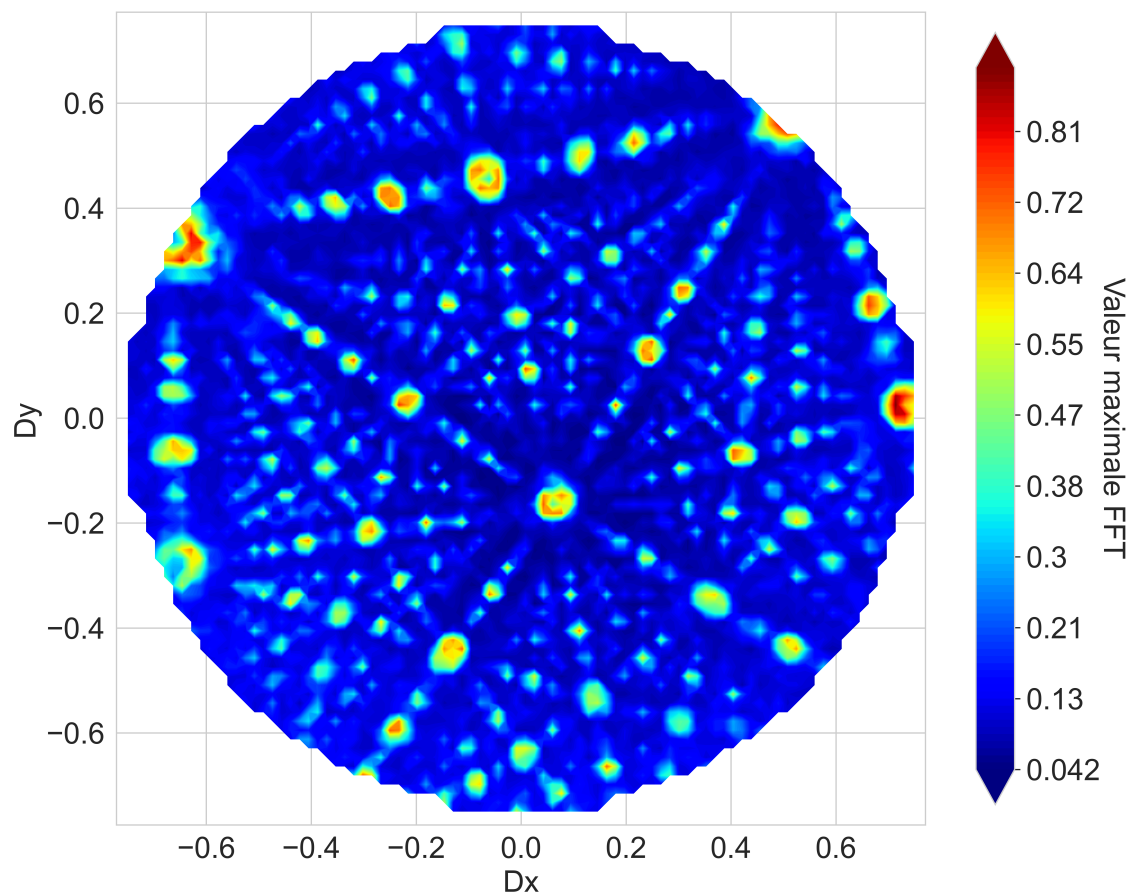


FIGURE 4.9 Carte des maximum de pics de FFT

les données en couches de quelques nanomètres dans la direction  $z$  afin d'obtenir le meilleur signal possible, tout en limitant l'impact des variations le long de la mesure. Chaque couche est analysée indépendamment, ce qui permet non seulement d'améliorer la qualité du signal, mais également de suivre l'évolution des caractéristiques du matériau au cours de la mesure.

### 4.3.3 Détection des pics

Une fois l'ensemble des transformées de Fourier obtenues, il faut identifier celles qui présentent des plans cristallins. La figure 4.10 présente quelques signaux calculés ainsi que leur position sur le détecteur. On observe que les pôles ont un signal avec un pic fondamentale et des harmoniques. Le pic le plus haut nous donne la fréquence des plans dans le cristal et les harmoniques nous servent à être plus précis dans l'identification.

Pour quelques pics, une identification manuelle est envisageable. Cependant, dans le cas de cristaux présentant de nombreux pics, comme l'aluminium, l'utilisation d'un algorithme d'identification est nécessaire.

Afin d'automatiser ce processus, nous avons développé un algorithme capable de détecter la présence de pics dans le signal et d'estimer le nombre d'harmoniques visibles. Le rapport signal sur bruit peut varier fortement : il peut être très bon, comme illustré par les signaux 4.10a et 4.10b, mais aussi plus faible, comme dans le cas du signal 4.10d. Dans certain cas, ce dernier est difficilement différentiable du signal 4.10c, qui ne présente pourtant aucun pic.

La Figure 4.11 montre que la forme d'un signal associée à un pic est généralement composée de 3 à 5 points, ce qui complique leur détection. Pour surmonter cette difficulté, nous avons adopté une approche basée sur les ondelettes (wavelets), qui permet d'approximer le signal comme une somme de petites ondes. Sur le signal des ondelettes, la détection de pics devient plus efficace [51, 52].

La Figure 4.12 montre les résultats de détection, la présence d'un pixel implique qu'au moins un pic est présent et la couleur est associée au nombre d'harmoniques identifiées. On constate que l'algorithme parvient à détecter correctement les pics et à estimer leur position de manière fiable.

Dans certains cas, il se peut que deux plans soient observés dans le même pixel. On observe donc 2 fondamentales et 2 séquences d'harmoniques. Dans notre code, seul le plan prédominant est gardé pour faire la suite des calculs.

## 4.4 Identification des pôles

On obtient, avec l'étape précédente, une sélection de pixels qui contiennent une séquence de plans. Chaque pixel est donc une direction hkl potentielle du cristal. On cherche ensuite à associer à chaque pixel son plan hkl dans le cristal.

Pour faire l'association précisément, il est nécessaire de connaître la distance interplanaire de chaque direction dans la maille théorique et de l'extraire des données de la FFT. Nous allons dans un premier temps trouver les distances interplanaires de chaque pixel possédant un pic.

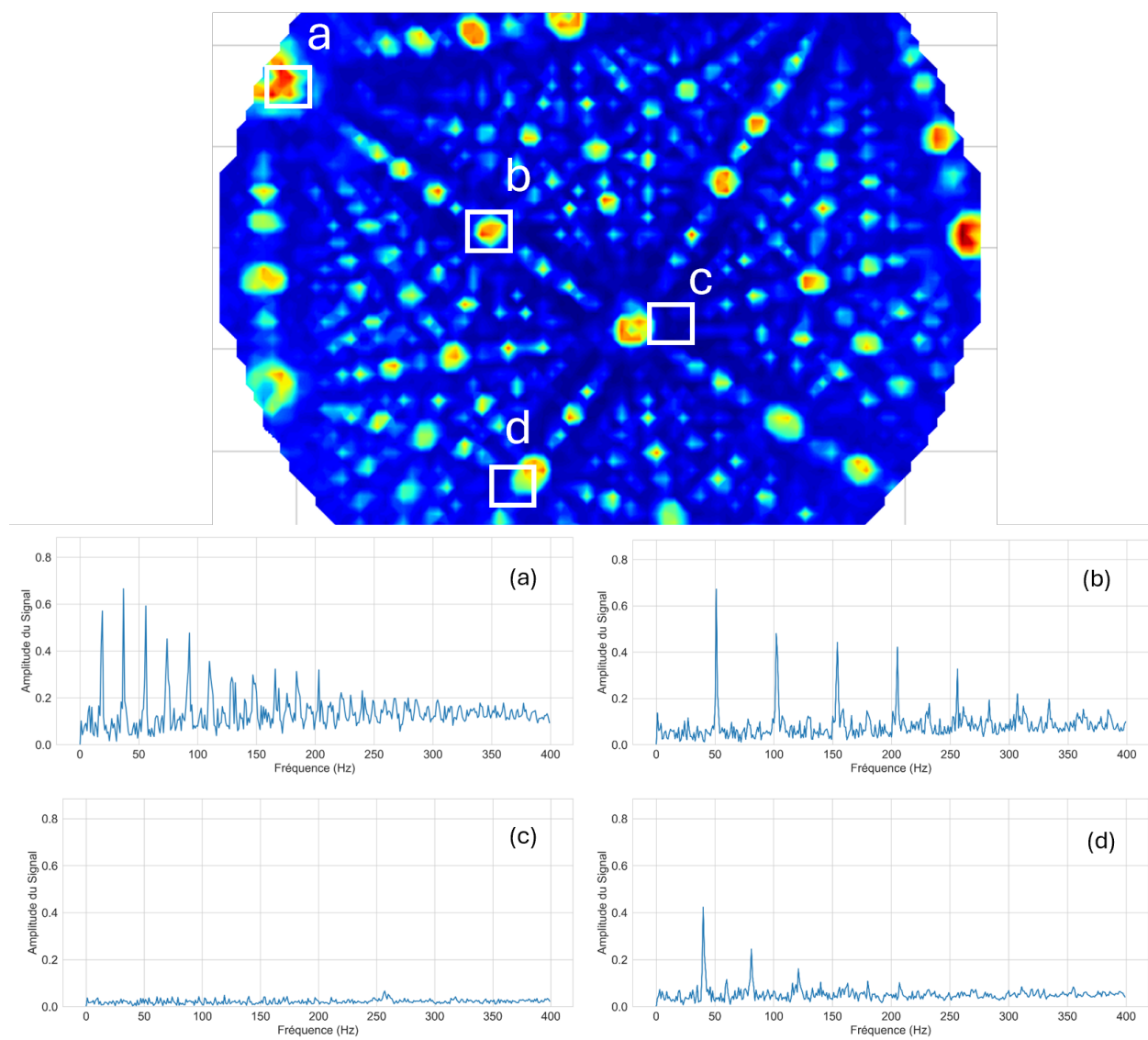


FIGURE 4.10 Signaux observés pour différentes positions sur le détecteur

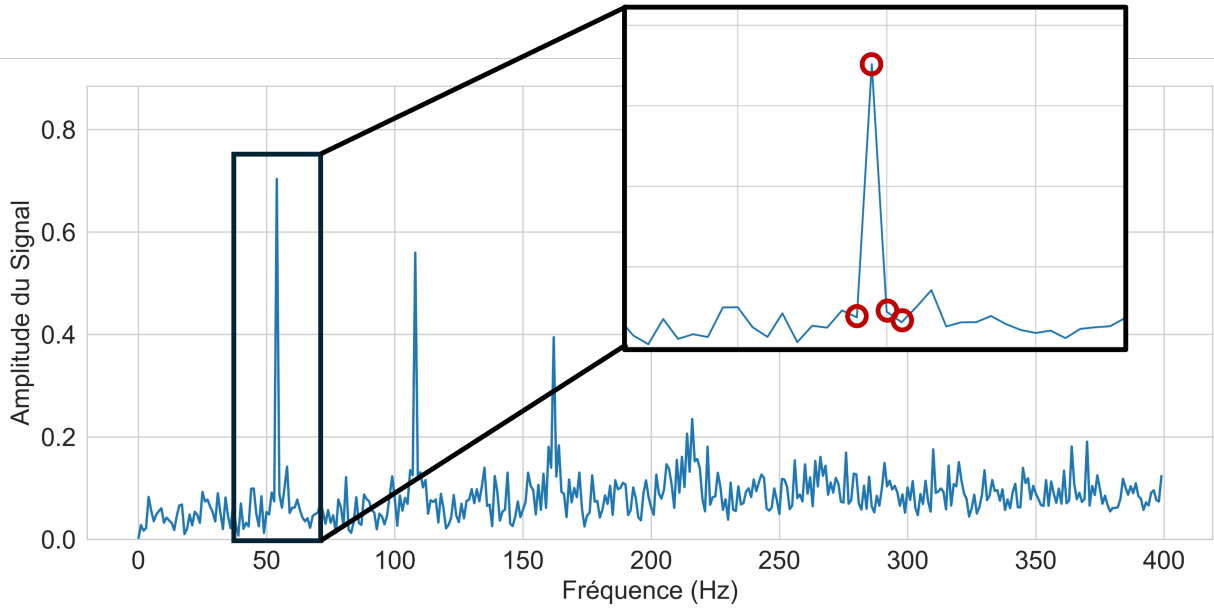


FIGURE 4.11 Signaux observés pour différentes positions sur le détecteur

Pour faire les prochains calculs, nous avons choisi l'aluminium pour présenter la méthode. C'est un matériau avec une structure cubique faces centrées dont de nombreux pôles sont visibles sur la projection (Figure 4.9).

#### 4.4.1 Calcul de la distance interplanaire

La fréquence fondamentale de la transformée de Fourier correspond à la fréquence des plans cristallins dans la mesure. Cette fréquence, exprimée dans le domaine spatial, est en unités de  $m^{-1}$ . La longueur d'onde associée à une fréquence de  $1m^{-1}$  correspond à une longueur de reconstruction appelée  $z_{\max}$ . Cela s'explique par le fait que  $z_{\max}$  a été utilisé comme référence lors du calcul de la transformée de Fourier pendant l'algorithme de reconstruction.

La distance interplanaire  $d_i$  dans la direction  $i$  peut ainsi être déduite de la fréquence selon la relation suivante :

$$d_x = \frac{z_{\max}}{f_x}$$

Cependant, la valeur de  $z_{\max}$  étant arbitraire, nous privilégions l'utilisation de rapports de distances pour réaliser les calculs. Pour cela, nous calculons le rapport entre la distance interplanaire mesurée et celle d'un plan de référence connu. Le plan présentant le signal le plus net est utilisé pour définir la fréquence de référence  $f_{\text{ref}}$ . Les autres fréquences sont

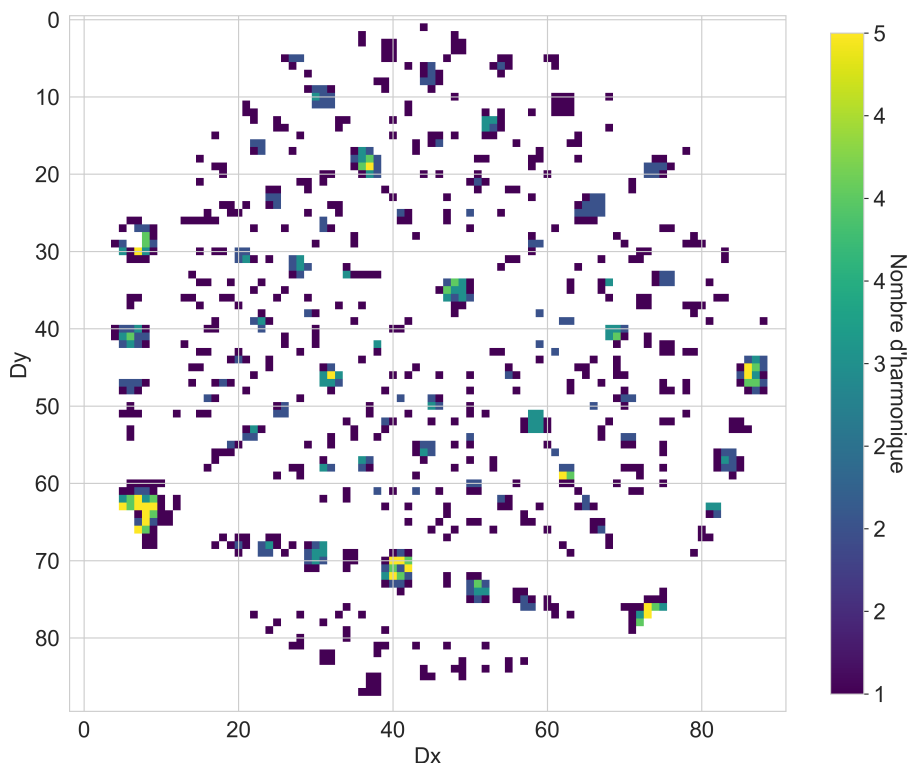


FIGURE 4.12 Carte des pics trouvés. La couleur représente le nombre d'harmoniques

exprimées relativement à ce plan selon la relation suivante :

$$a_x = \frac{d_{\text{ref}}}{d_x} = \frac{f_x}{f_{\text{ref}}}$$

où  $a_x$  est le rapport entre les distances interplanaires et peut s'exprimer en fonction des fréquences. L'utilisation de ce ratio permet également de réaliser les calculs des distances interplanaires théoriques sans avoir besoin de connaître précisément le paramètre de maille du cristal.

Il a été constaté que de très nombreux plans présentent des rapports de distance interplanaire identiques. Ce phénomène s'explique par la projection effectuée lors de la mesure, qui s'effectue selon la direction  $z$ . La Figure 4.13 illustre quels atomes vont impacter la même position sur le détecteur.

En effet, pour chaque position du détecteur, les ions enregistrés sont ceux qui ont été émis suivant une même direction. Les atomes qui vont être reçus sur le détecteur seront le long de la ligne verticale. On constate donc que les distances observées dans les données ne correspondent pas directement aux distances interplanaires réelles, mais à leur projection suivant

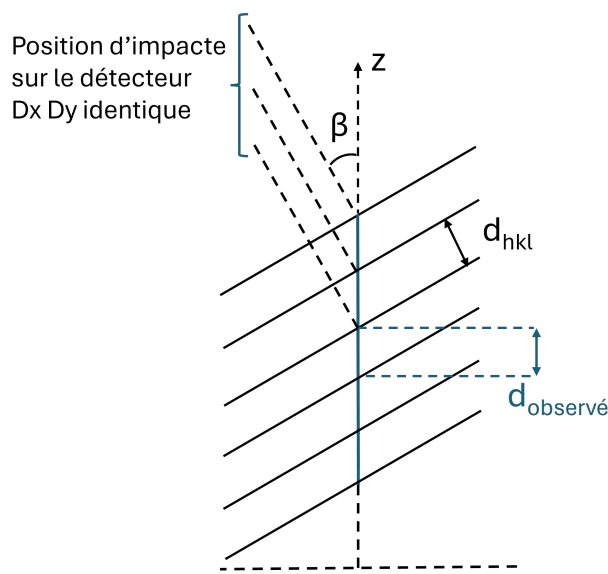
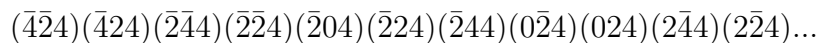
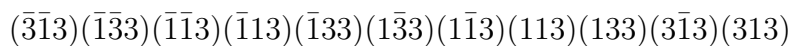
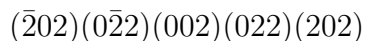
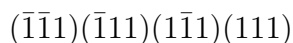


FIGURE 4.13 Schéma des distances observé sur le détecteur

la direction  $z$  (c'est-à-dire la direction d'évaporation).

Si l'une des directions cristallographiques s'aligne avec l'axe central du détecteur, alors les distances interplanaires des autres directions seront projetées sur cet axe. Ce cas de figure est fréquent dans les mesures, car la croissance des matériaux cristallins est généralement contrôlée de manière à orienter la cristallinité selon une direction spécifique. Cette direction de croissance se retrouve ainsi alignée avec le centre du détecteur.

Par conséquent, de nombreuses distances projetées apparaîtront comme identiques. Par exemple, dans le cas de l'aluminium, lorsque la direction  $[002]$  est alignée avec l'axe central, plusieurs plans cristallins auront des longueurs projetées similaires, rendant leur distinction difficile.



Pour sélectionner correctement les plans équivalents, il est nécessaire de prendre en compte la géométrie du cristal et d'effectuer une projection d'un cristal théorique. Cela permet de connaître la position relative de chaque plan dans l'espace, et ainsi d'identifier ceux qui, après projection selon la direction de mesure, se superposent et présentent des distances similaires.

#### 4.4.2 Génération des directions théoriques

Pour faire cela, il est souvent nécessaire de connaître quelques informations supplémentaires sur le matériau analysé. En effet, si le cristal possède peu de plans visibles, il ne sera pas possible de calculer sa structure cristalline ainsi que son orientation.

Nous allons utiliser l'identification des éléments faite lors de la reconstruction sur IVAS qui nous permet de savoir les types d'atomes en présence. La connaissance de la composition permet de savoir quel type de structure cristalline est attendu en utilisant les banques de données des matériaux. Les matériaux qui possèdent des plans cristallins visibles dans les mesures APT sont des matériaux dont la composition est de 1 ou 2 types d'éléments. Ces derniers ont des propriétés cristallines répertoriées dans la littérature.

Avec la structure cristalline connue, nous avons besoin de faire la projection théorique sur le détecteur de l'APT. Pour cela, nous avons développé un code permettant de faire ces projections.

Nous avons fait un code python capable de générer les plans théoriques observés sur le détecteur de l'APT de n'importe quel cristal connaissant sa composition et sa structure cristalline. Le code prend en argument les positions des atomes dans la maille cristalline, les angles et les longueurs de la maille. Avec cela, il est possible de générer l'ensemble des plans cristallins de la maille ainsi que leurs directions dans un système cartésien orthonormal.

Nous avons ajouté comme paramètre une limite minimale de distance interplanaire. Cela permet de contrôler le nombre de plans générés. Ce choix de paramètre est relié aux observations des mesures qui montrent que la prédominance des plans est liée à une distance interplanaire élevée.

On constate également lors des mesures que les fréquences des plans observés par transformée de Fourier ne sont pas égales à la fréquence du plan  $(hkl)$  de cette direction. En effet, ces plans peuvent être des multiples  $n \times (hkl)$  de ce plan. Cela est dû à l'agencement des atomes dans certaines directions. Pour sélectionner le plan adéquat, on choisit de faire la transformée de Fourier du cristal théorique pour sélectionner les plans qui seront visibles.

$$F_{hkl} = \sum_i e^{2i\pi(a_i h + b_i k + c_i l)} \quad (4.6)$$

Cette équation nous donne pour tous les plans  $(hkl)$  la valeur de sa transformée de Fourier suivant la direction  $(hkl)$  dans l'espace réel. On constate que certains plans ont une valeur de transformée de Fourier nulle. Par exemple, dans le cas d'une maille cubique face centrée,  $F_{hkl} = 0$  pour le plan 001 mais pas pour le plan 002 de cette même direction. Pour chaque ensemble de direction, c'est à dire  $n \times (hkl)$ , on choisit de garder la valeur la plus faible de  $n$  dont la transformée de Fourier est non nulle. C'est elle qui sera la fondamentale observée

sur la transformée de Fourier.

Le code permet également de calculer :

- les distances interplanaires de toutes direction.
- l'angle entre 2 directions du cristal.
- les direction en coordonnée cartésienne pour les cristaux avec des angles  $\alpha \neq 90^\circ$ ,  $\beta \neq 90^\circ$  ou  $\gamma \neq 90^\circ$

Tous ces calculs sont utilisés à travers le processus. Avec l'ensemble de ces directions, il est possible de faire la projection APT suivant n'importe quelle direction.

### 4.4.3 Projection APT

Maintenant que les directions cristallographiques sont connues, il est nécessaire de les projeter sur une surface afin d'obtenir une distribution qui corresponde au mieux à celle observée sur la carte de densité.

La projection dépend des paramètres suivants :

- Direction de projection : la direction cristallographique alignée avec le centre du détecteur.
- Rotation de la projection : l'angle de rotation permettant d'aligner les pôles théoriques avec ceux observés sur la carte de densité.
- Surface de projection : le type de surface utilisée (sphérique ou planaire), ainsi que sa distance par rapport à l'origine.
- Facteur de compression de l'image (ICF) : le coefficient influençant la déformation radiale de la projection.

La direction et la rotation de la projection peuvent être contrôlées par des rotations dans l'espace, exprimées en coordonnées sphériques à l'aide des angles  $\psi$  (inclinaison) et  $\phi$  (azimut). Ces angles peuvent être déterminés automatiquement si au moins deux pôles sont fournis, et ajustés avec plus de précision si davantage de pôles sont disponibles. En l'absence d'informations sur les pôles, ces angles peuvent également être définis manuellement.

Le choix du type de projection doit être le même que celui de la carte de densité utilisée. Pour les mesures INVIZO, nous utilisons la projection sur un détecteur sphérique ou planaire imaginaire. La Figure 4.14 illustre une projection sur un détecteur sphérique de rayon 1 nm. La projection représentée correspond au cas idéal dans lequel le plan (002) est parfaitement aligné avec le centre du détecteur, tandis que le plan (022) se trouve au nord de la projection. Dans cette configuration, les angles de rotation  $\psi$  et  $\phi$  sont nuls.

En pratique, il est rare qu'un pôle cristallin soit exactement centré sur le détecteur. Cela s'explique notamment par le fait que les pointes analysées peuvent subir des déformations lors de la manipulation ou pendant la mesure, en raison du champ électrique appliqué. La Figure

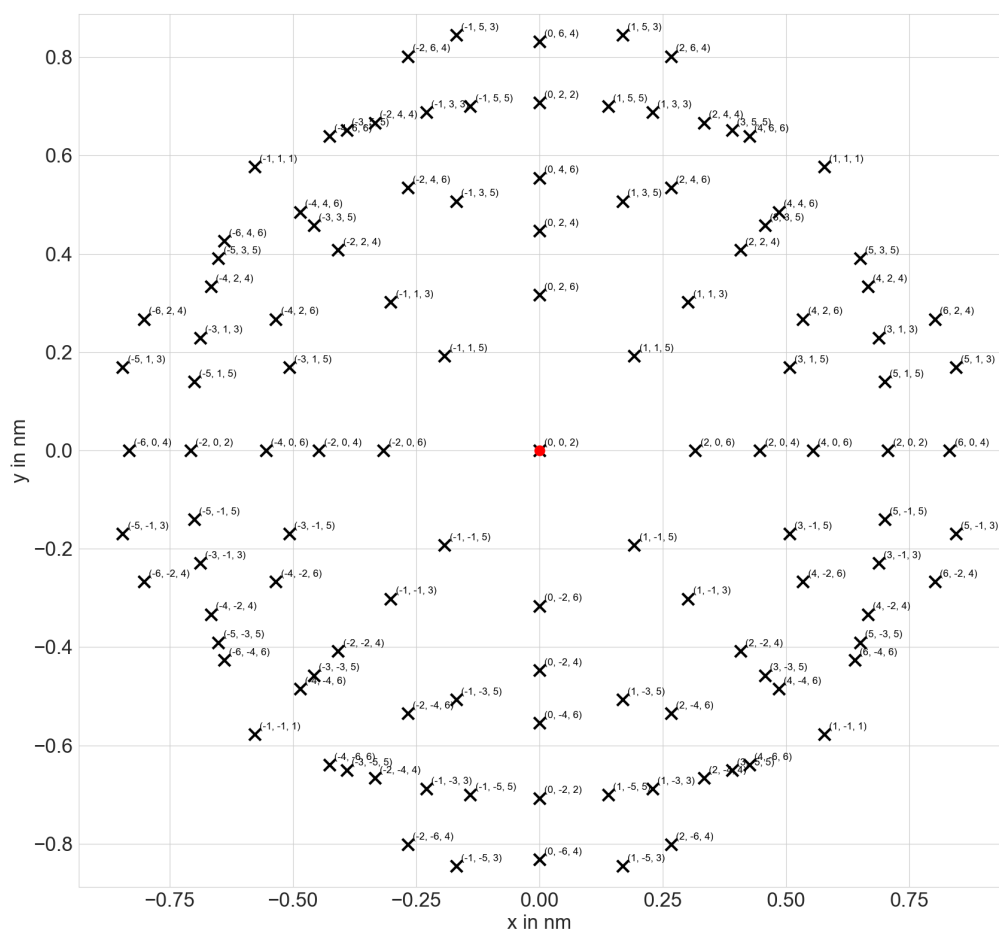


FIGURE 4.14 Projection stéréographique sur une surface sphérique de rayon 1nm d'une structure CFC

4.15 présente un exemple de projection après application de rotations par des angles  $\psi$  et  $\phi$ . La dernière étape de la projection consiste à ajuster le facteur de compression de l'image, qui définit sa déformation radiale. À ce stade, ce paramètre est encore ajusté manuellement, mais il pourra être déduit automatiquement une fois l'ensemble du processus finalisé. La figure 4.17 présente une carte de densité d'une mesure d'aluminium où tous les paramètres ont été correctement ajustés. On constate que le pôle central (002) est parfaitement aligné avec la projection théorique. Les autres pôles apparaissent également proches de leur position théorique, ce qui valide la cohérence globale de la projection. Cette projection va servir de base pour l'identification précise des pôles observés sur la carte de densité.

#### 4.4.4 Assignation des pôles

Nous disposons désormais d'une projection théorique qui permet de différencier les pôles partageant des distances similaires dans la transformée de Fourier. Pour étiqueter chaque pixel présentant un pic, nous avons calculé, pour chaque direction de la projection théorique, le rapport de distance par rapport à un pôle de référence — le même que celui utilisé pour les distances expérimentales. Cette méthode présente l'avantage de ne pas dépendre d'un paramètre de maille théorique, qui pourrait différer de celui réellement mesuré.

L'identification se fait selon les étapes suivantes, appliquées à chaque pixel contenant un pic :

- Trouver tous les rapports théoriques proches du rapport expérimental.
- Parmi ces directions candidates, sélectionner celle dont la position projetée est la plus proche de la position du pixel sur la carte de densité.
- Vérifier l'attribution et la corriger manuellement si nécessaire.

Après l'exécution de cet algorithme, on constate que la majorité des directions sont correctement identifiées. Toutefois, chaque pôle doit être vérifié individuellement, car certains peuvent être mal attribués et nécessitent une correction manuelle.

Une fois l'étiquetage terminé, le résultat est présenté dans la Figure 4.18. On constate que certains pôles sont suffisamment larges pour contenir plusieurs pixels dont le plan cristallin a été identifié. Il est alors possible d'associer tous les pixels portant le même nom de plan afin de ne conserver qu'un seul point représentatif par plan. Pour déterminer la position centrale de chaque pôle, on calcule la moyenne des positions de tous les pixels qui lui sont associés. On obtient ainsi la Figure 4.19, qui présente les pôles regroupés et centrés en un point unique pour chaque plan. Le processus d'identification des plans est désormais terminé. Cette identification va maintenant être exploitée de plusieurs manières afin de mieux interpréter les données et mieux comprendre le fonctionnement de la machine. En particulier, elle permettra d'analyser la qualité des reconstructions, de suivre d'éventuelles distorsions dans les mesures, et de valider ou ajuster certains paramètres expérimentaux.

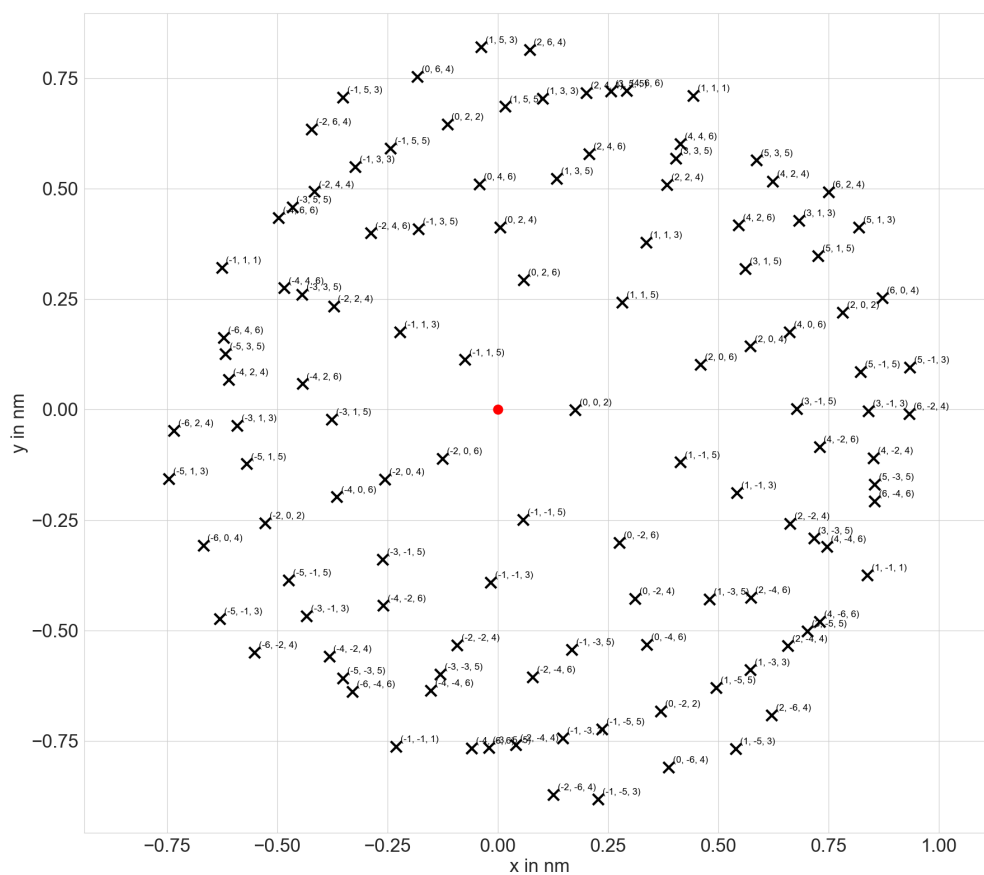


FIGURE 4.15

FIGURE 4.16 Projection stéréographique sur une surface sphérique de rayon 1nm d'une structure CFC avec rotation de  $\psi = 10^\circ$  et  $\phi = 45^\circ$



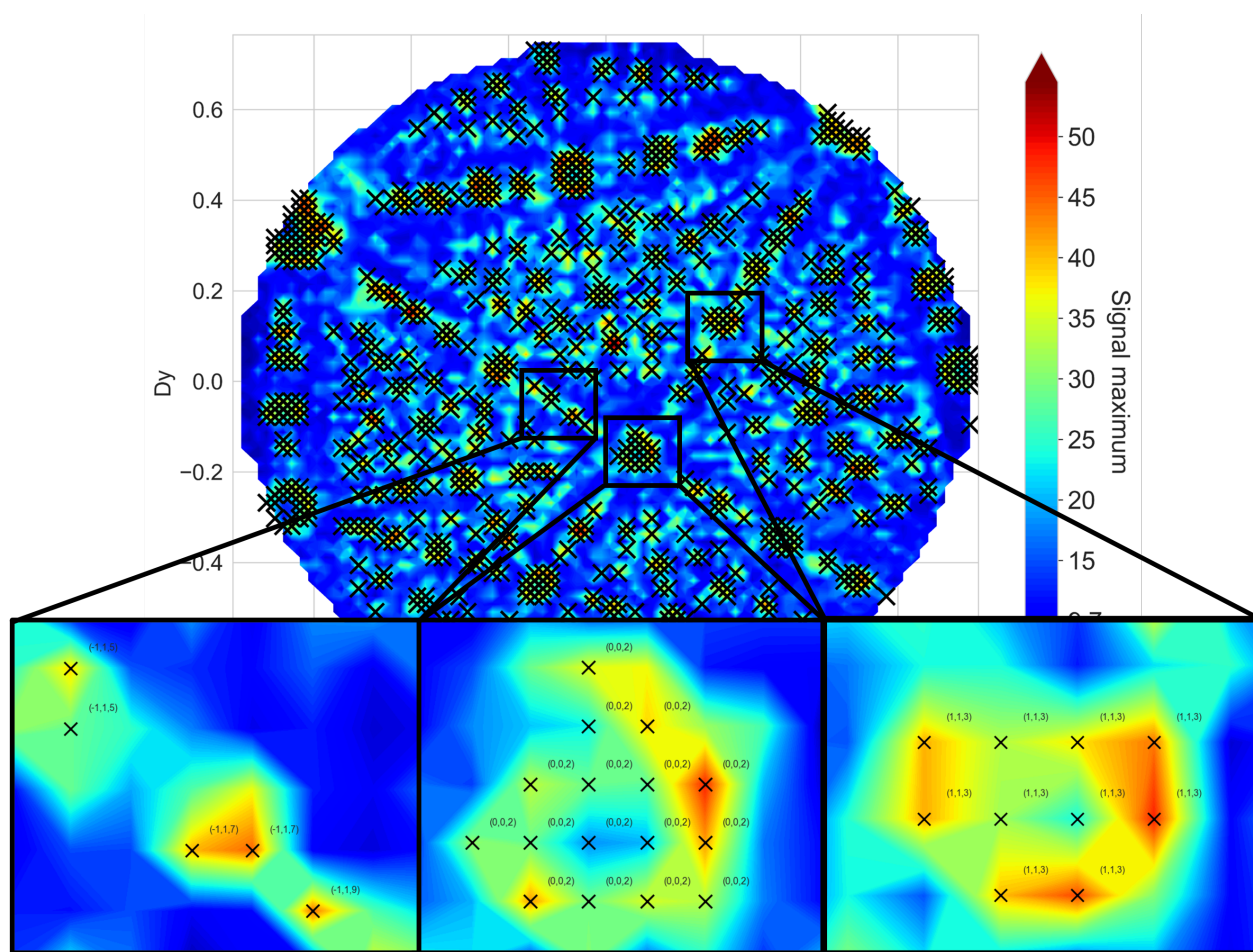


FIGURE 4.18 Tous les pixels possédant un pic sont identifier par une croix noire. Chaque pixel est assigné a son plan correspondant

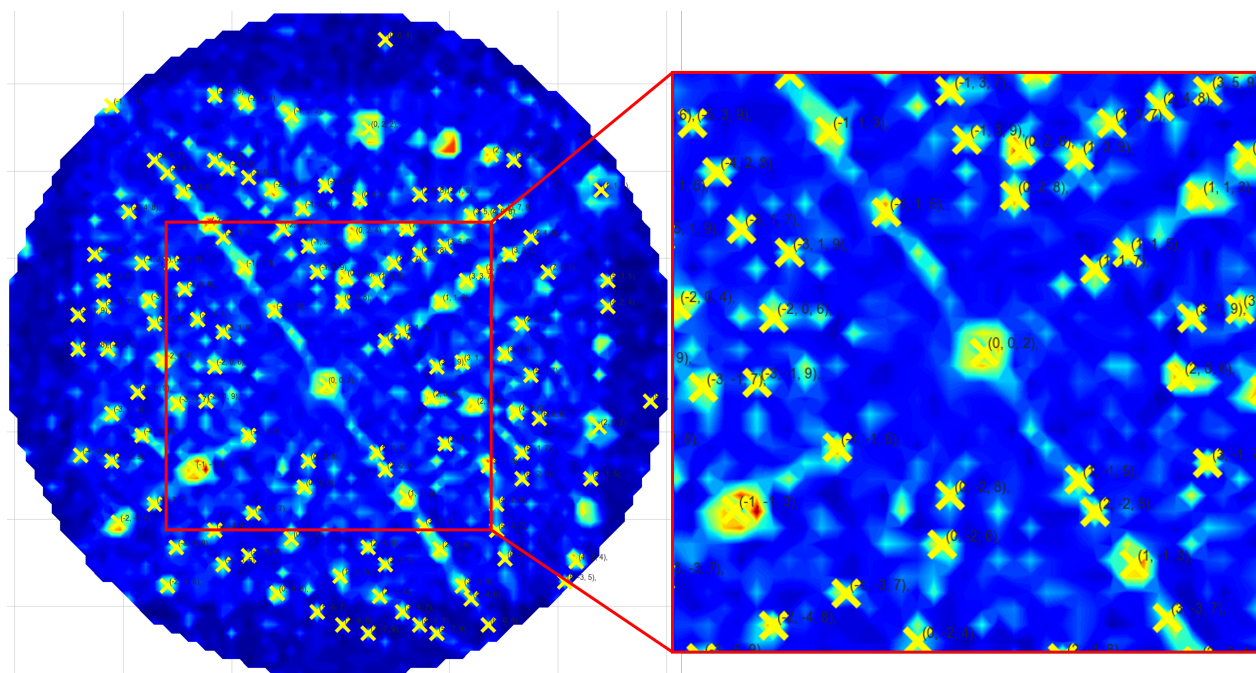


FIGURE 4.19 Assignment finale des plans

## 4.5 Longueur de reconstruction

Lors de l'association des pixels à leurs directions cristallographiques, nous avons remarqué que ceux situés en périphérie étaient identifiés avec moins de précision que ceux proches du centre. En effet, les rapports expérimentaux s'écartaient davantage des valeurs théoriques en bordure, au point de conduire à des erreurs d'attribution, confondant parfois des séries de directions similaires.

Cette observation nous a conduit à formuler l'hypothèse que les distances interplanaires mesurées varient avec l'éloignement par rapport au centre de la projection. Notre première étape de validation a donc consisté à vérifier si les distances associées à chaque pixel restaient constantes dans l'ensemble de l'échantillon, ou si une déformation systématique pouvait être mise en évidence.

### 4.5.1 Erreurs sur les extrémités du détecteur

Pour valider cette hypothèse, nous avons cherché à calculer la distance cristallographique totale théorique parcourue le long de la direction  $z$  pour chaque orientation cristalline identifiée. L'idée est de compter le nombre de plans observés dans la mesure, puis de le multiplier par la distance interplanaire projetée correspondante.

Concrètement, nous avons utilisé le nombre de plans détectés dans la transformée de Fourier

(FFT) pour chaque pôle. Ce nombre correspond à la position du pic fondamental dans la FFT, puisque la fréquence spatiale représente le nombre de plans contenus dans la longueur de reconstruction. Ce nombre de plans est ensuite multiplié par la distance interplanaire théorique  $d_{hkl}$  du plan associé, projetée sur l'axe  $z$  à l'aide de l'angle  $\beta$  entre la direction du plan et l'axe  $z$  :

$$d_{hkl \text{ total}} = n \frac{d_{hkl}}{\cos \beta} \quad (4.7)$$

Pour effectuer ces calculs, nous utilisons toujours des couches d'atomes de quelques nanomètres d'épaisseur. Ces couches devraient présenter une profondeur de reconstruction totale homogène sur l'ensemble de la mesure, indépendamment de la position sur le détecteur. La Figure 4.20 présente les distances totales de reconstruction sous forme de carte en dégradé de couleur. Les valeurs exactes sont indiquées au niveau de chaque pôle identifié (cercles), et les couleurs ont été interpolées entre ces points afin d'améliorer la lisibilité de la carte.

On observe que, vers les extrémités, la distance totale est plus faible qu'au centre. Cela est physiquement incohérent, car cela impliquerait une perte de matière localisée aux bords pendant la mesure, ce qui n'a pas de fondement physique. La variation de longueur atteignant 11%, elle est loin d'être négligeable.

Nous avons également constaté que ce phénomène ne se manifeste pas dans les mesures effectuées sur des nanofils. Nous en avons donc déduit que cette variation est probablement liée à la variation de diamètre de la pointe dans la direction  $z$ .

#### 4.5.2 Considération géométrique de l'angle de la pointe

Comme nous l'avons vu dans la section 4.4.1, les atomes situés sur un même pôle sont émis avec un angle identique et arrivent donc au même endroit sur le détecteur. Ce raisonnement suppose que la pointe est un cylindre parfait. Cependant, dans la majorité des cas, les pointes présentent une variation de diamètre due au procédé de préparation. On peut modéliser cette variation géométrique par un angle de la pointe qui représente la variation de rayons le long de la pointe. En intégrant cette géométrie dans le modèle utilisé précédemment, on observe une modification de la distance entre les plans projetés.

La Figure 4.21a illustre une pointe dont le rayon passe de  $r_1$  à  $r_2$ , définissant l'angle de la pointe  $\alpha$ . Pour un angle d'émission  $\beta$ , on constate que la distance entre la position d'émission à hauteur  $r_2$  est plus grande que celle à hauteur  $r_1$ .

La ligne orange dans la Figure 4.21b représente l'ensemble des positions atomiques qui donneront lieu à une émission avec un même angle  $\beta$ . On observe alors que la distance interplanaire apparente (ou projetée sur le détecteur) augmente en présence d'un angle de pointe.

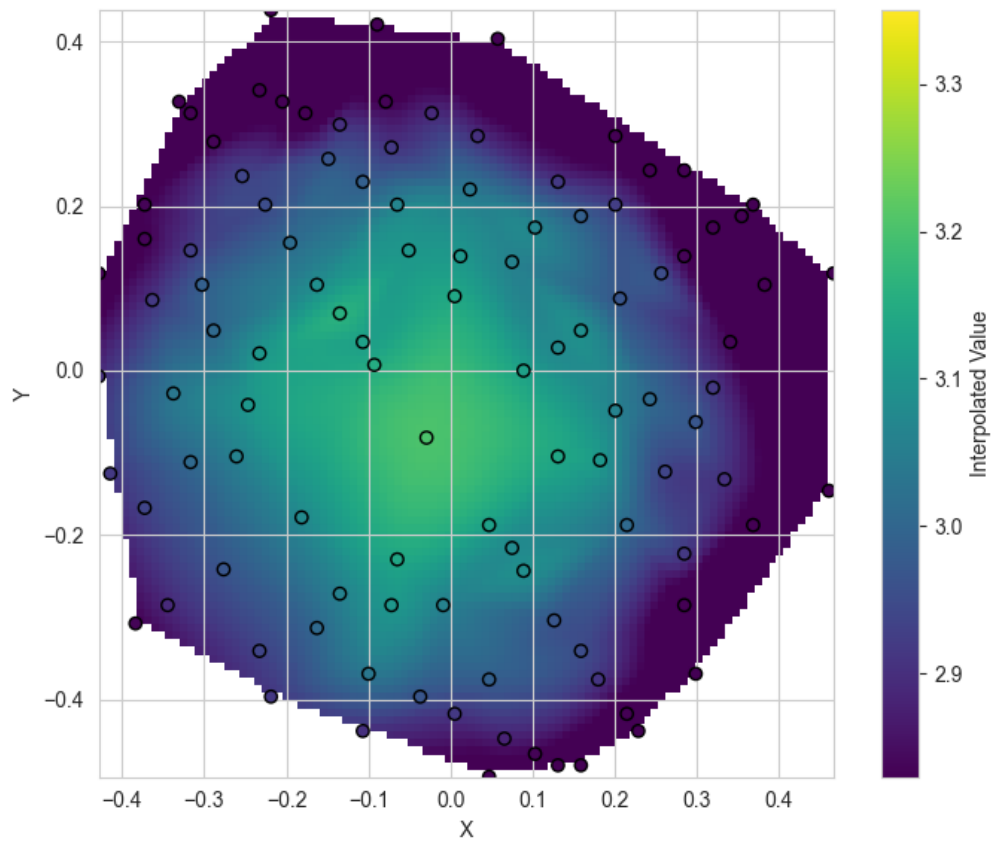


FIGURE 4.20 Profondeur de reconstruction

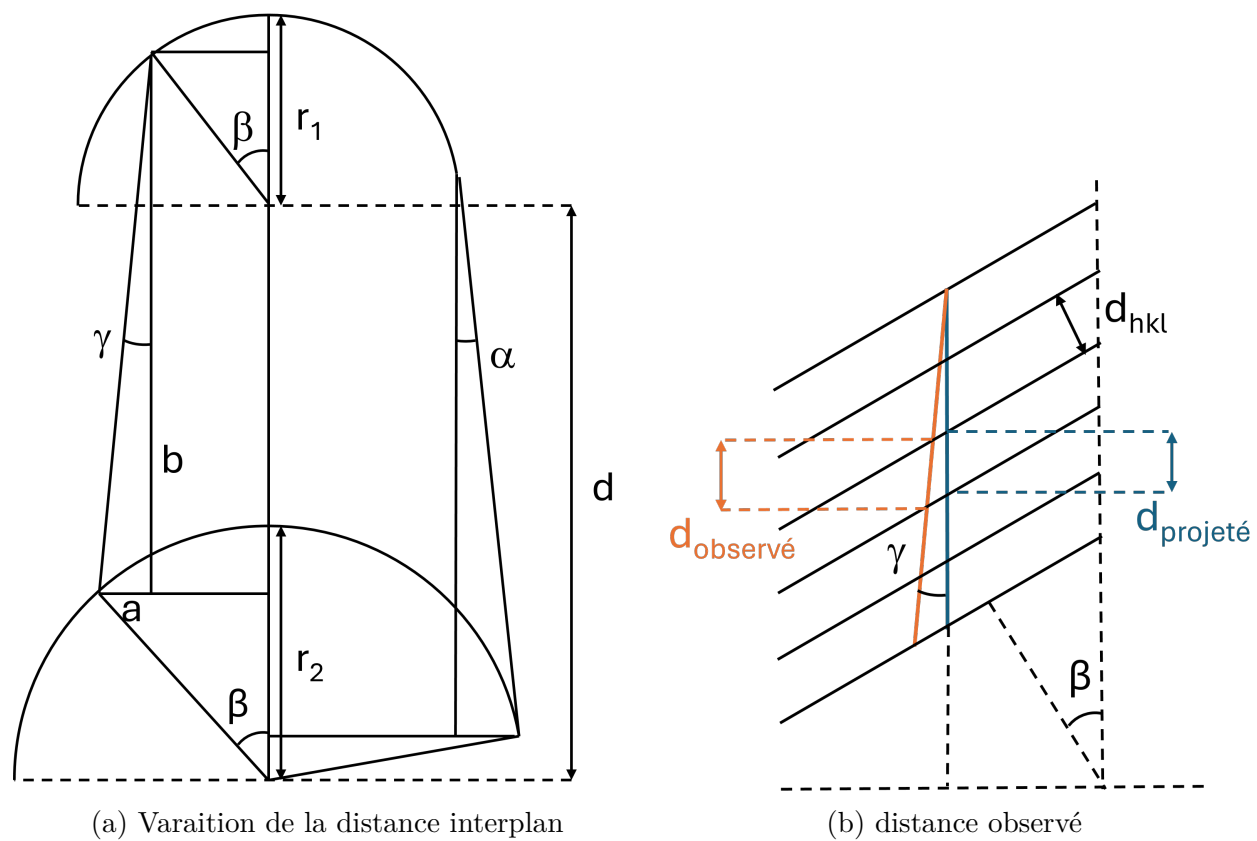


FIGURE 4.21 Géométrie de la pointe en considérant un angle de pointe non nul

L'angle  $\gamma$  quantifie le décalage de la position d'émission induit par la variation géométrique de la pointe pour un angle  $\beta$  donné. Pour le calculer, il est nécessaire d'exprimer les longueurs  $a$  et  $b$  en fonction de l'angle  $\beta$ , de la distance interplanare  $d$ , et des rayons  $r_1$  et  $r_2$ .

$$b = d - r_2 \cos \beta + r_1 \cos \beta = d + \cos \beta (r_1 - r_2) \quad (4.8)$$

$$a = r_2 \sin \beta + r_1 \sin \beta = \sin \beta (r_1 + r_2) \quad (4.9)$$

En utilisant les équations précédentes, on peut calculer  $\gamma$  :

$$\tan(\gamma) = \frac{\sin \beta (r_1 + r_2)}{d + \cos \beta (r_1 - r_2)} = \frac{\sin \beta}{\frac{d}{r_2 - r_1} - \cos \beta} \quad (4.10)$$

Cette équation est valable pour des valeurs de  $\gamma$  comprises entre 0 et  $\alpha$ . Les rayons  $r_1$  et  $r_2$  n'étant pas connus lors de l'analyse, nous cherchons à exprimer l'angle  $\gamma$  uniquement en fonction des angles  $\beta$  et  $\alpha$ . Pour cela, il est nécessaire de faire une hypothèse sur la géométrie de la pointe, notamment au niveau de l'intersection entre le cercle de rayon  $r_1$  et le côté de la pointe.

Il existe 2 types de modélisation géométrique pour les pointes APT au niveau de cette intersection. Ces 2 géométries sont des manières classiques de représenter une pointe APT. Pour chaque, nous allons mettre en relation la valeur de l'angle  $\alpha$  avec les rayons  $r_1$  et  $r_2$ , pour ensuite l'insérer dans l'équation de  $\gamma$ .

Si il n'y a pas de continuité (Figure 4.22a) l'angle  $\alpha$  s'exprime simplement comme :

$$\tan \alpha = \frac{r_2 - r_1}{d} \quad (4.11)$$

Et  $\gamma$  peut ainsi s'écrire :

$$\gamma = \arctan \left( \frac{\sin \beta}{\frac{1}{\tan \alpha} - \cos \beta} \right) \quad (4.12)$$

Si il y a continuité (Figure 4.22b) on constate que l'on peut utiliser l'équation 4.10 de  $\gamma$  avec  $\gamma = \alpha$ . La continuité implique également que  $\beta = 90^\circ - \alpha$  donc :

$$\tan \alpha = \frac{\sin(90^\circ - \alpha)}{\frac{d}{r_2 - r_1} - \cos(90^\circ - \alpha)} = \frac{\cos \alpha}{\frac{d}{r_2 - r_1} - \sin \alpha} \quad (4.13)$$

Et  $\gamma$  peut ainsi s'écrire :

$$\gamma = \arctan \left( \frac{\sin \beta}{\frac{1}{\sin \alpha} - \cos \beta} \right) \quad (4.14)$$

L'analyse des pointes par MEB (Microscopie Électronique à Balayage) après la mesure pré-

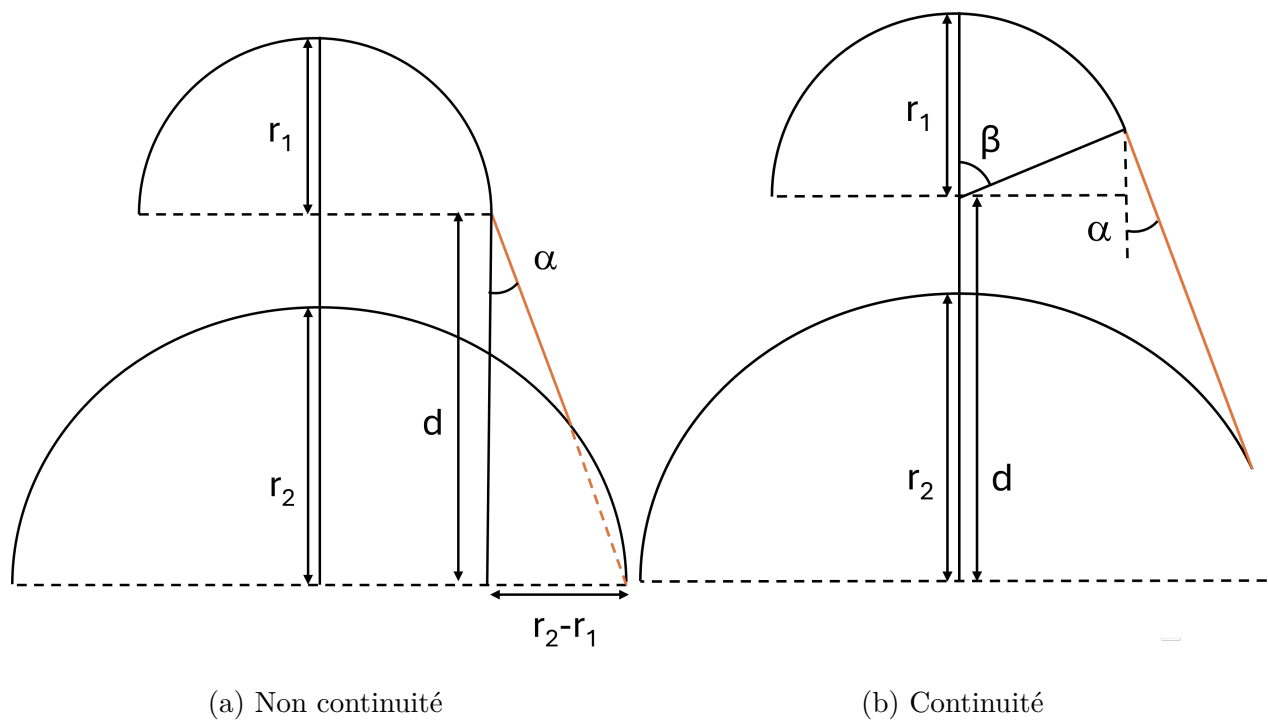


FIGURE 4.22 2 types de géométrie d'intersection de la surface de la pointe entre le coté (orange) et l'extrémité (cercle)

sente une géométrie qui ressemble à celle de la dernière équation. Pour la suite nous allons privilégier la dernière équation de  $\gamma$  qui est plus réaliste physiquement.

### 4.5.3 Calcul de l'angle

On calcule maintenant la distance observée par le détecteur, illustrée dans la Figure 4.21b. Cette distance est censée permettre de corriger la déformation observée de la distance totale. Pour cela, on utilise l'équation 4.7 ainsi que les formules d'Al-Kashi afin de déterminer l'expression de la distance observée :

$$d_{hkl \text{ observé}} = n \frac{d_{hkl} \tan \beta}{\sin(\gamma + \beta)} \quad (4.15)$$

En combinant les équations 4.14 et 4.15, on obtient une expression de la distance observée uniquement en fonction des angles  $\beta$  et  $\alpha$  :

$$d_{hkl \text{ observé}} = n \frac{d_{hkl} \tan \beta}{\sin \left( \arctan \left( \frac{\sin \beta}{\frac{1}{\sin \alpha} - \cos \beta} \right) + \beta \right)} \quad (4.16)$$

L'angle  $\alpha$  n'est pas connu et constitue le seul paramètre ajustable. La Figure 4.23 présente la distribution des distances obtenues pour différentes valeurs de  $\alpha$  utilisées lors de la correction. La Figure 4.23a, qui correspond à une correction angulaire de  $\alpha = 5^\circ$ , montre que l'application de cette correction améliore la restitution des distances par rapport à la Figure 4.20, où aucune correction n'était appliquée. Toutefois, cette correction reste insuffisante. À l'inverse, la Figure 4.23c, obtenue avec  $\alpha = 15^\circ$ , montre une surcorrection : les distances sont exagérément augmentées aux extrémités. Après plusieurs essais, nous avons constaté que l'angle  $\alpha = 10.5^\circ$ , présenté dans la Figure 4.23b, permettait d'obtenir une correction optimale.

Cette approche de calcul est particulièrement importante, car elle permet, à partir des seules données expérimentales et de l'identification des pôles cristallins, d'estimer l'angle de la pointe. Il s'agit, à notre connaissance, de la première méthode permettant de déduire la géométrie de la pointe en exploitant exclusivement les informations cristallographiques issues de la mesure.

## 4.6 Caractérisation de l'optique

L'information de la position exacte des impacts d'atomes émis avec un angle connu permet de savoir la position de départ et d'arrivée de chaque atome. Cette information est très précieuse en APT car elle permet de savoir si la machine fournit des données cohérentes et

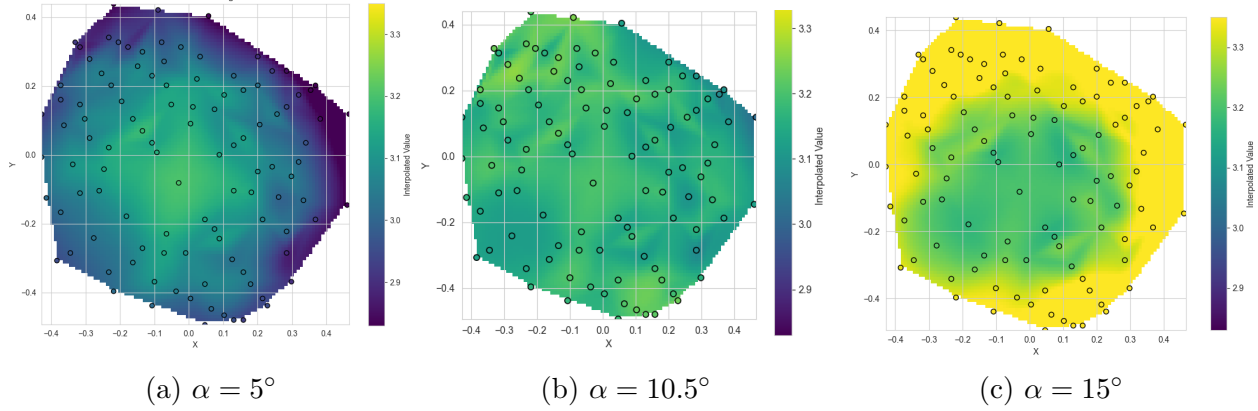


FIGURE 4.23 Prise en compte de la géométrie pour différent angles

fiables. Dans le cas de l'INVIZO, l'introduction d'un système optique change l'ensemble de la trajectoire de vol. ICF est un repère important pour vérifier si la position d'impact prévue est bien celle observée. En effet, l'ICF dans la théorie devrait être constant sur l'ensemble du détecteur. En pratique, il a été constaté que ce n'est pas toujours le cas mais très peu caractérisé car le système LEAP offre un FOV trop faible pour avoir une grande variation de l'ICF.

#### 4.6.1 Calcul de l'ICF

Pour vérifier cette information, nous avons fait le calcul de l'ICF de donnée d'Aluminium. Il est calculé à partir des directions cristallines.  $\beta_{\text{détecteur}}$  est l'angle créé par les directions si les trajectoires des ions avaient été rectilignes entre la pointe et le détecteur. Le calcul de l'ICF peut se faire entre n'importe quelle paire de directions. L'approximation généralement utilisée est que chaque paire devrait donner la même valeur d'ICF. Nous avons fait le calcul pour toutes les paires de direction d'ICF. Avec 126 pôles identifiés, nous avons un total de 7875 combinaisons possibles en utilisant :

$$\binom{n}{2} = \frac{n(n-1)}{2} \quad (4.17)$$

Les résultats des calculs sont présentés sous forme de diagramme de boîte dans la Figure 4.24.

On constate une grande disparité sur les valeurs. Les valeurs de ICF standard sont entre 1.2 et 1.4. Les valeurs extrêmes peuvent s'expliquer par les paires de plans très proches les unes des autres. La précision de position sur le détecteur est limitée à une grille de pixels de

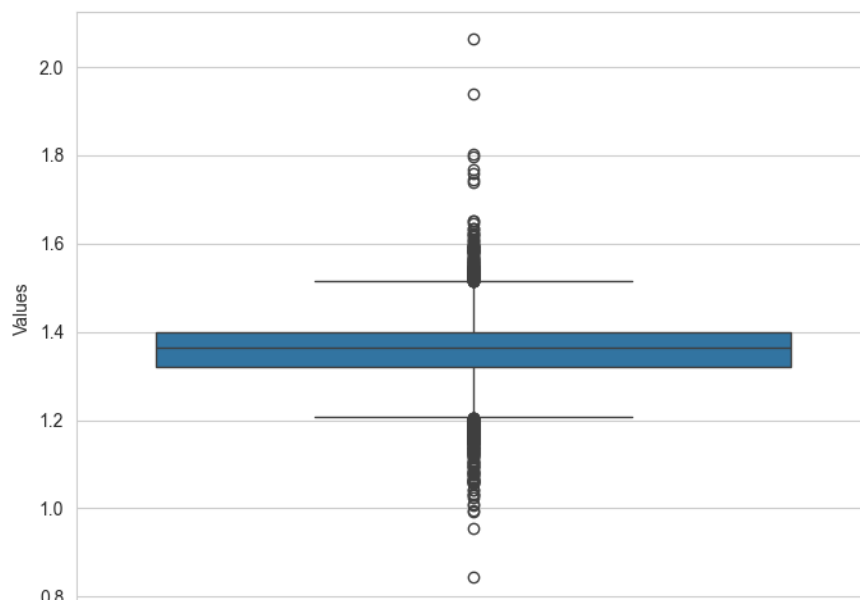


FIGURE 4.24 Distribution de l'ICF dans une mesure d'Aluminium

80 × 80. Les valeurs issues des plans trop proches ne sont pas assez précises pour donner une valeur cohérente.

Néanmoins les valeurs moyennes restent exploitables. On constate que la valeur moyenne d'ICF est de 1.35.

#### 4.6.2 Distribution de l'ICF

Nous utilisons ensuite la valeur obtenue de l'ICF, égale à 1,35, pour superposer la carte de densité du détecteur avec la projection théorique (Figure 4.25b). Les flèches indiquent le décalage entre la position théorique et la position réelle : la base de chaque flèche correspond à la position théorique calculée à partir d'un ICF unique, tandis que la pointe indique la position réelle observée sur la carte de densité.

À titre de comparaison, nous avons également généré une carte avec un ICF de 1,2 (Figure 4.25a), cette valeur ayant été choisie pour son intérêt visuel dans l'analyse comparative.

On constate dans un premier temps que l'ICF n'est pas homogène sur l'ensemble du détecteur et la valeur théorique calculée de 1.35 montre qu'il y a une bonne précision sur l'ICF pour les plans proches du centre mais les plans plus éloignés sont distordus. L'ICF de 1.2 homogénise l'erreur et présente une distorsion plus faible pour les plans éloignés mais est moins précise pour les plans proches du centre.

Cette figure montre que la fonction de correction prenant en compte le système optique ne permet pas de compenser entièrement la distorsion de trajectoire introduite par ce dernier.

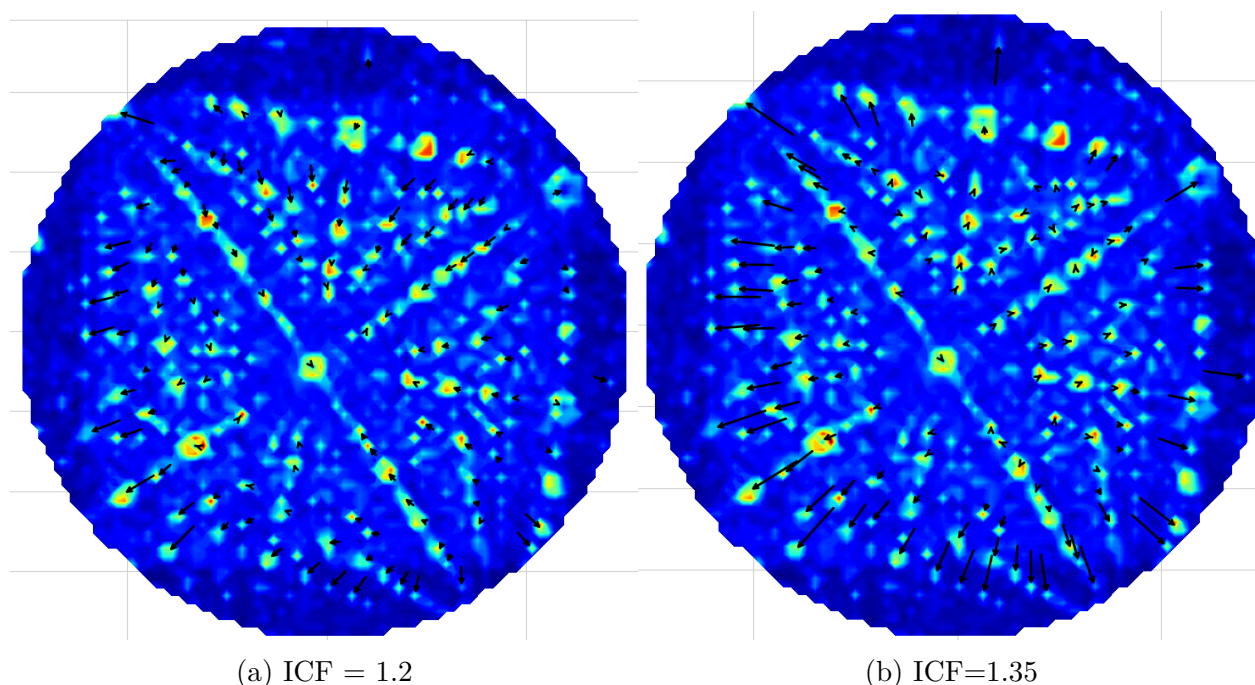


FIGURE 4.25 Comparaison de plusieurs ICF

Une autre hypothèse plausible est que l'ICF n'est pas constant sur l'ensemble de la zone d'émission. En effet, rien ne prouve qu'un unique ICF suffise à corriger la compression de l'image de manière uniforme. On peut envisager que l'ICF soit en réalité une fonction de la distance au centre de la pointe.

Le large champ de vision (FOV) offert par la machine INVIZO constitue un atout majeur pour explorer cette hypothèse et améliorer notre compréhension des effets optiques dans le processus de reconstruction.

#### 4.7 Pole centrale

Jusqu'à présent, l'ensemble des expériences réalisées repose sur l'hypothèse que le centre de reconstruction est situé au centre du détecteur. Ce centre de reconstruction correspond au point choisi comme référence angulaire, c'est-à-dire l'endroit où l'angle  $\theta = 0$ . Les reconstructions standard utilisent généralement le centre du détecteur comme centre de reconstruction. Nous avons donc voulu vérifier si cette hypothèse était effectivement respectée dans les mesures expérimentales.

### 4.7.1 Calcul

Pour trouver la direction du centre de reconstruction, nous avons créé un code qui permet de le déduire à partir de quelques pôles. Pour utiliser cette technique, il faut au minimum 3 pôles dont on suppose les directions cristallines  $d_{hkl,i}$ . Pour chaque direction, le nombre de plans  $n_i$  dans la direction  $z$  doit être connu. Cependant, il a déjà été calculé en utilisant le signal de la transformée de Fourier.

Cette technique repose sur l'hypothèse qu'il existe une direction cristalline telle que la projection de toutes les autres directions sur celle-ci conduise à une distance unique. Dans la Figure 4.26, la direction  $V$  représente l'axe cristallin de référence que l'on cherche à identifier. Les autres directions cristallines sont notées  $V_i$ . La longueur suivant la direction  $V_i$  est calculée à partir du nombre de plans cristallins  $n_i$  observés dans cette direction, multiplié par la distance théorique interplanaire  $d_{hkl}$  correspondante. On peut ainsi exprimer  $\theta$ , l'angle de projection de la longueur suivant  $V_i$  sur  $d$  :

$$\cos \theta = \frac{d}{n_i d_{hkl}} \quad (4.18)$$

Ici, on ne prend pas en compte la variation de distance due à l'angle de la pointe, présenté dans la section 4.5, car c'est cet effet qui va permettre de trouver quel est le réel centre. L'angle  $\theta$  est également calculé à partir des vecteurs :

$$\cos \theta = \frac{\vec{v}_i \cdot \vec{v}}{\|\vec{v}_i\| \cdot \|\vec{v}\|} \quad (4.19)$$

Les 2 équations précédentes permettent de mettre en équation l'angle réel associé à la direction  $V_i$  à celui mesuré sur le détecteur avec le nombre de plans. On obtient ainsi l'équation suivante :

$$d = n_1 d_{(hkl),i} \frac{\|\vec{V}_i\|}{\vec{V}_i \cdot \vec{V}} \quad (4.20)$$

On cherche la direction  $V$  qui s'exprime en coordonnées cartésiennes :

$$\vec{V} = \begin{bmatrix} x \\ y \\ z \end{bmatrix} \quad (4.21)$$

On constate que le vecteur  $V$  a 3 inconnues et que  $d$  est également une inconnue. On cherche donc à résoudre un système avec 4 inconnues. Pour obtenir une unique valeur de  $V$  on fixe  $\sqrt{x^2 + y^2 + z^2} = 1$ . 3 pôles sont nécessaires pour faire le calcul. On obtient le système à 4

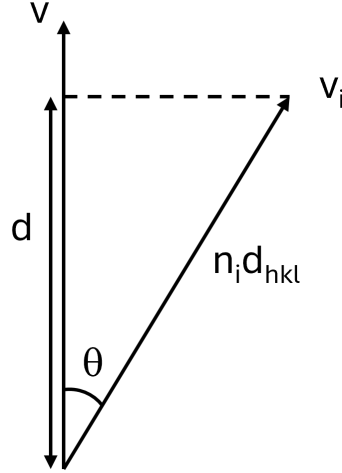


FIGURE 4.26 Pole central

équations pour obtenir la direction de reconstruction.

$$\begin{cases} d = n_1 d_{(hkl),1} \frac{\|\vec{V}_1\|}{\vec{V}_1 \cdot \vec{V}} \\ d = n_2 d_{(hkl),2} \frac{\|\vec{V}_2\|}{\vec{V}_2 \cdot \vec{V}} \\ d = n_3 d_{(hkl),3} \frac{\|\vec{V}_3\|}{\vec{V}_3 \cdot \vec{V}} \\ \|\vec{V}\| = 1 \end{cases} \quad (4.22)$$

#### 4.7.2 Résultats

Pour obtenir ces résultats, nous avons utilisé une mesure réalisée sur un échantillon d'aluminium, dans laquelle 12 plans cristallins ont été identifiés. Les plans utilisés sont les suivants :

$$(\bar{1}\bar{1}3)(113)(\bar{1}\bar{1}3)(\bar{1}\bar{1}3)(204)(024)(\bar{2}04)(0\bar{2}4)(2\bar{2}4)(224)(\bar{2}24)(\bar{2}\bar{2}4)$$

Nous avons généré l'ensemble des combinaisons possibles de trois plans parmi les douze identifiés, puis résolu le système présenté dans la section précédente pour chacune d'elles. Les directions obtenues ont ensuite été projetées sur un plan situé à une distance  $z = 1$ , selon la direction (002). Les résultats de cette projection sont présentés dans la Figure 4.27.

Si les 3 pôles sont situés sur le même plan, il n'y a pas d'information 3D disponible et la résolution n'a pas de solution. On constate que les directions sont réparties autour du centre de la projection, qui est la direction (002). La figure 4.28 présente la répartition des coordonnées  $x$ ,  $y$  et  $z$ . On observe que la moyenne des directions obtenues tend vers

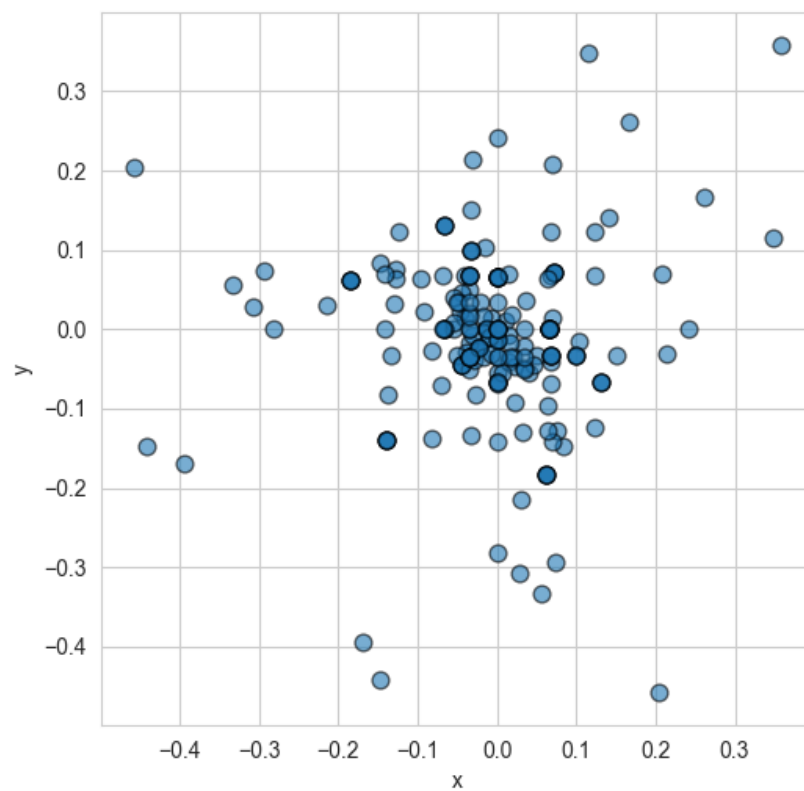


FIGURE 4.27 Projection suivant la direction  $[002]$  des différents centre de reconstruction obtenue par regroupement de 3 pôles

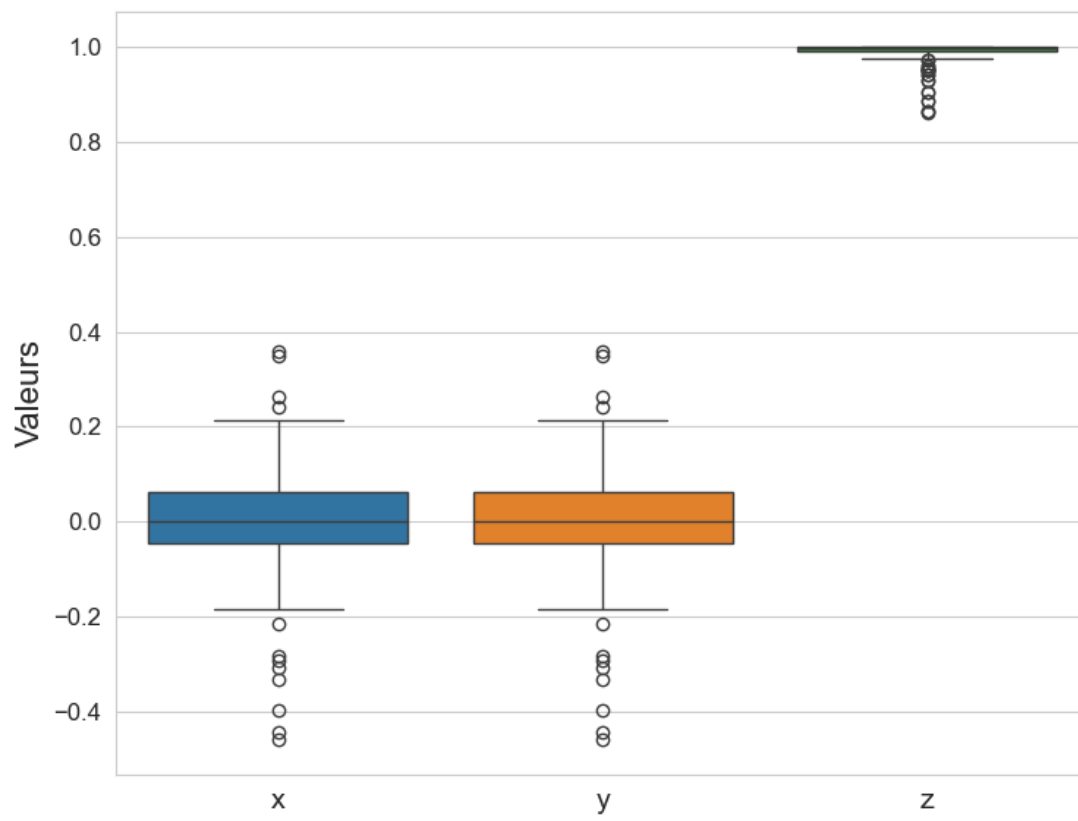


FIGURE 4.28 Distribution des composantes de direction principale

le plan (002). Or, dans ce cas précis, le pôle (002) n'est pas situé au centre du détecteur (Figure 4.17). L'analyse du centre de reconstruction effectuée sur plusieurs autres échantillons d'aluminium montre également qu'il se situe très proche de la direction (002), bien que celle-ci ne corresponde pas au centre du détecteur. Des analyses supplémentaires sur un plus grand nombre d'échantillons seraient nécessaires afin de déterminer s'il existe un motif récurrent dans la position du centre de reconstruction.

## CHAPITRE 5 CONCLUSION

Cette thèse avait pour objectif d'améliorer la détection des plans cristallins dans les données APT à l'aide de la transformée de Fourier 1D, ainsi que de développer de nouvelles procédures exploitant les informations extraites des positions et distances interplanaires. L'enjeu principal était d'améliorer la reconstruction 3D et de proposer des méthodes de calibration adaptées aux nouvelles machines à large champ de vision.

### 5.1 Synthèse des travaux

Dans un premier temps, nous avons dû nous adapter à cette nouvelle technologie à large champ de vision, ce qui a nécessité la modification de nos méthodes d'importation de données ainsi que l'intégration de nouvelles équations tenant compte des effets optiques induits.

Pour améliorer la détection des plans, un système de détection de pics basé sur l'analyse par ondelettes a été introduit. Cette approche se montre robuste face au bruit, permettant une meilleure identification des pics qu'avec les méthodes classiques. Ensuite, un algorithme de projection APT a été développé afin d'identifier automatiquement les plans cristallins dont les longueurs sont similaires. Les positions détectées ont ensuite été moyennées pour obtenir une position unique et plus fiable pour chaque plan.

Cette première étape constitue une amélioration majeure par rapport aux méthodes précédentes, qui se contentaient de repérer les minima de la carte de densité. En outre, l'intégration des distances interplanaires ajoute une information structurelle précieuse sans nécessiter de données externes.

À partir de ces données, trois méthodes ont été développées :

1. Méthode de la longueur de reconstruction. Cette méthode exploite les distances interplanaires, les positions et l'identification des plans pour estimer les erreurs de reconstruction liées à la variation de l'angle de la pointe. Elle constitue un apport majeur, car elle permet de déduire cet angle à partir d'un petit nombre de plans identifiés. Elle peut ainsi servir à la fois pour la calibration des machines et pour corriger les reconstructions, notamment dans le cas de matériaux cristallins.
2. Méthode de distribution des pôles. Celle-ci repose sur l'analyse de la distribution des pôles pour étudier l'impact de l'optique sur la trajectoire des atomes. Elle permet de diagnostiquer les défauts de calibration et de mieux ajuster les équations correspondantes. Cette méthode propose également une estimation automatique du facteur de compression d'image (ICF),

qui peut ensuite être intégré dans le processus de reconstruction. À terme, elle ouvre la voie à une reconstruction adaptative, dans laquelle l'ICF pourrait varier spatialement selon les zones de l'échantillon.

3. Méthode du centre de reconstruction. La troisième méthode vise à déterminer précisément le centre de reconstruction d'une mesure, en prenant en compte la forme et l'orientation de la pointe. En supposant que les distances doivent être conservées lors de la projection sur la direction de reconstruction, cette méthode permet de corriger des décalages qui affectent directement la qualité des reconstructions.

L'ensemble de ces trois méthodes combinées constitue une avancée significative pour la précision de la reconstruction et la calibration des nouvelles machines APT. Bien que leur mise en œuvre requière des ressources computationnelles importantes, elles sont applicables à chaque mesure, en particulier celles présentant des plans cristallins.

Enfin, ces méthodes ont également un potentiel industriel : elles pourraient être intégrées dans les routines de calibration utilisées par les fabricants d'équipements, notamment lors de l'analyse d'échantillons standards comme l'aluminium, pour améliorer la fiabilité des calibrations automatiques.

## 5.2 Limitations de la solution proposée

Bien que les méthodes de détection proposées donnent de bons résultats, certains plans ne sont pas correctement identifiés, en particulier ceux situés aux bords du détecteur, où les distances interplanaires sont affectées par les erreurs de reconstruction évoquées dans la première méthode. Par ailleurs, certaines identifications doivent encore être réalisées manuellement, ce qui ralentit le processus global.

De plus, l'orientation de la projection APT n'est pas encore automatiquement ajustée en fonction de l'angle  $\psi$ . Pour rendre la méthode pleinement opérationnelle, il est nécessaire de posséder une bonne connaissance des projections associées aux différents types de cristaux, afin de les identifier correctement. L'identification et l'introduction des positions atomiques issues de la structure cristalline sont également réalisées manuellement à ce stade, ce qui constitue un frein important à l'automatisation complète et à une intégration directe dans les pipelines de reconstruction utilisés en routine.

Concernant les méthodes proposées :

- La méthode de la longueur de reconstruction montre un fort potentiel d'application à tous les matériaux cristallins. De plus, si l'angle de la pointe est connu, elle peut également être utilisée pour corriger les reconstructions de matériaux amorphes ou de

structures présentant peu de pôles visibles.

- La méthode basée sur la distribution des pôles nécessite une quantité suffisante de pôles pour fournir une information fiable. Elle se destine principalement à des usages de calibration, pour lesquels elle peut apporter une amélioration notable.
- La méthode du centre de reconstruction, quant à elle, ne peut être appliquée qu'à des données contenant au minimum trois pôles non alignés. Cette contrainte limite son utilisation pratique dans certaines configurations expérimentales.

L'efficacité globale de ces méthodes dépend en grande partie de la robustesse de la détection des plans, ouvrant ainsi la voie à de futurs travaux d'amélioration algorithmique.

### 5.3 Améliorations futures

Concernant les améliorations futures, l'algorithme de détection des plans mérite d'être optimisé, à la fois pour accroître sa précision et pour renforcer son automatisation, dans le but de le rendre accessible à l'ensemble des utilisateurs des machines APT. L'implémentation d'un système de rétroaction permettrait d'éviter le recours à des données externes, en intégrant directement un mécanisme d'identification automatique des structures cristallines.

Grâce à cette boucle de rétroaction, il serait également envisageable d'exploiter les sorties des autres méthodes développées dans cette thèse. Par exemple, les résultats de la méthode de la longueur de reconstruction pourraient être réutilisés pour améliorer la détection des plans, tandis que les informations issues de la méthode du centre de reconstruction pourraient contribuer à une meilleure estimation du centre, renforçant ainsi la cohérence globale de la reconstruction.

Par ailleurs, ces différentes méthodes devraient être intégrées dans les algorithmes de reconstruction ainsi que dans les protocoles de calibration. Leur impact potentiel sur la qualité des reconstructions est important, bien qu'il n'ait pas encore été quantifié à ce jour. Une évaluation systématique de leur influence constituerait donc une étape essentielle à venir.

Enfin, il serait judicieux d'exploiter conjointement l'information sur les distances interplanaires et le taux de détection des plans afin d'estimer les volumes reconstruits. Cette approche pourrait offrir une nouvelle méthode pour déterminer le rayon de la pointe en fonction de la profondeur, apportant ainsi une information complémentaire précieuse pour les reconstructions en 3D.

## RÉFÉRENCES

- [1] E. W. Müller et T. T. Tsong, “Field ion microscopy, field ionization and field evaporation,” *Progress in Surface Science*, vol. 4, p. 1–139, janv. 1974. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0079681674800055>
- [2] M. K. Miller, G. D. W. Smith, T. u. Oak Ridge National Lab. et O. U. U. D. o. M. a. S. o. Materials, “Atom probe microanalysis : Principles and applications to materials problems,” Oak Ridge National Lab., TN (USA), Rapport technique CONF-871255–1-Draft, 1987. [En ligne]. Disponible : <https://inis.iaea.org/records/v7s1d-pyb85>
- [3] P. Bas, A. Bostel, B. Deconihout et D. Blavette, “A general protocol for the reconstruction of 3D atom probe data,” *Applied Surface Science*, vol. 87-88, p. 298–304, mars 1995. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0169433294005613>
- [4] D. Blavette, E. Cadel, A. Fraczkiewicz et A. Menand, “Three-Dimensional Atomic-Scale Imaging of Impurity Segregation to Line Defects,” *Science*, vol. 286, n°. 5448, p. 2317–2319, déc. 1999, publisher : American Association for the Advancement of Science. [En ligne]. Disponible : <https://www.science.org/doi/full/10.1126/science.286.5448.2317>
- [5] B. P. Geiser, T. F. Kelly, D. J. Larson, J. Schneir et J. P. Roberts, “Spatial distribution maps for atom probe tomography,” *Microscopy and Microanalysis*, vol. 13, n°. 6, p. 437–447, 2007, publisher : Cambridge University Press. [En ligne]. Disponible : <https://www.cambridge.org/core/journals/microscopy-and-microanalysis/article/spatial-distribution-maps-for-atom-probe-tomography/820A956E652913D5A46729DD8357FF7B>
- [6] S. Koelling, O. Richard, H. Bender, M. Uematsu, A. Schulze, G. Zschaetzsch, M. Gilbert et W. Vandervorst, “Direct Imaging of 3D Atomic-Scale Dopant-Defect Clustering Processes in Ion-Implanted Silicon,” *Nano Letters*, vol. 13, n°. 6, p. 2458–2462, juin 2013, publisher : American Chemical Society. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1021/nl400447d>
- [7] J. H. Bunton et M. S. V. DYKE, “Wide field-of-view atom probe,” US Brevet US10 615 001B2, avr. 2020. [En ligne]. Disponible : <https://patents.google.com/patent/US10615001B2/en>
- [8] K. Hono, “Nanoscale microstructural analysis of metallic materials by atom probe field ion microscopy,” *Progress in Materials Science*, vol. 47, n°. 6, p. 621–729, janv. 2002. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/>

S007964250100007X

- [9] B. Gault, M. P. Moody, J. M. Cairney et S. P. Ringer, “Atom probe crystallography,” *Materials Today*, vol. 15, n<sup>o</sup>. 9, p. 378–386, sept. 2012. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1369702112701645>
- [10] D. J. Larson, T. J. Prosa, R. M. Ulfing, B. P. Geiser et T. F. Kelly, *Local Electrode Atom Probe Tomography : A User’s Guide*. New York, NY : Springer, 2013. [En ligne]. Disponible : <https://link.springer.com/10.1007/978-1-4614-8721-0>
- [11] B. Gault, A. Chiaramonti, O. Cojocar-Mirédin, P. Stender, R. Dubosq, C. Freysoldt, S. K. Makineni, T. Li, M. Moody et J. M. Cairney, “Atom probe tomography,” *Nature reviews. Methods primers*, vol. 1, n<sup>o</sup>. 51, p. 10.1038/s43586-021-00047-w, 2021. [En ligne]. Disponible : <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pmc/articles/PMC10502706/>
- [12] T. F. Kelly et M. K. Miller, “Atom probe tomography,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 78, n<sup>o</sup>. 3, p. 031101, mars 2007. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1063/1.2709758>
- [13] M. K. Miller et R. G. Forbes, “Atom probe tomography,” *Materials Characterization*, vol. 60, n<sup>o</sup>. 6, p. 461–469, juin 2009. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1044580309000801>
- [14] T. F. Kelly et D. J. Larson, “The second revolution in atom probe tomography,” *MRS Bulletin*, vol. 37, n<sup>o</sup>. 2, p. 150–158, févr. 2012. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1557/mrs.2012.3>
- [15] R. H. Fowler et L. Nordheim, “Electron emission in intense electric fields,” *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, vol. 119, n<sup>o</sup>. 781, p. 173–181, janv. 1997, publisher : Royal Society. [En ligne]. Disponible : <https://royalsocietypublishing.org/doi/abs/10.1098/rspa.1928.0091>
- [16] E. W. Müller, “Die Abhängigkeit der Feldelektronenemission von der Austrittsarbeit,” *Zeitschrift für Physik*, vol. 102, n<sup>o</sup>. 11, p. 734–761, nov. 1936. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1007/BF01338540>
- [17] —, “Field Desorption,” *Physical Review*, vol. 102, n<sup>o</sup>. 3, p. 618–624, mai 1956, publisher : American Physical Society. [En ligne]. Disponible : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.102.618>
- [18] E. W. Müller et K. Bahadur, “Field Ionization of Gases at a Metal Surface and the Resolution of the Field Ion Microscope,” *Physical Review*, vol. 102, n<sup>o</sup>. 3, p. 624–631, mai 1956, publisher : American Physical Society. [En ligne]. Disponible : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.102.624>

- [19] J. A. Panitz, “The Atom Probe Fim,” Ph.D., The Pennsylvania State University, United States – Pennsylvania, 1969, iSBN : 9798635217214. [En ligne]. Disponible : <https://www.proquest.com/docview/302499099/citation/756A9C2CEBEB4E28PQ/1>
- [20] E. W. Müller, J. A. Panitz et S. B. McLane, “The Atom-Probe Field Ion Microscope,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 39, n°. 1, p. 83–86, janv. 1968. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1063/1.1683116>
- [21] G. L. Kellogg et T. T. Tsong, “Pulsed-laser atom-probe field-ion microscopy,” *Journal of Applied Physics*, vol. 51, n°. 2, p. 1184–1193, févr. 1980. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1063/1.327686>
- [22] J. A. Panitz, “The 10 cm Atom Probe,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 44, n°. 8, p. 1034–1038, août 1973. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1063/1.1686295>
- [23] A. Cerezo, T. J. Godfrey et G. D. W. Smith, “Application of a position-sensitive detector to atom probe microanalysis,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 59, n°. 6, p. 862–866, juin 1988. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1063/1.1139794>
- [24] D. Blavette, A. Bostel, J. M. Sarrau, B. Deconihout et A. Menand, “An atom probe for three-dimensional tomography,” *Nature*, vol. 363, n°. 6428, p. 432–435, juin 1993, publisher : Nature Publishing Group. [En ligne]. Disponible : <https://www.nature.com/articles/363432a0>
- [25] T. F. Kelly, P. P. Camus, D. J. Larson, L. M. Holzman et S. S. Bajikar, “On the many advantages of local-electrode atom probes,” *Ultramicroscopy*, vol. 62, n°. 1, p. 29–42, janv. 1996. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0304399195000860>
- [26] T. F. Kelly et D. J. Larson, “Local Electrode Atom Probes,” *Materials Characterization*, vol. 44, n°. 1, p. 59–85, janv. 2000. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1044580399000558>
- [27] T. F. Kelly, T. T. Gribb, J. D. Olson, R. L. Martens, J. D. Shepard, S. A. Wiener, T. C. Kunicki, R. M. Ulfing, D. R. Lenz, E. M. Strennen, E. Oltman, J. H. Bunton et D. R. Strait, “First Data from a Commercial Local Electrode Atom Probe (LEAP),” *Microscopy and Microanalysis*, vol. 10, n°. 3, p. 373–383, juin 2004. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1017/S1431927604040565>
- [28] E. W. Müller, “Field Ion Microscopy,” *Science*, vol. 149, n°. 3684, p. 591–601, août 1965, publisher : American Association for the Advancement of Science. [En ligne]. Disponible : <https://www.science.org/doi/abs/10.1126/science.149.3684.591>
- [29] D. J. Larson, D. T. Foord, A. K. Petford-Long, T. C. Anthony, I. M. Rozdilsky, A. Cerezo et G. W. D. Smith, “Focused ion-beam milling for field-ion specimen

- preparation : : preliminary investigations,” *Ultramicroscopy*, vol. 75, n<sup>o</sup>. 3, p. 147–159, déc. 1998. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304399198000588>
- [30] M. K. Miller, K. F. Russell, K. Thompson, R. Alvis et D. J. Larson, “Review of Atom Probe FIB-Based Specimen Preparation Methods,” *Microscopy and Microanalysis*, vol. 13, n<sup>o</sup>. 6, p. 428–436, déc. 2007. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1017/S1431927607070845>
- [31] S. Koelling, “Three dimensional compositional analysis of semiconductors with the Atom Probe,” 2011.
- [32] D. G. Brandon, “The accurate determination of crystal orientation from field ion micrographs,” *Journal of Scientific Instruments*, vol. 41, n<sup>o</sup>. 6, p. 373, juin 1964. [En ligne]. Disponible : <https://dx.doi.org/10.1088/0950-7671/41/6/305>
- [33] R. W. Newman, R. C. Sanwald et J. J. Hren, “A method for indexing field ion micrographs,” *Journal of Scientific Instruments*, vol. 44, n<sup>o</sup>. 10, p. 828, oct. 1967. [En ligne]. Disponible : <https://dx.doi.org/10.1088/0950-7671/44/10/302>
- [34] J. M. Walls et H. N. Southworth, “Magnification in the field-ion microscope,” *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 12, n<sup>o</sup>. 5, p. 657, mai 1979. [En ligne]. Disponible : <https://dx.doi.org/10.1088/0022-3727/12/5/006>
- [35] A. Cerezo, P. J. Warren et G. D. W. Smith, “Some aspects of image projection in the field-ion microscope,” *Ultramicroscopy*, vol. 79, n<sup>o</sup>. 1, p. 251–257, sept. 1999. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304399199000716>
- [36] S. T. Loi, B. Gault, S. P. Ringer, D. J. Larson et B. P. Geiser, “Electrostatic simulations of a local electrode atom probe : The dependence of tomographic reconstruction parameters on specimen and microscope geometry,” *Ultramicroscopy*, vol. 132, p. 107–113, sept. 2013. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304399112002999>
- [37] B. Geiser, D. Larson, E. Oltman, S. Gerstl, D. Reinhard, T. Kelly et T. Prosa, “Wide-Field-of-View Atom Probe Reconstruction,” *Microscopy and Microanalysis*, vol. 15, n<sup>o</sup>. S2, p. 292–293, juill. 2009. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1017/S1431927609098249>
- [38] B. Gault, M. P. Moody, F. de Geuser, G. Tsafnat, A. La Fontaine, L. T. Stephenson, D. Haley et S. P. Ringer, “Advances in the calibration of atom probe tomographic reconstruction,” *Journal of Applied Physics*, vol. 105, n<sup>o</sup>. 3, p. 034913, févr. 2009. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1063/1.3068197>
- [39] B. Gault, S. T. Loi, V. J. Araullo-Peters, L. T. Stephenson, M. P. Moody, S. L. Shrestha, R. K. W. Marceau, L. Yao, J. M. Cairney et S. P. Ringer, “Dynamic

- reconstruction for atom probe tomography,” *Ultramicroscopy*, vol. 111, n<sup>o</sup>. 11, p. 1619–1624, nov. 2011. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304399111001999>
- [40] B. Geiser, D. Reinhard, J. Bunton, T. Payne, K. Rice, Y. Chen et D. Larson, “Reconstruction Metrics in Atom Probe Tomography,” *Microscopy and Microanalysis*, vol. 25, n<sup>o</sup>. S2, p. 336–337, août 2019. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1017/S1431927619002411>
- [41] F. Vurpillot, A. Bostel, E. Cadel et D. Blavette, “The spatial resolution of 3D atom probe in the investigation of single-phase materials,” *Ultramicroscopy*, vol. 84, n<sup>o</sup>. 3, p. 213–224, août 2000. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304399100000358>
- [42] F. Vurpillot, S. Parviainen, F. Djurabekova, D. Zanuttini et B. Gervais, “Simulation tools for atom probe tomography : A path for diagnosis and treatment of image degradation,” *Materials Characterization*, vol. 146, p. 336–346, déc. 2018. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S104458031830367X>
- [43] F. Vurpillot et C. Oberdorfer, “Modeling Atom Probe Tomography : A review,” *Ultramicroscopy*, vol. 159, p. 202–216, déc. 2015. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304399114002708>
- [44] C. Oberdorfer, S. M. Eich et G. Schmitz, “A full-scale simulation approach for atom probe tomography,” *Ultramicroscopy*, vol. 128, p. 55–67, mai 2013. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304399113000144>
- [45] T. T. Tsong et T. J. Kinkus, “Energy distributions of pulsed-laser field-desorbed gaseous ions and field-evaporated metal ions : A direct time-of-flight measurement,” *Physical Review B*, vol. 29, n<sup>o</sup>. 2, p. 529–542, janv. 1984, publisher : American Physical Society. [En ligne]. Disponible : <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.29.529>
- [46] J. H. Bunton, J. D. Olson, D. R. Lenz et T. F. Kelly, “Advances in pulsed-laser atom probe : Instrument and specimen design for optimum performance,” *Microscopy and Microanalysis*, vol. 13, n<sup>o</sup>. 6, p. 418–427, 2007, publisher : Cambridge University Press. [En ligne]. Disponible : <https://www.cambridge.org/core/journals/microscopy-and-microanalysis/article/advances-in-pulsedlaser-atom-probe-instrument-and-specimen-design-for-optimum-performance/1748AAF071F944317F4C3F63D5CFE6E0>
- [47] D. J. Larson, B. Gault, B. P. Geiser, F. De Geuser et F. Vurpillot, “Atom probe tomography spatial reconstruction : Status and directions,” *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, vol. 17, n<sup>o</sup>. 5, p. 236–247, oct. 2013. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S1359028613000739>

- [48] L. Tegg, A. J. Breen, S. Huang, T. Sato, S. P. Ringer et J. M. Cairney, “Characterising the performance of an ultrawide field-of-view 3D atom probe,” *Ultramicroscopy*, vol. 253, p. 113826, nov. 2023. [En ligne]. Disponible : <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304399123001432>
- [49] S. Koelling, N. Innocenti, A. Schulze, M. Gilbert, A. K. Kambham et W. Vandervorst, “In-situ observation of non-hemispherical tip shape formation during laser-assisted atom probe tomography,” *Journal of Applied Physics*, vol. 109, n<sup>o</sup>. 10, p. 104909, mai 2011. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1063/1.3592339>
- [50] S. Koelling, S. Assali, G. Nadal, D. Isheim, D. N. Seidman et O. Moutanabbir, “Tracking of atomic planes in atom probe tomography,” *Journal of Applied Physics*, vol. 136, n<sup>o</sup>. 24, p. 245103, déc. 2024. [En ligne]. Disponible : <https://doi.org/10.1063/5.0226890>
- [51] A. Bruce, D. Donoho et H.-Y. Gao, “Wavelet analysis [for signal processing],” *IEEE Spectrum*, vol. 33, n<sup>o</sup>. 10, p. 26–35, oct. 1996. [En ligne]. Disponible : <https://ieeexplore.ieee.org/document/540087>
- [52] M. Lang, H. Guo, J. Odegard, C. Burrus et R. Wells, “Noise reduction using an undecimated discrete wavelet transform,” *IEEE Signal Processing Letters*, vol. 3, n<sup>o</sup>. 1, p. 10–12, janv. 1996. [En ligne]. Disponible : <https://ieeexplore.ieee.org/document/475823>