



## AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : [ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr](mailto:ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr)

## LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

[http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg\\_droi.php](http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

# THESE

présentée

A LA FACULTE DES SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE METZ

pour obtenir le

DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE METZ ES SCIENCES  
(option : Physique-Mécanique)

par

**Albert TIDU**

**ANALYSE ET ETUDE DE PROFILS DE RAIES DE DIFFRACTION  
DES RAYONS X ENREGISTREES AVEC UN DETECTEUR COURBE.**

**APPLICATION A L'ANALYSE DE PROPRIETES MICROSTRUCTURALES  
DE MATERIAUX ET NOTION D'INDICATRICE.**

*soutenue le 9 février 1990 devant la Commission d'examen*

Monsieur J.J. HEIZMANN, Professeur à l'Université de Metz

Directeur de Thèse

Monsieur J.C. MUTIN, Directeur de Recherche C.N.R.S. Dijon

Rapporteur

Monsieur M. BERVEILLER, Professeur à l'Université de Metz

Rapporteur

Monsieur G. MAEDER, Chef du département Matériaux et Modélisation Renault

Examineur

Monsieur R. PENELLE, Directeur de Recherche C.N.R.S. Paris

Examineur

Monsieur A. VA

d'Ingénieurs de Metz Examineur

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE DE METZ



022 420350 6

Année 1990  
U.F.R. M.I.M.

# THESE

présentée

A LA FACULTE DES SCIENCES DE L'UNIVERSITE DE METZ

pour obtenir le

DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE METZ ES SCIENCES  
(option : Physique-Mécanique)

par

**Albert TIDU**

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE - METZ	
N° inv.	19900085
Cote	S/M <sub>3</sub> 90/4
Loc	Magasin



**ANALYSE ET ETUDE DE PROFILS DE RAIES DE DIFFRACTION  
DES RAYONS X ENREGISTRES AVEC UN DETECTEUR COURBE.**

**APPLICATION A L'ANALYSE DE PROPRIETES MICROSTRUCTURALES  
DE MATERIAUX ET NOTION D'INDICATRICE.**

*soutenu le 9 février 1990 devant la Commission d'examen*

Monsieur J.J. HEIZMANN, Professeur à l'Université de Metz

Directeur de Thèse

Monsieur J.C. MUTIN, Directeur de Recherche C.N.R.S. Dijon

Rapporteur

Monsieur M. BERVEILLER, Professeur à l'Université de Metz

Rapporteur

Monsieur G. MAEDER, Chef du département Matériaux et Modélisation Renault

Examineur

Monsieur R. PENELLE, Directeur de Recherche C.N.R.S. Paris

Examineur

Monsieur A. VADON, Maître de Conférences à l'Ecole Nationale d'Ingénieurs de Metz

Examineur

A mes parents,

A Simone et Aurélien,

A Jean-Philippe

## Remerciements

Je tiens à remercier Monsieur Jean-Julien HEIZMANN, Professeur à l'Université de Metz, pour m'avoir accueilli au sein de son Laboratoire, de m'avoir fait totalement confiance pour le lancement de techniques d'analyse nouvelles pour le laboratoire et de m'avoir accordé toute liberté, sous sa direction, dans la conduite des travaux réalisés.

Mes remerciements vont également à Monsieur MUTIN, Directeur de Recherche C.N.R.S. à Dijon, qui a bien voulu évaluer ce travail et qui m'avait offert, au début de ma formation, la possibilité de me familiariser aux techniques d'analyse de diffractogrammes au sein du Laboratoire de Recherche sur la Réactivité des Solides à Dijon. Je profite de ces quelques lignes pour remercier Monsieur NONAT, Chargé de Recherche C.N.R.S., pour son encadrement et sa disponibilité durant ce stage.

Je tiens à remercier Monsieur BERVEILLER, Professeur à l'Université de Metz, d'avoir accepté d'être rapporteur de cette thèse et de l'intérêt qu'il a manifesté pour ce travail. Que Messieurs les Professeurs RÜPPERSBERG, de l'Université de Sarrebrück, et C.N.J. WAGNER, soient remerciés pour les discussions certes difficiles, mais enrichissantes, que nous avons eues à l'occasion d'un séminaire organisé par Monsieur BERVEILLER.

Je tiens à exprimer mes plus vifs remerciements à Monsieur MAEDER, Chef du département Matériaux et Modélisation chez Renault, qui a accepté d'examiner ce travail.

J'exprime toute ma gratitude à Monsieur PENELE, Directeur de Recherche C.N.R.S. à Paris, pour avoir accepté de faire partie du jury de thèse.

Je remercie Monsieur VADON, Maître de Conférence à l'Ecole Nationale d'Ingénieur de Metz, de l'intérêt qu'il a toujours manifesté pour ce travail et de son aide dans le développement de techniques d'analyse.

Mes remerciements vont aux autres membres du laboratoire, Messieurs BESSIERES, MONTESIN, SCHLATTER et TIZLIOUINE, pour les discussions, leur aide et leur soutien lors de ces années d'étude passées au laboratoire, ainsi qu'à Mademoiselle BENE pour les services rendus.

Je remercie également Monsieur EBERHARDT pour la préparation des échantillons de cuivre.

Je tiens plus particulièrement à remercier Monsieur Christian LARUELLE, Ingénieur, qui a toujours su répondre efficacement, avec patience et intérêt, aux problèmes théoriques, techniques et informatiques que je rencontrais

## **RESUME**

Cette étude présente les travaux réalisés grâce à un détecteur courbe dans le cadre d'analyses classiques de diffraction des rayons X. L'introduction de critères expérimentaux permet une utilisation rationnelle de ce détecteur.

Nous proposons une expression simplifiée des fonctions de Pearson VII asymétriques pour le lissage et la séparation de profils de raies de diffraction X. Nous introduisons des techniques d'analyse adaptées aux matériaux à gros grains lors de la mesure des contraintes résiduelles (intégration discontinue et filtrage numérique des raies de diffraction).

Nous développons et étendons le principe des figures de pôles aux caractéristiques des raies de diffraction (notion d'indicatrice). Grâce à celles-ci nous obtenons des relations formelles entre la taille des domaines de diffraction cohérente et la micro-déformation. Les distributions de l'intensité diffractée en fonction du facteur de forme du profil de raie de diffraction X montre qu'il représente, combiné avec les variations de la largeur à mi-hauteur, une variable adéquate pour la description des matériaux polycristallins déformés. Dans le cadre d'hypothèses généralement admises, les relations micro-contrainte/taille des domaines de diffraction cohérente rappellent les diverses formes de la relation de Hall-Petch. L'étude des oscillations des graphes relatant les variations de la déformation en fonction de la direction de mesure précise le caractère prédominant des caractéristiques microstructurales.

Ce travail montre d'une façon générale que l'analyse des matériaux polycristallins peut être significativement améliorée par l'utilisation et la construction d'indicatrices qui reflètent l'anisotropie du milieu polycristallin.

## **ABSTRACT**

This study presents works done by using a curved position sensitive detector in the field of X-ray diffraction analysis. The introduction of experimental technics allow us to use this detector with a very high accuracy.

We propose a simplified expression of asymmetric Pearson VII distribution for the fitting and deconvolution of mixed X-ray line profiles. We introduce useful technics for the measurement of residual stresses analysis for large grain materials (discontinuous integration and diffraction lines smoothing).

We develop and extended the pole figure concept to the other X-ray line characteristics (named indicatrix). Using them, formal relation between size of the coherently diffracting domains and micro-strain are obtained. The distribution of integrated intensity versus form factor of X-ray line profile show us, in conjunction with x-ray line breadth, that it is one of the best descriptive parameter for polycrystalline materials analysis. Using well-known relationships, the relation between size and micro-stress present some analogy with the Hall-Petch relationship. The study of oscillation in graph giving the deformation versus the measurement direction present predominant effect of microstructural parameter such as domain size or micro-strain.

This work allow us to say that the indicatrices, which reflect structural anisotropy, are useful tools for polycrystalline materials analysis.

# **ANALYSE ET ETUDE DE PROFILS DE RAIES DE DIFFRACTION DES RAYONS X ENREGISTRES AVEC UN DETECTEUR COURBE.**

## **APPLICATION A L'ANALYSE DES PROPRIETES MICRO-STRUCTURALES DE MATERIAUX ET NOTION D'INDICATRICE.**

Introduction	5
<b>Chapitre I : ACQUISITION DE DIFFRACTOGRAMMES</b>	<b>7</b>
Introduction	9
<b><u>I.1. La chaîne de mesure et d'acquisition</u></b>	<b>9</b>
I.1.1. Le goniomètre	9
I.1.2. L'environnement informatique	9
I.1.3. Utilisation du compteur courbe CPS120	13
I.3.1. Fonctionnement	13
I.3.2. Caractéristiques techniques	13
I.3.3. Caractéristiques du montage goniométrique	13
I.3.3.1. Etude de la défocalisation	15
I.3.3.2. Condition optimale d'utilisation du compteur	19
<b><u>I.2. Etalonnage du compteur courbe CPS120</u></b>	<b>20</b>
I.2.1. Procédure de calibration	20
I.2.2. Commentaires	22
I.2.2.1. Influence des conditions expérimentales	24
I.2.2.2. Influence du degré du polynôme de calibration	23
I.2.2.3. Mesure hors condition de calibration	25
I.2.2.4. Conclusions	25
Bibliographie	26
<b>Chapitre II : TRAITEMENT DES PROFILS DE RAIE DE DIFFRACTION X</b>	<b>29</b>
Introduction	31
<b><u>II.1. Correction des profils de raie bruts</u></b>	<b>31</b>
II.1.1. Correction de défocalisation	31
II.1.2. Correction de Lorentz-polarisation-absorption	31
II.1.3. Correction de bruit de fond	33
<b><u>II.2. Description d'un profil de raie de diffraction</u></b>	<b>36</b>
II.2.1. Grandeurs caractéristiques	36
II.2.2. Position d'un pic de diffraction	37
II.2.3. Les méthodes analytiques	38
II.2.4. Commentaires sur l'utilisation de fonctions de lissage dans la mesure des contraintes résiduelles	40

<b><u>II.3. Séparation et lissage de raies de diffraction X</u></b>	<b>40</b>
II.3.1. Introduction	40
II.3.2. Description d'un profil de diffraction	41
II.3.2.1. La fonction de Pearson VII	41
II.3.2.2. Paramétrage d'un diffractogramme	43
II.3.2.3. Méthode de lissage	43
II.3.2.3.1. Méthode générale	44
II.3.2.3.2. Facteur de pondération	46
II.3.2.3.3. Introduction d'une matrice des relations	46
II.3.2.3.4. Expression des dérivées partielles	47
II.3.2.3.5. Initialisation des paramètres	48
II.3.2.3.6. Procédure de lissage	49
<b><u>II.4. Résultats expérimentaux</u></b>	<b>51</b>
II.4.1. Echantillon et conditions expérimentales	51
II.4.2. Résultats	51
II.4.3. Commentaires et conclusions	51
Bibliographie	61
<b><u>Chapitre III : CONTRAINTES RESIDUELLES ET MICRO-DEFORMATIONS</u></b>	<b>63</b>
Introduction	65
<b><u>III.1. Mesure des contraintes résiduelles</u></b>	<b>67</b>
III.1.1. Principe de mesure des contraintes résiduelles par diffraction X	67
III.1.2. Etat de contrainte biaxial	67
III.1.2.1. Equation mécanique	67
III.1.2.2. Cas de la diffraction des rayons X	68
III.1.3. Etat de contrainte triaxial : méthode de Dolle et Cohen	72
III.1.4. Figures de pôles des déformations / Indicatrices	74
III.1.5. Calcul des constantes élastiques	76
III.1.5.1. Calcul avec le modèle de Voigt	76
III.1.5.2. Calcul avec le modèle de Reuss	77
III.1.5.3. Calcul avec le modèle de Kröner	77
<b><u>III.2. Introduction aux mesures des micro-déformations</u></b>	<b>77</b>
III.2.1. Introduction	77
III.2.2. Analyse d'un profil de raie	78
III.2.3. Méthode des largeurs intégrales de Voigt	78
III.2.4. Méthode de Warren-Averbach	81
<b><u>III.3. Résultats expérimentaux</u></b>	<b>82</b>
III.3.1. Echantillon	82
III.3.2. Mesure des contraintes résiduelles	82
III.3.2.1. Résultats	82
III.3.2.2. Etude de l'oscillation des graphes en $\sin^2\psi$	85
III.3.2.3. Mesure de contrainte par intégration	87
III.3.2.4. Mesure de contraintes résiduelles après filtrage numérique	90
III.3.2.4.1. Analyse de raies filtrées	90
III.3.2.4.2. Mesure de contraintes résiduelles avec des spectres filtrés	92



III.3.3. Mesure des micro-déformations	93
III.3.3.1. Conditions expérimentales	93
III.3.3.2. Résultats (méthode de Warren-Averbach)	94
III.3.3.3. Résultats (méthode des largeurs intégrales de Voigt)	95
III.3.3.4. Commentaires	96
III.3.4. Conclusions	97
 Bibliographie	 99
 <b>Chapitre IV : INDICATRICES</b>	 <b>103</b>
Introduction	105
<u>IV.1. Obtention d'une indicatrice</u>	107
IV.1.1. Mesure	107
IV.1.2. Figures	107
<u>IV.2. Obtention d'une indicatrice du facteur de forme</u>	108
IV.2.1. Méthode de calcul	108
IV.2.2. Cas des matériaux fortement texturés	110
IV.2.3. Concept de multi-indicatrices	111
IV.2.4. Commentaires	111
IV.2.5. Etude de l'influence des conditions de mesure	112
IV.2.5.1. Influence d'un déplacement de l'échantillon	112
IV.2.5.2. Influence du rapport $K_{\alpha 1}/K_{\alpha 2}$	113
IV.2.5.3. Influence de la largeur des fentes	113
<u>IV.3. Indicatrices de taille et de micro-déformation</u>	113
IV.3.1. Obtention des indicatrices	114
IV.3.2. Commentaires	114
<u>IV.4. Résultats expérimentaux: indicatrices</u>	116
IV.4.1. Etude de l'échantillon de cuivre recuit laminé (Cu RP)	116
IV.4.2. Commentaires	125
<u>IV.5. Résultats expérimentaux : indicatrices de taille/micro-déformation</u>	125
IV.5.1. Introduction	125
IV.5.2. Figures	126
IV.5.3. Conclusions	131
Bibliographie :	133
 <b>Chapitre V : EXPLOITATION DES INDICATRICES</b>	 <b>135</b>
Introduction	137
<u>V.1. Micro-structure des matériaux déformés plastiquement :</u>	138
V.1.1. Distribution des dislocations	138
V.1.2. Interprétation des grandeurs mesurées par diffraction des rayons X	141

V.1.2.1. Micro-déformation	141
V.1.2.2. Taille de domaine de diffraction cohérente	142
V.1.2.3. Relations avec d'autres grandeurs	143
<b><u>V.2. Relation taille de domaine ↔ micro-déformation</u></b>	
V.2.1. Méthodologie	144
V.2.2. Mise en évidence de la relation	145
V.2.2.1. Conditions expérimentales et échantillons	145
V.2.2.2. Analyse	150
V.2.2.3. Relation entre les constantes	151
V.2.2.4. Modification de la relation	153
V.2.3. Extension de la relation	154
V.2.3.1. Décomposition de la largeur intégrale de Cauchy	154
V.2.3.2. Expression en fonction des probabilités de fautes ...	156
V.2.4. Commentaires sur les grandeurs mesurées	158
V.2.5. Relation avec la densité de dislocation	158
V.2.6. Interprétation du terme $a_{hk}$	160
<b><u>V.3. Etude des relation intensité ↔ taille des domaines</u></b>	161
V.3.1. Préparation des échantillons	161
V.3.2. Résultats	162
V.3.3. Etude des variations de l'intensité	167
V.3.3.1. Evolution de la taille des domaines de diffraction cohérente	171
V.3.3.2. Variations du facteur de forme en fonction de l'intensité	171
<b><u>V.4. Application à l'analyse des contraintes résiduelles</u></b>	173
V.4.1. Distributions en fonction de $\sin^2\psi$	173
V.4.1.1. Figures	173
V.4.1.2. Commentaires	173
V.4.2. Hypothèses de travail	176
V.4.3. Analyse des oscillations	177
<b><u>V.5. Conclusions</u></b>	180
<b>Conclusion générale</b>	185
<b>Annexe 1 : Calcul de l'erreur dans la mesure des contraintes résiduelles</b>	
<b>Annexe 2 : Fonctions de Voigt</b>	
<b>Annexe 3 : Méthode de Warren-Averbach</b>	
<b>Annexe 4 : Principe du filtrage par filtre de Fourier</b>	
<b>Annexe 5 : Etude bibliographique des oscillations dans la mesure des contraintes résiduelles</b>	

**Exemple de résultats en sortie logiciel.**

## INTRODUCTION

L'analyse de profils de raie de diffraction des rayons X est l'une des méthodes les plus répandues dans la caractérisation des matériaux cristallins et polycristallins. Les techniques d'analyse de ces profils ont évolué très rapidement ces vingt dernières années. Cette évolution est allée de pair avec une modernisation du matériel informatique et de traitement des données (analyse en temps réel, rapidité d'acquisition et de traitement).

Les capteurs, au sens métrologique du terme, n'ont cessé d'être perfectionnés, et l'on dispose aujourd'hui de matériels permettant une acquisition rapide et souple qui donne entière satisfaction. Ainsi le compteur courbe CPS 120 constitue l'aboutissement de travaux ayant débuté par la conception et la réalisation de compteurs linéaires pour diffraction X. Ces derniers permettent d'obtenir en des temps très courts une quantité d'informations nettement supérieure à celles dont on disposait avec les compteurs classiques à scintillation. La caractéristique essentielle des compteurs courbe et linéaire consiste en une localisation mono-dimensionnelle le long de la zone de captation des photons X. Le compteur courbe constitue en fait une extension du principe du compteur linéaire. (Signalons tout de même que, déjà, de nouveaux capteurs apparaissent permettant une localisation bi-dimensionnelle des photons !)

Les techniques d'analyses quantitatives des matériaux n'ont cessé également d'être améliorées. C'est pourquoi, il nous a paru nécessaire de vérifier si le compteur courbe dans sa forme actuelle permettait d'effectuer les mesures courantes d'analyse de raie. De même, nous avons pressenti la possibilité d'utiliser au maximum les informations recueillies par le compteur pour permettre une meilleure caractérisation des matériaux.

Ainsi les chapitres I à III de ce travail sont entièrement consacrés à la description et à l'analyse de profil de raie de diffraction X enregistrée grâce au compteur courbe. Les travaux concernant ce détecteur de conception et de réalisation très récentes sont peu nombreux. Aussi allons nous montrer qu'il permet d'effectuer la plupart des mesures courantes dans la caractérisation et l'analyse des matériaux. Généralement ces mesures sont réalisées grâce à des détecteurs classiques en mode pas à pas ou grâce à des compteurs linéaires. Dans le cadre de cette étude nous avons réalisé un logiciel de traitement et d'analyse des diffractogramme provenant du détecteur courbe CPS120. Ce logiciel, d'architecture complexe, ne sera pas présenté intégralement dans ce mémoire. Nous ne présenterons que l'ensemble des méthodes et calculs

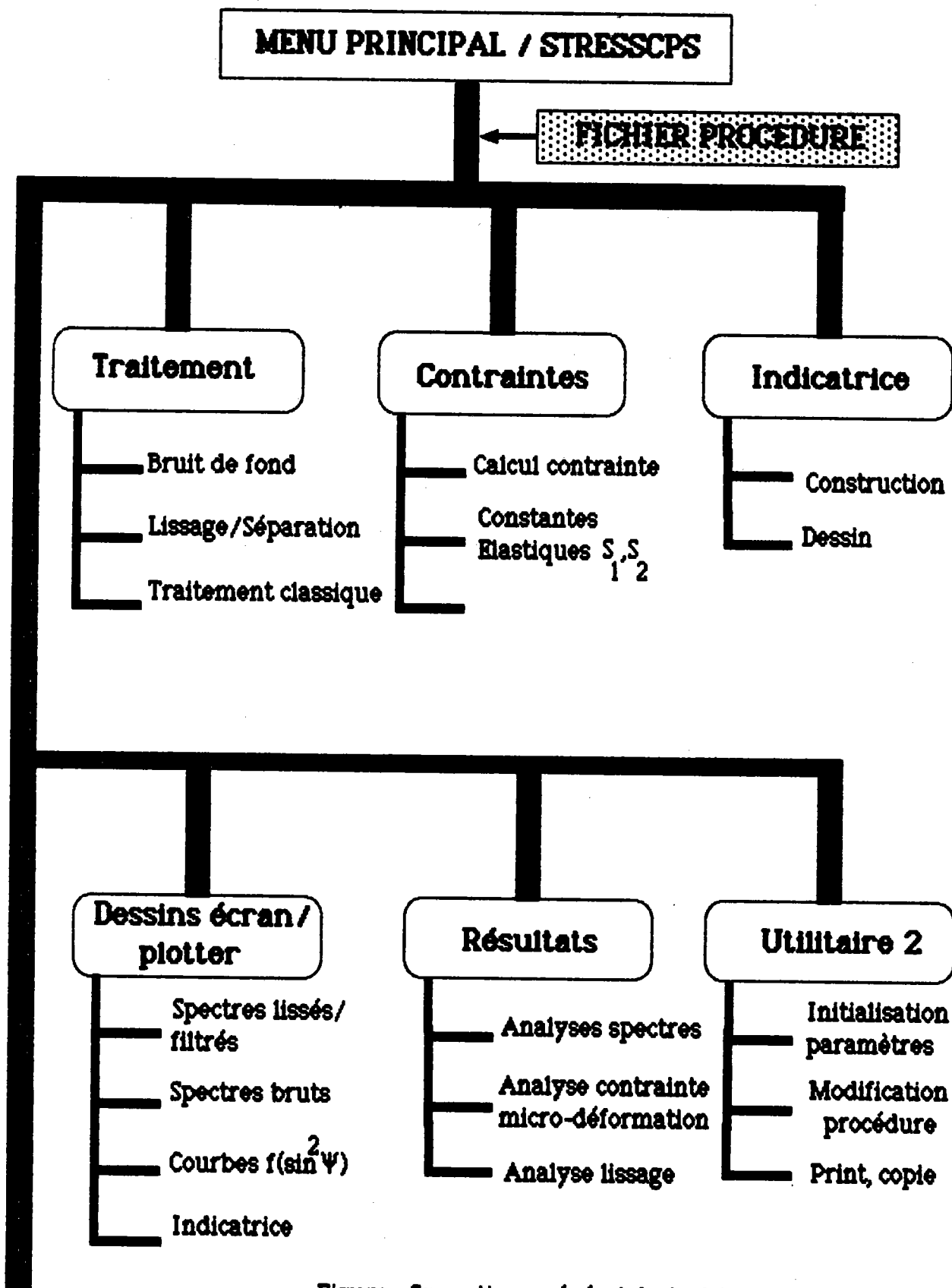


Figure : Synoptique général du logiciel

qui y sont développés. La figure présente le synoptique de ce logiciel.

Nous présenterons dans le chapitre I les chaînes de mesures et d'acquisition associées au goniomètre universel développé au sein du laboratoire. Insistons sur le fait que ce goniomètre est un prototype entièrement développé et réalisé au laboratoire. Aussi nous ne développerons pas les choix effectués pour sa réalisation puisqu'ils seront détaillés dans un prochain mémoire de thèse. Nous présenterons quelques éléments liés à la géométrie du détecteur, à son étalonnage. Nous proposerons enfin ses limites d'utilisations pratiques. En fin de procédure d'acquisition nous disposons de diffractogrammes que nous devons analyser et traiter.

Le chapitre II est consacré à l'analyse et au traitement de ces diffractogrammes. Outre quelques rappels concernant les corrections habituelles à effectuer, nous présentons une nouvelle fonction analytique pour le lissage et la séparation des raies de diffraction des rayons X. Nous avons ainsi utilisé une distribution de Pearson VII sous une forme dissymétrique.

Après avoir analysé et traité les profils de raie de diffraction, nous utiliserons ces résultats pour effectuer des analyses aujourd'hui classiques:

- mesure des contraintes résiduelles,
- mesure des micro-déformations,
- mesure de la taille des domaines de diffraction cohérente.

Ces analyses font l'objet du chapitre III. Ce chapitre se scinde en deux parties. La première traite des contraintes résiduelles. Nous y développons les méthodes classiques en cours pour les matériaux non texturés. La seconde est consacrée à l'analyse et au calcul des micro-déformations. Nous y présentons, parmi les nombreuses méthodes existantes, deux méthodes classiques au travers d'analyses bibliographiques:

- la méthode de Warren-Averbach,
- la méthode des largeurs intégrales de Voigt.

Nous proposons dans ce chapitre une méthode de mesure des contraintes résiduelles appliquée aux matériaux à gros grains. Les oscillations de l'échantillon généralement utilisées pour atténuer cet effet de taille sont remplacées par une mesure en intégration discontinue. Nous introduisons d'autre part les techniques de filtrage numérique des raies de diffraction dans la mesure des contraintes résiduelles.

Le chapitre IV présente de nouveaux outils permettant de mieux caractériser les matériaux. En effet, il a paru opportun d'utiliser toutes les informations délivrées par le compteur courbe CPS120. Il permet, en effet, l'obtention de diffractogramme sur

une très large plage angulaire. Quelle que soit la position spatiale de l'échantillon à analyser, il est possible d'analyser et de traiter des profils de raie complets, non tronqués. Cela nous a conduit à développer de nouveaux outils dans la continuité de travaux déjà réalisés par d'autres auteurs. Sous le nom générique d'indicatrices, nous présenterons des figures construites "à la façon" des figures de pôles de texture. Ces figures permettront d'analyser de façon qualitative certaines propriétés des matériaux. Nous exposerons bien entendu les méthodes utilisées pour obtenir et construire ces indicatrices.

Le chapitre V constitue le complément "analytique" et quantitatif du chapitre IV. En effet, dans ce chapitre nous utilisons les données numériques afin d'établir des relations analytiques entre certaines des grandeurs mesurées. Nous avons ainsi pu mettre en évidence une relation entre la taille des domaines de diffraction cohérente d'un polycristal et le taux de micro-déformation. Cette relation a ensuite été utilisée dans le cadre de l'analyse des contraintes résiduelles. De même des relations simples ont été obtenues entre l'intensité diffractée et le facteur de forme des profils de raie.

L'ensemble des programmes de calculs et de traitement des profils de raie ont été effectués sur PDP DIGITAL/RSX 11M et écrits en FORTRAN ANSI 77.

#### Remarque :

Pour ne pas alourdir l'exposé bibliographique, de nombreux points et calculs théoriques figurent en annexe. La bibliographie est présentée en fin de chaque chapitre.

En fin de la partie annexe de ce mémoire, nous présentons quelques résultats "papier" obtenus en sortie du logiciel développé. Les mesures présentées dans ce mémoire (chapitres I à III) constituent un "échantillon" de l'ensemble des mesures et tests effectués en vue d'analyser les performances de ce logiciel.

## **CHAPITRE I :**

# **ACQUISITION DE DIFFRACTOGRAMMES**

## **Plan**

### **Introduction**

#### **1. La chaîne de mesure et d'acquisition**

##### **1.1. Le goniomètre**

##### **1.2. L'environnement informatique**

##### **1.3. Le compteur courbe CPS120**

###### **1.3.1. Fonctionnement**

###### **1.3.2. Caractéristiques techniques**

###### **1.3.3. Caractéristiques goniométriques**

#### **2. Etalonnage du compteur courbe**

##### **2.1. Procédure de calibration**

##### **2.2. Commentaires**

### **Bibliographie**

## **Introduction**

Dans ce chapitre, nous présentons l'ensemble de l'environnement technique et informatique grâce auquel nous avons effectué ce travail. Nous présenterons d'abord la chaîne de mesure et d'acquisition, et décrirons ensuite ses principaux éléments. Nous précisons les conditions d'utilisation du compteur courbe CPS120 et proposons quelques principes pour optimiser les mesures.

### **1. LA CHAÎNE DE MESURE ET D'ACQUISITION :**

La *chaîne de mesure et d'acquisition* est présentée figure I-2. Cette chaîne comprend divers éléments dont les principaux sont :

- le goniomètre (représenté figure I-2 par ses moteurs),
- le compteur CPS120,
- l'environnement informatique, technique et de transfert.

La photographie (figure I-1) présente le goniomètre dans son environnement général.

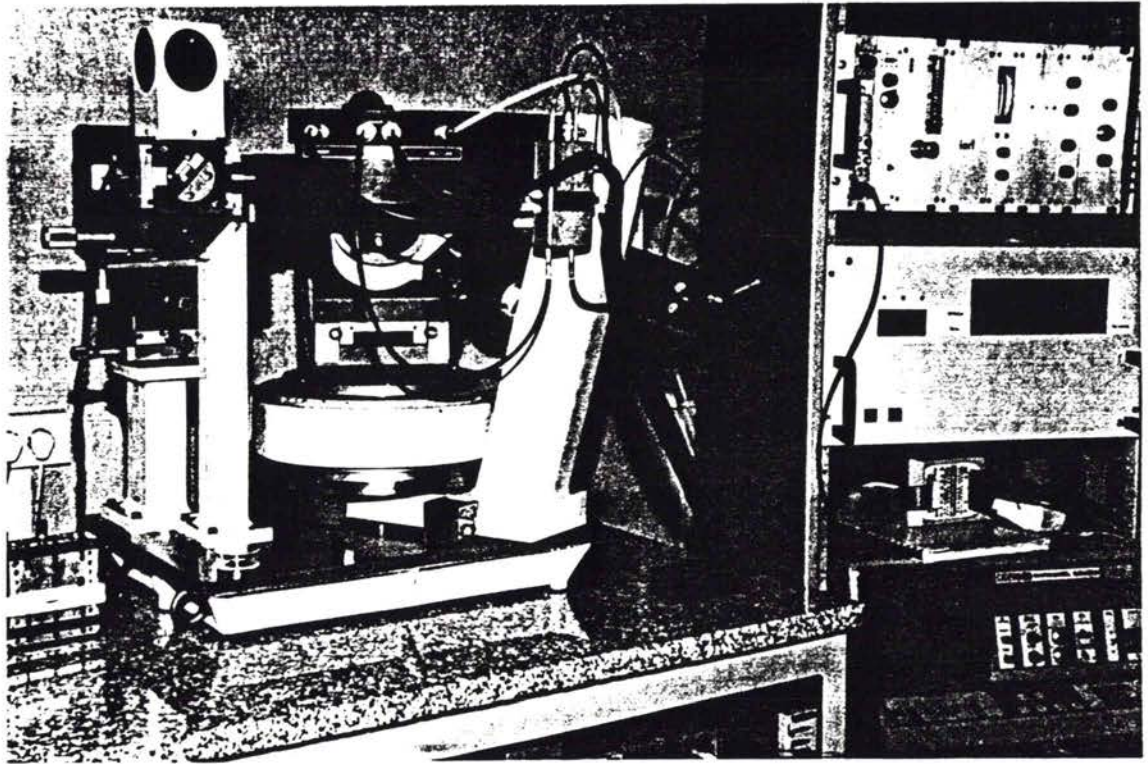
#### **1.1. Le goniomètre :**

Le goniomètre grâce auquel nous avons effectué nos travaux est un prototype développé, construit et mis au point au laboratoire. Nous ne décrirons pas ici ce prototype mais rappelons simplement qu'il a été conçu pour un grand nombre d'applications comme par exemple l'analyse de poudre, l'analyse des couches minces, l'acquisition de diffractogrammes  $\theta$ -deux  $\theta$ , l'analyse de phases, la mesure des contraintes résiduelles et, principalement, pour effectuer des multifiures de pôles (d'où le nom de goniomètre universel) <sup>(1)</sup>.

#### **1.2. L'environnement informatique :**

Nous avons déjà précisé que toutes les opérations d'acquisition sont effectuées sur le matériel informatique associé au goniomètre universel. La figure I-2 présente les autres éléments qui constituent la chaîne de mesure et d'acquisition ainsi que les rôles de chacun d'eux.





**Figure I-1 : Le goniomètre dans son environnement**

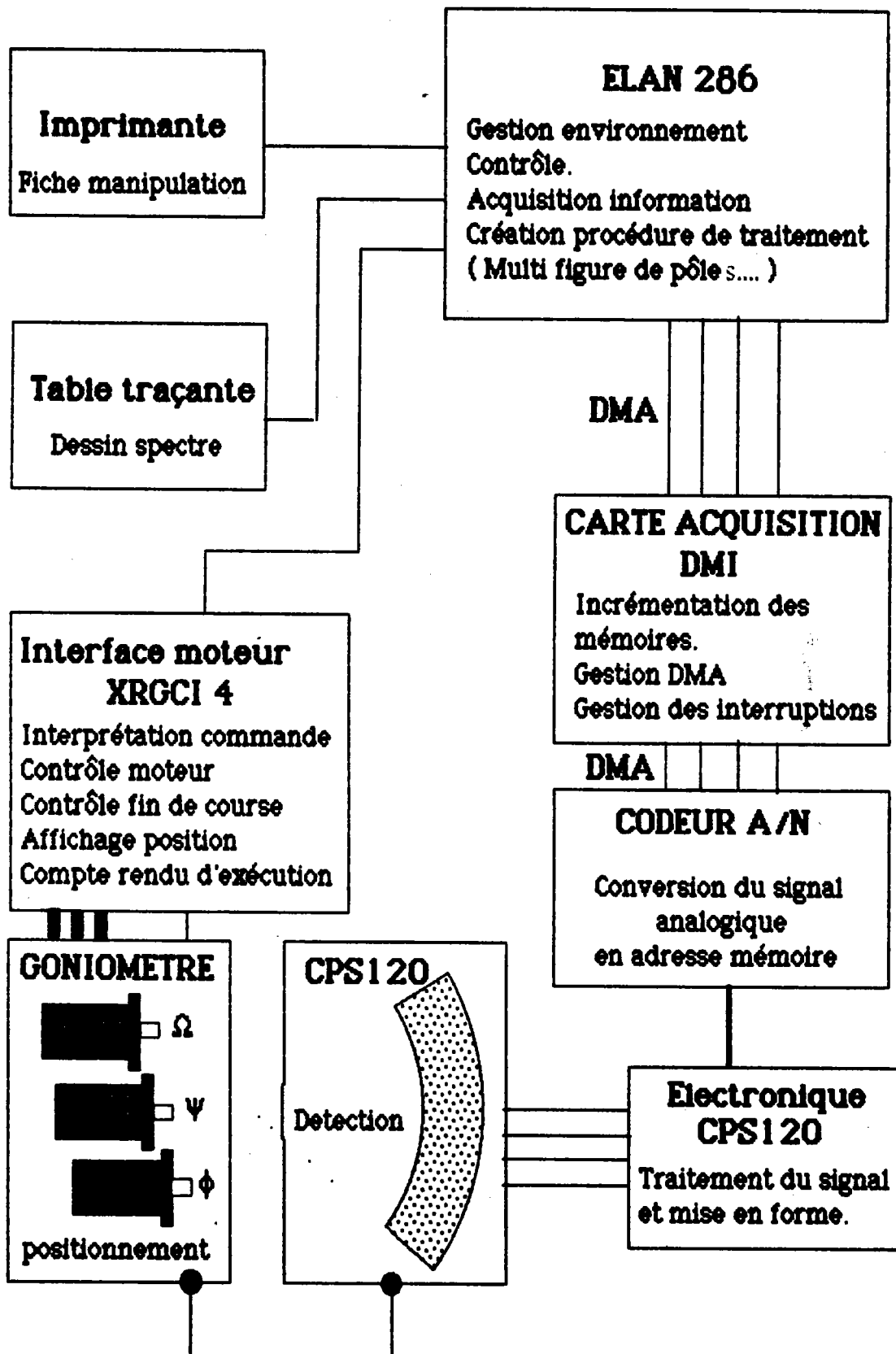


Figure I-2 : Environnement informatique.

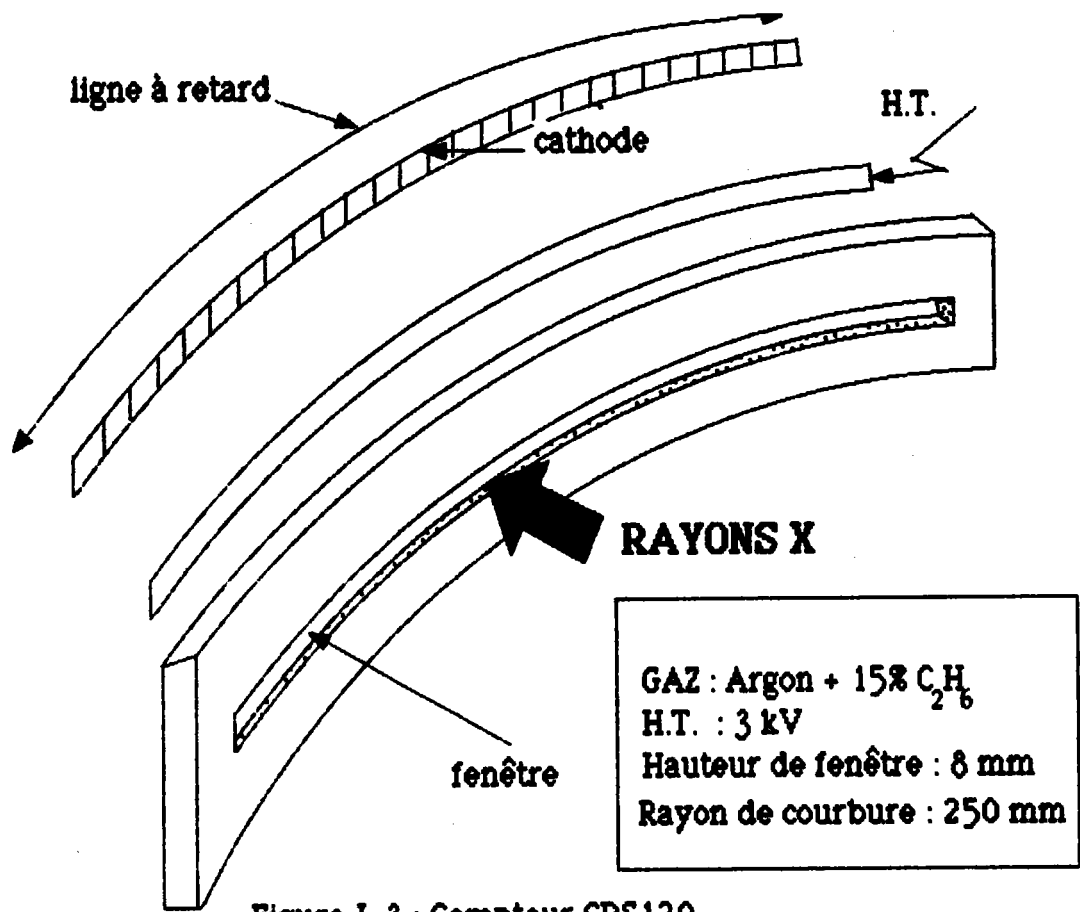


Figure I-3 : Compteur CPS120

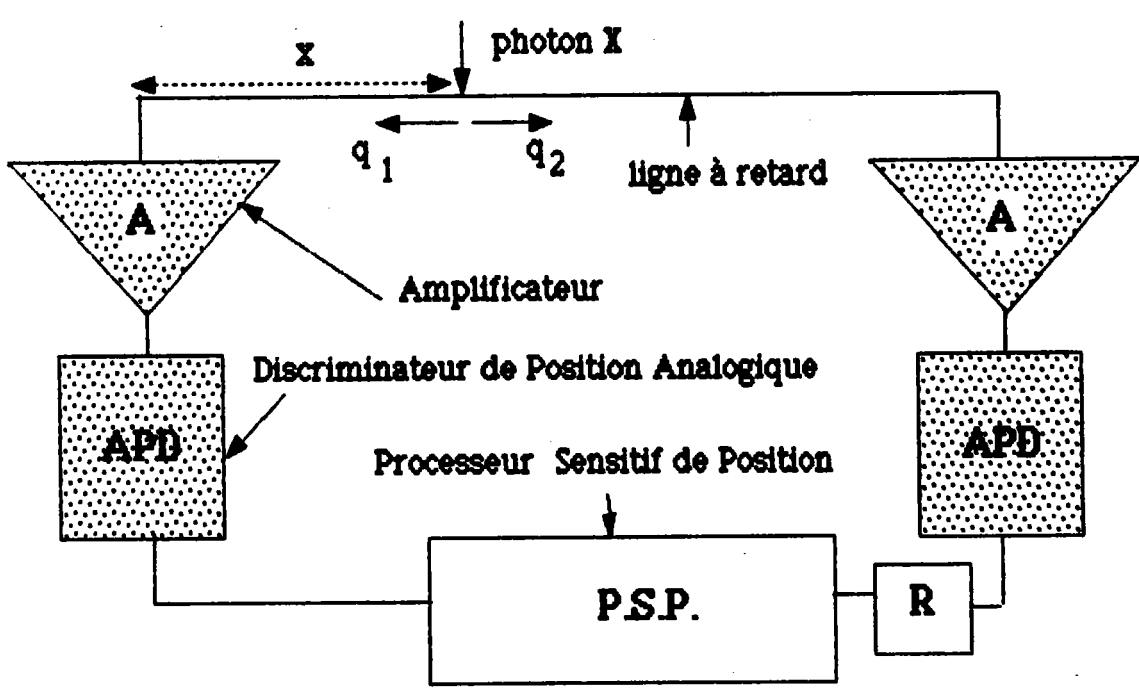


Figure I-4 : Principe de la ligne à retard

### 1.3. Utilisation du compteur courbe CPS120 :

#### 1.3.1. Fonctionnement :

Le compteur courbe CPS120 est présenté figure I-3. Il s'agit d'un détecteur de type gazeux, à lame de localisation spatiale <sup>(2)</sup>.

Le compteur à localisation spatiale fonctionne sur le principe des compteurs à ionisation de gaz en régime proportionnel. Un gaz sous pression est confiné dans l'enceinte close du détecteur. Les rayons X provoquent l'ionisation des couches externes (par effet Compton) des atomes du gaz. Il y a alors création d'électrons de type primaire. Ils sont attirés par le champ électrostatique produit par le potentiel positif de l'anode (la cathode étant la 'carcasse' du compteur au potentiel nul). Ces électrons initient alors un processus d'avalanche d'électrons captés par l'anode. La localisation du centre de gravité de cette avalanche s'effectue par l'intermédiaire d'une ligne à retard. On obtient donc une localisation mono-dimensionnelle du photon incident le long de l'anode (cf. figure I-4).

#### 1.3.2. Caractéristiques techniques :

La principale caractéristique de ce détecteur est de collecter simultanément les rayons X sur une plage angulaire de 120°. Il est divisé en 4096 canaux répartis sur un arc de 120°. Les autres caractéristiques sont présentées figure I-3. La résolution angulaire théorique de ce détecteur est  $\Delta 2\theta_{\text{théorique}} = 0,029^\circ(2\theta)$ . En raison de la plage angulaire, ce détecteur est utilisé dans deux configurations différentes :

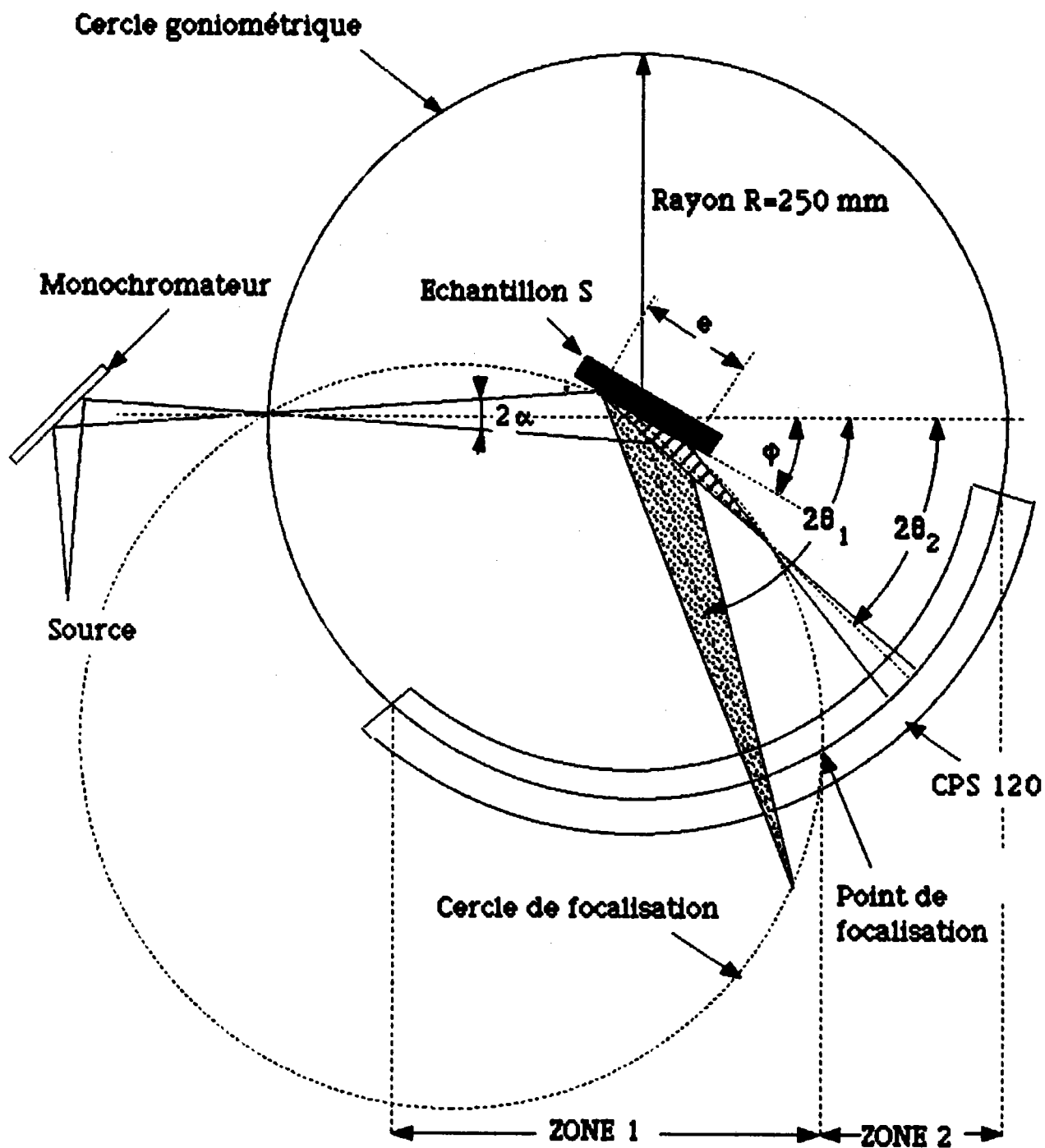
- position basse ou petits angles :  $0 \leq 2\theta \leq 120^\circ$
- position haute ou grands angles :  $40 \leq 2\theta \leq 160^\circ$ .

Chacune de ces configurations se divise en deux sous-configurations suivant la présence ou non de monochromateur. On a donc quatre configurations possibles :

- 1- position aux grands angles deux-théta faisceau direct,
- 2- position aux grands angles deux-théta avec monochromateur,
- 3- position aux petits angles deux-théta faisceau direct,
- 4- position aux petits angles deux-théta avec monochromateur.

#### 1.3.3. Caractéristiques du montage goniométrique :

Contrairement aux montages utilisant un détecteur classique, il n'y a pas de mouvement du détecteur dans le montage goniométrique utilisant le compteur courbe CPS120. La figure I-5 présente le montage utilisé au laboratoire. Sur cette figure, on peut constater que le goniomètre est de type non-focalisant et que deux zones bien



$2\alpha$  : divergence du faisceau incident

$\phi$  : angle d'incidence

ZONE 1 : non-focalisation convergente

ZONE 2 : non-focalisation divergente

Figure I-5 : Montage goniométrique.

distinctes apparaissent :

- zone 1 : le point focal se trouve devant le détecteur,
- zone 2 : le point focal se trouve derrière le détecteur.

Le principal problème associé à ce phénomène est la défocalisation du faisceau diffracté. Sauf en position de Bragg, les raies du diffractogramme présentent un élargissement instrumental lié à la géométrie du montage goniométrique. Cet élargissement du pic de diffraction introduit une erreur systématique lors de la recherche ses caractéristiques.

### 1.3.3.1. Etude de la défocalisation :

A partir de la figure I-6, on montre que :

$$a = R \cdot \frac{\sin \alpha}{\sin(\alpha + \varphi)} \quad \text{I-1}$$

$$b = R \cdot \frac{\sin \alpha}{\sin(\varphi - \alpha)}$$

où a et b représentent les largeurs du faisceau incident sur l'échantillon de part et d'autre du point O.

On a, dans les triangles (JOP) et (KOG), les relations suivantes :

$$\frac{a}{\sin \alpha} = \frac{f_a}{\sin[2\theta - (\varphi + \alpha)]} \quad \text{I-2}$$

$$\frac{b}{\sin \alpha} = \frac{f_b}{\sin[2\theta - (\varphi - \alpha)]}$$

où  $f_a$  et  $f_b$  représentent les distances de focalisation des faisceaux diffractés extrêmes. En combinant ces relations, nous obtenons les valeurs suivantes pour  $f_a$  et  $f_b$  :

$$f_a = R \cdot \frac{\sin[2\theta - (\varphi + \alpha)]}{\sin(\varphi + \alpha)} \quad \text{I-3}$$

$$f_b = R \cdot \frac{\sin[2\theta - (\varphi - \alpha)]}{\sin(\varphi - \alpha)}$$

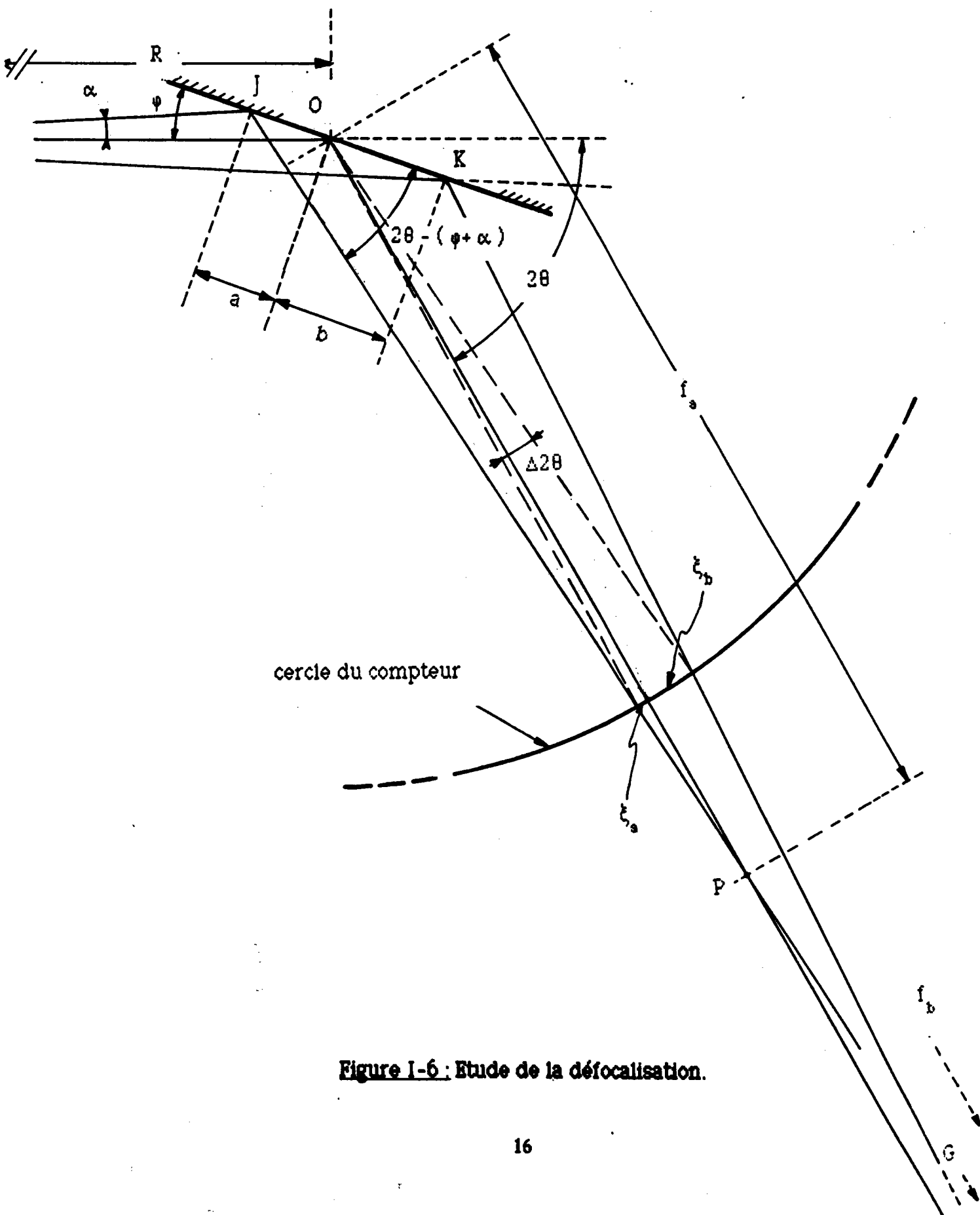


Figure I-6 : Etude de la défocalisation.

On peut noter que les distances de focalisation sont différentes. De ce fait il apparait une distorsion du faisceau. Dans l'hypothèse d'un angle de divergence petit et si l'angle d'incidence est égal à l'angle de Bragg, on se retrouve dans les conditions de Bragg-Brentano (condition de focalisation approchée).

En remarquant que :

$$\operatorname{tg} \alpha = \frac{\xi_a}{f_a - R} = \frac{\xi_b}{f_b - R} \quad \text{I-4}$$

avec  $\xi_a$  et  $\xi_b$  longueurs interceptées par le compteur, on obtient :

$$\xi_a = R \cdot \operatorname{tg} \alpha \cdot \frac{\sin [2\theta - (\varphi + \alpha)] - \sin(\varphi + \alpha)}{\sin(\varphi + \alpha)} \quad \text{I-5}$$

$$\xi_b = R \cdot \operatorname{tg} \alpha \cdot \frac{\sin [2\theta - (\varphi - \alpha)] - \sin(\varphi - \alpha)}{\sin(\varphi - \alpha)}$$

En supposant alors  $\xi_a$  et  $\xi_b$  petits devant R, on obtient, après simplification, les valeurs des arcs correspondants :

$$\Delta 2\theta_a = \operatorname{tg} \alpha \cdot \frac{\sin [\theta - (\varphi + \alpha)] \cos \theta}{\sin(\varphi + \alpha)} \quad \text{I-6}$$

$$\Delta 2\theta_b = \operatorname{tg} \alpha \cdot \frac{\sin [\theta - (\varphi - \alpha)] \cdot \cos \theta}{\sin(\varphi - \alpha)}$$

En faisant l'hypothèse que l'angle de divergence est petit, on aboutit à la valeur  $\Delta 2\theta$  totale :

$$\Delta 2\theta = \frac{4\alpha}{\sin \varphi} \cos \theta \cdot \sin(\theta - \varphi) \quad \text{I-7}$$

Cette expression se modifie en tenant compte de la largeur totale du faisceau incident sur l'échantillon. En effet, nous avons :

$$a + b = \frac{2R\alpha}{\sin \varphi} = e$$

D'où :

$$\Delta 2\theta = \frac{2e}{R} \cdot \sin(\theta - \varphi) \cdot \cos \theta \quad \text{I-8}$$



avec :

- $e$  largeur totale du faisceau sur l'échantillon,
- $R$  rayon du goniomètre (invariant),
- $\theta$  angle de Bragg,
- $\varphi$  angle d'incidence.

On peut constater que la configuration géométrique adoptée conduit à une dissymétrisation du faisceau recueilli par le compteur. En effet en effectuant le rapport des arcs interceptés nous obtenons :

$$r = \frac{\cos(\theta - 2\varphi) - \cos(\theta - 2\alpha)}{\cos(\theta - 2\varphi) - \cos(\theta + 2\alpha)} \quad \text{I-9}$$

Cette relation montre que la dissymétrie est sensible aux angles d'incidence et de divergence du faisceau incident.

La figure I-7 présente une courbe de défocalisation en fonction de l'angle de Bragg  $\theta$  pour différentes valeurs de la largeur  $e$  et à  $\varphi$  constant. On peut constater que, moyennant des conditions expérimentales précises, l'élargissement associé à la défocalisation est inférieur à la limite de résolution théorique du compteur.

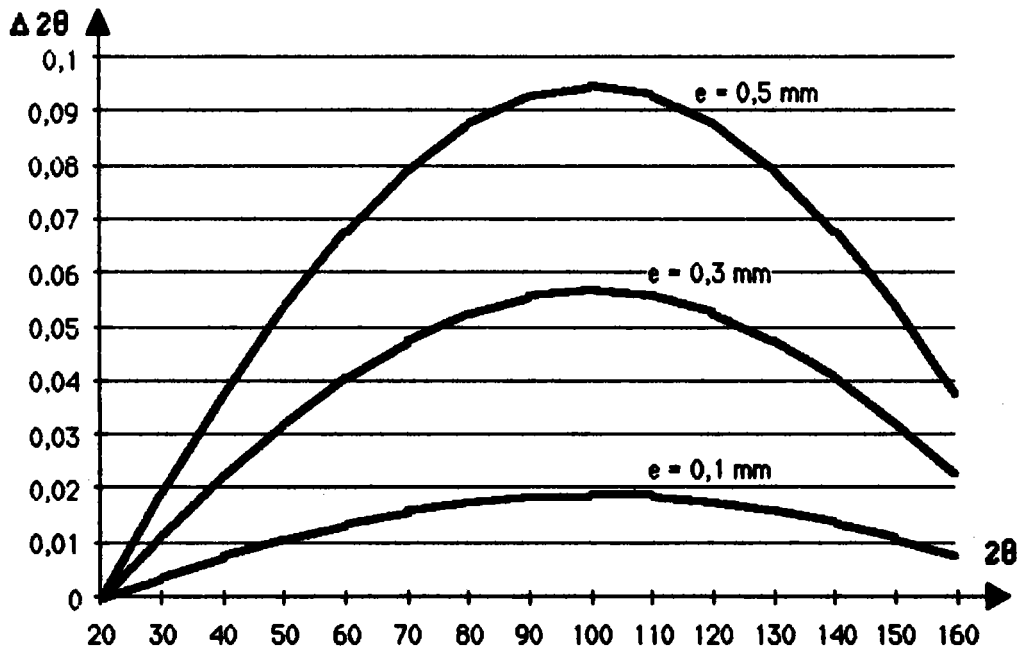


Figure I-7 :  $\Delta 2\theta$  en fonction de l'angle  $\theta$  en degré à  $\varphi = 20$  degrés.

Il convient donc, pour un type donné de manipulation et suivant la précision attendue

pour les mesures, de définir des conditions expérimentales telles que l'erreur associée à la défocalisation soit minimale, ou tout au moins inférieure à la limite de résolution du compteur courbe.

### 1.3.3.2. Condition optimale d'utilisation du compteur :

La relation de défocalisation nous montre que l'élargissement du pic est proportionnel à l'angle d'incidence  $\varphi$  et à l'angle  $\theta$  de Bragg. Le rayon  $R$  du goniomètre est fixe. A partir de cette relation nous proposons la méthode suivante pour déterminer la condition optimale d'utilisation du compteur CPS120, la condition optimale étant celle pour laquelle l'élargissement provoqué par la défocalisation est toujours inférieur à la limite de résolution théorique du compteur.

A cet effet dérivons l'expression de la défocalisation par rapport à  $\theta$  (cf. relation I-8) :

$$(\Delta 2\theta)' = \frac{2e}{R} \cdot \cos(2\theta - \varphi)$$

Cette dérivée s'annule pour

$$\theta = (2k + 1) \cdot \frac{\pi}{4} + \frac{\varphi}{2} \text{ soit pour } k = 0, \theta = \frac{\pi}{4} + \frac{\varphi}{2}$$

Pour cette valeur de  $\theta$ , la fonction de défocalisation passe par un maximum égal à :

$$(\Delta 2\theta)_{\text{maxi}} = \frac{e}{R} \cdot (1 - \sin \varphi) \quad \text{I-10}$$

Pour utiliser le compteur dans les conditions optimales il faut que, en tout point, la condition suivante soit respectée :

$$\Delta 2\theta_{\text{maxi}} < \Delta 2\theta_{\text{théorique}}$$

Cette relation impose une valeur maximale à la largeur  $e$  sur l'échantillon :

$$e_{\text{maxi}} < \frac{\pi}{180} \frac{R \Delta 2\theta_{\text{théorique}}}{1 - \sin \varphi} \quad \text{I-11}$$

La figure I-8 présente les variations de  $e_{\text{maxi}}$  en fonction de l'angle  $\varphi$ . La largeur  $e$  est fixée par l'angle de divergence, ou par la largeur des fentes collimatrices.

Dans ces conditions, l'angle  $\theta_{\text{maxi}}$  pour lequel l'élargissement dû à la défocalisation est maximal est alors donné par la relation suivante :

$$\theta_{\text{maxi}} = \frac{\pi}{4} + \frac{\varphi}{2}$$

Ainsi, pour un angle d'incidence donné, il est possible de fixer la largeur de ces fentes pour être dans les conditions optimales de résolution.

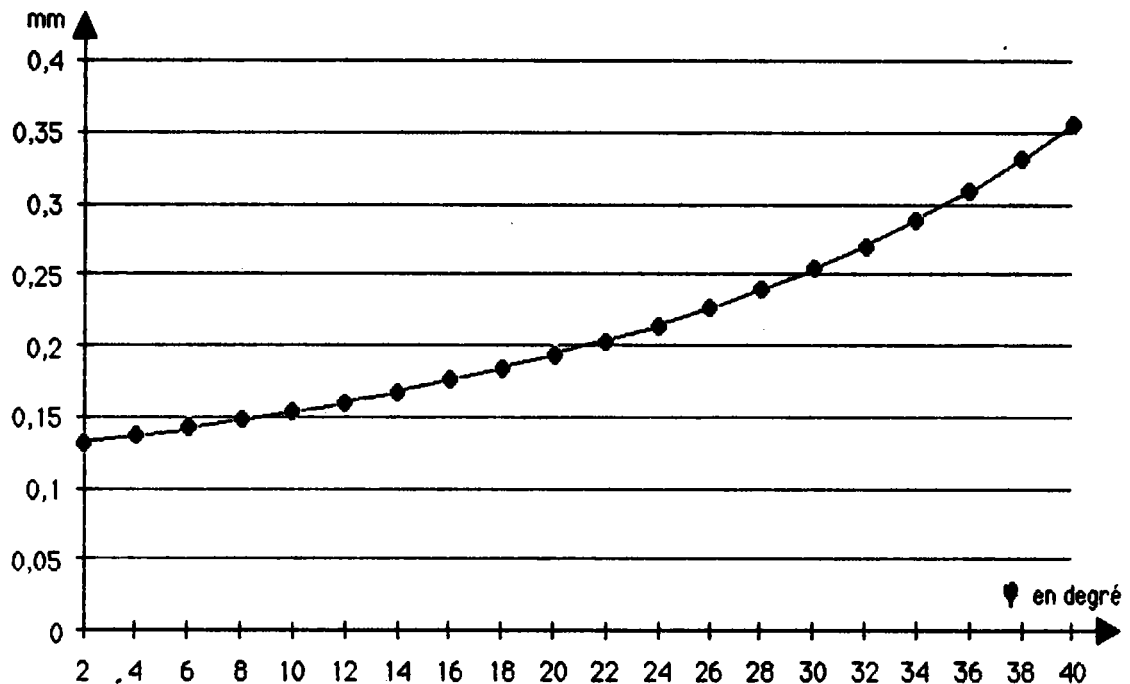


Figure I-8 :  $e_{\text{maxi}}$  en fonction de l'angle  $\varphi$  en degrés.  
(avec  $\theta = \pi/4 + \varphi/2$  soit  $\varphi = 2\theta - \pi/2$ )

## 2. ETALONNAGE DU COMPTEUR COURBE CPS120 :

### 2.1. Procédure de calibration :

Comme tout instrument de mesure, ce détecteur doit être préalablement étalonné en vue de son utilisation. L'étalonnage consiste à déterminer l'équivalence entre la position en canal sur le détecteur et la position angulaire. Cette équivalence est obtenue au moyen d'un lissage analytique des points expérimentaux (position du canal = valeur angulaire) par une fonction polynomiale dont le degré  $n$  est choisi par l'opérateur.

Nous avons réalisé un programme qui permet cet étalonnage et sa vérification périodique. Le polynôme d'étalonnage est obtenu par approximation au sens des moindres carrés. Le degré du polynôme peut être choisi par l'opérateur entre 2 et 9.

Pour réaliser cet étalonnage, nous avons fabriqué deux échantillons de référence. En effet le compteur courbe couvre une plage angulaire de  $120^\circ$  ( $2\theta$ ), nous avons donc dû prévoir :

- une poudre d'oxyde de zinc ZnO,
- une poudre d'oxyde de fer Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>α (hématite).

Le choix de la poudre de référence dépend de l'anticathode utilisée. Le tableau I-1 résume les conditions d'utilisation de ces poudres :

anti-cathode	position basse (0-120° 2θ)	poudre de référence (40-160° 2θ)
Fer Kα	ZnO -ex Zn(OH) <sub>2</sub>	Hématite Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
Cuivre Kα	ZnO -ex Zn(OH) <sub>2</sub>	ZnO -ex Zn(OH) <sub>2</sub>

Tableau I-1 : Choix de la poudre en fonction de l'anticathode.

Ces deux poudres ont l'avantage d'avoir un grand nombre de pics de diffraction, uniformément répartis, couvrant une large plage angulaire.

La poudre d'oxyde de zinc ZnO a été préparée par chauffage à près de 1000°C de son hydroxyde Zn(OH)<sub>2</sub>, puis broyée au mortier. La poudre d'hématite a été obtenue par séchage à plus de 500°C d'hydroxyde ferrique préparé à partir de chlorure ferrique FeCl<sub>3</sub>. Ces poudres sont ensuite tassées sous forme de pastille facilement utilisables.

## 2.2. Commentaires :

Nous avons effectué trois études particulières :

- influence des conditions expérimentales,
- influence du degré du polynôme de calibration,
- mesure hors condition de calibration.

Définissons tout d'abord l'écart résiduel par la relation suivante :

$$\Delta 2\theta = 2\theta_{\text{théorique}} - 2\theta_{\text{polynôme}}$$

Les résultats présentés sont relatifs aux calibrations effectuées avec l'anticathode de cuivre avec monochromateur avant graphite. Des résultats similaires sont obtenus avec l'anticathode de fer. L'étude des caractéristiques du monochromateur montre que la divergence 2α du faisceau est inférieure à 0,4 ± 0,1 degré.

### 2.2.1. Influence des conditions expérimentales :

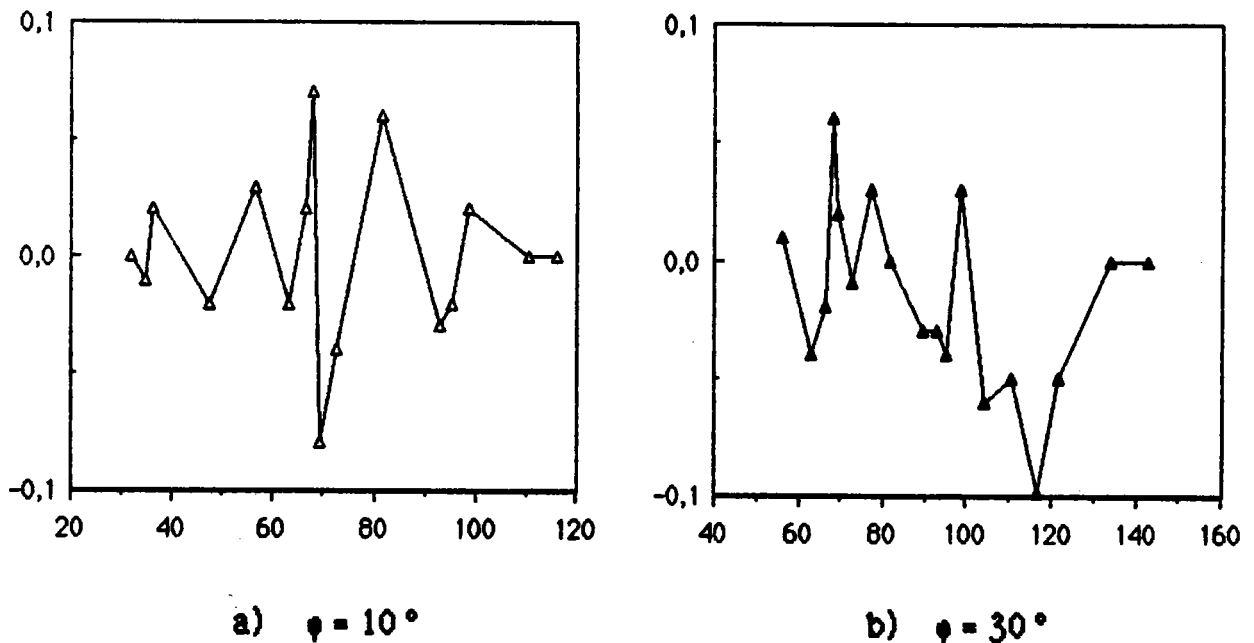
La figure I-9 présente la courbe des écarts résiduels, en fonction de l'angle  $\theta$  de Bragg, en se mettant délibérément hors des conditions optimales définies au paragraphe précédent. On constate que l'écart résiduel est supérieur à la limite de résolution théorique du compteur dans la zone comprise entre  $80$  et  $120^\circ(2\theta)$ . Cette zone correspond à la zone de défocalisation maximale comme le montre la figure I-17. En effet, les calculs théoriques présentés au § 1.3.3.2. montrent que l'erreur maximale est obtenue pour :

- calibration basse :  $\varphi = 10^\circ$      $2\theta_{\text{maxi}} = 90^\circ (2\theta)$ ,

- calibration haute :  $\varphi = 30^\circ$      $2\theta_{\text{maxi}} = 120^\circ (2\theta)$ .

Ces résultats sont en accord avec les observations effectuées.

Ils montrent que les conditions de focalisation influencent la précision des mesures. Pour cette étude, nous avons d'abord analysé le comportement du polynôme de calibration en fonction du degré  $n$ . Pour les raisons que nous évoquerons dans le paragraphe suivant, le degré des polynômes pour les calibrations haute et basse a été fixé à  $n = 7$ .

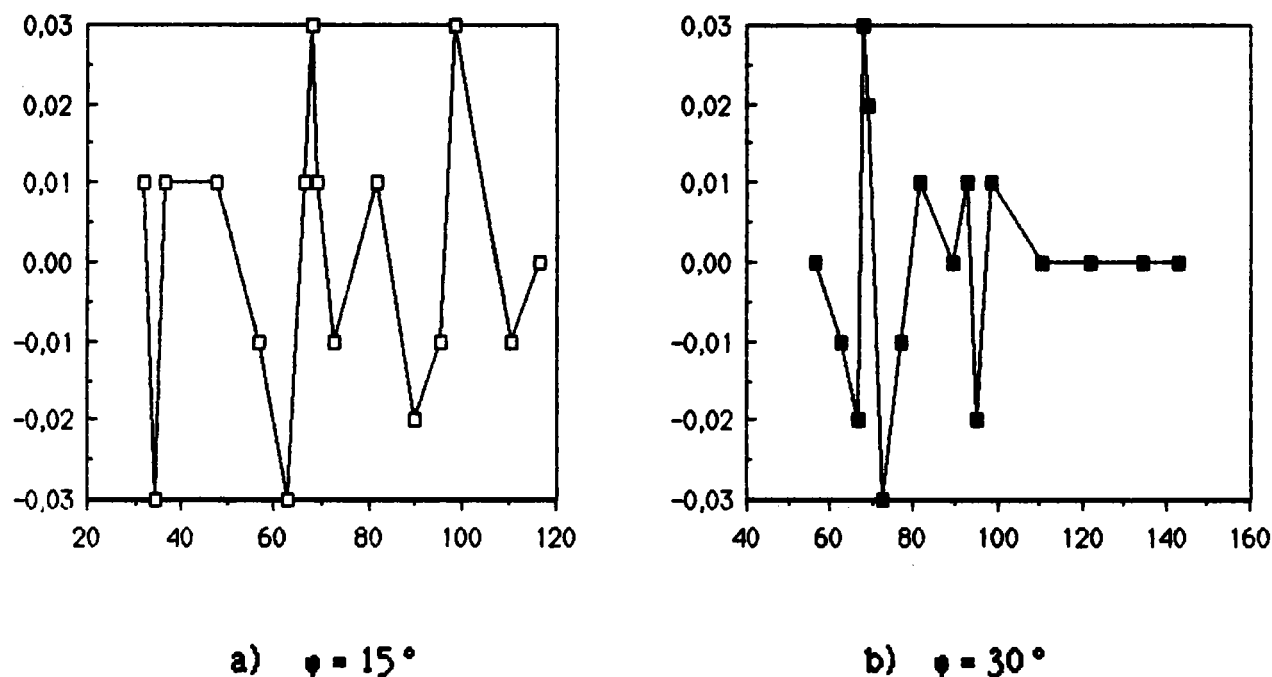


**Figure I-9 :** Ecart résiduel en fonction de  $2\theta$  hors condition optimale.  
avec  $e = 0,5\text{mm}$

En respectant la condition d'optimisation, nous obtenons la figure I-10. L'écart résiduel est, en tout point, inférieur à la limite de résolution du compteur.

Les figures I-9 et I-10 rassemblent les résultats obtenus pour les deux calibrations avec monochromateur avant graphite (positions haute et basse).

La calibration du compteur doit donc impérativement se faire en respectant la condition d'optimisation pour avoir un capteur fiable.

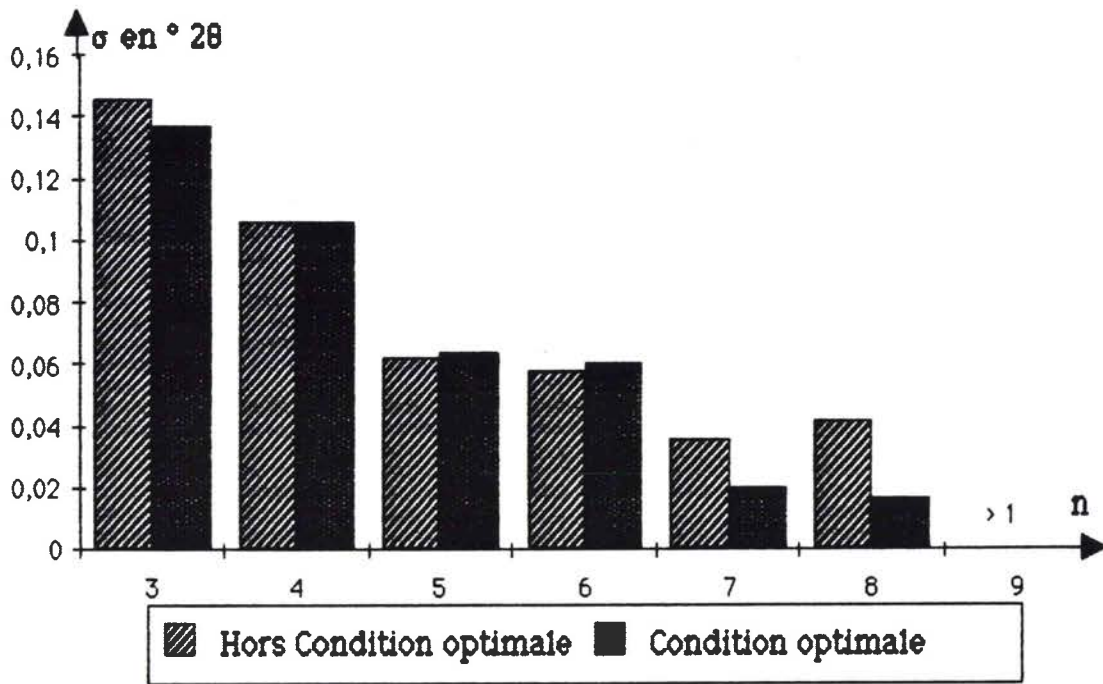


**Figure I-10 : Ecart résiduel en fonction de  $2\theta$  dans les conditions optimales avec  $e = 0,2\text{mm}$**

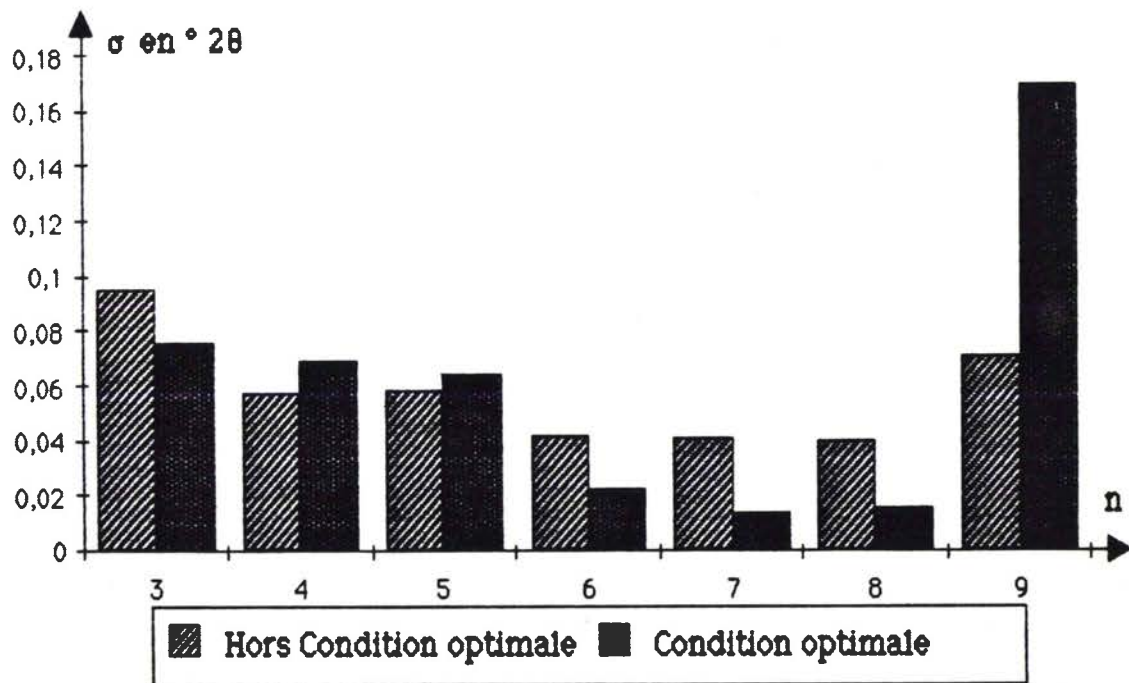
### 2.2.2. Influence du degré du polynôme de calibration :

Nous avons étudié l'influence du degré  $n$  du polynôme de calibration. Les figures I-11a et I-11b présentent les variations de l'écart type résiduel en fonction du degré  $n$  et des conditions expérimentales pour les deux calibrations haute et basse.

On peut constater qu'à partir de  $n = 7$ , l'écart type résiduel varie très peu. Il est donc inutile d'augmenter le degré du polynôme, car au-delà de  $n = 7$ , il peut présenter de fortes oscillations, ou des variations importantes, à la fin de la zone de calibration.



a)



b)

Figure I-11: Influence du degré  $n$  sur l'écart type résiduel  $\sigma(\Delta 2\theta)$ .

a) calibration basse

b) calibration haute

### 2.2.3. Mesure hors condition de calibration :

Dans certaines manipulations, l'angle d'incidence  $\varphi$  est égal à l'angle  $\theta$  de Bragg (condition de Bragg-Brentano). C'est le cas par exemple dans la mesure des contraintes résiduelles et des micro-déformations (cf. chapitres III et IV). Il est donc important de savoir si la mesure effectuée hors condition de calibration donne des résultats cohérents. Le tableau I-2 résume les mesures effectuées pour différents pics de diffraction de ZnO-ex Zn(OH)<sub>2</sub>. Nous avons utilisé les résultats de la calibration effectuée avec l'anticathode de cuivre.

hkl	incidence $\varphi$	$\theta$ recalculé	$\Delta 2\theta$
100	18,140	18,142	0,002
112	33,988	33,994	0,006
105	52,141	52,148	0,007
205	67,091	67,082	0,009

**Tableau I-2 : Mesure dans les conditions de Bragg-Brentano**

L'angle d'incidence  $\varphi$  correspond à l'angle de Bragg théorique obtenu à partir des fiches J.C.P.D.S. Ces résultats montrent qu'il est possible d'effectuer une mesure précise en se plaçant dans les conditions de focalisation de Bragg-Brentano tout en utilisant une calibration effectuée dans d'autres conditions.

### 2.2.4. Conclusions :

Ces résultats montrent clairement que la calibration doit être effectuée :

- en se plaçant dans les conditions optimales d'utilisation,
- en limitant le degré du polynôme de calibration,
- en couvrant la plus large plage angulaire,
- en calculant avec précision la position des pics de diffraction dans la zone de défocalisation maximale (centre de gravité des pics de diffraction).

Il est également recommandé de choisir la poudre de référence en fonction de l'utilisation souhaitée du compteur courbe CPS120. En effet, quelle que soit la poudre de calibration choisie, le polynôme de calibration ne fournira de bons résultats que dans la zone comportant les pics de diffraction utilisés pour la calibration.



## **BIBLIOGRAPHIE CHAPITRE I**

- (1) HEIZMANN J.J. , LARUELLE C. , VADON A. , *Analysis*, (1986), 16 , 6 , 334-340
- (2) BALLON J. , COMPARAT J. , POUXE J. , *Nucl. Instrum. Methods*, (1983) , 217 ,  
213-216

## **CHAPITRE II :**

# **TRAITEMENT DE DIFFRACTOGRAMMES**

## **Plan**

### **Introduction**

#### **1. Correction des profils de raie bruts**

- 1.1. Correction de défocalisation**
- 1.2. Correction de Lorentz-Polarisation-Absorption**
- 1.3. Correction de bruit de fond**

#### **2. Description d'un profil de raie de diffraction**

- 2.1. Grandeurs caractéristiques**
- 2.2. Position d'un pic de diffraction**
- 2.3. Les méthodes analytiques de lissage**
- 2.4. Commentaires**

#### **3. Séparation et lissage de raies de diffraction**

- 3.1. Introduction**
- 3.2. Description d'un diffractogramme**
- 3.3. Méthode de lissage**

#### **4. Résultats expérimentaux**

- 4.1. Echantillon et conditions expérimentales**
- 4.2. Résultats**
- 4.3. Commentaires**

## **Introduction**

Nous avons montré au chapitre précédent comment utiliser dans de bonnes conditions le compteur courbe CPS120. Dans les chapitres suivants nous allons présenter quelques applications pratiques d'analyse. Dans ce chapitre, en particulier, nous étudions et analysons les profils de raie de diffraction X enregistrés avec le détecteur courbe.

Ces diffractogrammes doivent être, avant tout, traités en vue de leurs utilisations. Ces traitements peuvent être des corrections, des séparations et lissages. Ainsi nous rappellerons les différentes étapes de correction et d'analyse des profils de raie de diffraction X, préciserons et définirons les grandeurs caractéristiques d'un profil de raie et proposerons enfin une méthode analytique de lissage et de séparation des raies superposées ou isolées.

### **1. CORRECTION DES PROFILS DE RAIE BRUTS :**

Les mesures obtenues ne peuvent être utilisées directement pour l'analyse des contraintes résiduelles, ni pour la description et l'analyse des profils de diffraction.

#### **1.1. Correction de défocalisation :**

Cette correction est différente de celle que nous avons présentée au chapitre précédent. La correction de défocalisation évoquée ici, correspond à la défocalisation géométrique associée aux fenêtres réceptrices des montages goniométriques et à la rotation de l'échantillon.

On montre qu'il n'est pas nécessaire d'effectuer ce type de correction. En effet on constate, en utilisant la méthode de Couterne et Cizeron <sup>(1)</sup> ou celle de Tenckhof <sup>(2)</sup>, que la défocalisation n'introduit aucune erreur du fait de l'absence de fentes réceptrices dans le montage goniométrique utilisé. En effet, dans une mesure avec un détecteur classique, le rayonnement diffracté traverse une fenêtre réceptrice de largeur et hauteur données. Lors de la rotation de l'échantillon suivant les angles d'azimuth et de déclinaison, la forme du faisceau diffracté se modifie et une partie de l'information n'est plus recueillie par la fente. Dans le cas d'un détecteur courbe, toute l'information arrive sur celui-ci et, par un choix judicieux de la zone d'analyse, on peut définir des fenêtres "software" (cf. § II.1.3) contenant la totalité du rayonnement diffracté.

#### **1.2. Correction de Lorentz-Polarisation-Absorption :**

Cette correction s'effectue en tenant compte du type de montage goniométrique (montage Oméga ou Psi) avec ou sans monochromateur. Elle se décompose en deux parties :

- la correction de Lorentz-polarisation (LP)
- la correction d'absorption (A).

Dans la littérature, il est généralement fait appel au coefficient LP1 relatif à l'intensité intégrée qui est différent du coefficient LP2 relatif à la distribution de l'intensité. Ces coefficients sont donnés par les relations suivantes <sup>(3)</sup> :

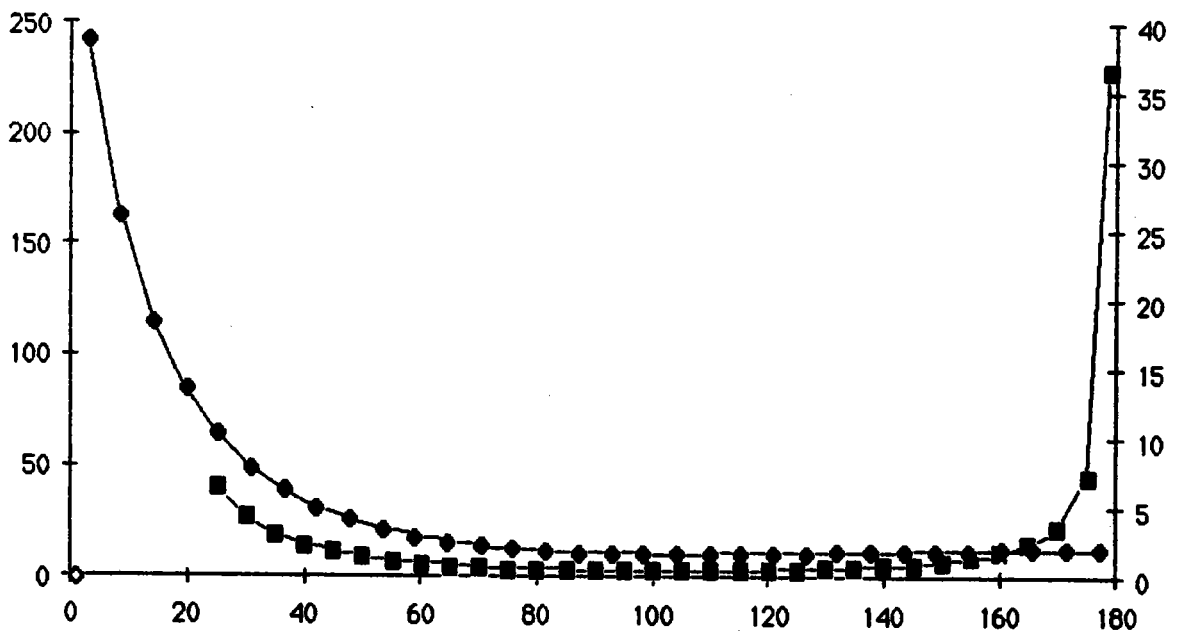
$$LP1 = \frac{(1 + \cos^2 2\alpha \cdot \cos^2 2\theta)}{\sin^2 \theta \cdot (1 + \cos^2 2\alpha) \cdot \cos \theta}$$

II-1

$$LP2 = \frac{(1 + \cos^2 2\alpha \cdot \cos^2 2\theta)}{\sin^2 \theta \cdot (1 + \cos^2 2\alpha)}$$

avec  $\alpha$  angle du monochromateur

La figure II-1 illustre la variation de ces coefficients en fonction de l'angle de Bragg.



**Figure II-1 :** Correction de Lorentz-polarisation en fonction de l'angle  $2\theta$  en  $^\circ$ .

**Légende:**  $\square$  ... LPA1       $\diamond$  ... LPA2

Il est bien clair que l'utilisation de l'un ou l'autre de ces coefficients influera sur la position et la forme du pic de diffraction. Par exemple, l'analyse des contraintes résiduelles s'effectue toujours aux grandes valeurs angulaires  $2\theta$ , il est alors nécessaire d'appliquer le coefficient LP2 relatif au profil de diffraction X comme le précisent Delhez et al. (3).

Cette correction est indispensable comme le montre les travaux de Wang Yinghua (4). En effet, une erreur systématique importante due à un déplacement fictif du pic de diffraction peut être observée si on utilise le coefficient LP1.

La correction d'absorption n'est pas nécessaire dans le cas d'un montage goniométrique  $\Psi$  focalisant (angle d'incidence  $\varphi$  égal à l'angle  $\theta$  de Bragg). Dans les autres types de montage goniométrique, elle s'écrit :

$$A = \frac{(1 - \text{tg } \Psi \cdot \text{cotg } \theta)}{2 \mu} \quad \text{II-2}$$

avec  $\mu$  : coefficient d'absorption

Dans cette relation l'angle  $\psi$  représente :

- en cas d'utilisation du montage  $\Omega$  (rotation par rapport à l'axe perpendiculaire au plan d'incidence) :  $\psi = (\varphi + \omega) - \theta$  où  $\omega$  représente, par exemple, l'angle de rotation classique de la mesure des contraintes résiduelles,

- en cas d'utilisation du montage présenté figure I-5 :  $\psi = \varphi - \theta$ , si  $\varphi = \theta$  il n'y a pas de correction à effectuer (arrangement de Bragg-Brentano).

Le profil sera corrigé en chaque point par :

$$I_{\text{corr.}}(\theta) = \frac{I_{\text{mes.}}(\theta)}{\text{LP2.A}} \quad \text{II-3}$$

### 1.3. Correction du bruit de fond :

Dans de nombreuses applications, la présence du bruit de fond nuit à la qualité des résultats obtenus, surtout dans le cas d'un rapport signal/bruit de fond relativement faible. Il en est ainsi plus particulièrement dans l'analyse des micro-déformations, ou dans la séparation des raies de diffraction.

Nous avons développé une procédure rapide de détermination des bornes de la raie ou du massif de raies à analyser et de calcul du bruit de fond.

Elle peut se résumer ainsi (cf. figures II-2 et II-3) :

- définition dans le diffractogramme d'une zone d'analyse assez large contenant l'ensemble de la(des) raie(s) à analyser ainsi que le bruit de fond, de part et d'autre de ce(s) profil(s) (bornes KI et KT),
- recherche par une méthode incrémentale des bornes du(des) profil(s) afin de définir la zone d'étude (bornes KD et KF),
- lissage des parties externes à la zone d'étude.

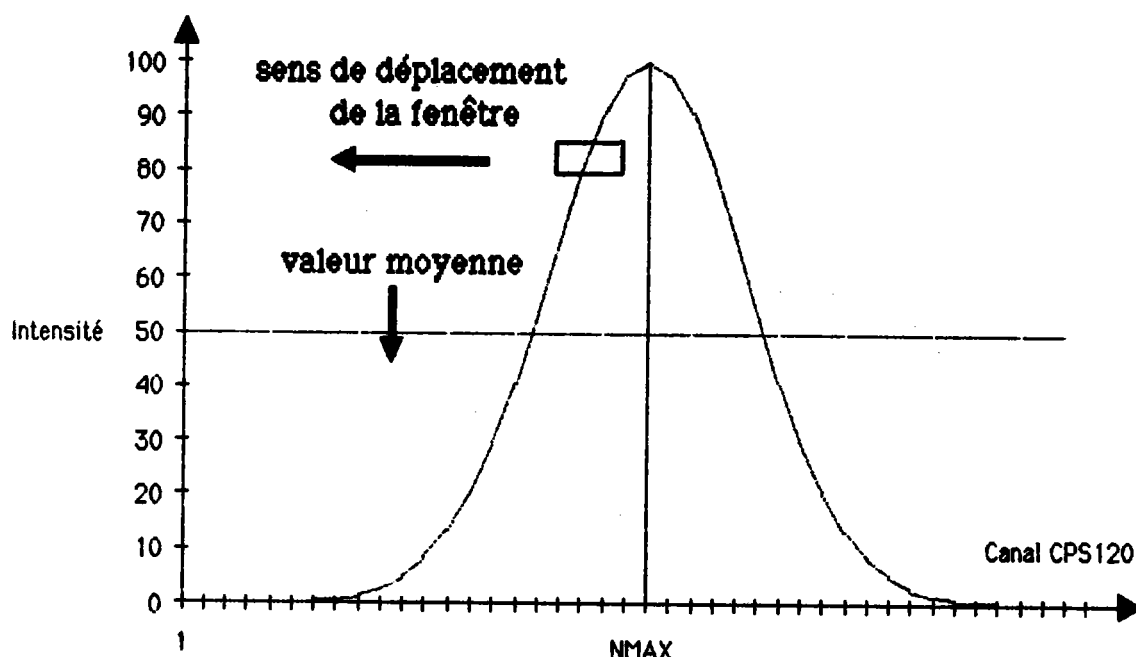


Figure II-2 : Détermination des bornes du pic de diffraction.

L'obtention des bornes résulte des opérations suivantes (cf. figure II-2) :

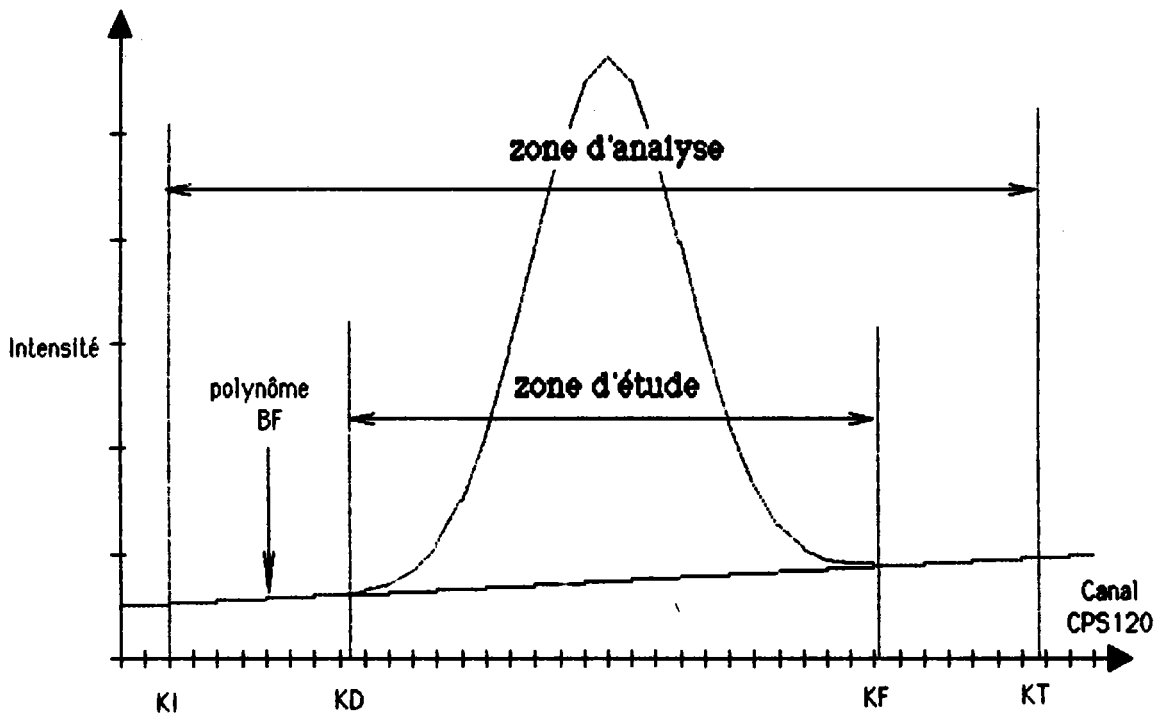
$$I_{\text{moy.}} = \frac{\sum_{i=1}^n I_i}{n} \quad \text{avec } n \text{ variant de } NMAX \text{ à } 1$$

$$I_{\text{fen.}} = \frac{\sum_{k=1}^K I_{n-k+1}}{K} \quad \text{avec } K \text{ largeur variable, en canaux de la fenêtre.}$$

Les calculs s'arrêtent lorsque la condition suivante est vérifiée :

$$\frac{|I_{\text{moy}} - I_{\text{fen.}}|}{I_{\text{moy}}} < 0.01$$

En réitérant cette opération de part et d'autre du profil de diffraction, nous obtenons les bornes de la raie ou de l'ensemble de raies analysées. Le bruit de fond est alors obtenu par un polynôme de degré  $n$ , choisi par l'opérateur entre 1 et 4, en joignant les zones externes au profil (cf. figure II-3).



**Figure II-3 : Polynôme bruit de fond et zones**

**Remarque :** les bornes KI et KT déterminent la fenêtre "software" introduite au § I.1.1.

La largeur  $K$  de la fenêtre est déterminée a priori par le calcul de l'écart type caractérisant la distribution de l'intensité du bruit de fond autour de la valeur moyenne. Il est calculé sur une portion de la zone ne contenant que le bruit de fond (à l'extrême gauche de la zone d'analyse par exemple). Nous avons ainsi :

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{n_{\text{bf}}} \sum_{i=1}^{n_{\text{bf}}} (I_i - I_{\text{moy}})^2}$$

où  $I_{\text{moy}}$  valeur moyenne de l'intensité sur cette zone.

Le choix de la largeur est effectué alors automatiquement parmi un certain nombre de valeurs fixées en mémoire. En cas d'insuccès, la largeur de la fenêtre croît automatiquement jusqu'à satisfaction de la condition précisée auparavant.

## **2. DESCRIPTION D'UN PROFIL DE RAIE DE DIFFRACTION :**

L'analyse d'un profil de raie consiste à déterminer un certain nombre de grandeurs caractéristiques, appelées grandeurs descriptives.

La qualité des résultats de l'analyse des profils de raie de diffraction X dépend de la qualité de la mesure et de la précision des calculs de ces grandeurs.

### **2.1. Grandeurs caractéristiques :**

Dans l'analyse des contraintes résiduelles le problème principal consiste à connaître sans ambiguïté, et avec la plus grande précision possible, la position d'un pic de diffraction (5). C'est pourquoi nous précisons les diverses méthodes qui permettent de positionner un pic de diffraction.

On définit la largeur intégrée par la relation :

$$\beta(2\theta) = \frac{1}{P'(2\theta)_{\max.}} \int_{2\theta_1}^{2\theta_2} P'(2\theta) \cdot d(2\theta) \quad \text{II-4}$$

avec :

- $P'(2\theta)$  distribution de la puissance totale diffractée,
- $2\theta_1$  et  $2\theta_2$  bornes initiale et finale du pic de diffraction.

Ces bornes sont obtenues comme nous l'avons indiqué au § II.1.3.

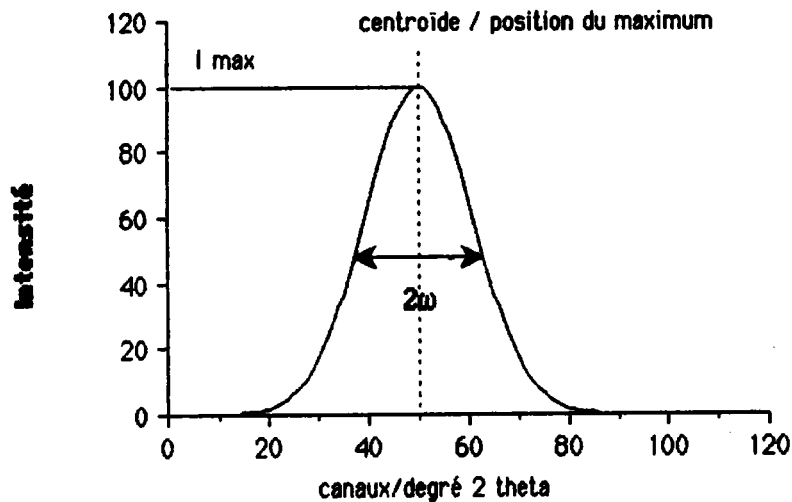
Le centroïde est défini par la relation :

$$\langle 2\theta \rangle = \frac{\int_{2\theta_1}^{2\theta_2} I(2\theta) \cdot 2\theta \cdot d(2\theta)}{\int_{2\theta_1}^{2\theta_2} I(2\theta) \cdot d(2\theta)} \quad \text{II-5}$$

avec  $I(2\theta)$  l'intensité du pic de diffraction à la position  $2\theta$ .



La figure II-4 présente les autres grandeurs caractéristiques: la largeur à mi-hauteur, l'intensité maximale, la position du maximum et/ou le centroïde. La position du maximum du pic de diffraction diffère du centroïde si il présente une dissymétrie.



**Figure II-4 : Caratéristiques d'un profil de raie de diffraction X.**

## 2.2. Position d'un pic de diffraction :

La position d'un pic de diffraction peut être déterminée par différentes grandeurs physiques ou mathématiques :

- a) le maximum du pic de diffraction,
- b) le centroïde du pic de diffraction <sup>(6)</sup>,
- c) le milieu de la corde à hauteur prédéterminée (suivant que la raie résulte ou non de la superposition  $K_{\alpha 1}-K_{\alpha 2}$ ),
- d) le maximum de la fonction analytique lissant la partie supérieure du pic de diffraction <sup>(7)</sup>,
- e) le centroïde ou maximum de la fonction analytique lissant l'ensemble du pic de diffraction <sup>(8)(9)</sup>,
- f) la méthode du centroïde centré <sup>(10)</sup>,
- g) les méthodes d'intercorrélation utilisant les fonctions de Voigt sur une partie du profil de diffraction <sup>(11)</sup>,

### Remarque :

Nos programmes calculent automatiquement et simultanément les positions définies en (a,b,c,d) et/ou (a,b,c,e) suivant le type de procédure de traitement choisi par l'opérateur. On trouvera en Annexe 1 les calculs d'erreurs associés à chaque type de positionnement présenté en a,b,c et d). L'erreur associée au positionnement du pic de diffraction défini en e) sera présentée au § II.3.2.3.6.

### 2.3. Les méthodes analytiques de lissage :

L'utilisation de méthodes analytiques de lissage est fréquente dans l'analyse des profils de raie de diffraction X. Le but d'un lissage consiste à se rapprocher aussi près que possible de l'ensemble du profil en utilisant des fonctions analytiques. Ainsi certaines des grandeurs caractéristiques définies précédemment s'obtiennent facilement en utilisant les paramètres de ces fonctions de lissage. Toutefois la recherche d'une seule de ces caractéristiques conduit à lisser une partie restreinte du pic de diffraction. Par exemple, dans l'analyse des contraintes résiduelles, l'approche parabolique du sommet du pic, proposée par Koistinen et Marburger<sup>(7)</sup> est une méthode très répandue.

### Remarque :

Le lissage est d'autant plus délicat que le profil de diffraction est généralement composé des profils issus de la diffraction des raies  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$  de la radiation  $K_{\alpha}$ . Plusieurs méthodes permettent de séparer les raies  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$  dont les principales sont :

- utilisation d'un monochromateur,
- séparation itérative de Rachinger<sup>(12)</sup>, Du Mond et Kirkpatrick<sup>(13)</sup>, Platbrood<sup>(14)</sup>
- séparation analytique de type Gangulee<sup>(15)</sup>, Dehez<sup>(16)</sup> qui utilisent les développements en série de Fourier,
- séparation par des fonctions analytiques décrivant les profils de raie<sup>(17)</sup>.

On distingue en fait deux types de fonctions analytiques de lissage de raie :

- les fonctions à paramètres physiques,
- les fonctions à paramètres d'ajustement.

Les paramètres des fonctions à paramètres physiques sont directement reliés aux grandeurs caractéristiques définies au paragraphe précédent. Les fonctions à paramètres d'ajustement comportent, outre ces derniers, des paramètres sans aucune signifi-

cation physique.

Parmi les fonctions à paramètres physiques on peut citer :

- la fonction de Gauss,
- la fonction de Lorentz (ou de Cauchy),
- la fonction de Voigt.

On se reportera à l'Annexe 2 pour une définition plus précise de ces fonctions.

Parmi les fonctions à paramètres d'ajustement on peut citer :

- le lissage parabolique du sommet du profil (> 85% du maximum du profil) <sup>(18),(7)</sup>

$$I(x) = a_0 + a_1 x + a_2 x^2 \quad \text{II-6}$$

- les fonctions de Mignot-Rondot <sup>(17),(19)</sup> :

$$I(x) = I_0 \left\{ \cos \frac{\pi(x - x_0 - \delta)}{a} \right\}^n \frac{K^2}{K^2 + (x - x_0)^2} \quad \text{II-7}$$

avec  $x_0$  position du maximum du pic de diffraction,

$\delta$  paramètre de symétrie,

$n$  paramètre de modulation,

$K$  paramètre lié à la largeur à mi-hauteur,

$a$  intervalle de définition du pic de diffraction,

$I_0$  intensité maximale du pic de diffraction.

- les fonctions de Pearson VII <sup>(20)</sup> :

$$I(x) = I_0 \cdot \left\{ 1 + \frac{(x - x_0)^2}{a^2} \right\}^{-f} \quad \text{II-8}$$

avec  $x_0$  position du maximum du pic de diffraction,

$a$  paramètre lié à la largeur à mi-hauteur,

$f$  paramètre de modulation,

$I_0$  intensité du maximum du pic de diffraction.

En général, quel que soit le type de fonction de lissage choisi, sauf l'approche parabolique, toutes ces fonctions permettent un lissage de profil de raie, indépendamment du fait qu'il résulte ou non de la superposition des raies  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$ .

## 2.4. Commentaires sur l'utilisation de fonctions de lissage dans la mesure des contraintes résiduelles :

Ces divers types de fonctions, en particulier l'approche parabolique du sommet du pic de diffraction, ont été largement utilisés et commentés par de nombreux auteurs (21) (22) (23) (24) (25). Il n'est pas de notre propos d'évaluer les limites de chacune de ces méthodes, mais il paraît néanmoins nécessaire de préciser quelques remarques et résultats généraux :

- selon T.Devine et J.B.Cohen (8), le lissage de la partie supérieure d'un pic de diffraction par une approche parabolique reste le plus sûr moyen de le positionner, et cela pour une large gamme de formes de pics,
- une bonne qualité de lissage n'est pas forcément un gage de faible erreur sur le positionnement du pic de diffraction,
- selon Prevey (9), le problème de la défocalisation interdit l'utilisation de l'approche parabolique pour des pics de diffraction relativement larges,
- les méthodes de lissage réclament un temps de calcul relativement long.

On peut constater que le problème de la position d'un pic de diffraction reste encore une pratique d'École, et qu'il n'existe pas de solution satisfaisante pour tous les cas de figure. C'est pourquoi nous proposons dans nos logiciels différents choix de positionnement et de lissage. Il semble néanmoins que le centroïde d'un profil de diffraction se prête mieux à divers types de correction systématique comme le montrent les travaux de Wilson (26).

## 3. SEPARATION ET LISSAGE DE PROFILS DE RAIE DE DIFFRACTION X :

### 3.1. Introduction :

Nous avons montré au § I.1.3.3.1. que l'utilisation du compteur courbe introduit une dissymétrisation des pics de diffraction. Cette dissymétrisation reste faible si l'angle d'incidence est égal à l'angle de diffraction de Bragg. Or dans le cas général, l'angle d'incidence  $\varphi$  est différent de l'angle de Bragg.

D'autre part l'étude bibliographique montre que le dédoublement  $K_{\alpha 1}-K_{\alpha 2}$  pose de nombreux problèmes (7), (27), (28). C'est pourquoi nous avons développé un programme qui permet la séparation de raies de diffraction issues ou non du doublet  $K_{\alpha 1}-K_{\alpha 2}$  et le lissage de profils isolés en utilisant des fonctions de Pearson VII asymétriques.

### 3.2. Description d'un profil de diffraction :

#### 3.2.1. La fonction de Pearson VII :

Une fonction de Pearson VII a l'avantage de pouvoir décrire toute fonction comprise entre une fonction de Gauss et une fonction de Lorentz grâce au paramètre de modulation  $f$  (cf. relation II-8). En effet, on montre que :

- si  $f \rightarrow \infty$  la fonction tend vers une gaussienne,
- si  $f \rightarrow 1$  la fonction devient une lorentzienne pure.

Les fonctions classiques de Pearson VII ne peuvent décrire une raie de diffraction asymétrique car elles ne contiennent pas de paramètre influençant la symétrie du pic de diffraction.

On peut contourner le problème en lissant les raies de diffraction  $X$  par une somme de plusieurs fonctions de Pearson VII décalées les unes par rapport aux autres <sup>(29)</sup>. Cette méthode est relativement longue et a pour principal désavantage de ne pas permettre de comparaison entre les paramètres des fonctions de lissage.

Nous avons alors développé un programme de lissage utilisant des distributions de Pearson VII asymétriques. Ce type de fonction a été proposé par Toraya et al. <sup>(30)</sup>, dans une forme relativement complexe.

La fonction de Pearson VII asymétrique, dans la forme que nous nous proposons d'utiliser, est décrite par la fonction analytique suivante :

$$I(x) = I_0 \cdot \left\{ 1 + \frac{(x - x_0)^2}{a^2} \cdot (1 + \delta \cdot k)^2 \right\}^{-f} \quad \text{II-9}$$

avec  $k$  facteur de symétrie et le paramètre  $\delta$  défini comme suit :

$$\delta = 0 \text{ si } x < x_0$$

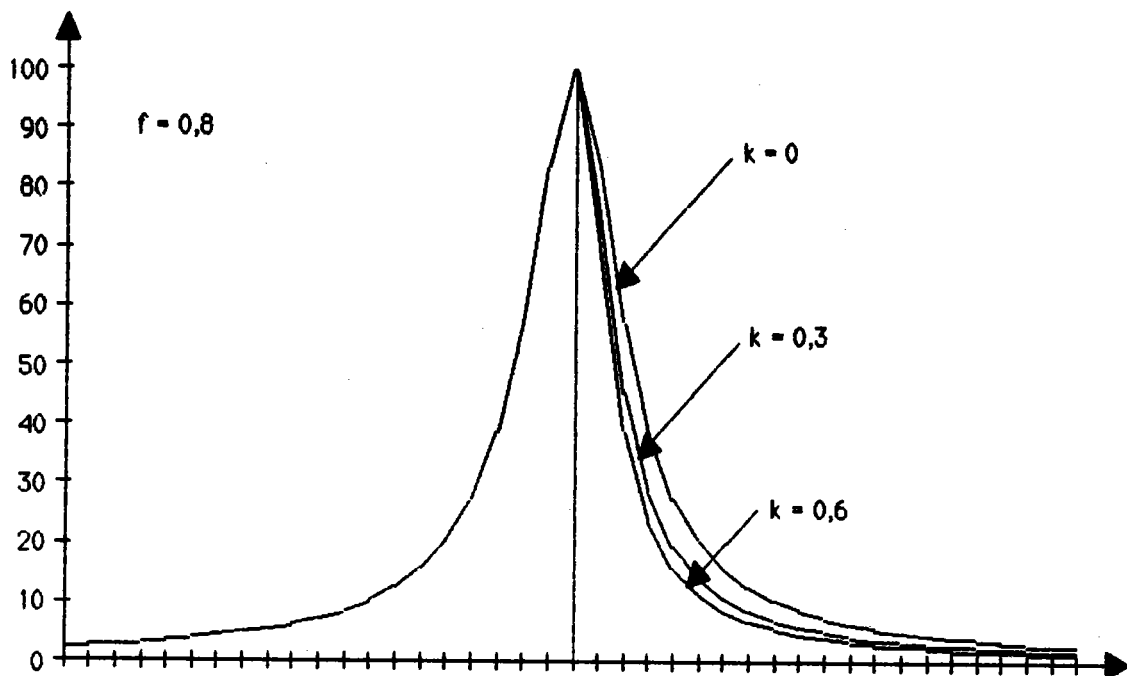
$$\delta = 1 \text{ si } x > x_0.$$

La surface et le centroïde de cette fonction sont donnés par les relations :

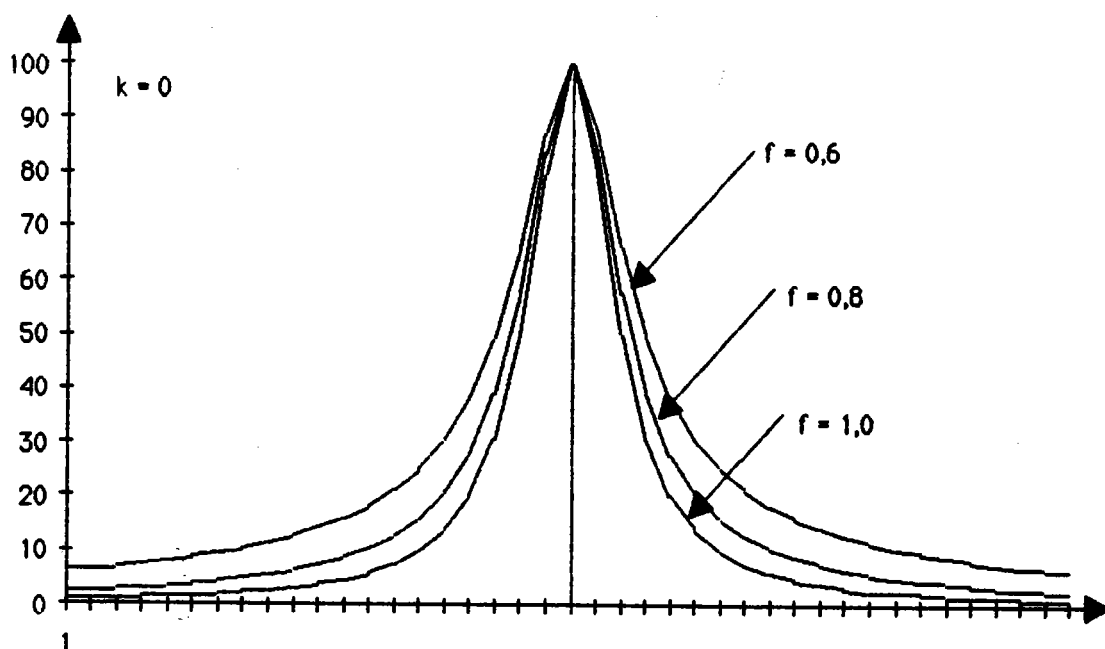
$$S(I_0, a, f, k) = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot I_0 \cdot \frac{\Gamma(f-1/2)}{\Gamma(f)} \cdot a \cdot \frac{k+2}{k+1} \quad (\text{si } f > 1/2)$$

$$\langle x(I_0, a, f, k) \rangle = x_0 - \frac{a}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{k}{k+1} \cdot \frac{\Gamma(f-1)}{\Gamma(f-1/2)} \quad (\text{si } f > 1)$$

avec  $\Gamma(z)$  fonction Gamma de Euler.



**Figure II-5 :** Fonction de Pearson VII: variation du facteur d'asymétrie  $k$



**Figure II-6 :** Fonction de Pearson VII : variation du facteur de modulation  $f$

on peut constater que le paramètre  $k$  permet, mathématiquement, de modifier la valeur du paramètre  $a'$  pour la partie droite du pic de diffraction car :

$$a' = \frac{a}{(1 + \delta k)} \quad \text{avec } \delta = 1$$

La figure II-5 représente, à  $k$  variable et  $f$  constant, des fonctions de Pearson VII asymétriques. Les autres paramètres ont la même signification que dans le cas des fonctions symétriques. La figure II-6 présente les variations, à  $k$  constant, de la fonction de Pearson VII en fonction du paramètre de modulation  $f$ .

### 3.2.2. Paramétrage d'un diffractogramme :

Un diffractogramme peut être assimilé à la somme de  $m$  raies superposées ou isolées et d'un bruit de fond variable. On peut donc le représenter mathématiquement par :

$$F^B(x) = P(x) + \sum_{k=1}^m P_{VII}^k(x) \quad \text{II-10}$$

où :

- $F^B(x)$  représente le diffractogramme brut,
- $P(x)$  représente le polynôme bruit de fond,
- $P_{VII}^k(x)$  représente l'une des  $m$  fonctions de Pearson VII asymétrique.

Comme nous l'avons indiqué au § II.1.3. la correction du bruit de fond est effectuée préalablement à tout traitement. Nous disposons donc d'un diffractogramme net, c'est à dire corrigé du bruit de fond. Il nous faut donc calculer les seules fonctions de Pearson VII.

Pour éviter des problèmes calculatoires que nous préciserons ultérieurement, nous ajoutons au profil net une valeur constante  $b_0$  <sup>(22)</sup> de telle sorte que le diffractogramme qui va être traité s'écrit sous la forme suivante :

$$F^N(x) = b_0 + \sum_{k=1}^m P_{VII}^k(x) \quad \text{II-11}$$

### 3.2.3. Méthode de lissage :

Nous avons utilisé la méthode de Ayakawa-Oka <sup>(31)</sup> initialement introduite pour des fonctions de Pearson VII symétriques. Cependant nous avons modifié et adapté leur programme pour des fonctions de Pearson VII asymétriques.

### 3.2.3.1. Méthode générale :

Cette méthode est maintenant bien connue, rappelons la pour le cas général d'un diffractogramme net sans bruit de fond.

Soit alors:

-  $F^N(x_i) = y_i$  les intensités du profil réel sans bruit de fond pour tout canal  $x_i$  (position  $2\theta_i$ ),

-  $F(x_i)$  les intensités calculées en tout point  $x_i$ .

Le profil est parfaitement représenté par la fonction analytique si la différence notée  $\Delta F(x_i)$  est nulle pour tout  $x_i$ . On a donc, pour  $m$  pics du profil :

$$\Delta F(x_i) = F^N(x_i) - \sum_{k=1}^m P_{VII}^k(x_i) \quad \text{II-12}$$

Au sens du critère des moindres carrés, le meilleur lissage sera obtenu lorsque la somme des carrés des erreurs est minimale. C'est à dire :

$$\Phi = \sum_{i=1}^n \Delta F^2(x_i) \quad \text{minimum, } n \text{ étant le nombre de points du profil}$$

Ce minimum sera obtenu lorsque les dérivées de la fonction  $\Phi$  par rapport à chacune des inconnues du problème seront nulles.

Soit alors la liste  $\{\alpha_{kt}\}$  des paramètres exacts décrivant le profil de diffraction, celle-ci constituant en fait la liste des inconnues de notre lissage, l'expression de l'écart peut se mettre sous la forme suivante :

$$\Delta F(x_i) = F(x_i, y_i, \alpha_{kt}) \quad \text{II-13}$$

avec :  $x_i$  et  $y_i$  abscisse angulaire et intensité au point  $x_i$   
 $\alpha_{kt}$  paramètre  $k$  de la raie  $t$ .

Nous pouvons modifier l'indexation de cette liste de paramètres en l'écrivant sous la forme :

$$\{\alpha_{kt}\} = \{\alpha_r, r=1, N\} \quad \text{avec } r=kt$$

Pour cette liste solution, l'écart  $\Delta F(x_i)$  est nul pour tout  $x_i$ .

Soit une autre liste de paramètres  $\{\beta_r, r=1, N\}$  telle qu'elle soit proche de la liste  $\{\alpha_r, r=1, N\}$ . Nous définissons l'écart entre ces listes par  $\{\epsilon_r, r=1, N\}$  appelé résidu et tel que  $\epsilon_r \approx 0$ . Pour chaque paramètre de la liste, on peut écrire :

$$\alpha_r = \beta_r - \epsilon_r$$



La linéarisation de Newton consiste à substituer  $F(x_i, y_i, \alpha_r)$  par son développement en série de Taylor limité au premier ordre en  $\alpha_r$  pour tous les paramètres de la liste  $\{\alpha_r, r=1, N\}$ . On a donc :

$$F(x_i, y_i, \beta_r) = F(x_i, y_i, \alpha_r) + \sum_{r=1}^N \frac{\delta F(x_i, y_i, \beta_r)}{\delta \alpha_r} \cdot \epsilon_r \quad \text{II-14}$$

Posons :

$$F(x_i, y_i, \beta_r) = F_0 \quad \text{II-15}$$

Nous obtenons alors un système de  $l$  équations linéaires en  $\epsilon_r$ .

Si nous remplaçons la valeur de  $F_0$  dans l'expression de  $\Phi$ , critère des moindres carrés, nous obtenons l'expression suivante :

$$\Phi = \sum_{i=1}^n \Delta F^2(x_i, y_i, \alpha_r) = \sum_{i=1}^n \left\{ F_0 - \sum_{r=1}^N \frac{\delta F(x_i, y_i, \beta_r)}{\delta \alpha_r} \cdot \epsilon_r \right\}^2$$

Soit après développement :

$$\Phi = \sum_{i=1}^n \left\{ F_0^2 + \left[ \sum_{r=1}^N \frac{\delta F}{\delta \alpha_r} \epsilon_r \right] \left[ \sum_{k=1}^N \frac{\delta F}{\delta \alpha_k} \epsilon_k \right] - 2 \cdot F_0 \sum_{r=1}^N \frac{\delta F}{\delta \alpha_r} \epsilon_r \right\} \quad \text{II-16}$$

Cette somme sera minimale au sens des moindres carrés si quel que soit  $r$ , les dérivées partielles de  $\Phi$  par rapport à chaque élément de la liste  $\{\alpha_r, r=1, N\}$  sont nulles.

En effet, nous avons :

$$\frac{\delta \Phi}{\delta \alpha_r} = - \frac{\delta \Phi}{\delta \epsilon_r} \quad \text{puisque nous avons: } \alpha_r = \beta_r - \epsilon_r$$

Calculons alors la dérivée partielle de  $\Phi$  par rapport à  $\alpha_t$  et annulons-la, c'est à dire :

$(\delta \Phi / \delta \alpha_t) = 0$ . Nous obtenons :

$$\frac{\delta \Phi}{\delta \epsilon_t} = - \sum_{i=1}^n 2 F_0 \frac{\delta F}{\delta \alpha_t} + \sum_{i=1}^n 2 \frac{\delta F}{\delta \alpha_t} \left\{ \sum_{r=1}^N \frac{\delta F}{\delta \alpha_r} \frac{\delta F}{\delta \alpha_t} \epsilon_r \right\} = 0$$

L'expression des moindres carrés sera minimale en introduisant les paramètres solutions de l'équation suivante :

$$\sum_{i=1}^n F_0 \frac{\delta F}{\delta \alpha_t} = \sum_{i=1}^n \sum_{r=1}^N \frac{\delta F}{\delta \alpha_r} \frac{\delta F}{\delta \alpha_t} \epsilon_r \quad \text{II-17}$$

Si nous posons :

$$Q_r = \sum_{i=1}^n F_o \frac{\delta F}{\delta \alpha_r}$$

$$P_{rt} = \sum_{i=1}^n \frac{\delta F}{\delta \alpha_r} \cdot \frac{\delta F}{\delta \alpha_t}$$

Le problème revient donc à résoudre le système suivant d'équations linéaires sous forme matricielle :

$$Q_r = \sum_{t=1}^N P_{rt} \cdot \epsilon_r \quad \text{II-18}$$

Nous ne discutons pas le choix de la méthode de résolution, puisque une simple méthode de type Gauss-pivot maximal permet d'obtenir de rapides convergences.

### 3.2.3.2. Facteur de pondération :

Afin d'accroître l'importance des points expérimentaux dans les zones du profil de diffraction que l'on veut privilégier, on introduit généralement des facteurs de pondération <sup>(36)</sup>. Ces facteurs de pondération et leur affectation sont :

$$P_o^i = F_{\text{exp}}(x_i) / F_{\text{exp}}^{\text{maxi}} \quad \text{pour le corps du profil}$$

$$P_o^i = \frac{1}{F_{\text{exp}}(x_i)} \quad \text{pour les queues du profil}$$

L'introduction des ces facteurs de pondération modifie sensiblement le système d'équations à résoudre. En effet, les matrices  $Q_r$  et  $P_{rt}$  deviennent :

$$Q_r = \sum_{i=1}^n P_o^i \cdot F_o \cdot \frac{\delta F}{\delta \alpha_r}$$

$$P_{rt} = \sum_{i=1}^n P_o^i \frac{\delta F}{\delta \alpha_r} \cdot \frac{\delta F}{\delta \alpha_t}$$

II-19

### 3.2.3.3. Introduction d'une matrice des relations :

Dans la méthode développée par Ayakawa et Oka, il est possible d'introduire des matrices dites des relations permettant de lier certains paramètres entre eux. Par

exemple, dans le cas d'une séparation  $K_{\alpha_1} - K_{\alpha_2}$ , la distance angulaire séparant les deux pics est constante et donnée par les conditions expérimentales, de même leurs formes sont identiques ou encore le rapport  $I_{K_{\alpha_1}}/I_{K_{\alpha_2}}$  est fixé pour la radiation choisie <sup>(37)</sup>. Toutes ces remarques permettent de simplifier les opérations, et surtout de limiter les temps de calcul.

En effet, on peut écrire pour tout paramètre de la liste  $\{\alpha_r, r=1, N\}$  :

$$\alpha_m = \sum_{r=1}^N K_{mr} \cdot \alpha_r + \lambda_m \quad \text{II-20}$$

On définit alors la matrice des relations  $K_{mr}$  qui permet de résoudre le système réduit suivant d'équations linéaires :

$$\bar{Q}_r = \sum_{r=1}^N \bar{P}_{rt} \cdot \epsilon_r \quad \text{II-21}$$

Avec :

$$\bar{Q}_r = \sum_{r=1}^N K_{mr} \cdot Q_r$$

$$\bar{P}_{rt} = \sum_{m=1}^N \sum_{n=1}^N K_{mr} \cdot K_{nt} \cdot P_{rt}$$

### 3.2.3.4. Expression des dérivées partielles :

Dans la matrice carrée  $P_{rt}$ , nous retrouvons les expressions des différentes dérivées partielles de la fonction  $F(x_i, y_i, \alpha_r)$  par rapport à chaque élément de la liste de paramètres. Dans le cas des fonctions de Pearson VII asymétriques, la liste des paramètres est :

$$\{\alpha_r, r=1, N\} = \{b_0, [x_0, I_0, a, f, k]_i; i=1, m \text{ (m nombre de pic)}\}$$

Ces dérivées partielles ont la même forme que celles données par Ayakawa-Oka. Il suffit d'y remplacer la fonction de Pearson VII symétrique par sa forme asymétrique. Il se rajoute bien entendu la dérivée partielle par rapport à la variable d'asymétrie  $k$  donnée par :

$$\frac{\delta I(x)}{\delta k} = -f \cdot I_0 \cdot \left\{ 1 + \frac{(x - x_0)^2}{a^2} \cdot (1 + \delta k)^2 \right\}^{-f-1} \frac{(x - x_0)^2}{a^2} \cdot 2 \delta \cdot k \cdot (1 + \delta k) \quad \text{II-22}$$

### 3.2.3.5. Initialisation des paramètres :

Pour que la linéarisation de Newton permette d'aboutir, en convergeant rapidement, à la solution, il faut donner au départ des paramètres aussi proches que possible de la solution exacte. Il faut donc que  $\epsilon_r$  soit proche de zéro dès la première itération. Dans nos programmes, nous avons prévu deux cas de figure :

- on lisse une partie de diffractogramme ne contenant qu'une seule raie de diffraction, auquel cas les paramètres de départ sont automatiquement calculés par un programme d'initialisation,

- on sépare des profils composites, auquel cas les paramètres sont rentrés manuellement (c'est le cas de la superposition de raies voisines issues ou non du couple  $K_{\alpha 1}-K_{\alpha 2}$ ).

Dans le premier cas les valeurs du paramètre de modulation  $f$  et du terme  $a$ , liées à la largeur à mi-hauteur, sont initialisées en utilisant les relations suivantes :

$$a = \frac{\omega_{1/2}}{\sqrt{\frac{\omega_{1/2}}{\omega_{1/4}} - 2}}$$
$$f = \frac{\ln 2}{\ln \left\{ \left( \omega_{1/4}^2 - \omega_{1/2}^2 \right) / \omega_{1/2}^2 \right\}}$$

II-23

avec  $\omega_{1/2}$  largeur à mi-hauteur et  $\omega_{1/4}$  largeur au quart de la hauteur.

Quant aux autres paramètres initiaux, ils sont obtenus simplement à partir :

- de la position du maximum pour  $x_0$ ,
- de l'intensité maximale pour  $I_0$ ,
- le facteur de symétrie  $k$  est fixé à zéro.

Au § II.3.2.2. relation II-11 nous avons précisé que le profil à lisser correspond au profil net sans bruit de fond. La valeur  $b_0$  rajoutée, permet d'éviter la divergence du processus itératif. En effet, il est facile de voir que certaines des dérivées partielles deviendraient infinies en dehors du corps du profil de diffraction. D'autre part, les paramètres initiaux doivent être donnés sans bruit de fond, d'où l'intérêt de le soustraire avant la procédure de lissage. La valeur  $b_0$  est fixée dans les calculs grâce à la matrice des relations.

### 3.2.3.6. Procédure de lissage :

Pour une itération au cours de l'affinement, le programme calcule un certain nombre de valeurs permettant de juger de la qualité du lissage. Nous calculons les valeurs suivantes :

$$\text{erreur standard : } \sigma_{rt}^2 = \frac{\sum_{i=1}^n P_o^i |F_{\text{exp}}(x_i) - F_{\text{calc.}}(x_i)|^2}{n - N} \cdot P_{rr}^{-1} \quad \text{II-24}$$

$$\text{coefficient de corrélation : } c_{rt} = \frac{P_{rt}^{-1}}{[P_{rr}^{-1} \cdot P_{tt}^{-1}]} \quad \text{II-25}$$

$$\text{écart type : } S = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n |F_{\text{exp}}(x_i) - F_{\text{cal}}(x_i)|^2}{n}} \quad \text{II-26}$$

D'autres facteurs nous permettent de juger de la qualité de la pondération :

$$\text{indice de qualité du lissage : } R_p = \frac{\sum_{i=1}^n |F_{\text{exp}}(x_i) - F_{\text{cal}}(x_i)|^2}{\sum_{i=1}^n F_{\text{exp}}(x_i)} \quad \text{II-27}$$

$$\text{indice de qualité de pondération : } WRp = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n P_o^i |F_{\text{exp}}(x_i) - F_{\text{cal}}(x_i)|^2}{\sum_{i=1}^n P_o^i \cdot F_{\text{exp}}^2(x_i)}} \quad \text{II-28}$$

## **4. RESULTATS EXPERIMENTAUX :**

### **4.1. Echantillon et conditions expérimentales :**

Pour illustrer et tester le lissage et la séparation des raies de diffraction, nous avons utilisé la poudre ZnO-ex Zn(OH)<sub>2</sub>. L'origine de cette poudre a été donnée au § I.2.1

Les conditions expérimentales sont les suivantes :

- anticathode Fer-K<sub>α</sub>
- monochromateur avant graphite (raies K<sub>α1</sub> et K<sub>α2</sub>)
- angle d'incidence : 10 degrés
- fente collimateur : 0,4 mm
- temps de comptage : 3600 secondes.

### **4.2. Résultats:**

La figure II-8 présente le diffractogramme complet obtenu pour ZnO-ex Zn(OH)<sub>2</sub>. Pour des raisons pratiques liées à la taille mémoire de notre matériel informatique, nous ne pouvons lisser et/ou séparer des zones d'analyse contenant plus de 1000 points de mesure. Nous avons donc découpé ce diffractogramme en quatre zones :

- zone 1 : raie (202),
- zone 2 : raie (100),
- zone 3 : raies (002) et (101),
- zone 4 : raies (200), (112) et (201).

Pour les raies de la zone 4, nous avons effectué deux analyses différentes en modifiant le poids accordé aux profils (cf. § II.3.2.3.2.), afin de tester la qualité des pondérations.

Dans la zone 1, le rapport signal/bruit est relativement faible (de l'ordre de 4).

Le tableau II-1 présente l'ensemble des résultats obtenus pour ZnO-ex Zn(OH)<sub>2</sub>. Les figures II-9 à II-13 présentent les profils bruts et les fonctions de lissage. Sur ces mêmes figures sont représentés les polynômes bruit de fond.

### **4.3. Commentaires:**

L'analyse des colonnes 7 et 8 du tableau II-1 montre la bonne adéquation entre les profils lissés et les profils réels. L'écart résiduel est toujours très faible.

Figure II-8 : Diffractogramme de ZnO-ex Zn(OH)<sub>2</sub> position basse

plane:            sample:        ZnO en pastille

D

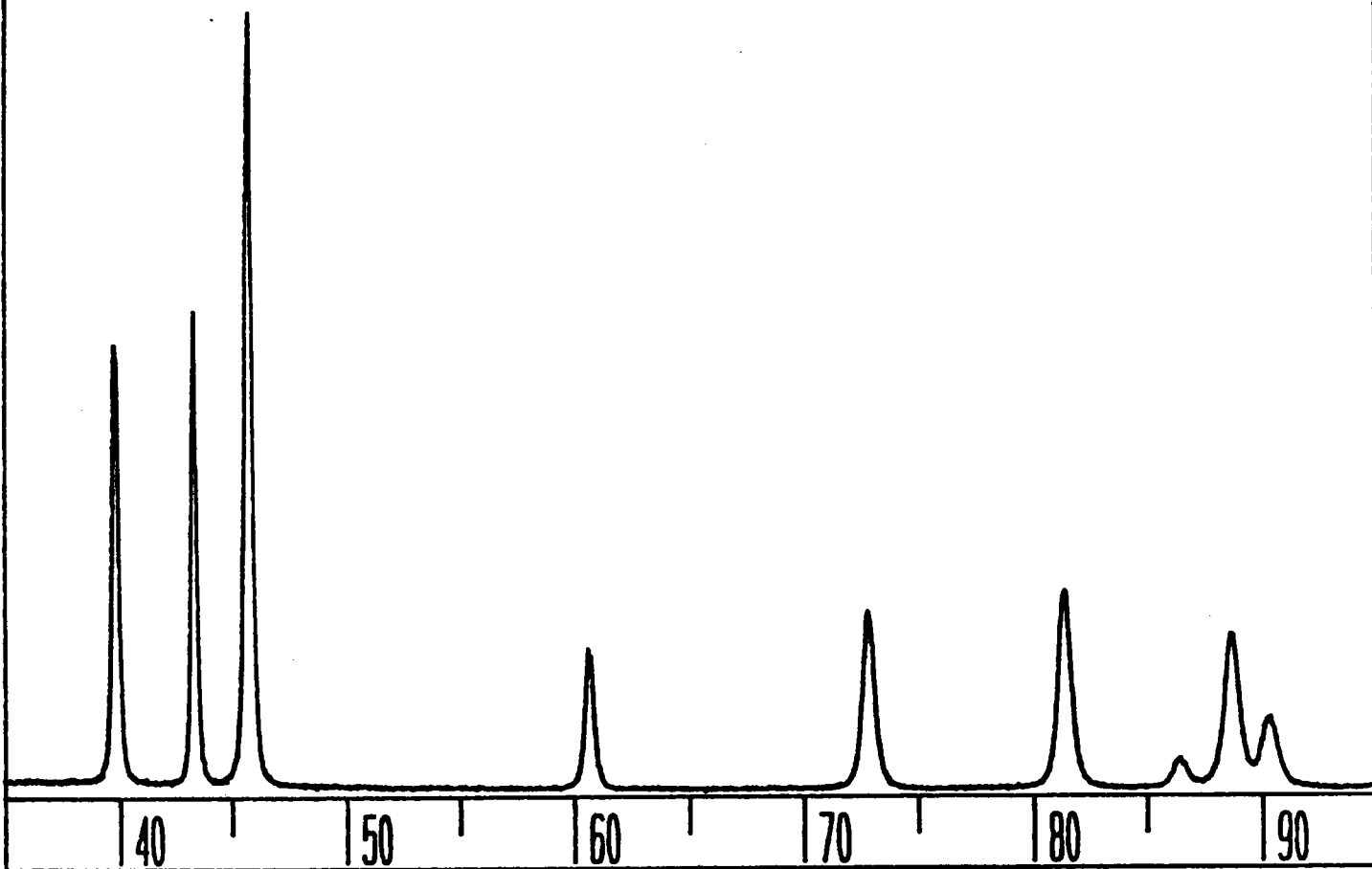
Omega= 20.00    Ldthe= 1.00    Hdthe=4096.00 BG: 0.00 0.00 0.00

nber: 272

measur.: 13-FEV-89

plot. : 31-JAN-90

DTHETA PLOT: start= 35.019 stop:= 94.977 max:= 10996.000 x-tic= 5.000 deg



dtheta start= 11.700 stop= 120.613

TILT= 0.000 AZIM= 0.000

dtheta step = 0.029

col. width = 0.80

col. height = 5.00

det. width = 0.03

det. height = 8.00

LMPC  
UNIV. METZ

inel

max = 10996.000

time/rate = 60.000

TEXTURINE/LPC

Figure II-9: Séparation et lissage raies 200/112/201 (NWT = 1)

22-MAR-89/09: 55

22-MAR-89/10: 43

LISSAGE MASSIF ZNO exZN(OH) 2

RAIES: 200/112/201

ECHANTILLON : ZNO

MANIP : 1

PHI = 0.00

PSI = 0.00

PLAN: 112

TUBE : FE

Intensite %

100.0

90.0

80.0

70.0

60.0

50.0

40.0

30.0

20.0

10.0

85.

86.

87.

88.

89.

90.

91.

92.

93.

94.

20

..... spectre mesure

..... spectre lisse

NAPT : 8

NWT : 1



22-MAR-89/09: 55

22-MAR-89/10: 17

LISSAGE MASSIF ZNO exZn(OH)2

RAIES: 200/112/201

ECHANTILLON : ZNO

MANIP : 1

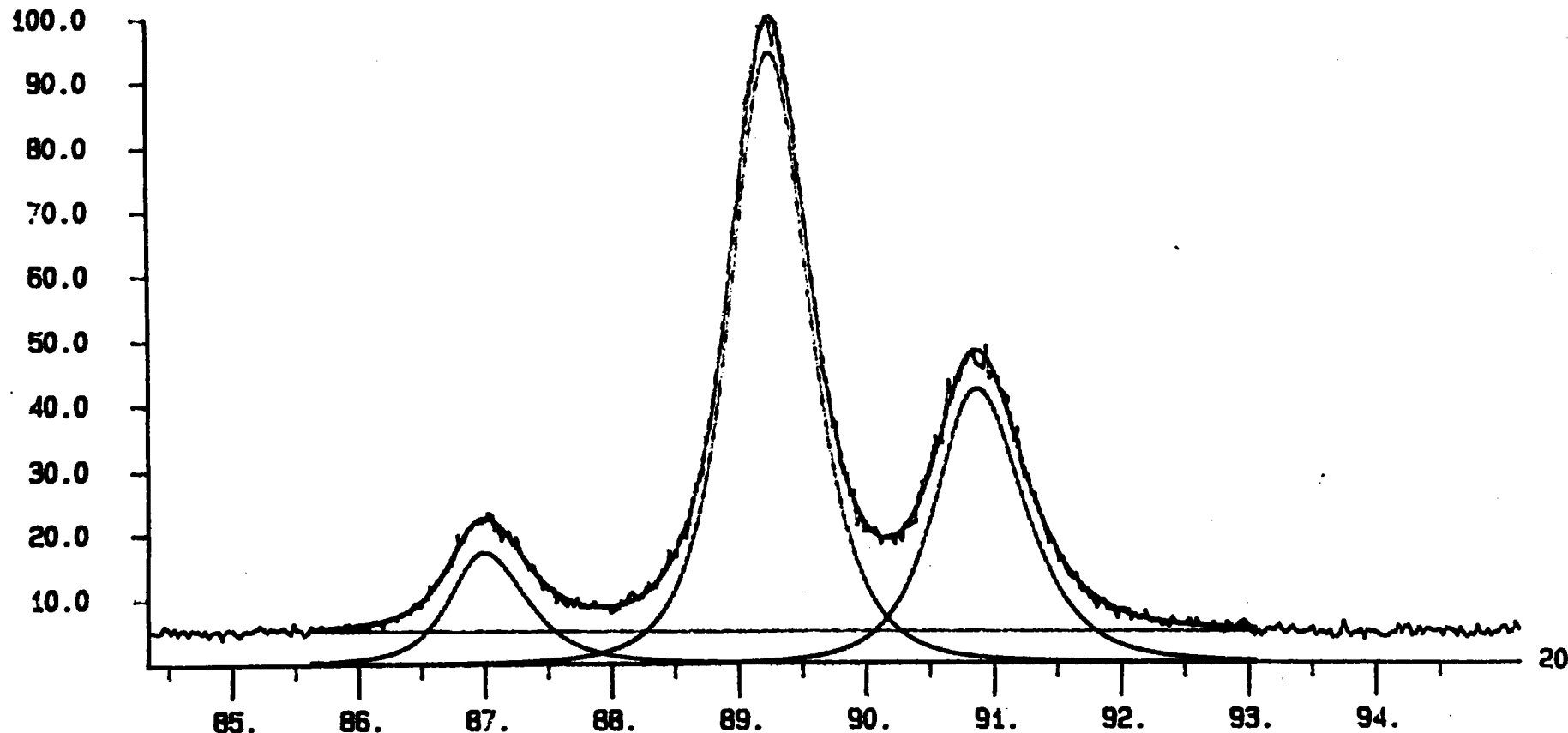
Intensite %

PHI = 0.00

PSI = 0.00

PLAN: 112

TUBE : FE



..... spectre mesure

..... spectre lisse

NRPT : 8 NWT : 2

LYPC

Figure II-10: Séparation et lissage des raies 200/112/201 (NWT = 2)

53

Figure II-11 : Séparation et lissage raies 002/101

22-MAR-89/11:43

22-MAR-89/12:00

LISSAGE ZNO exZII(OH)2

RAIES: 112/200

ECHANTILLON : ZNO

MANIP : 3

Intensité %

PHI = 0.00

PSI = 0.00

PLAN: 2

TUBE : FE

100.0

90.0

80.0

70.0

60.0

50.0

40.0

30.0

20.0

10.0

43.

44.

45.

46.

47.

48.

49.

20

..... spectre mesure

..... spectre lisse

NRPT : 8

NWT : 2

LMPC

22-MAR-89/12: 14

22-MAR-89/12: 24

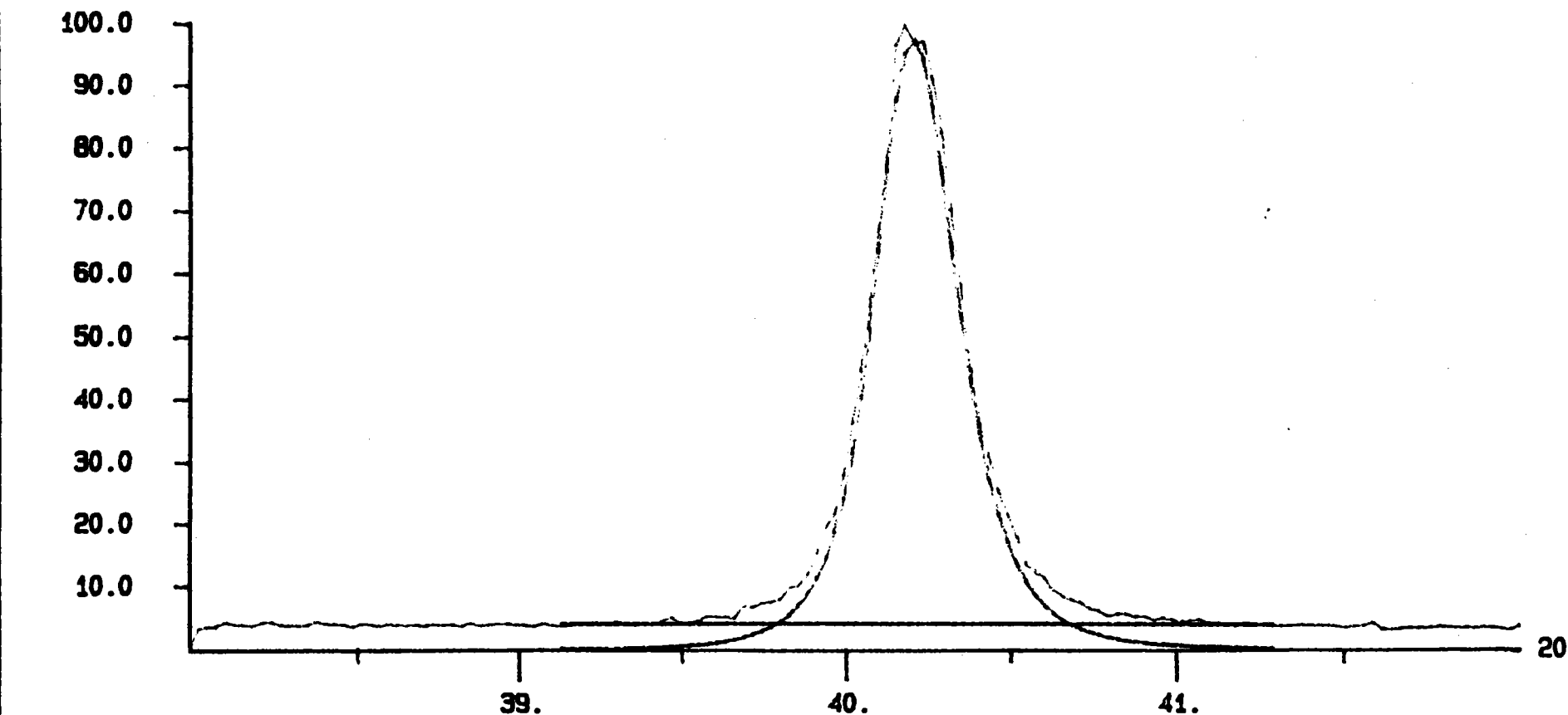
LISSAGE ZNO exZn(OH) 2

RAIE BRAGG (100)

ECHANTILLON : ZNO

MANIP : 4

Intensite % PHI = 0.00 PSI = 0.00 PLAN: 100 TUBE : FE



... spectre mesure

NRPT : 8 NWT : 1

LMPC

Figure II-12: Lissage de la raie 100 isolée.

55

Figure II-13 : Raie 202 isolée Rapport signal/bruit faible.

22-MAR-89/11: 16

22-MAR-89/11: 31

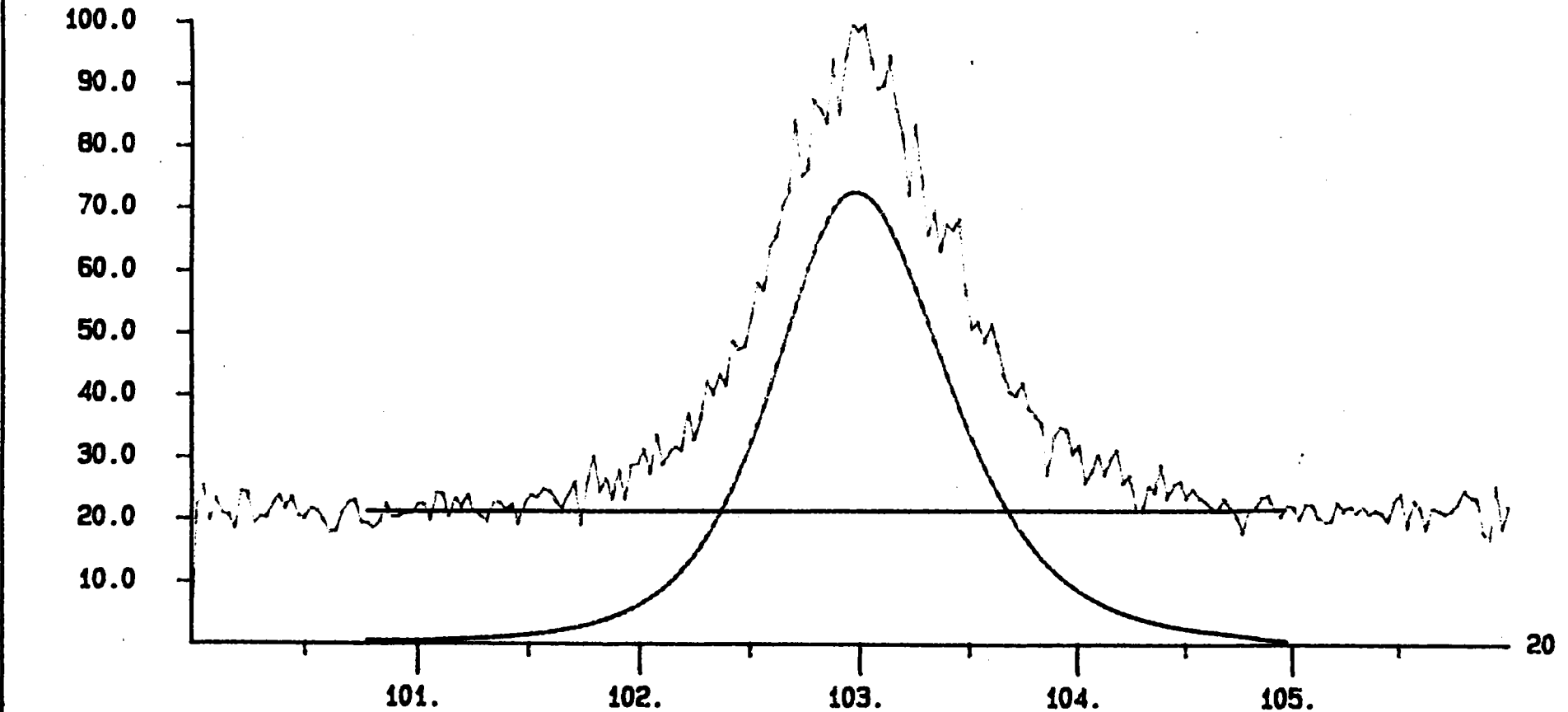
LISSAGE ZNO exZn(OH)2

RAPPORT signal/bruit FAIBLE

ECHANTILLON : ZNO

MANIP : 2

Intensite %      PHI = 0.00      PSI = 0.00      PLAN: 202      TUBE : FE



. spectre mesure

NRPT : 8    NWT : 2

**Tableau II-1: Résultats expérimentaux poudre ZnO.**

Plan	I <sub>max</sub>	2θ maxi	a	f	k	Ecart res.	% erreur
200	392,58	86,987	17,04	1,81	-0,2	22,5	0,25%
112	2158,25	89,252	21,85	2,17	-0,015		
201	967,32	90,869	22,72	2,10	-0,12		
200	394,63	86,982	15,48	1,59	-0,24	22,0	0,3%
112	2151,37	89,248	22,59	2,31	-0,04		
201	959,48	90,867	25,56	2,50	-0,13		
002	6037,95	43,696	7,36	2,10	-0,17	129,0	0,35%
101	10660,49	46,065	8,81	1,87	-0,05	67,1	0,35%
100	6197,55	40,210	8,12	2,10	-0,09		
202	346,92	102,971	26,47	2,49	-0,13		

(1)            (2)            (3)            (4)            (5)            (6)            (7)            (8)

**Spécifications:**

- raies 200/112/201 : poids accordé aux queues du profil
- raies 200/112/201 : poids accordé au corps du profil
- raie 100 : coefficients de Fourier
- raie 202 : rapport signal/bruit faible.

Le pourcentage erreur est défini par :

$$\% \text{ erreur} = \frac{\text{Surface réelle} - \text{surface lissée}}{\text{Surface réelle}}$$

La figure II-13 montre que même dans le cas de rapport signal/bruit relativement faible (de l'ordre de 4) le lissage obtenu est encore de bonne qualité. Les figures II-9 à II-13 montrent également que la procédure de recherche automatique des bornes des profils donnent des résultats tout à fait satisfaisants.

Nous présentons à titre de comparaison les résultats obtenus par Sidky-Benabad<sup>(32)</sup> et Devine et al.<sup>(8)</sup> (cf. figures II-14 et II-15). Sidky-Benabad utilise des fonctions de Pearson VII symétriques. Devine et al. utilisent des fonctions de Pearson VII où le paramètre de forme est fixé entier à l'avance (pseudo-lorentzienne).

Nous pouvons constater que :

- référence (8) : les queues des raies sont très éloignées du profil réel,

- référence (32) : l'écart au profil réel dans les queues du profil est faible, mais il apparaît néanmoins que les fonctions de Pearson VII sous la forme asymétrique proposée donnent de meilleurs résultats. (Pour pallier à ce problème, Sydky-Benabad utilise par la suite des fonctions de Mignot-Rondot.)

Par rapport aux fonctions de Mignot-Rondot ( cf. relation II-7), les fonctions de Pearson VII présentent l'avantage d'avoir un nombre de paramètres de lissage des profils plus faible : 5 au lieu de 6 (cf. relations II-7 et II-9).

Afin de s'assurer que le lissage conserve toutes les informations contenues dans le profil réel, nous avons calculé les coefficients de Fourier des profils réels et des profils lissés. Nous avons utilisé les résultats de la raie (100) de ZnO- ex Zn(OH)<sub>2</sub>.

La figure II-16 illustre les variations des écarts entre les coefficients de Fourier des profils réel et lissé. On a posé :

$$\Delta A(n) = A_{\text{profil réel}}(n) - A_{\text{profil lissé}}(n)$$

$$\Delta B(n) = B_{\text{profil réel}}(n) - B_{\text{profil lissé}}(n)$$

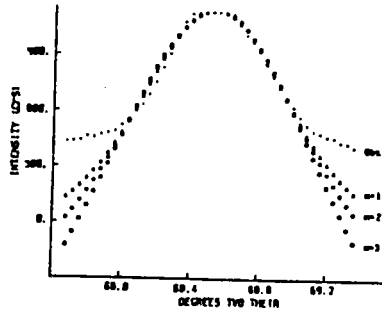
avec :  $A(n=0) = 1$  et  $B(n=0) = 0$ .

#### Remarque :

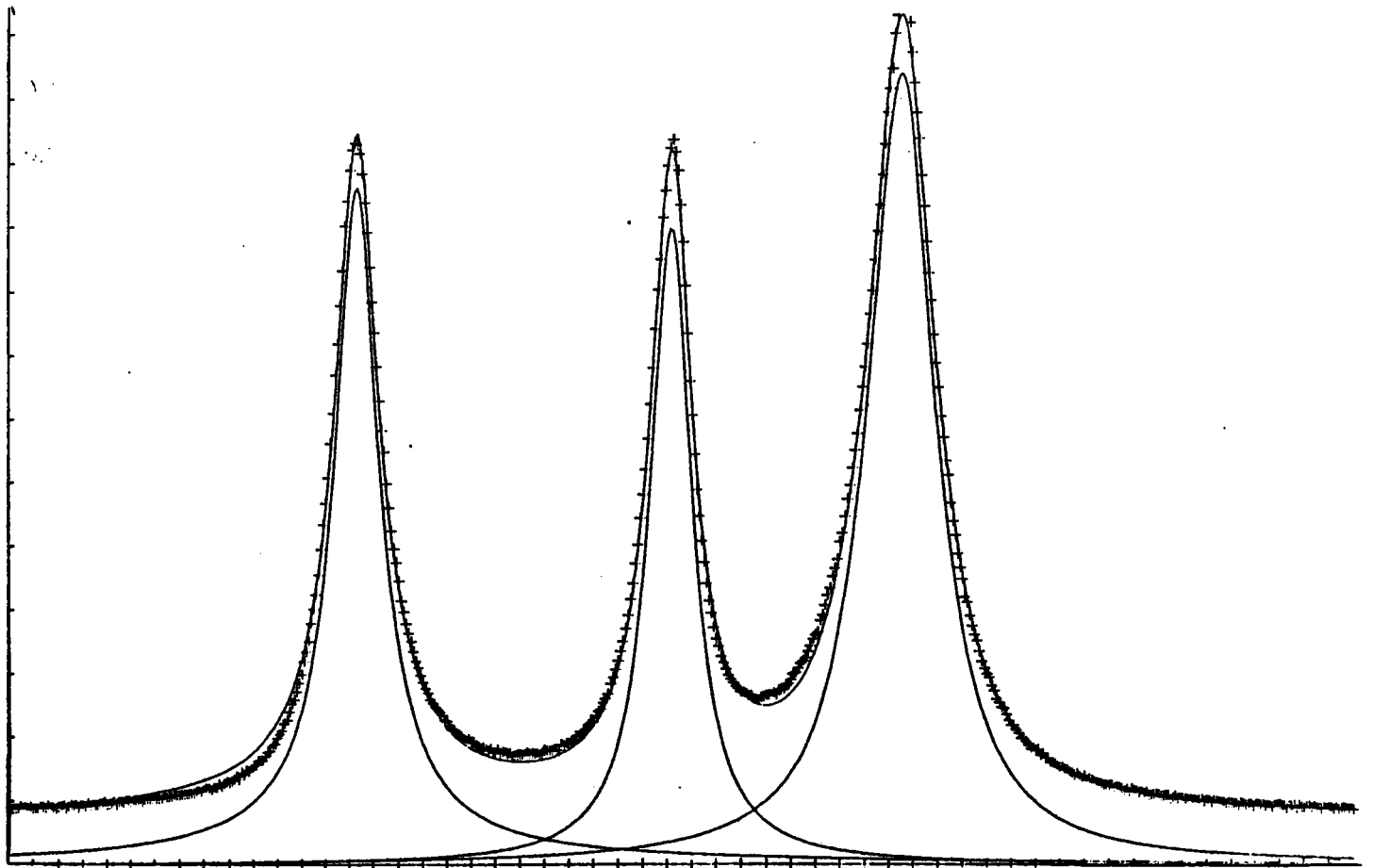
Les coefficients de Fourier de ces profils de raie ont été calculés après avoir transformé le profil, obtenu dans l'espace direct en  $2\theta$ , dans l'espace réciproque en unité  $s$  définie par :

$$s = \frac{\sin \theta}{\lambda}$$

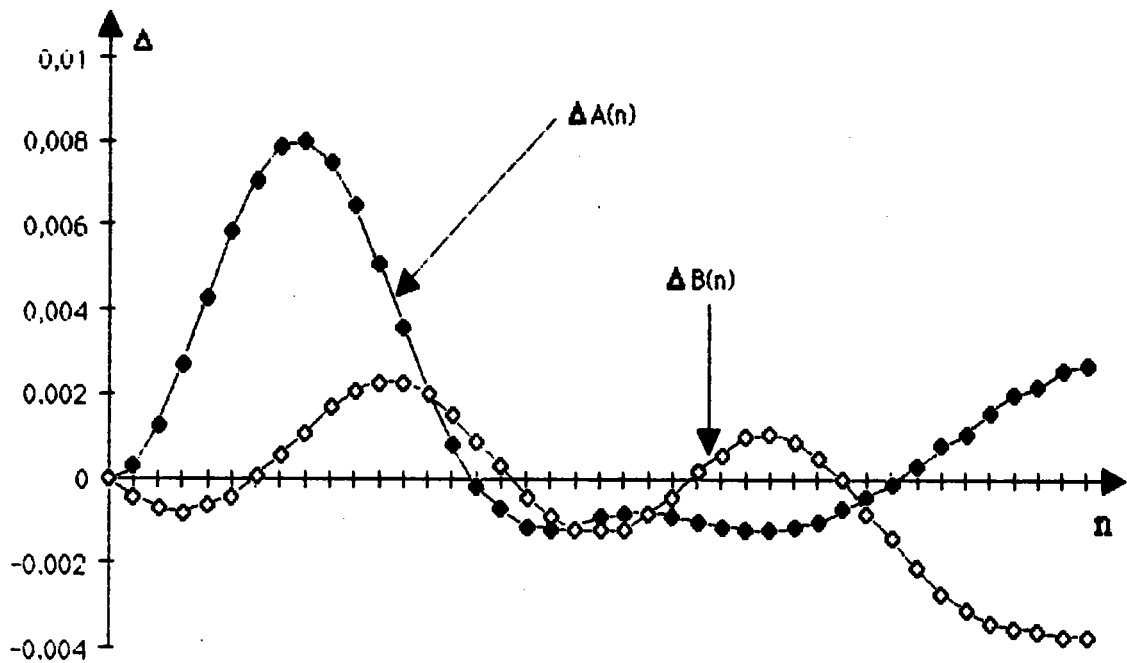
Cette transformation s'effectue par interpolation dans l'espace direct.



**Figure II-15 :** Lissage par des pseudo-lorentziennes (d'après Devine)



**Figure II-14 :** Lissage de raies par des fonctions symétriques (d'après Sydk-Bénabad)



**Figure II-16 : Ecart  $\Delta$  entre coefficients de Fourier des profils réel et lissé.**

On peut noter le très faible écart entre les distributions des coefficients issus des profils réels et lissés.

En conclusion, nous pouvons dire :

- le lissage par des fonctions de Pearson VII sous la forme asymétrique proposée permet une bonne représentation des profils de diffraction réels quelles que soient la forme du pic de diffraction et la valeur du rapport signal/bruit,
- le lissage conserve les caractéristiques du profil réel,
- le lissage par des fonctions asymétriques permet de mieux rendre compte de la forme des queues de raie.



## BIBLIOGRAPHIE CHAPITRE II

- (1) COUTERNE J.C., CIZERON G., *J. Appl. Cryst.*, (1971), 4, 461-472
- (2) TENCKHOF J., *J. Appl. Phys.*, (1970), 41, 10,
- (3) DELHEZ R., MITTEMEIJER E.J., KEIJSER Th.H. DE, ROZENDAAL H.C.F., *J. of Physics E: Scient. Instrum.*, (1977), 10, 784-785
- (4) WANG YINGHUA, *J. Appl. Cryst.*, (1987), 20, 258-259
- (5) JAMES M.R., COHEN J.B., *Advances in X-ray Analysis*, (1977), 20, 291-307
- (6) Mesure des Contraintes Résiduelles, Pub. CETIM, (1978)
- (7) KOISTINEN D.P., MARBURGER R. E., *ASM Transactions*, (1959), 51, 537-555
- (8) DEVINE T.J., COHEN J. B., *Advances in X-Ray Analysis*, (1986), 29, 89-101
- (9) PREVEY P.S., *Advances in X-Ray Analysis*, (1984), 28
- (10) CONVERT F., in : Compte Rendu des Journées de Strasbourg, (1985) E.N.S.A.I.S. (Strasbourg)
- (11) BOURNIQUEL, à paraître
- (12) RACHINGER W.A., *J. Sci. Instrum.*, (1948), 25, 254-255
- (13) DU MOND J.W., KIRKPATRICK H.A., *Phys. Rev.*, (1931), 37, 154-156
- (14) PLATBROOD G., *J. Appl. Cryst.*, (1983), 16, 24-27
- (15) GANGULEE A., *J. Appl. Cryst.*, (1970), 3, 272-277
- (16) DELHEZ R., MITTEMEIJER E.J., *J. Appl. Cryst.*, (1975), 8, 609-611
- (17) MIGNOT J., RONDOT D., *J. Appl. Cryst.*, (1976), 9, 460-465
- (18) COHEN J.B., DOLLE H., JAMES M.R., (1980) in : Block S., Hubbard CR. Eds., Accuracy in Powder Diffraction (NBS Special Publication 567) N.B.S. Washington, 453-477
- (19) RONDOT D., MIGNOT J., *J. Appl. Cryst.*, (1977), 10, 84-90
- (20) HALL M.M.Jr., VEERARAGHAVAN V.G., RUBIN H., WINCHELL P.G., *J. Appl. Cryst.*, (1977), 10, 66-68
- (21) YOUNG R.A., MACKIE P.E., VON DRELLE R.B., *J. Appl. Cryst.*, (1977), 10, 262-269
- (22) NIEPCE J.C., BENABAD-SIDKY A., *Chemica Scripta*, (1986), 26
- (23) YOUNG R.A., WILES D.B., *J. Appl. Cryst.*, (1982), 15, 430-438
- (24) TORAYA H., *J. Appl. Cryst.*, (1985), 18, 351-358
- (25) MALBE S., Thèse, Université de Dijon, (1984)
- (26) WILSON A.J.C., *Acta Cryst.*, (1967), 23, 888-898
- (27) DOIG P., LONSDALE D., FLEWITT P.E.J., *J. Appl. Cryst.*, (1981), 14, 124-130
- (28) LONSDALE D., *J. Appl. Cryst.*, (1986), 19, 300-307
- (29) NAIDU S.V.N., HOUSKA C.R., *J. Appl. Cryst.*, (1982), 15, 190-198
- (30) TORAYA H., YOSHIMURA M., SOMIYA S., *J. Appl. Cryst.*, (1983), 16, 653-657
- (31) HAYAKAWA M., OKA M., *J. Appl. Cryst.*, (1981), 14, 145-148
- (32) BENABAD-SIDKY A., Communication privée.

# **CHAPITRE III :**

## **CONTRAINTES RESIDUELLES**

## **ET MICRO-DEFORMATIONS**

### **Plan**

#### **Introduction**

#### **1. Mesure des contraintes résiduelles par diffraction X**

- 1.1. Principe de mesure des contraintes résiduelles**
- 1.2. Etat de contrainte biaxial : Loi des  $\sin^2\psi$**
- 1.3. Etat de contrainte triaxial : Méthode de Dolle et Cohen**
- 1.4. Figure de pôles des déformations / Indicatrices**
- 1.5. Constantes élastiques**

#### **2. Introduction aux mesures de micro-déformations**

- 2.1. Introduction**
- 2.2. Analyse de profils de raie**
- 2.3. Méthode des largeurs intégrales de Voigt**
- 2.4. Méthode de Warren-Averbach**

#### **3. Résultats**

- 3.1. Echantillons**
- 3.2. Mesure de contraintes résiduelles**
  - 3.2.1. Résultats**
  - 3.2.2. Etude des oscillations**
  - 3.2.3. Mesure de contraintes en intégration**
  - 3.2.4. Mesure de contraintes après filtrage numérique des profils de raie**
- 3.3. Mesure des micro-déformations**
  - 3.3.1. Conditions expérimentales**
  - 3.3.2. Méthode de Warren-Averbach**
  - 3.3.3. Méthode des largeurs intégrales de Voigt**

#### **Bibliographie**

## Introduction

Les contraintes résiduelles sont les contraintes multiaxiales statiques en équilibre mécanique qui existent dans un système mécanique libre de toute force ou moment extérieurs. Ces contraintes apparaissent suite aux traitements mécaniques ou thermiques subis par le matériau et sont dues aux hétérogénéités de déformation d'un domaine du matériau par rapport à un autre. Un matériau polycristallin présente généralement des grains subdivisés en "domaines" séparés par un réseau de dislocations. Chacun de ces domaines est en fait un ensemble de mailles cristallines identiques. Comme le montre Maeder, on distingue trois ordres de contrainte de l'échelle microscopique à l'échelle macroscopique <sup>(1)</sup> :

- contraintes résiduelles du troisième ordre : la déformation à l'échelle d'un cristallite n'est pas homogène. Elles sont principalement dues à des défauts de réseaux (lacunes, dislocations, ...). Toutes les sources de discontinuité de déformation créent des champs de contraintes localement très variables.

- contraintes résiduelles du second ordre : la déformation est ici considérée sur plusieurs grains du matériau. Elles représentent la moyenne des contraintes du troisième ordre. Elles sont dues aux désorientations entre grains, au caractère anisotrope de la déformation plastique des cristallites (incompatibilité de la déformation plastique de grain à grain, ou de phase à phase).

- contraintes résiduelles du premier ordre : elles représentent la moyenne des contraintes du second ordre à l'échelle du polycristal.

Dans le cas des matériaux réels ces trois ordres de contraintes se superposent et il est bien entendu que leurs effets ne sont pas tous identiques :

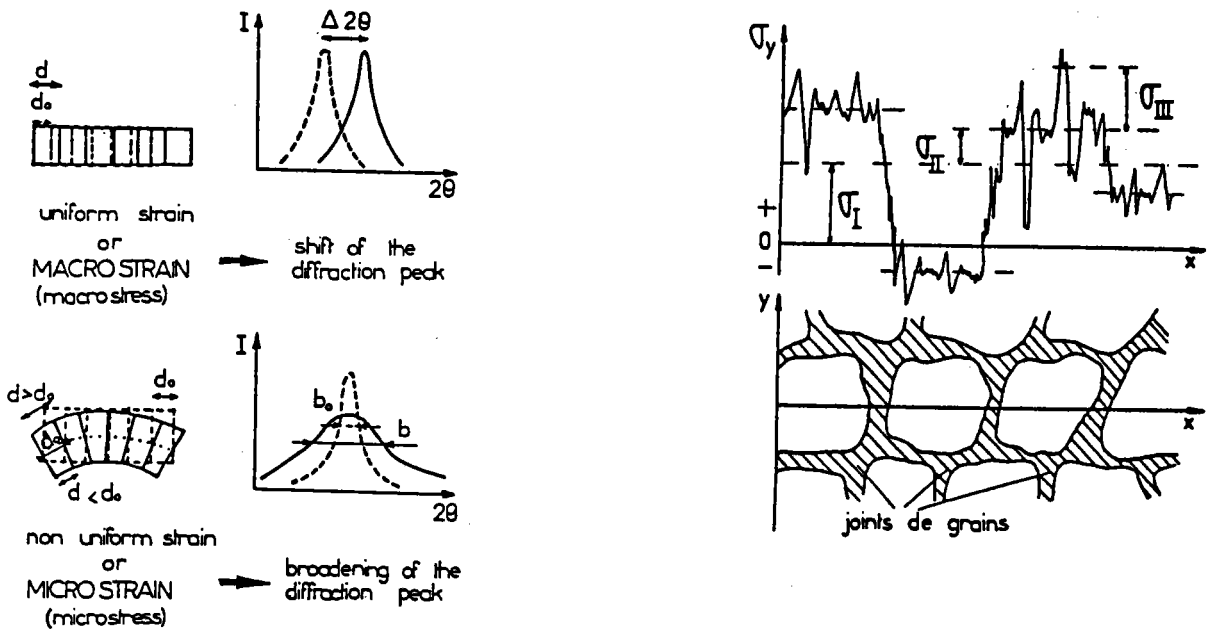
i. Cas des matériaux monophasés à petits grains : il est difficile de séparer les effets des contraintes d'ordre 2 et d'ordre 3. Les contraintes d'ordre 2 ne produisant qu'un élargissement du pic, il est convenu de noter la contrainte associée  $\sigma^{IIIM}$ .

ii. Cas des matériaux monophasés à gros grains : les contraintes d'ordre 2 produisent un déplacement du pic de diffraction, si bien qu'elle est notée  $\sigma^{IIM}$ .

iii. Cas des matériaux bi-phasés : on rencontre ici tous les types de contraintes évoqués ci-dessus.

Aussi, les contraintes sont elles classées en trois catégories :

- micro-contrainte : contraintes d'ordre 2 du type  $\sigma^{IIIM}$  et d'ordre 3 reliées aux déformations introduites au niveau de la microstructure,
- macro-contraintes : contrainte d'ordre 1.
- pseudo macro-contraintes : contraintes d'ordre 2 du type  $\sigma^{IIIM}$ .



**Figure III-1 :** Ordres des contraintes (d'après Maeder<sup>(1)</sup>).

Les macro-contraintes s'obtiennent en mesurant le déplacement du pic de diffraction correspondant à une distance interréticulaire différente de celle du matériau détentionné libre de toute contrainte. Les micro-contraintes ne sont mesurables que par analyse de l'élargissement du pic de diffraction  $X$ . La figure III-1 présente schématiquement les trois ordres de contrainte et leurs effets sur un pic de diffraction.

Dans ce chapitre, nous étudierons tout d'abord les contraintes résiduelles, puis les constantes radiocristallographiques permettant de tenir compte de l'anisotropie cristallographique. Nous présenterons enfin la technique de mesure et de calcul des micro-déformations dans le matériau étudié. Les mesures de contraintes ont été effectuées en utilisant le montage goniométrique  $\psi$  <sup>(39)</sup>.

## 1. MESURE DES CONTRAINTES RESIDUELLES :

### 1.1. Principe de mesure des contraintes résiduelles par diffraction X <sup>(2)</sup> :

La distance interréticulaire  $d_{hkl}$  entre deux plans cristallins est utilisée comme jauge de déformation. En effet, suivant la loi de Bragg :

$$2 \cdot d_{hkl} \cdot \sin \theta_{hkl} = \lambda, \text{ on obtient par différenciation :}$$

$$\frac{\Delta d_{hkl}}{d_{hkl}} = - \cotang \theta_{hkl} \cdot \Delta \theta_{hkl} \quad \text{III-1}$$

La variation de distance interréticulaire est donc mesurée par la variation angulaire de la position du pic de diffraction. Cette variation sera d'autant plus grande que  $\theta$ , angle de diffraction, sera plus grand.

Remarque : Cette variation peut être due à la mise en contrainte durant la mesure.

### 1.2. Etat de contrainte biaxial :

#### 1.2.1. Equation mécanique :

Considérons un volume sphérique isolé appartenant à un solide homogène et isotrope. Si on fait subir à cet élément une déformation élastique homogène, il se déforme en un ellipsoïde comme l'indique la figure III-2.

Les lois de la Mécanique nous permettent alors d'exprimer les déformations  $\epsilon_{\phi\psi}$ , c'est à dire suivant la direction ( $\phi\psi$ ) en fonction des contraintes principales  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$  et  $\sigma_3$ . En considérant d'autre part que la contrainte  $\sigma_3$  est nulle à la surface du matériau, nous avons :

$$\epsilon_{\phi\psi} = \frac{1+\nu}{E} \cdot \sin^2 \psi \cdot \{ \sigma_1 \cdot \cos^2 \phi + \sigma_2 \cdot \sin^2 \phi \} - \frac{\nu}{E} \cdot (\sigma_1 + \sigma_2) \quad \text{III-2}$$

On note :  $\sigma_{\phi} = \sigma_1 \cdot \cos^2 \phi + \sigma_2 \cdot \sin^2 \phi$

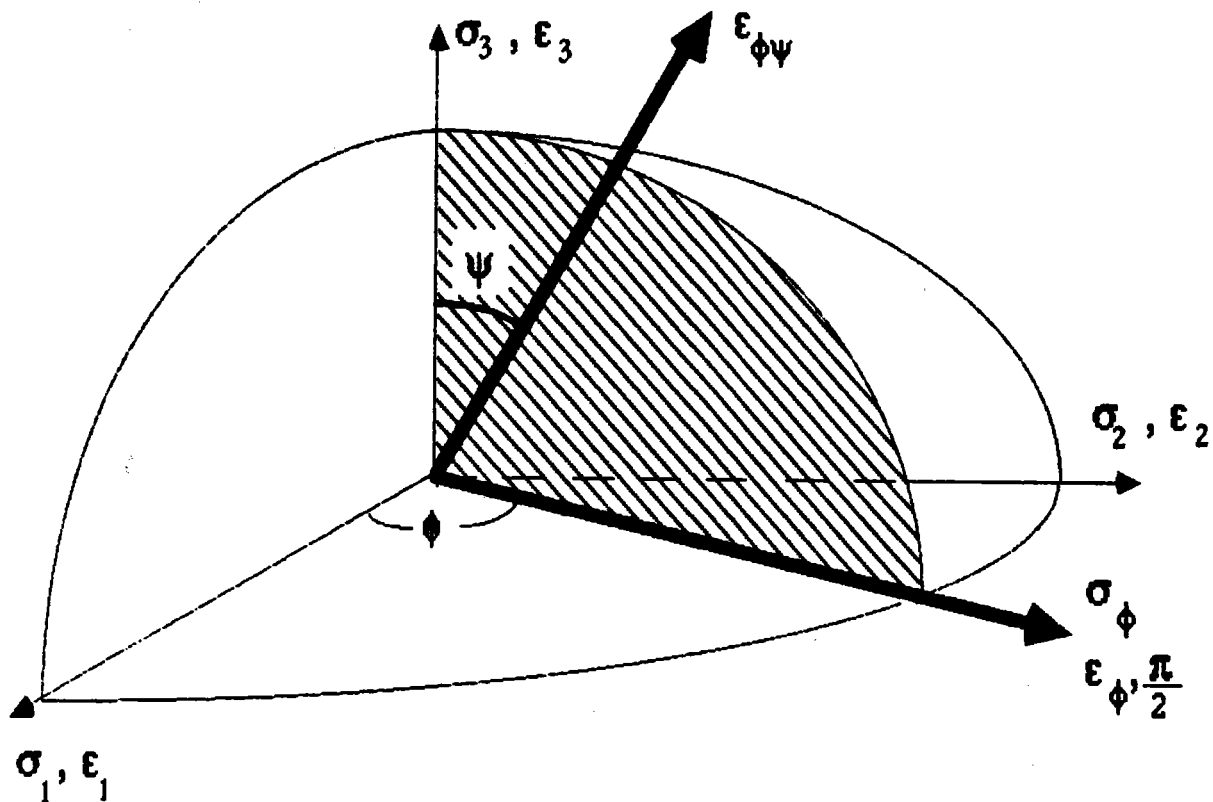


Figure III-2 : Direction de mesure et définition des angles.

On a d'autre part :

$$\frac{1}{2} S_2 = \frac{1 + \nu}{E} \quad \text{et} \quad S_1 = -\frac{\nu}{E} \quad \text{III-3}$$

Dans ces relations  $\nu$  et  $E$  représentent, respectivement, le module de Poisson et le module d'Young.

Cette relation, linéaire en  $\sin^2 \psi$ , est appelée loi des  $\sin^2 \psi$ .

### 1.2.2. Cas de la diffraction des rayons X :

En diffraction des rayons X, seuls les plans  $(hkl)$  vérifiant la loi de Bragg participent à la diffraction (cf. figure III-3). La déformation est donc mesurée dans une direction particulière, appelée *direction de mesure*, correspondant à la direction normale aux plans diffractants.

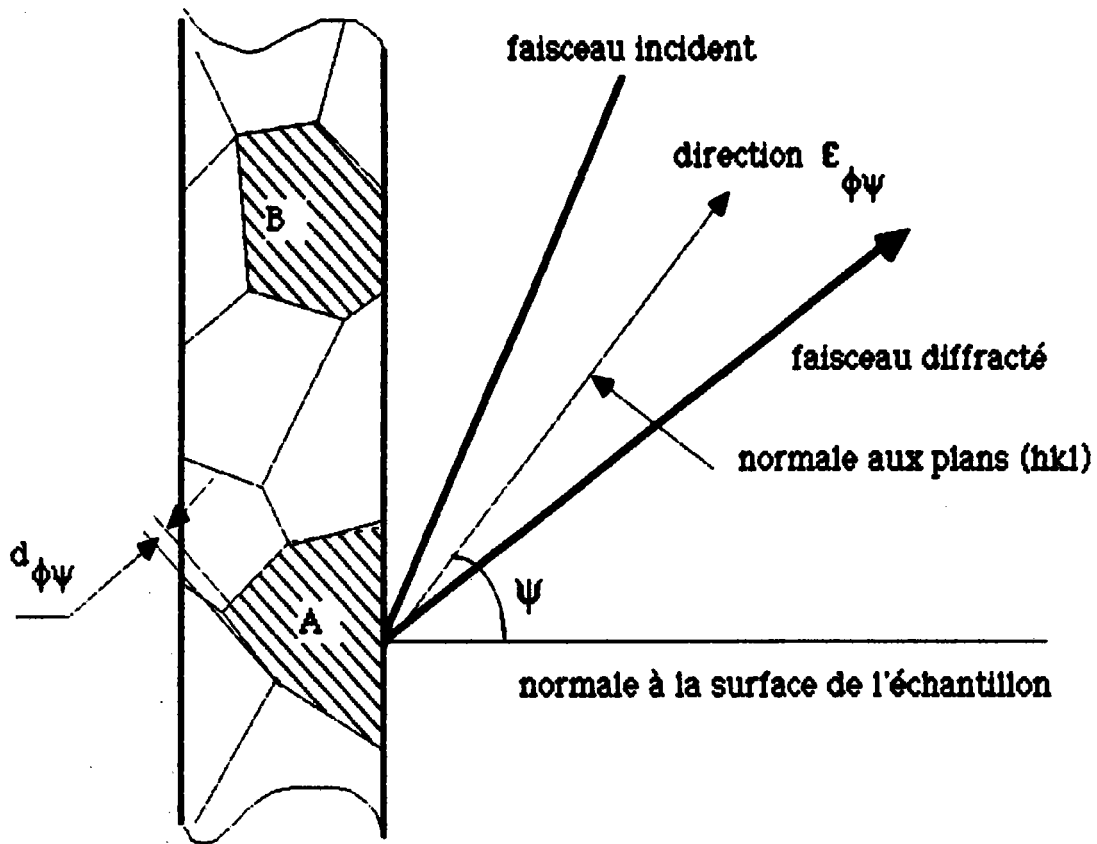


Figure III-3 : Diffraction d'un faisceau X par un plan (hkl)

La figure III-4 précise les repères de mesure et de laboratoire [ L ], ainsi que le repère de la pièce [ P ].

Remarque :

Toutes les grandeurs sont généralement exprimées dans les repères :

- $X^C$  = grandeur exprimée dans le repère [C] --> repère cristallin,
- $X^L$  = grandeur exprimée dans le repère [L] --> repère de laboratoire,
- $X$  = grandeur exprimée dans le repère [P] --> repère de la pièce.

En supposant que les contraintes de type  $\sigma_{13}$  sont nulles à la surface du matériau analysé, on se réfère à un état de contrainte biaxial. Le tenseur des contraintes dans le repère de la pièce s'écrit :

$$\begin{matrix} \sigma_{11} & \sigma_{12} & 0 \\ \sigma_{12} & \sigma_{22} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{matrix}$$

Ce tenseur peut bien entendu s'écrire en termes de contraintes principales :

$$\begin{matrix} \sigma_1 & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_2 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{matrix}$$

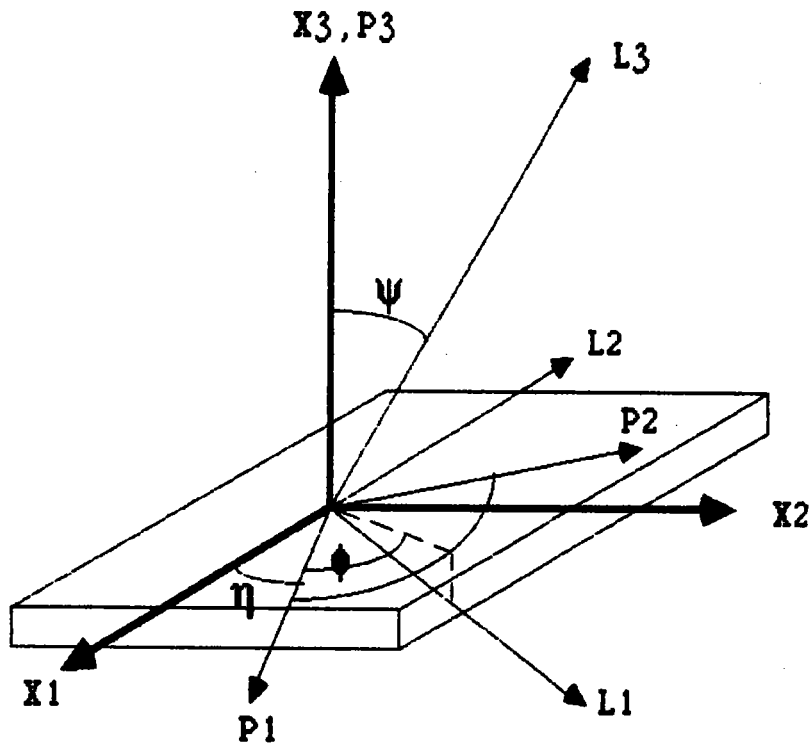


Figure III-4: Repère [P] : pièce [L] : mesure [X] : repère principal

Les relations (31) et (32) doivent donc être adaptées au cas de la mesure des contraintes résiduelles par la méthode de diffraction des rayons X. La déformation mesurée étant relative aux seuls plans (hkl) visés, il convient de tenir compte de l'anisotropie cristallographique introduite en définissant les constantes  $S_1(hkl)$  et  $S_2(hkl)$  pour les plans considérés. La relation (31) s'écrit donc :

$$\epsilon_{\phi\psi}(hkl) = \frac{1}{2} S_2(hkl) \cdot \sigma_{\downarrow} \cdot \sin^2 \psi + S_1(hkl) \cdot (\sigma_1 + \sigma_2) \quad \text{III-4}$$



avec:  $\frac{1}{2} S_2(hkl) = \frac{1 + \nu(hkl)}{E(hkl)}$ ,  $S_1(hkl) = -\frac{\nu(hkl)}{E(hkl)}$  et  $\epsilon_{\phi\psi}(hkl) = \frac{d_{\phi\psi} - d_0}{d_0}$

Cette relation nous permet, connaissant  $S_1(hkl)$ ,  $S_2(hkl)$  et  $d_0$ , la distance interréticulaire du matériau non contraint, de calculer la contrainte  $\sigma_\phi$  à partir de la pente et de l'ordonnée à l'origine de la droite  $\epsilon_{\phi\psi}$  en fonction  $\sin^2\psi$ , comme l'indique la figure III-5.

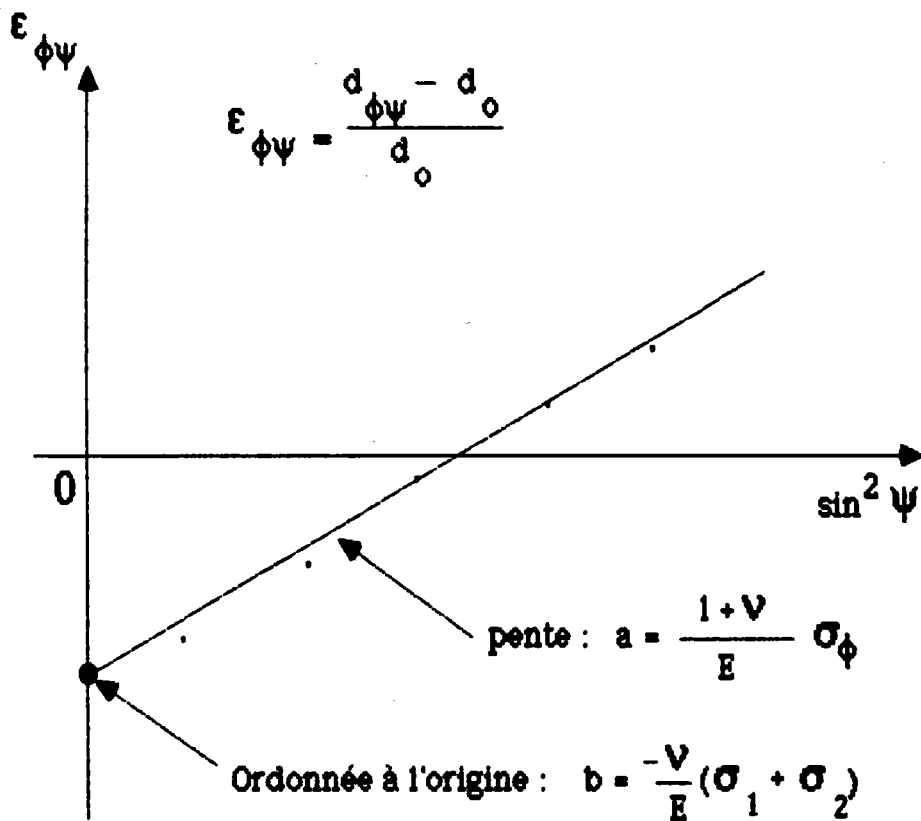


Figure III-5 : Loi des  $\sin^2(\psi)$

Pratiquement, on calcule  $\epsilon_{\phi\psi} - \epsilon_1$ , avec  $\epsilon_1$  déformation mesurée à  $\psi = \phi = 0^\circ$  :

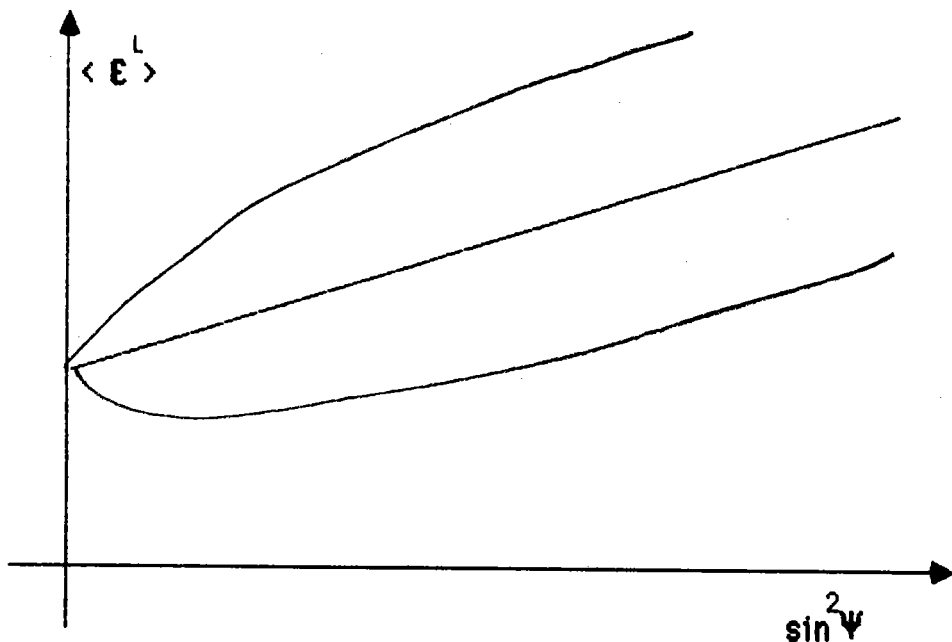
$$\epsilon_{\phi\psi} - \epsilon_1 = \frac{d_{\phi\psi} - d_1}{d_0} \approx \frac{d_{\phi\psi} - d_1}{d_1}$$

Cette simplification nous permet d'éviter la mesure, toujours très délicate, de  $d_0$  distance interréticulaire du matériau détentionné. L'erreur commise est négligeable. La loi des  $\sin^2\psi$  n'est donc valable que dans le cadre de certaines hypothèses :

- le matériau doit être homogène, continu et quasi-isotrope,
- les déformations et les contraintes doivent être homogènes dans le volume touché par les rayons X,
- on suppose l'état de contrainte biaxial, car la mesure est superficielle ( $d_0 \approx d_{\perp}$ ).

### 1.3. Etat de contrainte triaxial : méthode de Dölle et Cohen <sup>(3)</sup>

Dans certains cas de traitement des matériaux (rectification par exemple), la couche superficielle est très fortement perturbée. La courbe  $E^L_{\psi} = f(\sin^2\psi)$  n'est plus linéaire du fait de l'existence d'un cisaillement parallèle à la surface du matériau <sup>(4)</sup> : la courbe se dédouble comme le montre la figure III-6 en présentant deux arcs non superposables à  $\psi > 0$  et  $\psi < 0$ .



**Figure III-6 : Dédoublement du graphe.**

L'expression de la déformation dans la direction de mesure  $L_3$  en fonction de la déformation  $\epsilon_{ij}$  exprimée dans le repère de la pièce [ P ] est :

$$\epsilon_{\phi\psi}^L = \frac{d_{\phi\psi} - d_0}{d_0} = \epsilon_{11} \cdot \cos^2 \phi \cdot \sin^2 \psi + \epsilon_{12} \cdot \sin 2\phi \cdot \sin^2 \psi + \epsilon_{13} \cdot \cos \phi \cdot \sin 2\psi + \epsilon_{22} \cdot \sin^2 \phi \cdot \sin^2 \psi + \epsilon_{23} \cdot \sin \phi \cdot \sin 2\psi + \epsilon_{33} \cdot \cos^2 \psi \quad \text{III-5}$$

Suivant Dölle et Cohen, les grandeurs suivantes sont introduites :

- la moyenne :  $a_1 = \frac{1}{2} (\epsilon_{\phi\psi+}^L + \epsilon_{\phi\psi-}^L) = \frac{d_{\phi\psi+} + d_{\phi\psi-}}{2 d_0} - 1 \quad \text{III-6}$

- la déviation :  $a_2 = \frac{1}{2} (\epsilon_{\phi\psi+}^L - \epsilon_{\phi\psi-}^L) = \frac{d_{\phi\psi+} - d_{\phi\psi-}}{2 d_0}$

En tenant compte de l'équation III-5, nous avons :

$$a_1 = \epsilon_{33} + \{ \epsilon_{11} \cdot \cos^2 \phi + \epsilon_{12} \cdot \sin 2\phi + \epsilon_{22} \cdot \sin^2 \phi - \epsilon_{33} \} \cdot \sin^2 \psi$$

$$a_2 = \{ \epsilon_{13} \cdot \cos \phi + \epsilon_{23} \cdot \sin \phi \} \cdot \sin |2\psi|$$

On peut constater que  $a_1$  est linéaire en fonction de  $\sin^2 \psi$ , alors que  $a_2$  l'est en fonction de  $\sin |2\psi|$ . Ces propriétés nous permettent alors d'évaluer le tenseur complet des contraintes, à condition de connaître  $d_0$ . Cette valeur de  $d_0$  peut être obtenue de deux façons différentes :

- élimination physique des couches superficielles de l'échantillon et mesure de  $d_0$  dans une zone où l'état de contrainte est supposé être biaxial,
- utiliser la condition de nullité de  $\sigma_{33}$  en surface de l'échantillon pour, analytiquement, calculer  $d_0$ .

Ainsi, on obtient successivement :

- $\epsilon_{33}$  par l'ordonnée à l'origine de la droite  $a_1 = f(\sin^2 \psi) \rightarrow \epsilon_{33}$
- $(\epsilon_{11} - \epsilon_{33})$  par la pente de la droite  $a_1 = f(\sin^2 \psi)$  à  $\phi = 0^\circ \rightarrow \epsilon_{11}$
- $(\epsilon_{22} - \epsilon_{33})$  par la pente de la droite  $a_1 = f(\sin^2 \psi)$  à  $\phi = 90^\circ \rightarrow \epsilon_{22}$

- $\epsilon_{12}$  par la pente de la droite  $a_1 = f(\sin^2\psi)$  à  $\phi = 45^\circ$  →  $\epsilon_{12}$
- $\epsilon_{13}$  par la pente de la droite  $a_2 = f(\sin|2\psi|)$  à  $\phi = 0^\circ$  →  $\epsilon_{13}$
- $\epsilon_{23}$  par la pente de la droite  $a_2 = f(\sin|2\psi|)$  à  $\phi = 90^\circ$  →  $\epsilon_{23}$

Les éléments du tenseur des contraintes  $\sigma_{ij}$  dans le repère de la pièce s'obtiennent alors par la relation :

$$\sigma_{ij} = \frac{1}{\frac{1}{2} S_2(hkl)} \cdot \left\{ \epsilon_{ij} - \delta_{ij} \cdot \frac{S_1(hkl)}{\frac{1}{2} S_2(hkl) + 3 \cdot S_1(hkl)} \cdot [\epsilon_{11} + \epsilon_{22} + \epsilon_{33}] \right\} \quad \text{III-7}$$

avec  $\delta_{ij}$  symbole de Kronecker.

On trouvera en Annexe 1 les calculs relatifs aux erreurs statistiques de comptage et systématiques ainsi que leur influence sur la mesure des contraintes.

#### 1.4. Figures de pôles des déformations / Indicatrices :

De nombreux auteurs (5), (6), (7) ont présenté des figures de pôles des déformations ou des largeurs à mi-hauteur. Ces figures portent ce nom parce qu'elles sont construites et obtenues expérimentalement de la même façon que les figures de pôles de texture. Pour différentes positions angulaires  $(\psi, \phi)$ , le calcul de la déformation est effectué en utilisant la relation III-1. Cette mesure est ensuite portée sur une figure de pôles à la position  $(\phi, \psi)$  correspondante en lieu et place de l'intensité mesurée dans le cas d'une mesure de texture. Le nom de figure de pôles n'est pas adapté à ce type de figure pour la raison évidente que le terme "pôles de déformation" n'a aucune signification physique. Nous avons préféré utiliser le nom d'indicatrices car elles présentent dans l'espace une caractéristique du matériau analysé.

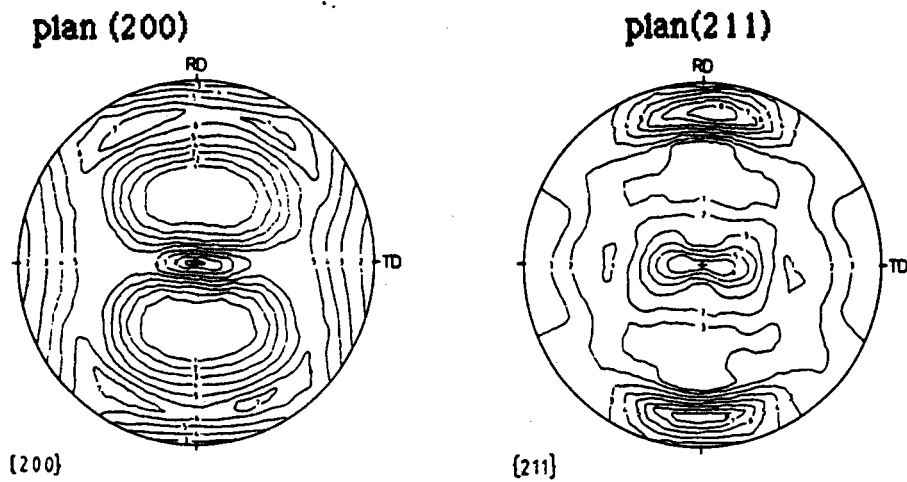
Il est bien entendu que l'exploitation de ce type de figure reste encore entièrement qualitatif comme le précisent Hoffman et al. (6). Ils montrent d'ailleurs qu'il n'y a généralement aucune corrélation entre la figure de pôles de texture et l'indicatrice des déformations (cf. figure III-7). Par contre Maurer (5) trouve une corrélation entre l'indicatrice des largeurs à mi-hauteur et la figure de pôles (similitude des lignes de niveaux).

On peut représenter en fait deux types de figure différentes :

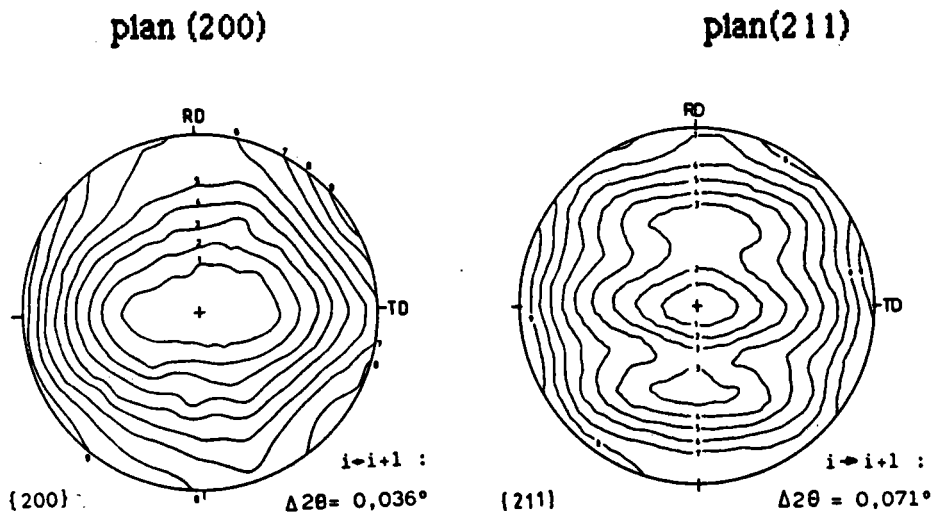
- l'indicatrice de déformation en projection stéréographique,
- l'indicatrice de déformation avec une échelle modifiée en  $\sin^2\psi$ .

Dans la direction  $(\psi, \phi)$  de la projection stéréographique et de la projection avec échelle modifiée on peut reporter la déformation, l'écart  $(2\theta - 2\theta_{\phi, \psi = 0})$  ou la position  $2\theta$ .

Figures de pôles de texture :



Figures de pôles de déformation : (indicateur de déformation en projection stéréographique)



**Figure III-7: Figures de pôles de texture et de déformation.**  
(selon J.Hoffman et all.<sup>(6)</sup>)

Il est alors facile de montrer que, dans le cas d'un état de contrainte purement biaxial, l'indicatrice des déformations à échelle modifiée présente des cercles (si  $\sigma_1 = \sigma_2$ ) ou des ellipses (si  $\sigma_1 \neq \sigma_2$ ) centrés sur la position  $\psi = 0$ .

Il est regrettable que peu d'études théoriques portent sur ces indicatrices des déformations. Une analyse plus précise permettrait sans doute d'en tirer des informations non plus qualitatives, mais quantitatives comme le précisent Brakman <sup>(8)</sup>, Leffers et al. <sup>(9)</sup>.

### 1.5. Calcul des constantes radio-cristallographiques :

Nous avons vu que le calcul des contraintes résiduelles nécessite la connaissance des valeurs des constantes élastiques radiocristallographiques  $S_1(hkl)$  et  $S_2(hkl)$ . Le calcul de ces valeurs dépend du modèle mécanique utilisé. Les modèles courants proposés sont :

- le modèle de Voigt <sup>(10)</sup>,
- le modèle de Reuss <sup>(11)</sup>,
- le modèle de Kröner <sup>(12), (13)</sup>.

Nous nous sommes limités dans cette étude aux matériaux de type cubique. Des études précises et détaillées ont été proposées pour les autres classes de symétrie pour ces mêmes modèles mécaniques <sup>(14)</sup>.

#### 1.5.1. Calcul avec le modèle de Voigt :

Dans le modèle mécanique de comportement de Voigt, on suppose que l'état des déformations est homogène dans le matériau. Ainsi les déformations à l'échelle du cristallites sont égales aux déformations macroscopiques. Nous obtenons pour les constantes élastiques radiocristallographiques :

$$\frac{1}{2} S_2(hkl) = \frac{5(s_{11} - s_{12})s_{44}}{6s_0 + 5s_{44}}$$

$$S_1(hkl) = \frac{2s_0(s_{11} + 2s_{12}) + 5s_{12}s_{44}}{6s_0 + 5s_{44}}$$

où  $s_{11}$ ,  $s_{12}$  et  $s_{44}$  sont les constantes de raideur du monocristal, et  $s_0$  le terme d'anisotropie, défini par :

$$s_0 = s_{11} - s_{12} - \frac{1}{2}s_{44}$$

### 1.5.2. Calcul avec le modèle de Reuss :

Le modèle mécanique de Reuss considère les contraintes homogènes dans le volume considéré. Les contraintes microscopiques sont donc égales aux contraintes macroscopiques. On obtient après calculs les expressions suivantes :

$$\frac{1}{2} S_2(hkl) = s_{11} - s_{12} - 3 \cdot \Gamma(hkl) \cdot s_0$$

$$S_1(hkl) = s_{12} + \Gamma(hkl) \cdot s_0 \quad \text{avec} \quad \Gamma(hkl) = \frac{(h^2 k^2 + h^2 l^2 + k^2 l^2)}{(h^2 + k^2 + l^2)^2}$$

Le terme  $\Gamma(hkl)$  est appelé facteur d'orientation. Les constantes élastiques radiocristallographiques sont égales aux constantes mécaniques lorsque  $\Gamma(hkl) = \Gamma_0 = 0,2$

### 1.5.3. Calcul avec le modèle de Kröner :

Dans ce modèle, on assimile chaque cristallite à une inclusion sphérique qui possède le caractère anisotrope du monocristal. Chaque inclusion est entourée par la matrice isotrope formée par l'agrégat polycristallin. Cette matrice possède les propriétés macroscopiques du matériau. L'étude du comportement d'une inclusion anisotrope dans un milieu isotrope conduit à introduire un tenseur  $t_{ijk}$  appelé tenseur de polarisation. Pour une inclusion sphérique, l'élément  $t_{44}$  du tenseur de polarisation s'exprime facilement en fonction des invariants ( $\kappa, \mu, \nu$ ) du tenseur des constantes de rigidité du monocristal et des modules d'Young  $E$  et de compression  $G$ . Le calcul de la valeur de  $t_{44}$  conduit aux constantes élastiques radiocristallographiques :

$$\frac{1}{2} S_2(hkl) = \frac{1}{2G} - 3[1 - 5 \cdot \Gamma(hkl)] t_{44}$$

$$S_1(hkl) = \frac{1}{E} - \frac{1}{2G} + [1 - 5 \cdot \Gamma(hkl)] \cdot t_{44} \quad \text{avec} \quad \Gamma(hkl) = \frac{(h^2 k^2 + h^2 l^2 + k^2 l^2)}{(h^2 + k^2 + l^2)^2}$$

## 2. INTRODUCTION AUX MESURES DES MICRO-DEFORMATIONS :

### 2.1. Introduction :

Contrairement à la mesure des contraintes résiduelles où la position du pic de diffraction nous intéressait, dans la mesure et le calcul des micro-déformations, seule la forme du pic est analysée. En effet, on admet usuellement que l'élargissement des pics de diffraction est dû à la taille des domaines de diffraction cohérente, aux fautes

d'empilement dans certains plans hkl et aux micro-contraintes (contraintes d'ordre 2 et 3). Il est possible à partir de quelques mesures de séparer les effets de taille et de déformation à partir de la forme d'un profil de raie de diffraction  $\chi$  <sup>(15) (16) (17)</sup>.

## 2.2. Analyse d'un profil de raie :

Outre le fait que le profil de diffraction est déplacé par les macro-contraintes, celui-ci contient d'autres informations. En effet, le profil de diffraction observé résulte de la superposition d'un certain nombre de facteurs dont les principaux sont les suivants :

- le bruit de fond (cf. § II.1.3.),
- les imperfections cristallines (taille, micro-déformations, fautes, etc...),
- la géométrie instrumentale (géométrie, absorption, distribution du rayonnement, etc ...).

Pour atteindre les grandeurs qui nous intéressent, à savoir les imperfections cristallines, il nous faut séparer les divers facteurs énoncés ci-dessus. Nous avons à notre disposition plusieurs méthodes que l'on classe en trois groupes :

- les méthodes utilisant l'analyse de Fourier <sup>(18) (19) (20)</sup>
- les méthodes utilisant les largeurs intégrales <sup>(21) (22) (23)</sup>
- les méthodes utilisant les variances <sup>(24)</sup>.

Les deux premières approches restent les plus usitées et sont comparables dans leur principe puisque toutes deux utilisent une déconvolution pour effectuer la séparation et le calcul des grandeurs associées aux imperfections cristallines. D'autre part, toutes deux nécessitent la mesure d'un profil de diffraction d'un échantillon standart contenant les seuls effets d'élargissements instrumentaux.

## 2.3. Méthode des largeurs intégrales de Voigt :

Rappelons tout d'abord la définition de la largeur intégrale. Par définition, cette grandeur est donnée par la relation :

$$\beta(2\theta) = \frac{1}{P'(2\theta)_{\max}} \int_{2\theta_1}^{2\theta_2} P'(2\theta) \cdot d(2\theta) \quad \text{où } P'(2\theta) \text{ représente la distribution de la puissance totale diffractée.}$$

Suite à de nombreuses autres méthodes utilisant les largeurs intégrales (Wagner, Williamson et Hall, Scherrer) <sup>(25)</sup>, la méthode des largeurs intégrales de Voigt a été pro-



posée par Langford <sup>(26)</sup>. Elle repose sur le fait qu'un profil de diffraction  $X$  peut être représenté, en première approximation, par une fonction de Voigt <sup>(27)</sup> (cf. Annexe 2). Elles résultent de la convolution d'une fonction de Cauchy et d'une fonction de Gauss. Soit :

- $h(s)$  la distribution de l'intensité diffractée par l'échantillon analysé,
- $g(s)$  la distribution de l'intensité diffractée par un échantillon standart,
- $f(s)$  la distribution de l'intensité diffractée de la raie vraie,

alors on sait que  $h(s)$  résulte de la convolution des fonctions  $g(s)$  et  $f(s)$  <sup>(28)</sup>:

$$h(s) = \int f(u) \cdot g(s-u) \cdot du \quad \text{III-8}$$

Si les fonctions  $h$ ,  $g$  et  $f$  sont supposées être de forme voigtienne, on peut alors écrire pour les composantes de Cauchy (indice C) et de Gauss (indice G) de ces fonctions :

$$h_C(s) = \int f_C(u) \cdot g_C(s-u) \cdot du$$

$$h_G(s) = \int f_G(u) \cdot g_G(s-u) \cdot du$$

Les largeurs intégrales des composantes de Cauchy et de Gauss de la fonction  $f$  sont alors obtenues par les relations suivantes :

$$\beta_C^f = \beta_C^h - \beta_C^g \quad \text{III-9}$$

$$(\beta_C^f)^2 = (\beta_C^h)^2 - (\beta_C^g)^2$$

En utilisant les relations de l'Annexe 2, Langford <sup>(29)</sup> et De Keijser et al. <sup>(30),(31)</sup> montrent que les composantes de Cauchy et de Gauss peuvent être déduites du rapport  $2\omega / \beta$ , appelé facteur de forme, mesuré pour les profils  $h$  et  $g$ . Ils proposent alors les relations approchées suivantes obtenues par lissage numérique :

$$\frac{\beta_C}{\beta} = 2,0207 - 0,4803 \left(\frac{2\omega}{\beta}\right) - 1,7756 \left(\frac{2\omega}{\beta}\right)^2 \quad \text{III-10}$$

$$\frac{\beta_G}{\beta} = 0,6420 + 1,4187 \sqrt{\frac{2\omega}{\beta} - \frac{2}{\pi}} - 2,2043 \left(\frac{2\omega}{\beta}\right) + 1,8706 \left(\frac{2\omega}{\beta}\right)^2$$

Les valeurs de la largeur intégrale  $\beta$  et du facteur de forme de la fonction  $f$  sont obtenues par les formules empiriques suivantes :

$$\frac{\beta_G}{\beta} = \frac{1}{2} k\sqrt{\pi} + \frac{1}{2} \sqrt{\pi k^2 + 4} - 0,234 k.e^{-2.176 k}$$

$$\frac{2\omega}{\beta} = \sqrt{\frac{1+k^2}{\pi}} \{ -k\sqrt{\pi} + \sqrt{\pi k^2 + 4} \} - 0,1889.e^{-3,5 k} \quad \text{avec } k = \frac{\beta_C}{\sqrt{\pi} \beta_G}$$

Il suffit donc de mesurer les largeurs à mi-hauteur  $\omega$  et les largeurs intégrales  $\beta$  des profils expérimental  $h$  et standard  $g$  pour obtenir les largeurs intégrales des composantes de Cauchy et de Gauss de chacun des profils. Les relations III-9 et III-10 permettent quant à elles d'effectuer une déconvolution et d'obtenir par là même les largeurs intégrales des composantes de Cauchy et de Gauss du profil pur élargi  $f$  contenant les informations microstructurales désirées.

Il est généralement admis que la contribution de l'effet de taille des domaines cohérents de diffraction est entièrement représenté par une distribution de type Cauchy. La dimension apparente des domaines de diffraction cohérente est alors donnée par la relation classique de Scherrer :

$$D = \frac{\lambda}{\beta_C^f \cos \theta} \quad \text{avec } \lambda \text{ longueur d'onde.} \quad \text{III-11}$$

Les micro-déformations sont représentées par une distribution de type Gauss. On obtient alors par différenciation de la loi de Bragg :

$$\tilde{\epsilon} = \frac{\beta_G^f}{4 \tan \theta} \quad \text{III-12}$$

Il convient toutefois de noter que la valeur de la déformation obtenue ne correspond pas à celle de la méthode de Warren-Averbach. Dans le cas où la distribution des micro-déformations suit une loi de type Gauss, alors on obtient la relation évidente :

$$\tilde{\epsilon} = \frac{1}{2} \sqrt{2\pi} \langle e^2 \rangle^{1/2} \quad \text{III-13}$$

Dans cette expression  $\langle e^2 \rangle^{1/2}$  représente la moyenne quadratique des micro-déformations calculée par la méthode de Warren-Averbach. Il est bien entendu que dans le cas de matériau présentant des contraintes résiduelles, la relation III-13 devient :

$$\tilde{\epsilon} = \frac{1}{2} \sqrt{2\pi} \{ \langle e^2 \rangle - \langle e \rangle^2 \}^{1/2} \quad \text{III-14}$$

#### 2.4. Méthode de Warren-Averbach : (cf. Annexe 3)

Comme dans la méthode précédente, le profil réel  $h(s)$  résulte de la convolution d'un profil instrumental  $g(s)$  et du profil vrai  $f(s)$  (cf. relation III-8). Pour effectuer la déconvolution, c'est à dire retrouver  $f(s)$  connaissant  $h(s)$  et  $g(s)$ , on utilise la méthode de Stokes<sup>(19)</sup>. Cette méthode utilise les propriétés des transformées de Fourier. On montre que :

$$H(L) = F(L) * G(L) \quad \text{III-15}$$

où  $H(L)$ ,  $F(L)$  et  $G(L)$  représentent les transformées de Fourier inverses complexes des fonctions  $h(s)$ ,  $f(s)$  et  $g(s)$ . La signification de la variable  $L$ , liée au nombre harmonique  $n$  des séries de Fourier, est donnée en Annexe 3.

La méthode de Stokes permet de calculer les parties réelles et imaginaires de  $F(L)$  par les relations suivantes :

$$F_r(L) = \frac{H_r(L)G_r(L) + H_i(L)G_i(L)}{G_r^2(L) + G_i^2(L)} \quad \text{III-16}$$

$$F_i(L) = \frac{H_i(L)G_r(L) - H_r(L)G_i(L)}{G_r^2(L) + G_i^2(L)}$$

avec :

$F_i(L)$  et  $G_i(L)$  parties imaginaires de  $F(L)$  et  $G(L)$

$F_r(L)$  et  $G_r(L)$  parties réelles de  $F(L)$  et  $G(L)$

Notons que si l'analyse est effectuée en prenant le centroïde des raies de diffraction comme origine, les coefficients imaginaires sont proches de zéro.

Les coefficients de Fourier réels de la fonction  $f(s)$  sont alors reliés aux micro-déformations et la taille des domaines de diffraction cohérente par la relation :

$$A_r(L, p) = A^D(L) \cdot A^S(L, p) \quad \text{III-17}$$

$A^D(L)$  : coefficient de taille

$A^S(L, p)$  : coefficient de distorsion

$p$  : ordre de la réflexion

On montre que le coefficient de taille est indépendant de l'ordre de la réflexion à l'in-

verse du coefficient de distorsion (ou de micro-déformation). C'est cette dépendance suivant l'ordre de la réflexion qui est utilisée pour séparer ces deux coefficients (cf. Annexe 3).

L'application de la méthode de Warren-Averbach nécessite donc la mesure d'au moins quatre profils pour pouvoir effectuer la séparation des effets de taille et de distorsion.

### **3. RESULTATS EXPERIMENTAUX :**

#### **3.1. Echantillon :**

Les mesures de contraintes résiduelles et de micro-déformation ont été effectuées sur des échantillons d'aluminium fournis par PECHINEY.

Nous disposons :

- d'une plaque d'aluminium 7075 état T6 billé,
- d'une poudre d'aluminium Baudier A9 recuite 100 h à 350°C enrobée dans l'araldite.

L'échantillon d'aluminium nous a servi de référence dans la mesure des contraintes résiduelles. En effet, la valeur de contrainte fournie par PECHINEY est :

$$\sigma_{\phi} = -73 \pm 10 \text{ MPa}$$

La poudre d'aluminium nous a servi d'échantillon standard dans la mesure des micro-déformations.

#### **3.2. Mesure des contraintes résiduelles :**

##### **3.2.1. Résultats :**

Les conditions expérimentales sont les suivantes :

- anticathode : Fer raie  $K\alpha$ ,
- angle d'incidence : 73,09° (position de Bragg) raie (400),
- monochromateur : graphite avant,
- angles  $\psi$  positif et négatif,  $0 < \psi < 60^\circ$
- $\Delta\psi = 15^\circ$ ,  $\Delta\phi = 0^\circ$ ,
- plan (400),  $2\theta = 146,185^\circ$ ,
- temps de comptage : 600 secondes.

Le tableau III-1 présente les résultats des mesures effectuées pour l'échantillon d'aluminium 7075 état T6 billé.

Les valeurs des constantes élastiques  $S_1(hkl)$  et  $S_2(hkl)$  ont été calculées avec le modèle de Voigt :

$$S_1(400) = - 0,464.10^{-5} \text{ MPa}^{-1}$$

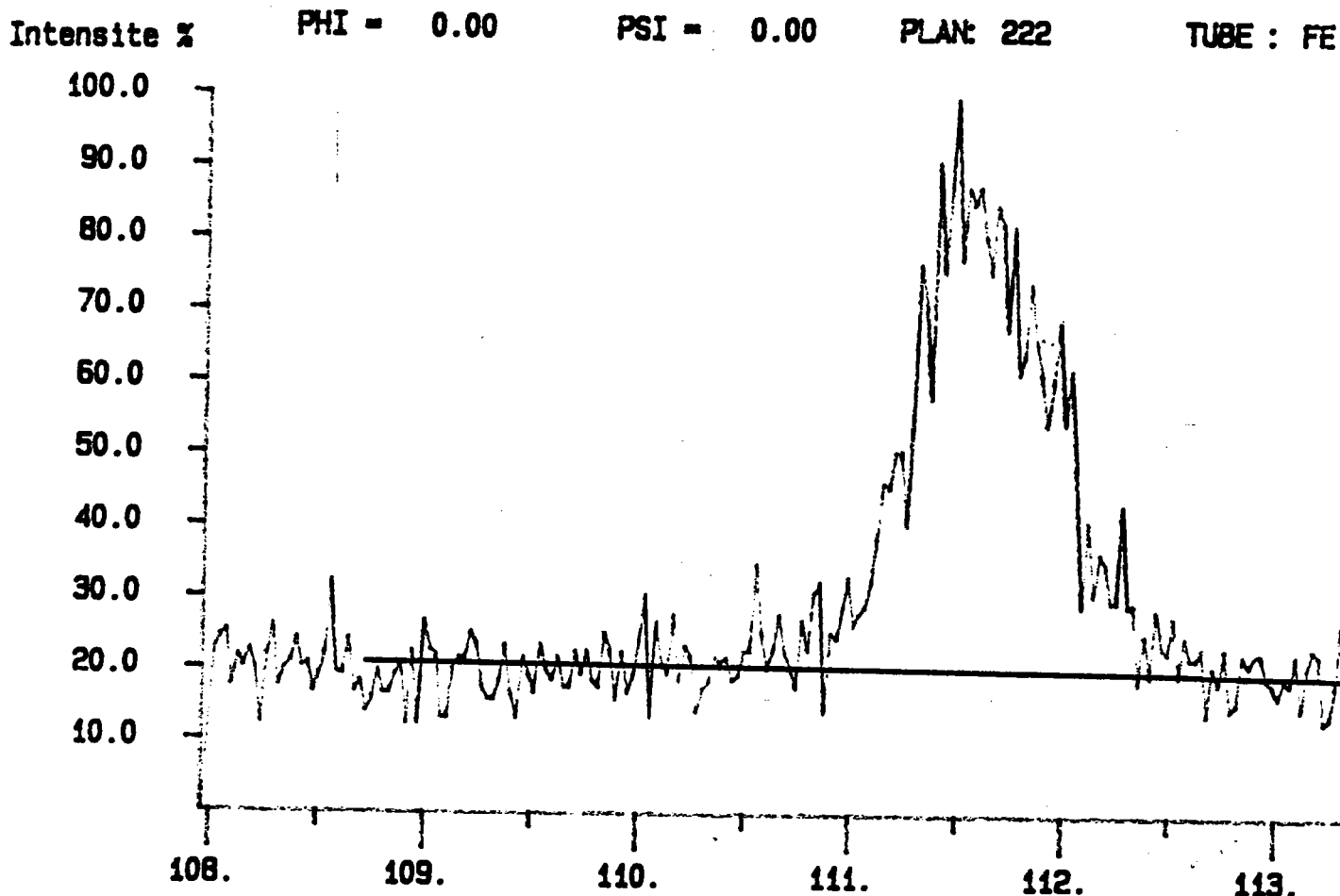
$$S_2(400) = 0,367.10^{-4} \text{ MPa}^{-1}$$

Le tableau III-1 contient les diverses mesures de contraintes effectuées en utilisant toutes les méthodes de positionnement programmées, à savoir :

- analyse du profil brut : centroïde, maximum de la parabole, milieu de corde
- analyse du profil lissé : centroïde, maximum fonction de lissage.

Méthode de positionnement	Contrainte et erreur en MPa
centroïde	- 99 +- 13
maximum parabole	- 64 +- 19
milieu de corde	-21 +- 19
centroïde fonction de lissage	-75 +- 14
maximum fonction de lissage	-80 +- 18

**Tableau III-1 : Mesure de contrainte**



**Figure III-8 : Profil de raie de diffraction plan (222) à  $\phi = 0^\circ$ ,  $\psi = 0^\circ$ .  
(Temps de comptage : 600 secondes)**

L'analyse du tableau III-1 amène plusieurs commentaires :

- en tenant compte de l'erreur de mesure, la valeur de contrainte calculée est en bon accord avec la valeur de référence donnée,
- l'utilisation d'une fonction de lissage (fonction de Pearson VII asymétrique) donne des résultats satisfaisants,
- la valeur obtenue en utilisant le milieu de corde est aberrante. Ceci s'explique facilement par le fait que les profils de raie ont une forme très irrégulière (la figure III- 8 présente le cas de la raie (222) de cet échantillon),
- comme le précise Maeder <sup>(1)</sup>, les oscillations observées dans la distribution des angles  $2\theta$  en fonction de  $\sin^2\psi$  sont dues essentiellement à la taille des grains constituant l'échantillon.

D'autre part, l'analyse du tableau III-1 montre l'intérêt de pouvoir disposer du plus grand nombre de grandeurs mathématiques permettant de définir avec précision la position du pic de diffraction. En effet, la qualité des enregistrements et la forme des pics de diffraction interdit *a priori* le choix d'un type de positionnement du pic de diffraction. Nous avons pu remarquer que la même technique de positionnement d'un profil de raie ne pouvait être utilisée dans toute la gamme d'angles  $\psi$ . C'est pour pallier ce type de problème que nous avons pris le parti de calculer toutes les grandeurs permettant de positionner le pic de diffraction. C'est par une analyse visuelle *a posteriori* de tous les profils de raie que le choix de la grandeur est effectué.

### 3.2.2. Etude de l'oscillation des graphes en $\sin^2\psi$ :

Comme nous l'avons précisé ci-dessus, de fortes oscillations perturbent la mesure des contraintes résiduelles. La cause de ces oscillations semble devoir être attribuée à la taille des grains constituant l'échantillon. Nous avons alors effectué deux séries distinctes de mesures de contrainte :

- mesure de contrainte à  $\phi = 10^\circ$
- mesure de contrainte à  $\phi = 20^\circ$

En effet, si l'échantillon ne présente pas les mêmes caractéristiques au niveau de la taille des grains selon ces directions, les courbes en  $\sin^2\psi$  ne doivent pas présenter le même caractère oscillant.

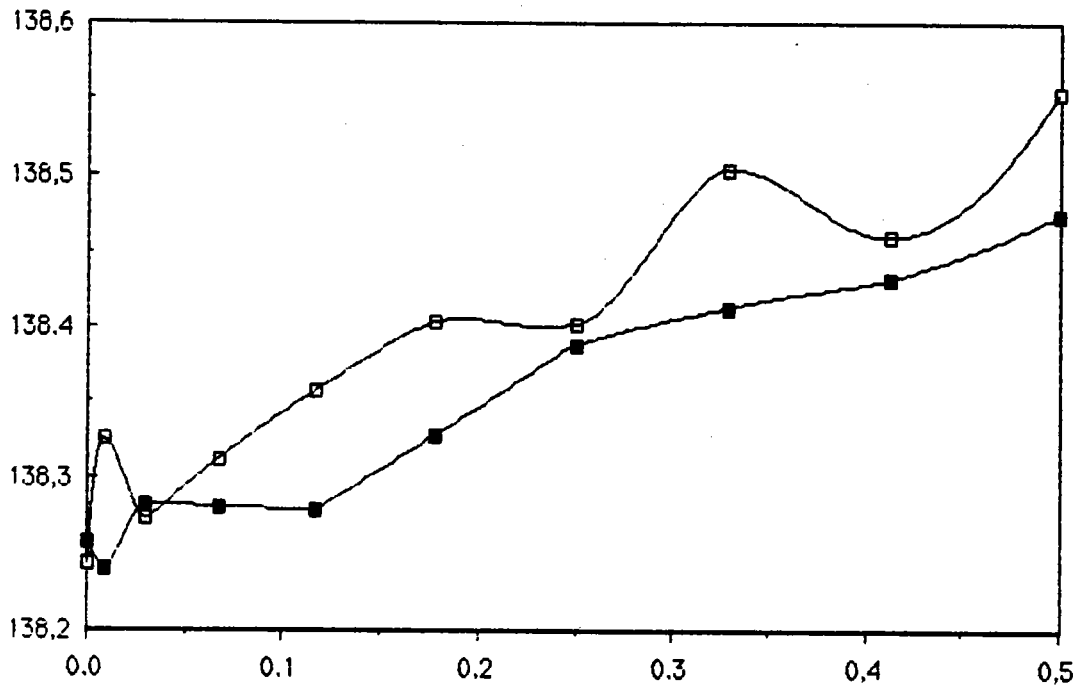
Les figures III-9 et 10 présentent les variations des diverses grandeurs mesurées dans les mêmes conditions expérimentales qui sont les suivantes :

- échantillon : aluminium état 7075 T6 billé  $\sigma_\phi = -73 \pm 10$  MPa
- anticathode : Cu K $\alpha$
- temps de comptage : 600 secondes
- $\Delta\psi = 5^\circ$ ,  $\Delta\phi = 0^\circ$  avec  $0 < \psi < 45^\circ$  et  $10 < \phi < 20^\circ$
- angle d'incidence :  $68,84^\circ$  (position de Bragg)
- plan : (422).

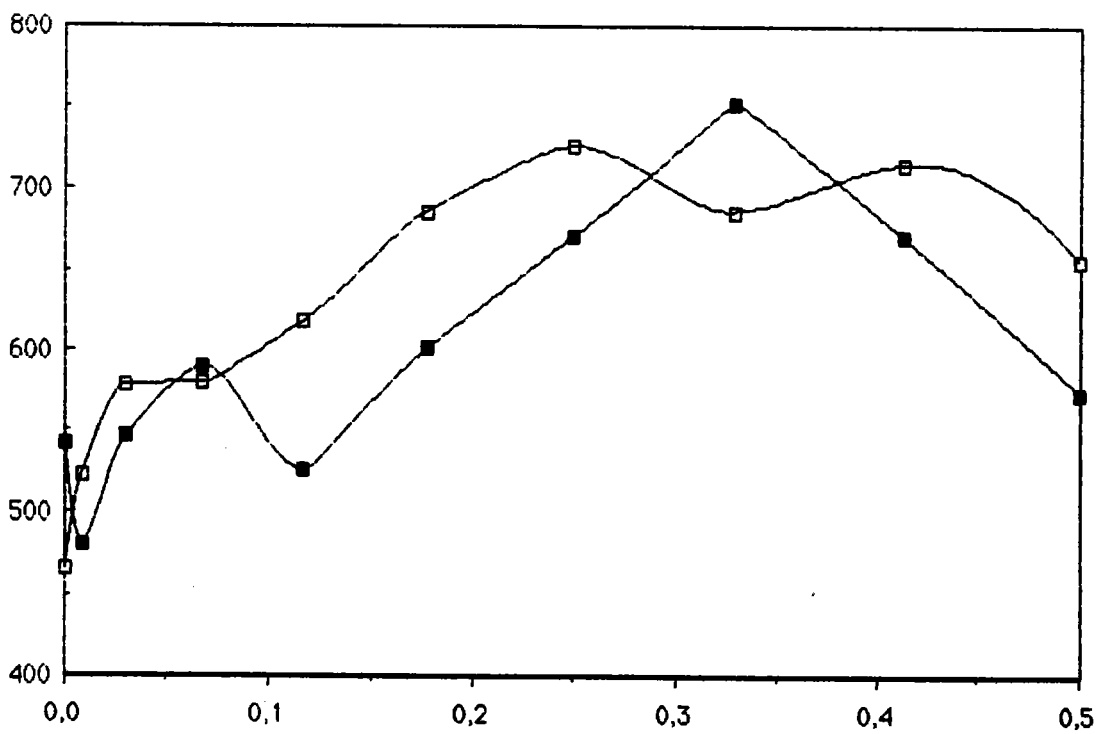
Chaque mesure a été répétée trois fois avec un temps de comptage de dix minutes afin de s'assurer d'une bonne qualité de profil.

#### Légende des courbes figures III-9 et 10 :

- : mesure à  $\phi = 10^\circ$       ■ : mesure à  $\phi = 20^\circ$ .



**Figure III-9 :** Variation de la position du centroïde  $\langle 2\theta \rangle$  en fonction de  $\sin^2 \psi$



**Figure III-10 :** Variation de l'intensité diffractée en fonction de  $\sin^2 \psi$ .

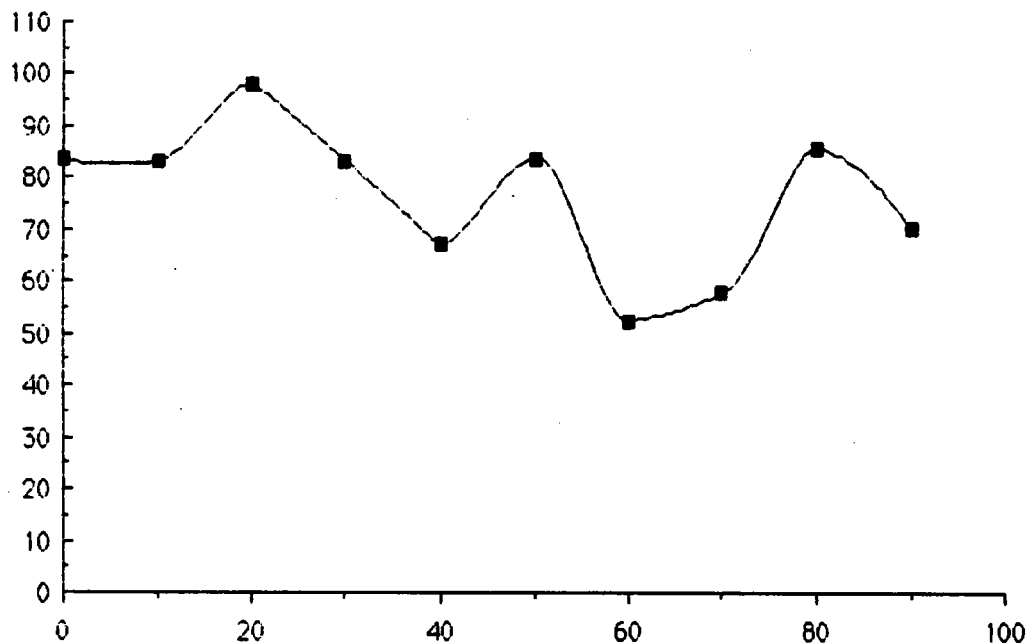


Les contraintes calculées à partir de la figure III-9 sont :

$$\sigma_{\phi - 10^\circ} = -83 \pm 6 \text{ MPa}$$

$$\sigma_{\phi - 20^\circ} = -98 \pm 11 \text{ MPa}$$

Une série de mesure pour une direction  $\phi$  variant de  $0^\circ$  à  $90^\circ$  a donné le résultat suivant :



**Figure III-11 :** Variation de la contrainte  $-\sigma_\phi$  en fonction de l'angle  $\phi$ .

Ces résultats montrent clairement que la mesure est largement tributaire de la direction de la mesure. Ils montrent également qu'aucune corrélation n'a pu être établie entre intensité du pic de diffraction et les oscillations observées.

### 3.2.3. Mesure de contrainte par intégration :

Une technique couramment employée pour atténuer l'effet de taille de grain consiste à faire osciller l'échantillon de  $\pm \Delta\psi$  suivant l'angle de déclinaison  $\psi$ . Cette oscillation permet donc d'effectuer une moyenne de la mesure des déformations. Une autre technique consiste à augmenter le volume diffractant en modifiant la taille de la

tache de diffraction sur l'échantillon. Cette dernière technique s'est avérée inopérente dans notre cas. En effet, les oscillations, bien qu'atténuées, étaient encore présentes. Pour simuler l'oscillation de l'échantillon autour de l'angle  $\psi$ , nous avons effectué une série de manipulations par intégration discontinue le long de rayons à  $\phi$  constant. L'intégration "continue" est rendue impossible du fait que l'interface de pilotage du moteur  $\psi$  n'admet pas de vitesse d'intégration inférieure à 0,1 s/deg. Nous avons donc remplacé l'intégration continue par une intégration discontinue sur des plages  $\Delta\psi = 5^\circ$  par pas de  $0,1^\circ$ . Sur la totalité de la plage angulaire  $\Delta\psi$ , les profils sont "additionnés". Il en résulte que le profil obtenu représente une moyenne sur tous les domaines en position de diffraction dans l'intervalle considéré. La déformation ainsi mesurée correspond alors à la moyenne des déformations de la totalité des domaines diffractants visés. Cette technique permet d'atténuer les oscillations des graphes en  $\sin^2\psi$  si et seulement si les causes responsables de ces oscillations s'annulent par un effet de moyenne. Comme au paragraphe précédent, nous avons effectué ces mesures sur les rayons (moyennés sur trois analyses) pour les angles  $\phi = 10^\circ$  et  $\phi = 20^\circ$ .

La figure III-12 présente les deux courbes obtenues pour la position du centroïde en fonction de  $\sin^2\psi$ .

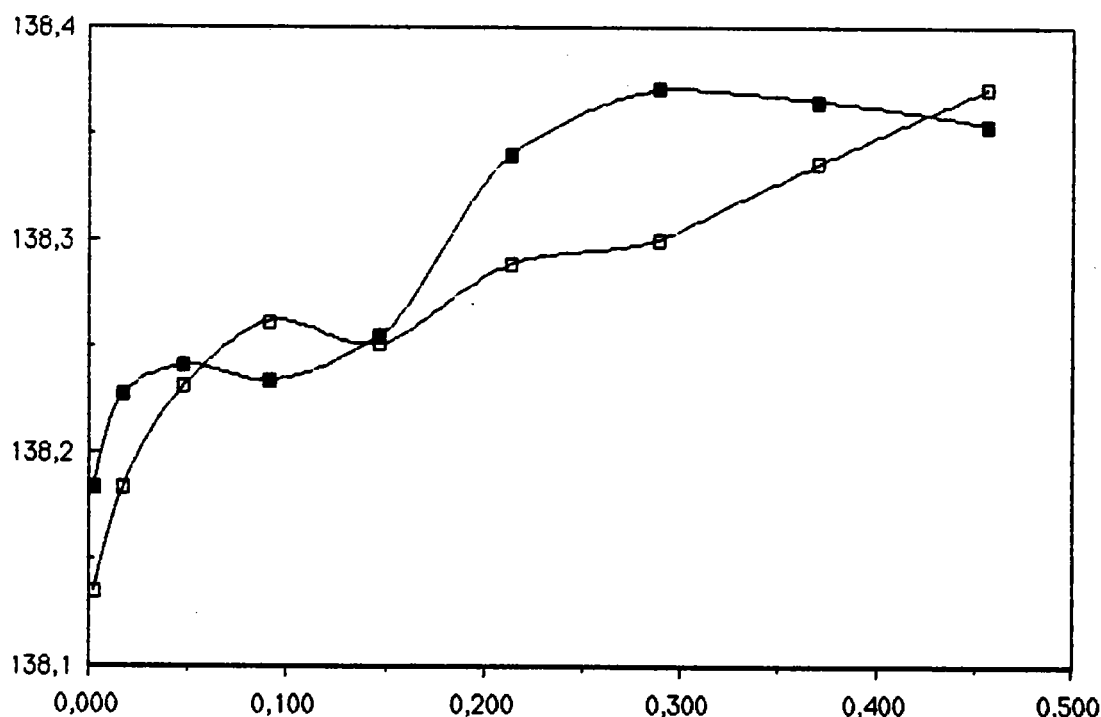


Figure III-12 : Position du centroïde en fonction de  $\sin^2\psi$  comptage en intégration discontinue.

La mesure en intégration moyenne, au sens statistique, les déformations de ces domaines. Au niveau du pic de diffraction il n'y a pas annulation, mais superposition des différents pics de diffraction de tous les grains en position de diffraction.

La mesure de contrainte effectuée selon cette méthode donne :

- $\phi = 10^\circ$ ,  $\sigma_{\phi=10^\circ} = -73 \pm 12$  MPa
- $\phi = 20^\circ$ ,  $\sigma_{\phi=20^\circ} = -72 \pm 14$  MPa.

avec les conditions expérimentales suivantes :

- échantillon : aluminium état 7075 T6 billé  $\sigma_\phi = -73 \pm 10$  MPa
- anticathode : Cu K $\alpha$
- temps de comptage : 600 secondes
- $\Delta\psi = 5^\circ$  par pas de  $0,1^\circ$   $\phi = 10^\circ$  et  $20^\circ$
- angle d'incidence :  $68,84^\circ$  (position de Bragg)
- plan : (422).

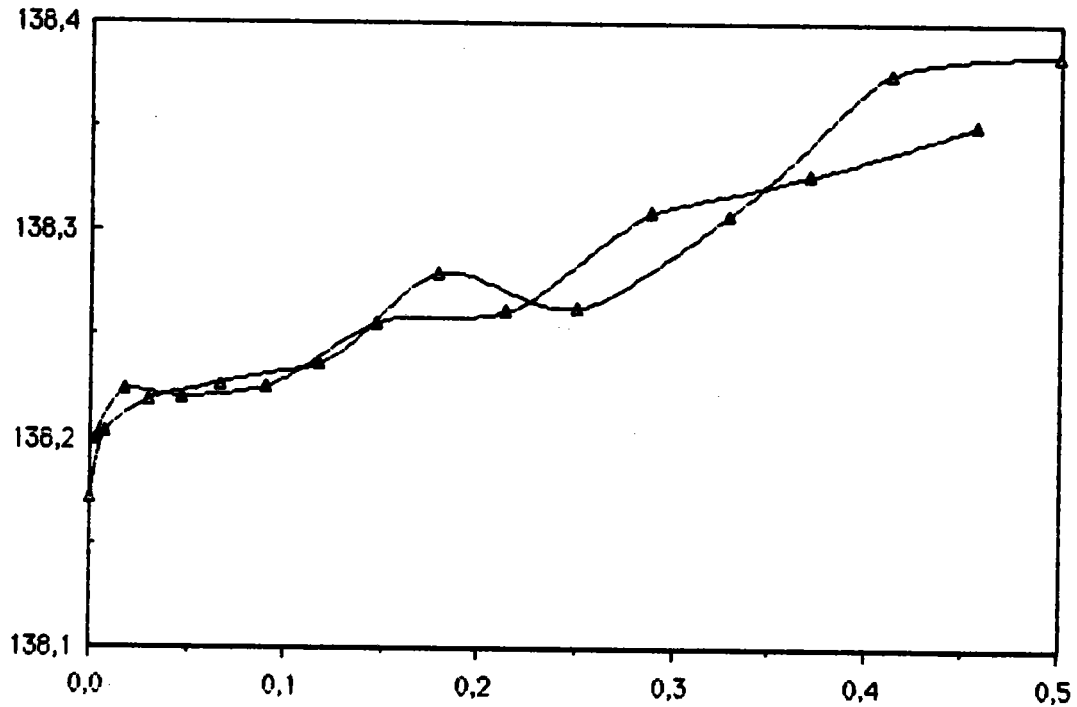
Ces mesures sont en plein accord avec la valeur théorique  $-73 \pm 10$  MPa.

Pour illustrer les effets d'atténuation et vérifier que la contrainte est en fait indépendante de la direction  $\phi$  de mesure, nous avons effectué une mesure de contrainte :

- en pointé,
- en intégration discontinue.

La figure III-13 présente les résultats obtenus pour la direction fixe  $\phi = 80^\circ$ . Les contraintes calculées donnent :

- $\phi = 80^\circ$ ,  $\sigma_{\phi=80^\circ} = -83 \pm 12$  MPa mesure en pointé,
- $\phi = 80^\circ$ ,  $\sigma_{\phi=80^\circ} = -74 \pm 11$  MPa mesure en intégration discontinue.



**Figure III-13 :** Position du centroïde en fonction de  $\sin^2 \psi$  à  $\phi = 80^\circ$ .

▲ mesure en pointé      ▲ mesure en intégration discontinue.

Cette étude montre que la mesure en intégration discontinue permet d'atténuer les oscillations dues à la taille des grains de l'échantillon. Elle permet de remplacer avantageusement, dans notre cas, l'oscillation de l'échantillon autour de l'axe  $\psi$ .

### 3.2.3. Mesure de contraintes résiduelles après filtrage numérique des profils de raie :

Nous utilisons une technique classique en spectroscopie et utilisée fréquemment en diffractométrie : le filtrage numérique des profils de raie par un filtre de Fourier. Nous utilisons dans nos calculs la technique mise au point et développée au Laboratoire de Réactivité des Solides à l'Université de Dijon. On trouvera en Annexe 4, les éléments de cette technique <sup>(29)</sup>.

La figure III-14 présente en surimpression le résultat d'un filtrage numérique sur la raie (400) de l'aluminium 7075 état T6 billé.

#### 3.2.3.1. Analyse de profils de raies filtrés :

Le filtrage numérique ne présente d'intérêt que si il conserve les grandeurs caractéristiques des profils analysés. Ainsi, nous avons comparé les résultats d'une ana-

lyse de profil dans les trois cas suivants pour les angles  $\psi = 0^\circ$  et  $15^\circ$  :

- analyse du profil brut
- analyse du profil brut filtré numériquement,
- analyse du profil brut lissé par une fonction de Pearson VII asymétrique.

PHI = 0.00      PSI = 0.00      PLAN: 400      TUBE : FE

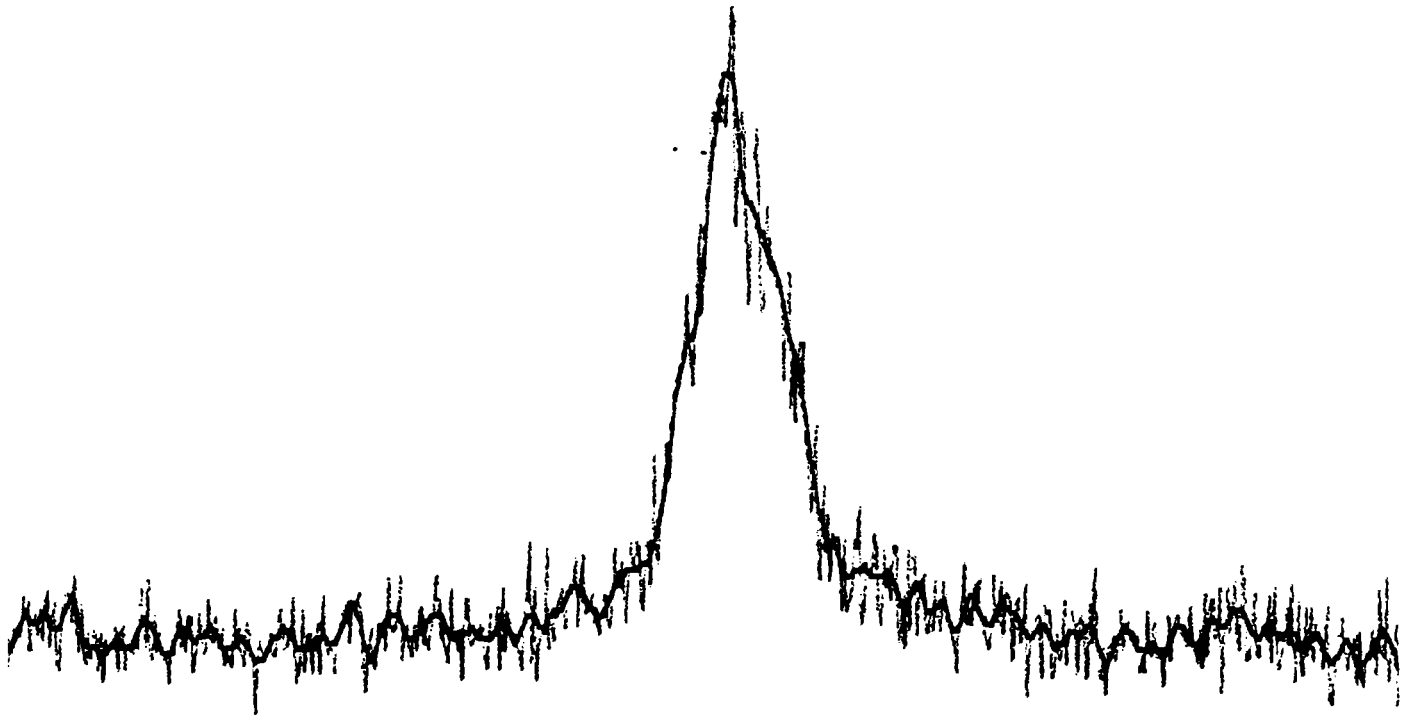


Figure III-14 : Filtrage de la raie (400) de l'aluminium.

Le tableau III-2 résume les résultats obtenus.

On peut constater que les valeurs obtenues dans les colonnes (2) et (3) sont peu différentes. L'analyse du profil brut, colonne (1), donne des résultats souvent aberrants pour les largeurs à mi-hauteur. Un profil de raie est de forme voigtienne si son facteur de forme est compris dans les limites suivantes (cf. Annexe 2) :

$$0,63662 < f < 0,93949$$

On peut remarquer que les facteurs de forme  $f = 2\omega/\beta$  restent compris dans ces limites, sauf pour le profil brut. On peut attribuer cet écart à la mauvaise qualité du profil étudié et la méthode de calcul des éléments descriptifs du profil de raie.

L'écart observé entre les profils lissé et filtré peut être attribué au fait que la fonction de lissage s'écarte du profil réel sur le flanc gauche du profil à cause de la composante  $K_{\alpha 2}$ .

$\psi$	Grandeur	profil brut	profil brut filtré	profil brut lissé
$\psi = 0^\circ$	centroïde <2 $\theta$ >	145,856	146,036	146,164
	2 $\omega$ en ° 2 $\theta$	0,783	1,301	1,161
	$\beta$ en ° 2 $\theta$	1,441	1,701	1,553
	facteur de forme	0,543	0,7643	0,747
$\psi = 45^\circ$	centroïde <2 $\theta$ >	145,986	146,087	146,061
	2 $\omega$ en ° 2 $\theta$	0,905	1,350	1,294
	$\beta$ en ° 2 $\theta$	1,493	1,786	1,641
	facteur de forme	0,606	0,7559	0,7885

**Tableau III-2 : Comparaison des analyses de profils ( $\psi = 0$  et  $45^\circ$ )**

### 3.2.3.2. Mesure de contraintes résiduelles avec des raies filtrées :

Afin de vérifier que le filtrage n'introduit pas d'erreur notable dans l'exploitation des résultats, nous avons effectué une mesure de contrainte résiduelle en utilisant les valeurs obtenues pour les raies filtrées numériquement.

Les conditions expérimentales sont les suivantes :

- échantillon : aluminium état 7075 T6 billé  $\sigma_\phi = -73 \pm 10$  MPa
- anticathode : Fer K $\alpha$
- temps de comptage : 600 secondes
- $\Delta\psi = 15^\circ$ ,  $\Delta\phi = 0^\circ$ ,  $-60 < \psi < 60^\circ$
- angle d'incidence :  $73,09^\circ$  (position de Bragg)

Le tableau III-3 résume les résultats obtenus pour le profil brut filtré numériquement.

<b>position de mesure</b>	<b>contrainte et erreur en MPa</b>
centroïde	- 93 ± 18 MPa
maxi parabole	- 55 ± 28 MPa
milieu de corde	-83 ± 18 MPa

**Tableau III-3 : Mesures de contraintes après filtrage.**

Les valeurs obtenues sont comparables à celles obtenues en utilisant les raies brutes (cf. tableau III-1). On peut constater que la valeur obtenue par le milieu de corde donne, cette fois, une valeur cohérente pour la contrainte calculée.

En conclusion on peut constater que le filtrage numérique des raies de diffraction :

- conserve les grandeurs descriptives,
- permet aisément de calculer ces mêmes grandeurs,
- n'introduit aucune erreur supplémentaire lors de l'exploitation des résultats de l'analyse.

On trouvera en Annexe 4 les caractéristiques du filtre employé et le choix des coefficients de filtrage utilisés.

### 3.3. Mesure des micro-déformations :

#### 3.3.1. Conditions expérimentales :

Les conditions expérimentales sont les suivantes :

- anticathode : Fer raie  $K\alpha$ ,
- angle d'incidence : 24,475° (111) et 55,956° (222) (positions de Bragg),
- monochromateur : graphite avant,
- plans (111) et (222),
- temps de comptage : 600 secondes.

### 3.3.2. Résultats : (Méthode de Warren-Averbach)

Les plans réticulaires utilisés pour cette analyse sont les plans (111) et (222) des échantillons utilisés précédemment.

Notre choix s'est porté sur les plans (111) et (222) car ce sont les seuls qui permettent d'effectuer l'analyse de Warren-Averbach dans de bonnes conditions de diffraction. La poudre d'aluminium Baudier a servi d'échantillon de référence (raies élargies par les seuls effets instrumentaux et géométriques/profil g).

Les résultats obtenus sont la taille des domaines de diffraction cohérente et la distribution des micro-déformations.

La figure III-16 présente les distributions des coefficients de taille et de micro-déformation pour l'échantillon d'aluminium 7075 état T6 billé.

Le tableau III-4 résume les principaux résultats de l'analyse des raies de diffraction pour les raies étudiées. Ces résultats sont relatifs aux raies  $K_{\alpha 1}$ .

Echantillon	Plan (hkl)	$2\theta$ en °2 $\theta$	$\beta$ en °2 $\theta$
standart	(111)	0,170	0,2070
standart	(222)	0,220	0,5536
Al 7075 T6 billé	(111)	0,218	0,2680
Al 7075 T6 billé	(222)	0,591	0,8406

Tableau III-4 : Analyse des raies brutes pour la méthode de Warren-Averbach

A partir de la figure III-15 en tenant compte de l'Annexe 3, nous obtenons les valeurs suivantes :

$$- D_{\text{eff}} = \infty$$

$$- \left[ \langle \epsilon^2 \rangle^{1/2} \right]_{50\text{\AA}} = 0,0017$$

La taille des domaines de diffraction cohérente est "infinie" car, comme on peut le



remarquer sur la figure III-16, la courbe  $A^D(L)$  décroît lentement lorsque  $L$  varie. Cela se traduit physiquement par une taille de domaine supérieure à  $0,3 \mu\text{m}$ .

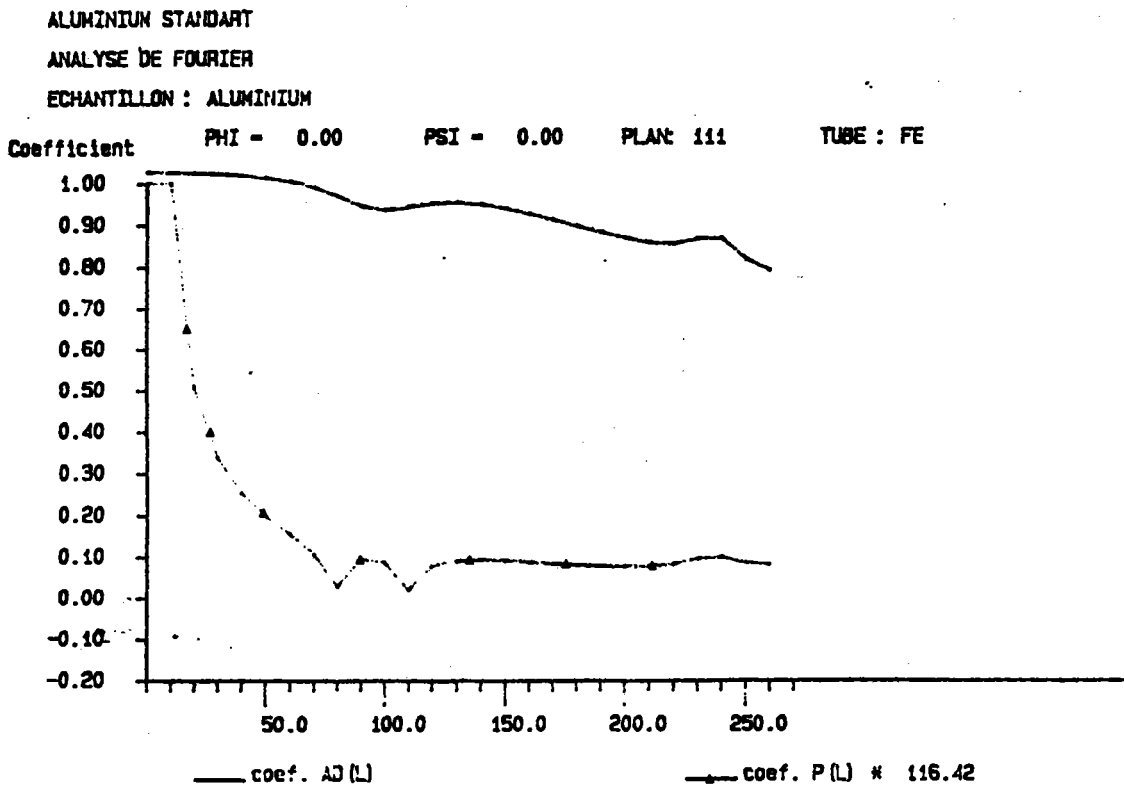


Figure III-15: Coefficients de distorsion et de taille Al 7075 état T6 billé.

### 3.3.3. Résultats : (Méthode des largeurs intégrales de Voigt)

L'application de la méthode des largeurs intégrales de Voigt nécessite la séparation des raies  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$ . Les raies composites ont donc été séparées en utilisant les programmes présentés au chapitre précédent.

L'analyse porte alors sur la seule raie  $K_{\alpha 1}$ .

Le plan réticulaire utilisé est le plan (111) des échantillons suivants :

- aluminium 7075 état T6 billé,
- aluminium Baudier A9 recuite 100 h à  $350^\circ\text{C}$  enrobé dans l'araldite.

Le tableau III-5 présente l'ensemble des résultats de l'analyse effectuée. Il constitue un exemple d'utilisation de la méthode des largeurs intégrales de Voigt.

Grandeurs	Standart (111) g	Al T6 (111) h	Commentaire
2 $\omega$ en $^\circ(2\theta)$	0,170	0,218	mesure
$\beta$ en $^\circ(2\theta)$	0,2071	0,268	mesure
2 $\omega/\beta$	0,82086	0,81343	facteur de forme
$\beta_c/\beta$	0,43002	0,45515	relation III-10
$\beta_G/\beta$	0,70529	0,68662	relation III-10
$\beta_c$	0,08905	0,12198	--
$\beta_G$	0,14606	0,18401	--

**Tableau III-5 : Méthode des largeurs intégrales de Voigt.**

A partir des relations III-9 nous obtenons les largeurs intégrales des parties de Cauchy de Gauss du profil vrai f :

$$\beta_c^f = 0,03293 \text{ en } ^\circ(2\theta) \quad \beta_G^f = 0,11192 \text{ en } ^\circ(2\theta)$$

Les relations III-13 et III-14 nous permettent alors de calculer :

$$D_{\text{eff.}} = 3700 \text{ \AA} \quad \tilde{\epsilon} = 0,0011$$

### 3.3.4. Commentaires :

Seuls les résultats concernant la taille des domaines de diffraction cohérente, obtenus par les deux méthodes, peuvent être comparés. Toutes deux indiquent une taille relativement importante supérieure à 3700 Å. Cela confirme donc les hypothèses présentées au paragraphe précédent. Les oscillations des courbes en  $\sin^2\psi$  sont donc bien dues à la grande taille des domaines diffractants.

Les deux valeurs relatives aux micro-déformations, bien qu'on ne puisse les comparer, sont du même ordre de grandeur. Nous pouvons donc affirmer que les résultats obtenus par ces deux méthodes sont cohérents, et que l'application d'une méthode simplifiée d'analyse des effets microstructuraux est justifiée.

### 3.4. Conclusions :

Les résultats obtenus dans ce chapitre montrent que le compteur courbe CPS120

permet d'effectuer les principales analyses courantes sur les matériaux.  
En effet, nous avons pu effectuer :

- la mesure de contraintes résiduelles,
- la mesure des micro-déformations par la méthode de Warren-Averbach,
- la mesure des micro-déformations par la méthode des largeurs intégrales de Voigt.

Nos résultats ont montré que, dans chaque cas d'analyse, les résultats obtenus sont cohérents.

Concernant l'analyse de Warren-Averbach, on peut penser qu'une des limitations du compteur pourrait être le pas d'échantillonnage des raies de diffraction. En effet, ce pas d'échantillonnage est fixé par le pas du compteur. Or, on montre que la précision du calcul des coefficients de Fourier, nécessaire pour l'application de la méthode, est imposée par le pas d'échantillonnage. Le nombre de point d'échantillonnage sur les raies de diffraction de faible largeur à mi-hauteur peut donc poser des problèmes. Seules une pratique et une utilisation sur des échantillons variés permettront de déterminer si le pas d'échantillonnage est un facteur limitant. Dans notre cas, les pics étant relativement larges, ce problème ne s'est pas manifesté.

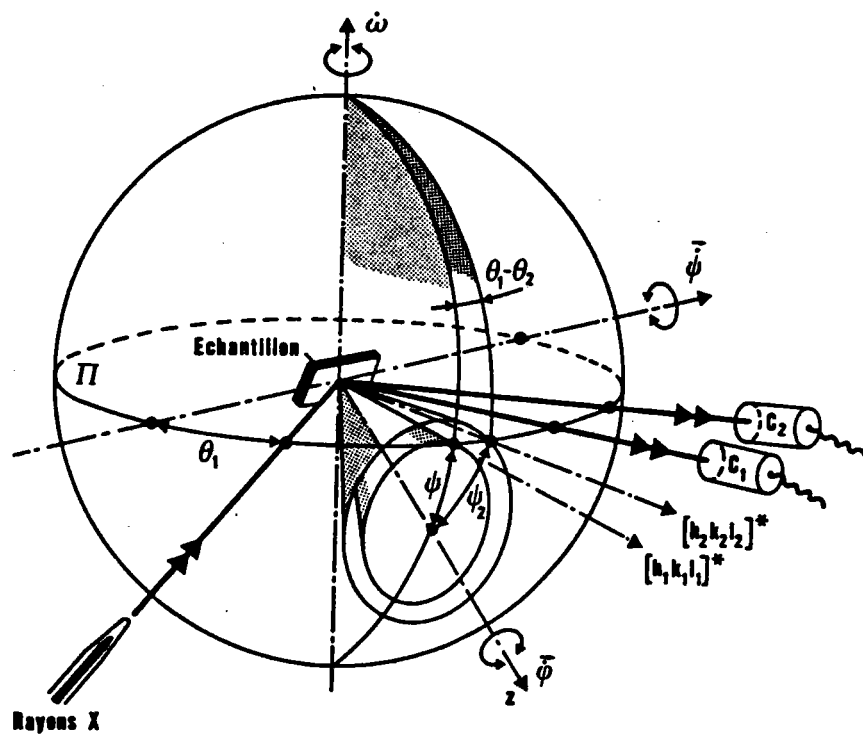
Remarque :

Bien que le compteur courbe permette la mesure simultanée de plusieurs raies de diffraction aux grands angles, il est impossible d'utiliser plus d'une raie à la fois pour effectuer une mesure de contrainte résiduelle. En effet supposons que la mesure en position de Bragg soit effectuée sur la raie d'indices  $(hkl)_1$  d'angle de Bragg  $\theta_1$ . La normale aux plans  $(hkl)_2$ , d'angle de Bragg  $\theta_2$ , pointera dans une direction de mesure  $(\phi_2, \psi_2)$  différente de la direction de mesure  $(\phi, \psi)$  comme l'indique la figure III-16. Les relations entre ces angles sont données par les relations suivantes :

$$\sin \Delta\phi = \frac{\sin (\theta_2 - \theta_1)}{\sin \psi_2} \quad \text{avec } \phi_2 = \phi + \Delta\phi$$

III-19

$$\cos \psi_2 = \cos \psi \cdot \cos (\theta_2 - \theta_1)$$



**Figure III-16 :** Variations de la direction de mesure pour différents plans de diffraction.

### **BIBLIOGRAPHIE CHAPITRE III**

- (1) MAEDER G. , *Ann. Chim. Fr.* , (1986) , 11 , 159-175
- (2) CULLITY B.D. , *Elements of X-Ray Diffraction* , Addison-Wesley , Londres (1978)
- (3) DOLLE H. , COHEN J.B. , *Met. Trans.* , (1980) , 11A , 831-836
- (4) DOLLE H. , *J. Appl. Cryst.* , (1979) , 12 , 489-501
- (5) MAURER G. , in : *Compte Rendu des Journées de Strasbourg* , (1985) E.N.S.A.I.S. ( Strasbourg )
- (6) HOFFMANN J. , NEFF H. , SCHOLTES B. , MACHERAUCH E. , in : N.HELSEN ANDERSEN, M.ELDRUP et all. : *Microstructural Characterisation of Materials by Non-Microscopical Techniques* (1984) , 5th. RISO Int. Symp. Metal. & Mat. Sc., Roskilde, Danemark
- (7) BRACKMAN C.M. , *Cryst. Res. Technol.* , (1985) , 20 , 593-618
- (8) BRACKMAN C.M. , *J. Appl. Cryst.* , (1985) , 18 , 279-295
- (9) LEFFERS T. , JENSEN D.J. , in: *Microstructural Characterisation of Materials by Non-Microscopical Techniques* (1984) , 5th. RISO Int. Symp. Metal. & Mat. Sc., Roskilde, Danemark
- (10) VOIGT W. , *Lehrbuch der Kristallphysic* , Nachdruck , 1.Aufl., Teubner, Berlin/Leipzig , (1928) , 962
- (11) REUSS A. , *Z. Angew. Math. Mec.* (1929) , 9 , 49-81
- (12) KRONER E. , *Z. Phys.* , (1958) , 151 , 504
- (13) KRONER E. , *J. Mech. Phys. Solids* , (1967) , 15 , 319-329
- (14) BEHNKEN H. , HAUKE V. , *Z. Metallkde.* , (1986) , 77 , 620-629
- (15) DE ANGELIS A. , (1966) in: Cohen J.B., Hilliard J.E. Eds. , " *Local Atomic Arrangements Studied by X-Ray Diffraction* " , Addison-Wesley , Reading , Mass
- (16) DELHEZ R. , KEISJER Th.H. DE , MITTEMEIJER E.J. , (1980) in : Block S., Hubbard CR. Eds., *Accuracy in Powder Diffraction* (NBS Special Publication 567 ) N.B.S. Washington , 213-253
- (17) DELHEZ R. , KEISJER Th. H. DE , MITTEMEIJER E.J. , *Fresenius Z. Anal. Chem.* , (1982) , 312 , 1-16
- (18) WARREN B.E. , AVERBACH B.L. , *J. Appl. Phys.* , (1952) , 23 , 497
- (19) STOKES A.R. , *Proc. Phys. Soc. (London)* , (1948) , B61 , 382
- (20) GANGULEE A. , *J. Appl. Cryst.* , (1974) , 7 , 434-439
- (21) WAGNER C.N.J. , (1966) in: Cohen J.B., Hilliard J.E. Eds. , " *Local Atomic Arrangements Studied by X-Ray Diffraction* " , Addison-Wesley , Reading , Mass
- (22) WILLIAMSON G.K. , SMALLMAN R.E. , *Acta Cryst.* , (1954) , 7 , 574-581
- (23) SCHERRER P. , *Nacht. Göttinger Gesellsch. Dtsch.* , (1918) , 2 , 98
- (24) WILSON A.J.C. , (1963) *Mathematical Theory of X-Ray Powder Diffractometry*, Centrex, Eindhoven
- (25) NONAT A. , *Thèse de doctorat Troisième cycle*, DIJON, (1981), 53-79

- (26) LANGFORD J.I. , *J. Appl. Cryst.* , (1978) , 11 , 10-14
- (27) VOIGT W. , *Sitzungsber. K. Bayer. Akad. Wiss.* , (1912) , 42 , 603-620
- (28) JONES H.W. , *Proc. Roy. Soc.* , (1938) , A166, 16
- (29) LANGFORD J.I. ,(1980) in : Block S., Hubbard CR. Eds., Accuracy in Powder Diffraction (NBS Special Publication 567 ) N.B.S. Washington , 255-269
- (30) KEISJER Th. H. DE , MITTEMEIJER E.J. , ROZENDAAL H.C.F. , *J. Appl. Cryst.* , (1983) , 16 , 309-316
- (31) KEISJER Th. H. DE , LANGFORD J.I. , MITTEMEIJER E.J. , VOGEL A.B.P. , *J. Appl. Cryst.* , (1982) , 15 , 308-314

## **CHAPITRE IV :**

### **INDICATRICES**

#### **Plan**

##### **Introduction**

##### **1. Obtention d'une indicatrice**

- 1.1. Mesure**
- 1.2. Calcul**
- 1.3. Figures**

##### **2. Obtention d'une indicatrice du facteur de forme**

- 2.1. Méthode de calcul**
- 2.2. Cas des matériaux fortement texturés**
- 2.3. Commentaires**

##### **3. Indicatrices des micro-déformations et des tailles**

- 3.1. Obtention des indicatrices des micro-déformations et des tailles**
- 3.2. Commentaires**
- 3.3. Résultats**

##### **Bibliographie**

## Introduction :

Dans ce chapitre, nous présentons de nouveaux outils d'analyse quantitative des propriétés des matériaux.

En effet, suite aux travaux de Leffers et all.<sup>(1)</sup>, Maurer<sup>(2)</sup>, Hoffman et all.<sup>(3)</sup>, Brakman<sup>(4)</sup>, Sprauel et all.<sup>(5)</sup>, nous avons développé le concept de figures indicatrices. Pour cela, nous utilisons toutes les informations recueillies par le compteur courbe CPS120. La position du pic de diffraction mesurée pour différentes valeurs des angles  $\psi$  et  $\phi$  a déjà été utilisée pour construire les indicatrices de déformations (cf. § III.1.2.). Mais lors de la mesure du profil, outre la position du pic, il est possible de calculer systématiquement :

- la largeur intégrale du pic  $\beta$  (ou sa surface)
- la largeur à mi-hauteur  $2\omega$  (ou à hauteur de corde donnée).

Il est ainsi possible de créer deux types d'indicatrices :

- une indicatrice de la largeur intégrée,
- une indicatrice de la largeur à mi-hauteur.

Bien entendu, on peut construire, par une combinaison de ces dernières, une indicatrice du facteur de forme du profil de raie défini par :

$$f = \frac{2\omega}{\beta} \quad \text{IV-1}$$

Mais de nombreux problèmes se posent :

- les mesures précises de la largeur intégrée  $\beta$  et de la largeur à mi-hauteur  $2\omega$  nécessitent des temps de comptage relativement longs,
- l'exploitation de ces indicatrices.

L'obtention d'une indicatrice de déformation ne pose pas de problème majeur, puisqu'il suffit de calculer, en chaque point  $(\psi, \phi)$ , la position du centroïde du pic de diffraction, ou le maximum de pic par la méthode de la parabole.

Par contre l'obtention d'une indicatrice du facteur de forme nécessite un traitement particulier des raies analysées.

Nous nous proposons d'abord d'exposer la méthode générale d'obtention d'une indicatrice quelconque, puis nous développerons plus particulièrement les traitements effectués pour obtenir l'indicatrice de facteur de forme, et enfin nous proposerons une méthode d'exploitation de ces indicatrices.



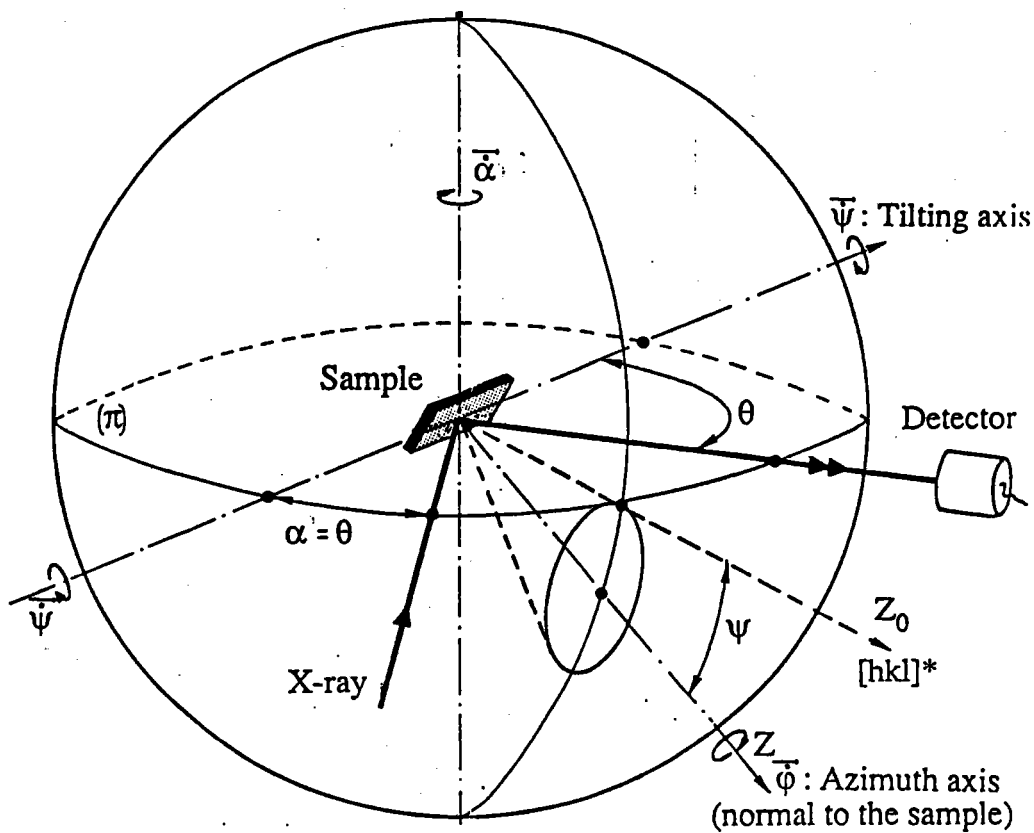


Figure IV-1 : Principe de la mesure d'une indicatrice

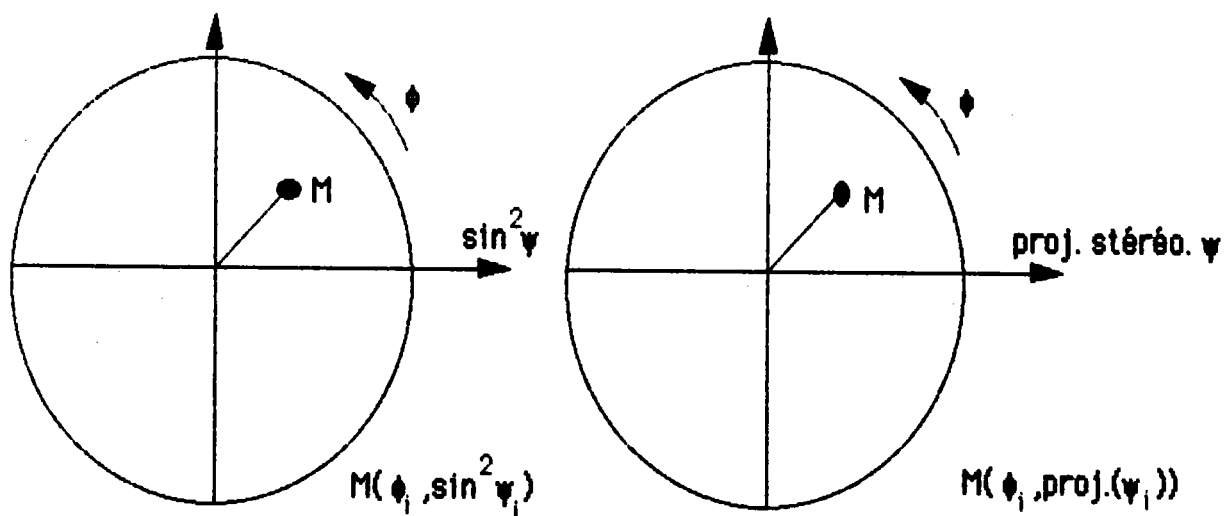


Figure IV-2 : Echelles des indicatrices.

## **1. OBTENTION D'UNE INDICATRICE :**

### **1.1. Mesure :**

Le principe de mesure est identique à celui utilisé pour l'obtention d'une figure de pôles de texture. L'échantillon est positionné dans l'espace par des rotations d'angles  $\psi$  et  $\phi$  à pas constant (cf. figures IV-1 et 2). Contrairement à la méthode de mesure en texture qui calcule l'intensité du pic par intégration de l'intensité durant le mouvement de l'échantillon, la construction d'une indicatrice s'effectue en "pointé" à chaque position ( $\psi, \phi$ ).

D'autre part le temps de comptage en intégration pour la mesure d'une figure de pôles est relativement court (de l'ordre de 5 s).

Ce temps de comptage est trop faible pour pouvoir obtenir des informations précises sur le profil de diffraction. Aussi, avons nous porté ce temps de comptage à plusieurs minutes. Ceci limite considérablement le nombre de points de mesure. En effet une figure de pôle classique contient environ 2970 points de mesure, ce qui, pour une indicatrice, conduirait, par exemple, à un temps de mesure de 46 heures en comptant une minute par point!

C'est pourquoi, bien que rien ne l'interdise, nous avons pris le parti de réduire le nombre de points de mesure en augmentant la grille de mesure ( $\psi, \phi$ ).

Pour l'exemple précédent, ce choix nous conduit à un temps de mesure, hors calcul, de 12 heures. Mais considérant la symétrie des échantillons analysés, il est possible de se limiter au quart ou à une demi indicatrice, soit 3 heures ou 6 heures.

### **1.2. Figures :**

Comme nous l'avons précisé au § III.1.2., nous pouvons tracer les indicatrices sous deux formes différentes :

- indicatrices à échelle modifiée en  $\sin^2\psi$ ,
- indicatrices stéréographiques.

Elles sont présentées sur la figure IV-2.

## 2. OBTENTION D'UNE INDICATRICE DU FACTEUR DE FORME :

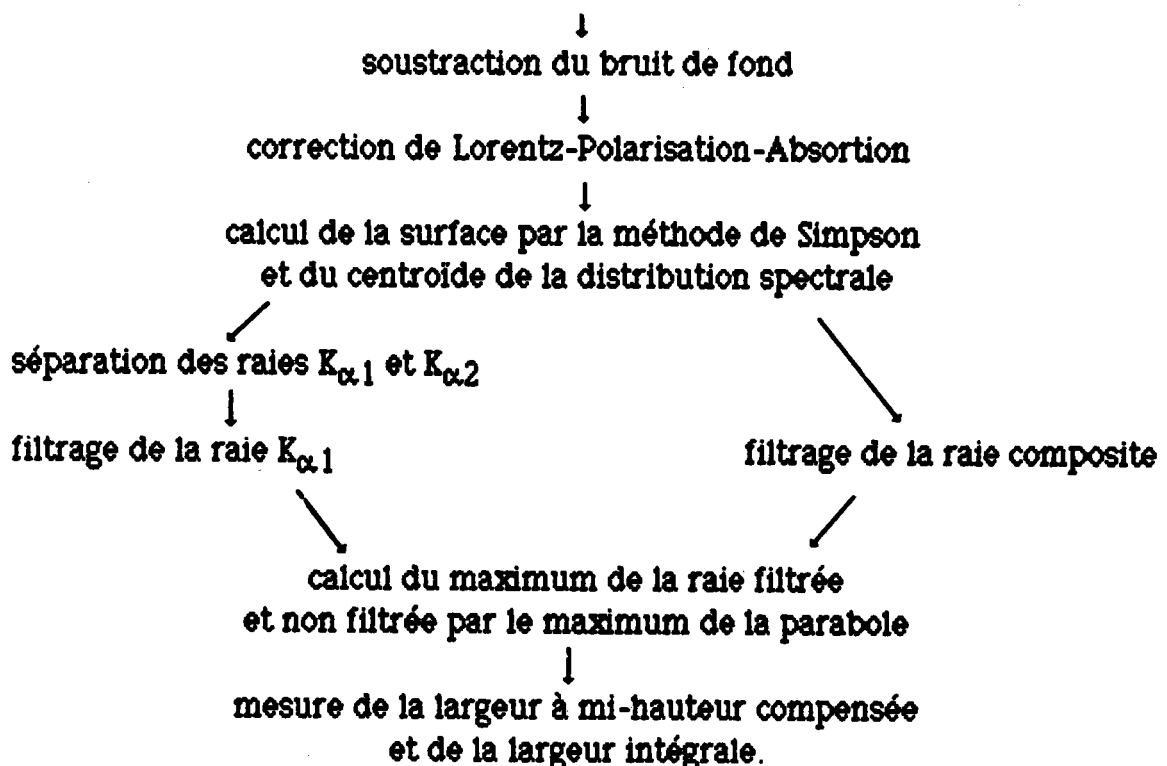
Nous traitons ce cas particulier car l'obtention d'une indicatrice du facteur de forme nécessite le calcul de la largeur intégrée et le calcul de la largeur à mi-hauteur. Nous avons précisé que les temps de comptage sont relativement faibles. La figure III-8 présente une raie de diffraction obtenue pour l'échantillon d'aluminium 7075 T6 billé. On peut constater que ces raies sont d'autant plus difficiles à analyser que le temps de comptage sera faible. Or les calculs de la largeur à mi-hauteur et de la largeur intégrée doivent être précis pour pouvoir être utilisés ultérieurement. C'est pourquoi nous proposons le filtrage préalable des raies de diffraction avant tout calcul<sup>(6)</sup>.

### 2.1. Méthode de calcul :

Deux cas particuliers se présentent :

- l'analyse porte sur la raie composite contenant  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$ .
- l'analyse porte sur la seule raie  $K_{\alpha 1}$ .

Les principales étapes du calcul après enregistrement de la raie de diffraction sont :



Remarque :

La technique de séparation présentée au chapitre III ne peut être appliquée dans ce type de mesure du fait du temps d'analyse et de l'obligation d'introduire manuellement les paramètres initiaux. Aussi, par souci de simplification et de non-intervention durant la mesure, avons nous appliqué la méthode de Rachinger<sup>(7)</sup> pour séparer les raies  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$ . Les points "décimaux" de la raie de diffraction sont obtenus par interpolation de Lagrange à cinq points.

Rappelons brièvement la méthode de Rachinger. On considère que le profil total résulte de la superposition des raies  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$ . En supposant que les raies isolées issues de  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$  ont la même forme symétrique, que le rapport des intensités des raies est égal à R et avec  $\Delta$  écart angulaire constant entre les deux raies, nous avons :

$$I(2\theta) = I_{K\alpha 1}(2\theta) + I_{K\alpha 2}(2\theta) \Rightarrow I_{K\alpha 1}(2\theta) = I(2\theta) - R \cdot I_{K\alpha 1}(2\theta - \Delta) \quad \text{IV-1}$$

avec  $\Delta = 2 \cdot \arcsin\left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1} \cdot \sin\theta_1\right) - 2 \cdot \theta_1$

Cette séparation n'est effectuée que pour le calcul de la largeur à mi-hauteur ( $2\omega$ ) de la raie  $K_{\alpha 1}$ . La largeur intégrée  $\beta$  est alors obtenue par la relation :

$$\beta_{K\alpha 1} = \frac{\beta_{\text{total}}}{1 + R} \quad \text{IV-2}$$

Le rapport R a été obtenu en étudiant le diffractogramme aux grands angles d'un échantillon de cuivre recuit. L'évaluation des intensités des raies  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$  nous donne la valeur du rapport R. Nous avons obtenu :  $R = 0,32$ . Cette valeur diffère des valeurs généralement admises ( $R = 0,5$ ). Ceci est dû au fait que R dépend d'un grand nombre de facteurs dont le type de monochromateur (de son montage et de son réglage) et du tube à rayon X lui-même.

Nous désignons par largeur à mi-hauteur compensée, la largeur à mi-hauteur de la raie  $K_{\alpha 1}$  non filtrée mesurée sur la raie filtrée. En effet, bien que les coefficients du filtre de Fourier soient choisis automatiquement (après estimation des fluctuations du bruit de fond et de la valeur signal/bruit) parmi un jeu de coefficients fixés à l'avance, il nous est impossible d'adapter en continu la valeur de ces coefficients en cours de manipulation. Aussi dans de nombreux cas, les raies filtrées ne sont correctement représentées que dans la partie moyenne de la raie, c'est à dire au niveau des flancs de raie. Les maximums des raies filtrées et non filtrées peuvent alors être très différents et entraîner une erreur dans le calcul de la largeur à mi-hauteur. Aussi pour contourner ce problème, calculons nous par la méthode de la parabole les maxima des raies  $K_{\alpha 1}$  filtrées et non filtrées. La hauteur de calcul de la largeur à mi-hauteur compensée est alors donnée par la relation suivante :

$$h(2\omega) = \frac{1}{2} \frac{I_{\text{max}}^{\text{non filtré}}_{K\alpha 1}}{I_{\text{max}}^{\text{filtré}}_{K\alpha 1}}$$

La largeur à mi-hauteur est mesurée sur la raie filtrée et correspond à la largeur à mi-hauteur de la raie  $K_{\alpha 1}$  non filtrée comme l'indique la figure IV-3.

Le temps total de calcul, y compris l'affichage des raies isolées, n'excède pas 8 secondes pour la mesure simultanée de trois pics de diffraction.

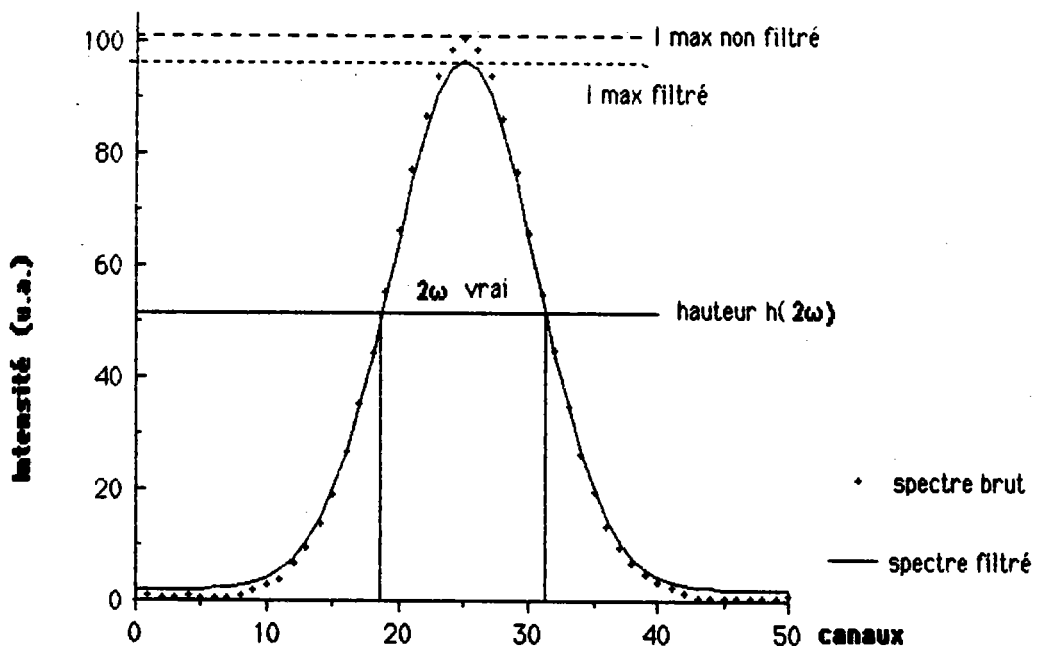


Figure IV-3 : Principe de la mesure à hauteur compensée.

## 2.2. Cas des matériaux fortement texturés :

Dans le cas de matériaux fortement texturés, pour certaines positions  $(\psi, \theta)$  de l'échantillon, la raie de diffraction ne présentera, outre le bruit de fond, que très peu d'informations, voire pas du tout. Aussi avons nous fixé un seuil de rapport signal/bruit au dessous duquel aucun calcul n'est effectué.

Le rapport signal/bruit est calculé de la façon suivante, après filtrage numérique de raie de diffraction :

- calcul de la valeur moyenne du bruit de fond de part et d'autre du pic ( $I_{\text{moy}}$ )
- calcul de la valeur maximale du pic ( $I_{\text{maxi}}$ )

Si on a :

$$\frac{I_{\text{moy}}}{I_{\text{maxi}}} < 2$$

alors aucun calcul n'est effectué. En effet nous avons pu vérifier qu'au-dessous de ce seuil les informations obtenues étaient aberrantes.

### 2.3. Concept de multi-indicatrices :

A l'instar des multi-figures de pôles<sup>(8)</sup>, nous avons développé le concept de multi-indicatrices. Cette méthode de mesure permet, par l'utilisation du compteur courbe CPS120, de mesurer simultanément plusieurs indicatrices. Pour ce faire, nous déterminons plusieurs zones d'intérêt sur le diffractogramme de l'échantillon à analyser. Ces zones sont déterminées à partir d'un enregistrement préalable. Il s'ensuit que sur les  $n$  figures enregistrées seule une figure est en position de diffraction de Bragg. Les  $(n-1)$  figures restantes sont donc mesurées avec un angle d'incidence variable d'un pic à l'autre. Comme le montrent les figures IV-1 et III-16, pour les figures qui ne sont pas en position de Bragg, il apparaît une zone aveugle. La figure obtenue doit donc, en principe, être corrigée afin de la ramener dans le canevas standart. Cette opération n'est pas effectuée dans nos programmes, car seuls l'aspect des lignes de niveaux et les corrélations possibles entre les diverses figures sont recherchés dans ce travail.

### 2.4. Commentaires :

Les indicatrices ne donnent qu'un aspect qualitatif des caractéristiques du matériau. En effet à partir de la seule analyse de la largeur à mi-hauteur, il est difficile de tirer des conclusions quant aux micro-déformations, ou encore au niveau de déformation plastique. Nous avons vu au chapitre III qu'une raie de diffraction résulte de la convolution du profil vrai et d'une fonction instrumentale. Il est donc illusoire de vouloir tirer des informations de la seule largeur à mi-hauteur ou de la largeur intégrée. Ces figures dans l'état actuel ne peuvent donc être utilisées pour décrire les caractéristiques microstructurales du matériau analysé.

Ces remarques nous ont conduit à développer d'autres types d'indicatrices, qui permettent une analyse quantitative de ces caractéristiques.

## 2.5. Etude de l'influence des conditions de mesure :

Nous nous proposons dans ce paragraphe d'étudier l'influence de quelques paramètres expérimentaux afin d'évaluer les erreurs potentielles dans l'obtention d'une indicatrice du facteur de forme. Les problèmes inhérents à l'installation sont :

- positionnement de l'échantillon au centre du goniomètre,
- rapport R entre les raies du doublet  $K_{\alpha 1}$ - $K_{\alpha 2}$ ,
- influence de la largeur et de la hauteur des fentes d'analyse.

### 2.5.1. Influence d'un déplacement de l'échantillon :

Les figures IV-4 a,b présentent les résultats obtenus après un décalage de l'échantillon de 0,15 mm en amont du centre du goniomètre pour les raies (111) en position de Bragg et (200) en position non-Bragg. On peut constater que le facteur de forme varie de façon similaire jusqu'aux environs de  $\psi = 30^\circ$ . L'écart devient important pour la raie (200) qui n'est pas dans les conditions de diffraction de Bragg. Cette analyse montre que le positionnement de l'échantillon est capital si l'on désire obtenir des informations précises.

Légendes : Sur ces figures, D => échantillon déplacé, P => échantillon au centre.

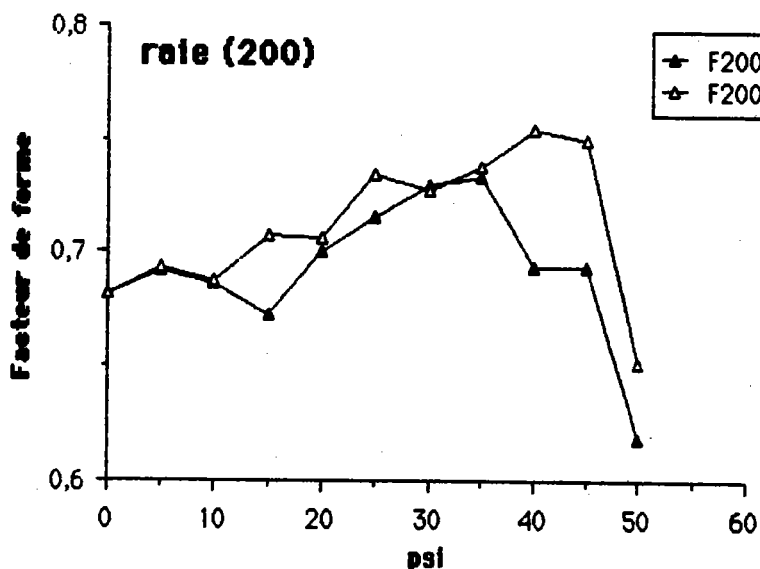


Figure IV-4 a : Evolution du facteur de forme raie (200) non-Bragg

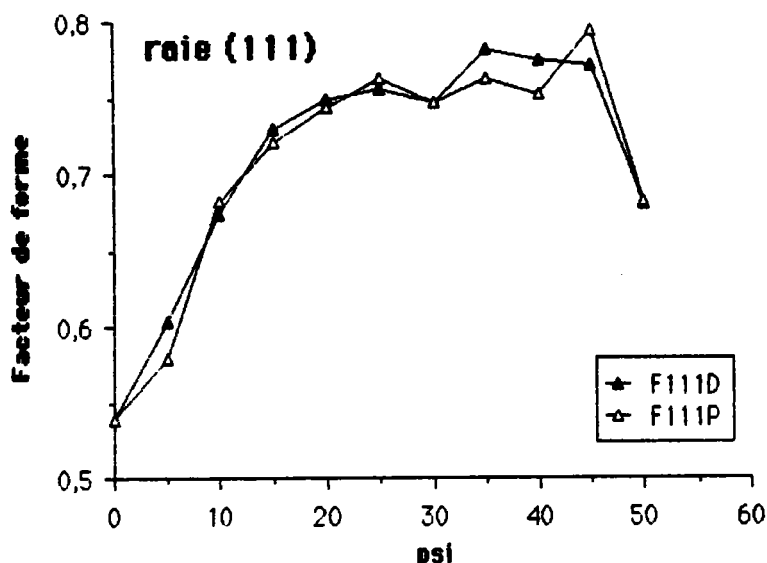


Figure IV-4 b : Evolution du facteur de forme raie (111) Bragg

#### 2.4.2. Influence du rapport $K\alpha_1/K\alpha_2$ :

Cette influence est relativement importante si l'estimation du rapport R est mauvaise. Nous avons pu remarquer que l'erreur commise sur les valeurs de la largeur à mi-hauteur et de la largeur intégrale sont inférieures à 4% pour une erreur de 3% sur R. L'estimation du rapport R doit être effectuée avec précision.

#### 2.4.2. Influence de la largeur des fentes :

Les largeurs de fentes utilisées pour la construction des indicatrices sont conformes aux prescriptions imposées aux chapitre I. L'influence des fentes impose en fait le temps de comptage. En effet, la précision gagnée par le choix d'une fente collimatrice fine est perdue à cause d'une qualité de profil médiocre pour l'analyse. On voit donc qu'il faut rechercher un certain équilibre entre qualité de raie et temps de comptage. Ce choix n'est pas déterminable *a priori*, seuls des essais permettent de définir la configuration idéale.

### 3. INDICATRICE DES TAILLES ET DES MICRO-DEFORMATIONS :

Nous avons présenté au § III.2.2., la méthode de déconvolution de Voigt. Cette méthode nous permet d'obtenir :



- la taille des domaines de diffraction cohérente,
- une grandeur liée aux micro-déformations.

Les hypothèses conduisant à ces résultats ont été présentées au § III.2.3.

L'application de la méthode des largeurs intégrales de Voigt nécessite la séparation des raies  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$ . En effet, le profil composite  $K\alpha$  ne peut être décrit par une seule fonction de Voigt. A partir des résultats de l'analyse de la raie  $K_{\alpha 1}$  nous avons alors développé deux types d'indicatrices :

- l'indicatrice des tailles à partir de la largeur intégrale Cauchy,
- l'indicatrice des micro-déformations à partir de la largeur intégrale de Gauss.

### 3.1. Obtention des indicatrices :

Comme dans la méthode de Voigt, elles résultent d'une déconvolution. Cette déconvolution est effectuée à partir de quatre indicatrices qui sont :

- |   |   |                        |
|---|---|------------------------|
| - l'indicatrice des largeurs à mi-hauteur | } | échantillon standart   |
| - l'indicatrice des largeurs intégrées    |   |                        |
| - l'indicatrice des largeurs à mi-hauteur | } | échantillon à analyser |
| - l'indicatrice des largeurs intégrées    |   |                        |

La déconvolution est alors effectuée point par point - position  $(\psi, \theta)$ - de l'indicatrice. En utilisant les calculs présentés au § III.2.3., on obtient deux figures distinctes :

- l'indicatrice des tailles : relative à la taille des domaines de diffraction cohérente,
- l'indicatrice des micro-déformations : relative à la distribution des micro-déformations.

### 3.2. Commentaires :

Le temps de mesure, pour effectuer ces deux indicatrices peut-être très long si l'on ne peut se limiter à une partie restreinte de l'indicatrice.

Dans le cas où le matériau est supposé avoir des caractéristiques microstructurelles isotropes, il est inutile d'effectuer une figure complète. Seul un "rayon" de l'indicatrice est suffisant.

La signification des grandeurs obtenues souffre des mêmes limitations que celles présentées au § III.2.3.

Une possibilité offerte par les multi-indicatrices est de pouvoir déterminer la forme des domaines de diffraction cohérente par l'étude sur plusieurs plans de diffraction. Nous n'avons pas développé les programmes nécessaires pour effectuer ces opérations. Il semble néanmoins évident que les calculs seraient longs et fastidieux. Supposons que la mesure s'effectue sur deux plans notés  $(hkl)_1$  et  $(hkl)_2$ . Les tailles calculées sont notées  $D_1(\phi, \psi)$  et  $D_2(\phi, \psi)$ . Pour une position  $(\phi, \psi)$  donnée, les mesures  $D_1(\phi, \psi)$  et  $D_2(\phi, \psi)$  ne correspondent pas au même domaine de diffraction cohérente comme le montre la figure IV-5. L'information doit être retrouvée sur la figure relative aux plans  $(hkl)_2$  à une position déterminée par les angles entre les normales aux deux plans utilisés pour la mesure. Cette mesure doit bien entendu être repérée sur une figure standard. On détermine ainsi  $D_2(\phi^*, \psi^*)$ . Ces deux mesures permettent alors de remonter à la forme du domaine pour la position  $(\phi, \psi)$ .

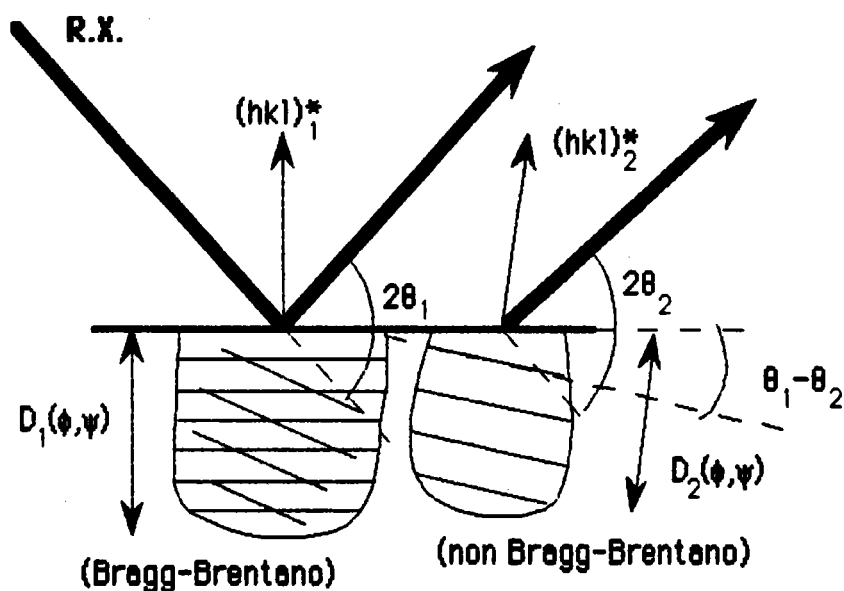


Figure IV-5 : Forme et dimension d'un domaine de diffraction cohérente.

#### **4. RESULTATS EXPERIMENTAUX : INDICATRICES**

Pour illustrer le concept de multi-indicatrices, nous présentons les résultats relatifs à un seul type d'échantillon de cuivre recuit laminé à 80% (noté Cu RP). L'échantillon standard pour la déconvolution est du cuivre provenant de la même tôle recuite 24h à 450° C.

Les conditions expérimentales sont les suivantes pour les deux échantillons :

- anticathode : Cu K $\alpha$
- temps de comptage : 120 secondes
- $\Delta\psi = 5^\circ$  et  $\Delta\phi = 5^\circ$ , avec  $0 < \psi < 45^\circ$  et  $0 < \phi < 90^\circ$ .
- pas de séparation de Rachinger.

##### **Remarques :**

i. L'échantillon standard de cuivre présente une texture de recuit assez prononcée. Mais dans la majeure partie du quadrant d'analyse, nous avons obtenu des intensités suffisantes pour une analyse précise des profils de raie.

ii. Nous avons utilisé une anticathode de cuivre, plus puissante que l'anticathode de fer, pour réaliser ces indicatrices.

##### **4.1. Etude de l'échantillon de cuivre laminé (Cu RP) :**

Cette étude a été effectuée pour plusieurs plans de diffraction du cuivre en deux étapes :

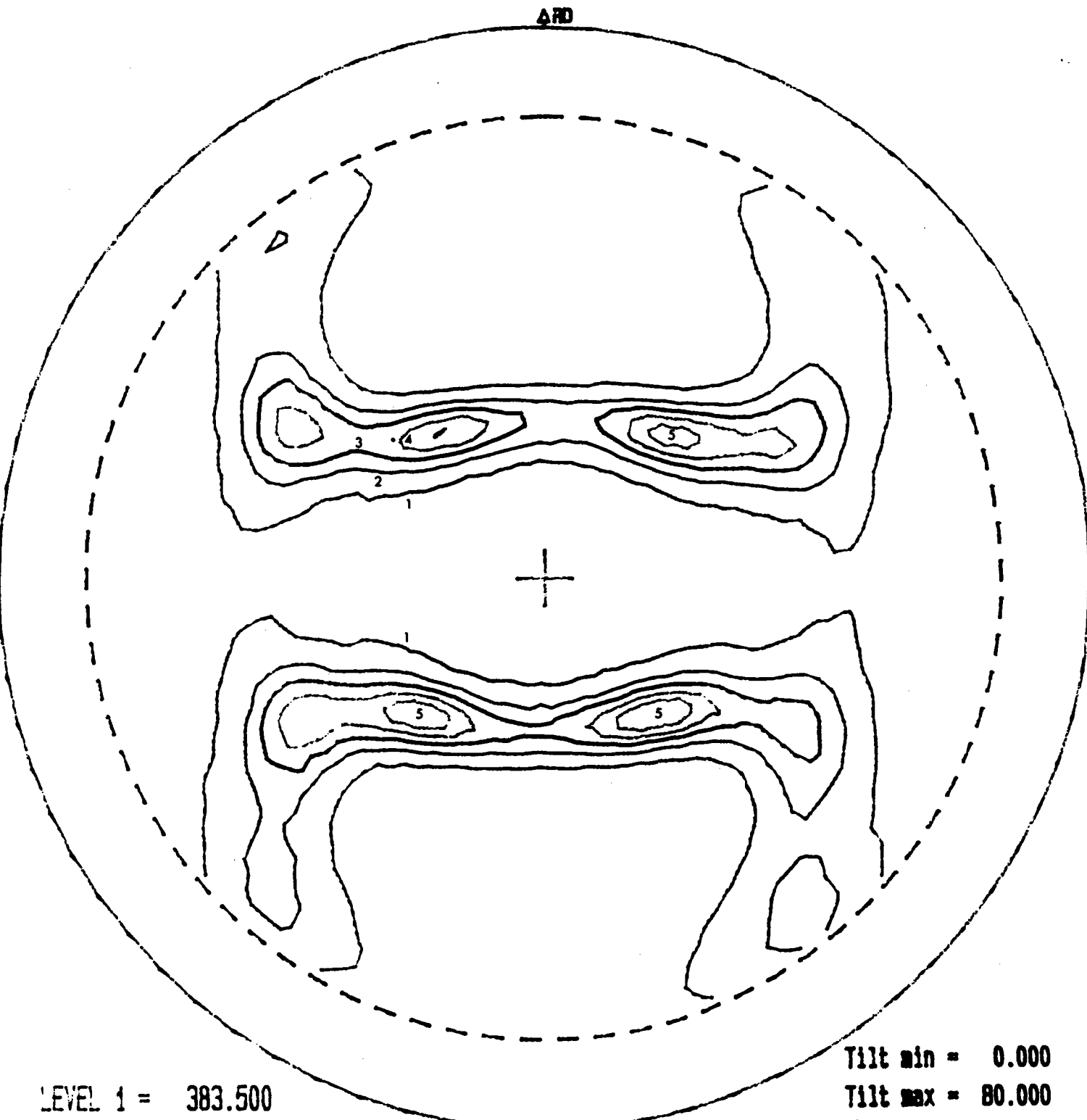
- multi-indicatrices : (100), (111), (220)
- multi-indicatrices : (331), (420).

En raison du traitement mécanique subi par cet échantillon, ces indicatrices ont été restreintes au domaine angulaire ( $\psi : 0 \dots 45^\circ$ ,  $\phi : 0 \dots 90^\circ$ )

Les figures présentées sont :

- figures IV-6 à 8 : figures de pôles plans (200), (111) et (220),
- figures IV-9d et IV-10d : figures de pôles en pointé (331) et (420),
- figures IV-9a,b,c et IV-10a,b,c : indicatrices largeur intégrée, largeur à mi-hauteur et des centroïdes ( $\Delta 2\theta$ ) pour les plans (331) et (420),
- figures IV-11a,b,c à IV-13a,b,c : indicatrices largeur intégrée, largeur à mi-hauteur et à hauteur de corde 80% pour les plans (200), (111) et (220),

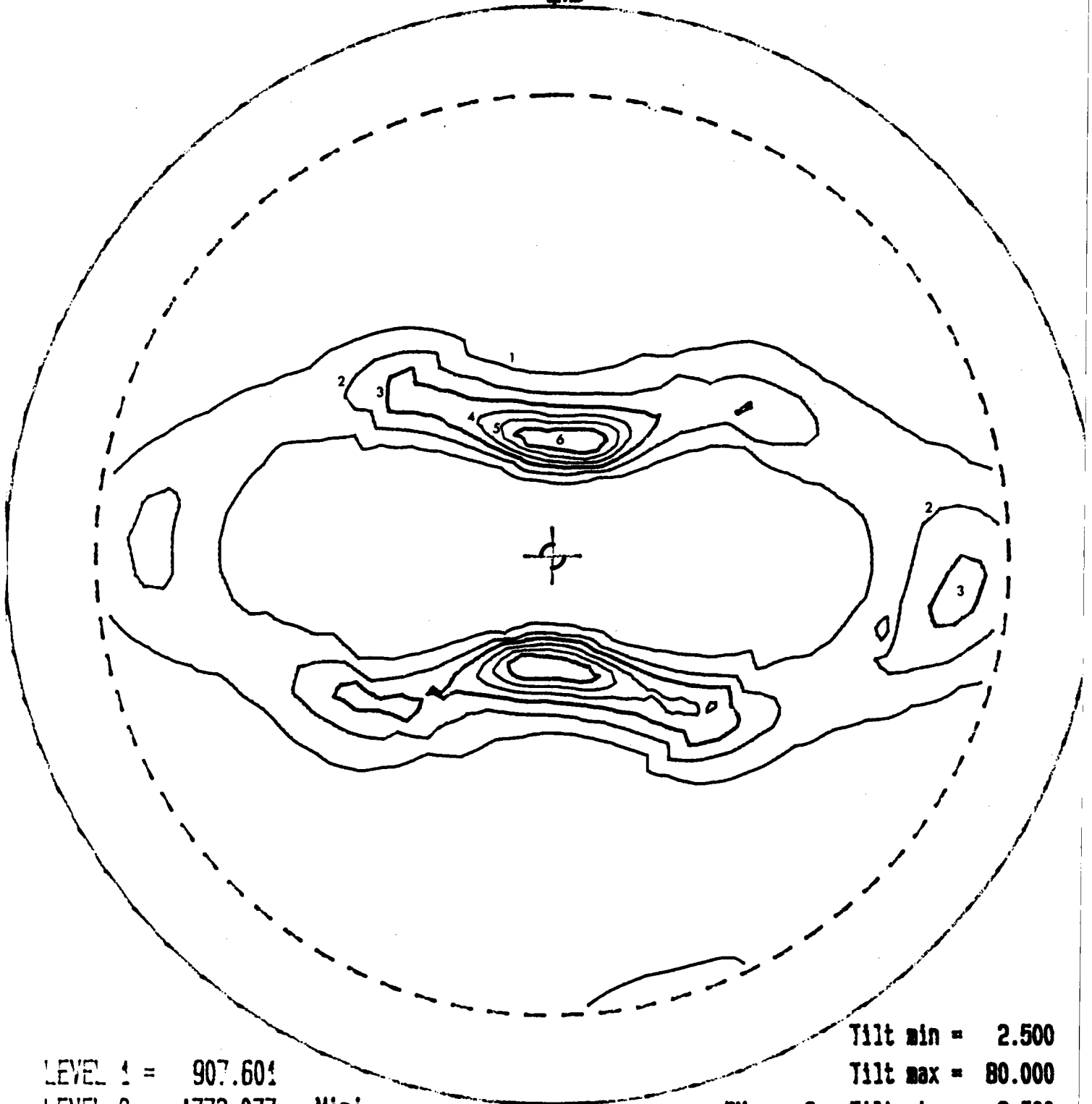
Figure IV-6 : Figure de pôles plan (200)



LEVEL 1 =	383.500	
LEVEL 2 =	758.000	Mini
LEVEL 3 =	1132.500	9.000
LEVEL 4 =	1507.000	
LEVEL 5 =	1881.500	Maxi
		2256.000

		Tilt min =	0.000
		Tilt max =	80.000
RX =	Cu	Tilt step =	2.500
Ncol =	1.00	Azim min =	0.000
Hcol =	1.00	Azim max =	360.000
Ndet =	21.87	Azim step =	5.000
Hdet =	8.00	Time =	20.00

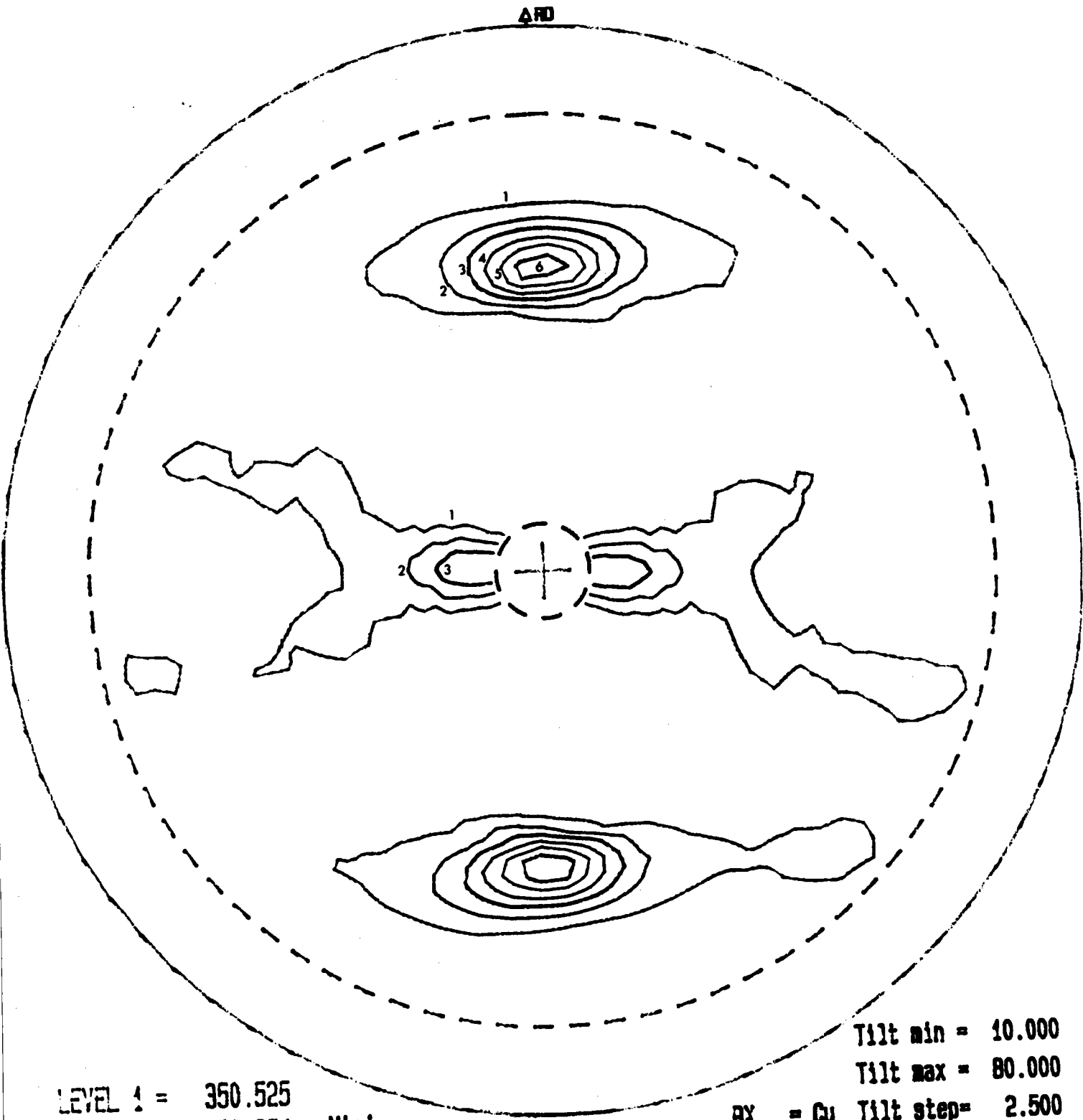
Figure IV-7 : Figure de pôles plan(111)  
 $\Delta$ RD



LEVEL 1 = 907.601  
 LEVEL 2 = 1773.077 Mini  
 LEVEL 3 = 2638.553 42.125  
 LEVEL 4 = 3504.030  
 LEVEL 5 = 4369.506 Maxi  
 LEVEL 6 = 5234.982 6100.458

Tilt min = 2.500  
 Tilt max = 80.000  
 Tilt step = 2.500  
 RX = Cu  
 Wcol = 1.00 Azim min = 0.000  
 Hcol = 1.00 Azim max = 360.000  
 Wdet = 21.87 Azim step = 5.000  
 Hdet = 8.00 Time = 20.00

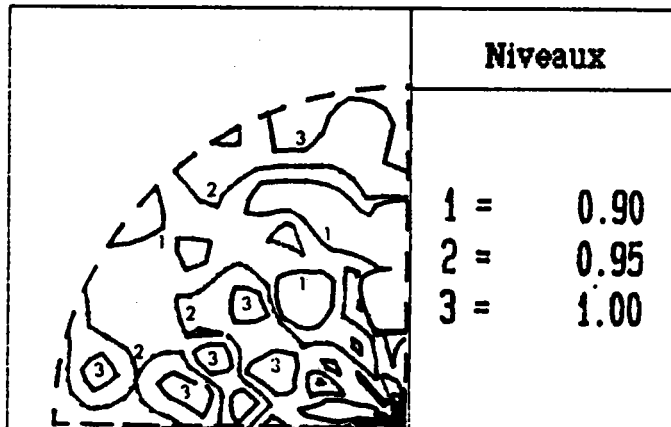
Figure IV-8 : Figure de pôles (220)



LEVEL 1 =	350.525	
LEVEL 2 =	672.874	Mini
LEVEL 3 =	995.223	28.176
LEVEL 4 =	1317.571	
LEVEL 5 =	1639.920	Maxi
LEVEL 6 =	1962.269	2284.618

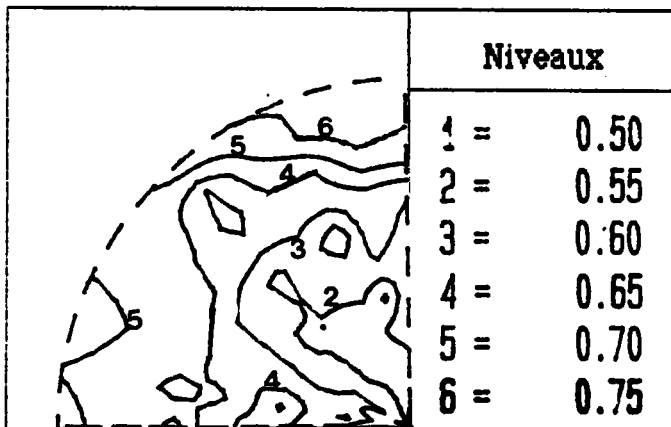
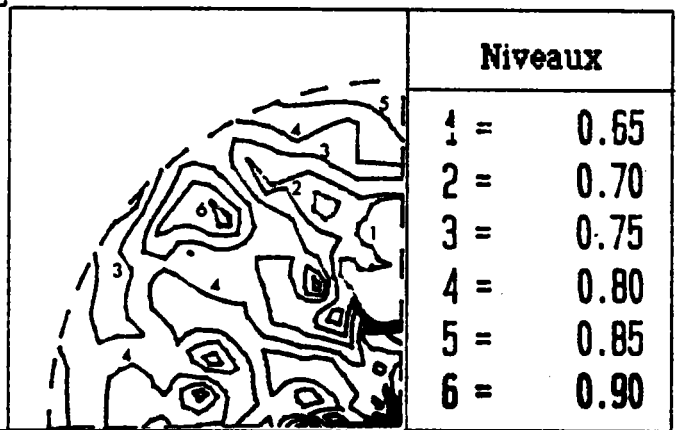
FX	= Cu	Tilt min =	10.000
Ncol =	1.00	Tilt max =	80.000
Hcol =	1.00	Tilt step =	2.500
Hdet =	21.87	Azim min =	0.000
		Azim max =	360.000
		Azim step =	5.000
Hdet =	8.00	Time =	20.00

Figure IV-9: Indicatrices plan (331)



a) largeur intégrée

b) largeur à mi-hauteur



c) centroïdes :

On représente en fait  $\Delta 2\theta = 2\theta - E(2\theta)$  où  $E(x)$  représente la partie entière de  $x$

d) intensité diffractée

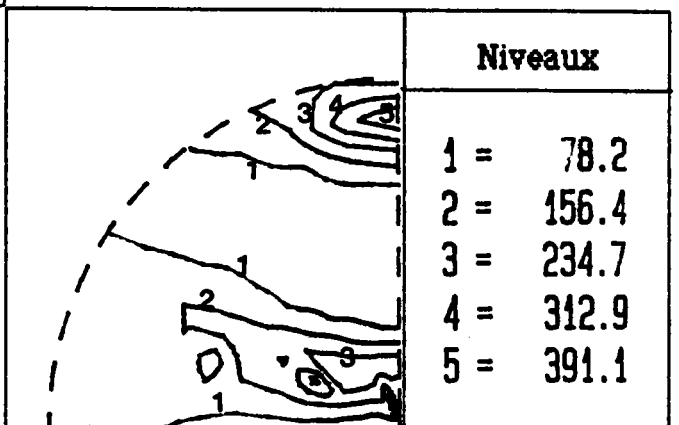
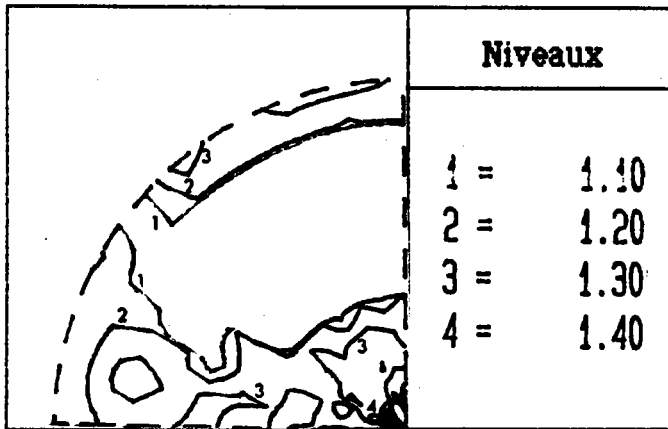
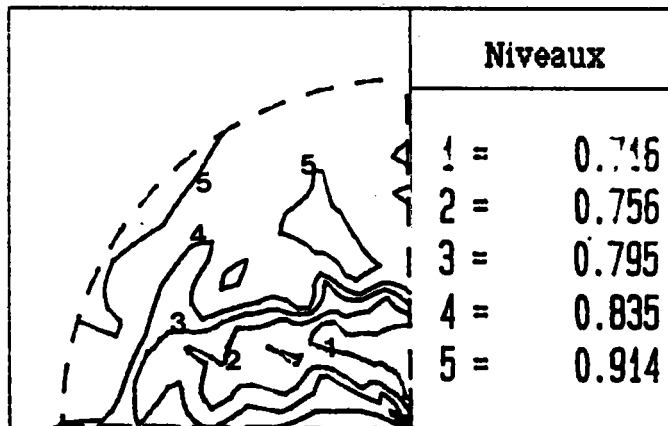
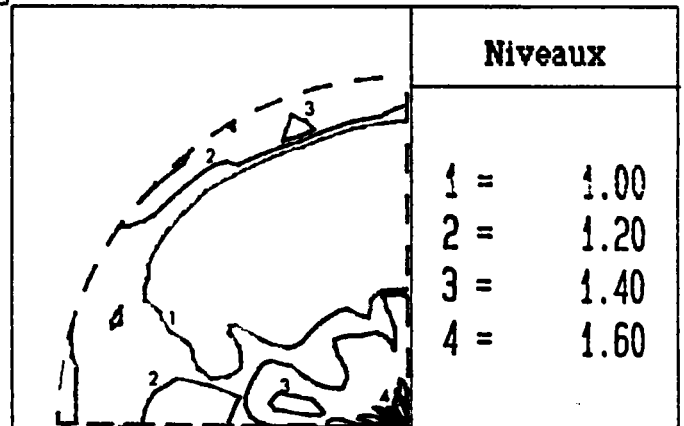


Figure IV-10 : Indicatrices plan (420)



a) largeur intégrée

b) largeur à mi-hauteur



c) centroïdes :

On représente en fait  $\Delta 2\theta = 2\theta - E(2\theta)$  où  $E(x)$  représente la partie entière de  $x$

d) intensité diffractée

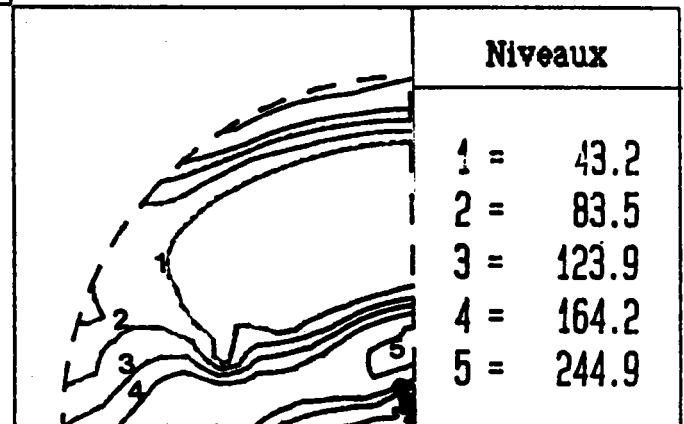
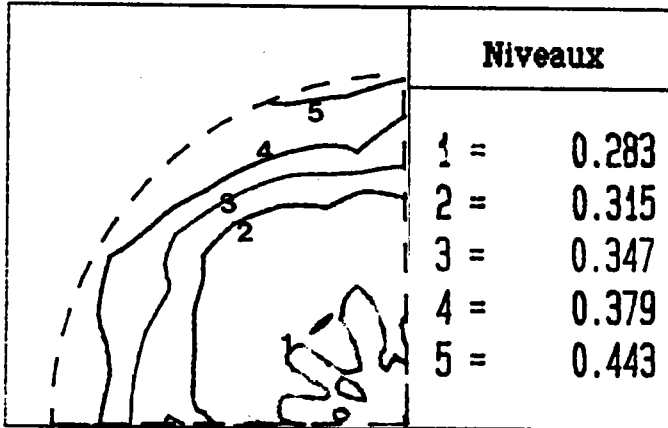


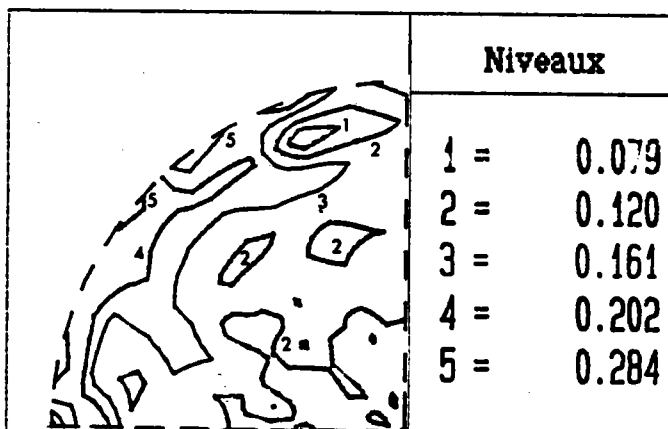
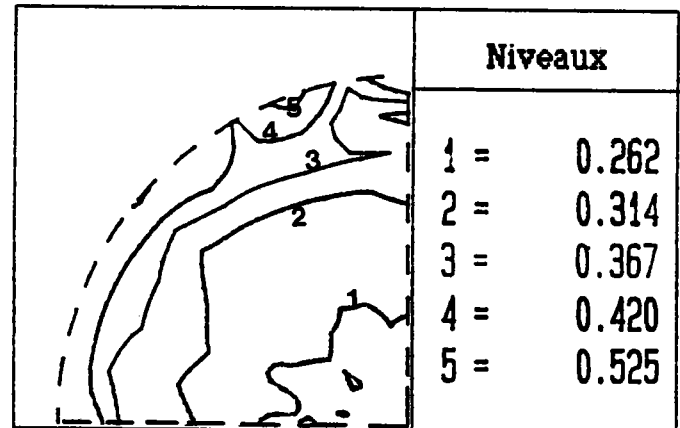


Figure IV-11: Indicatrices plan (200)



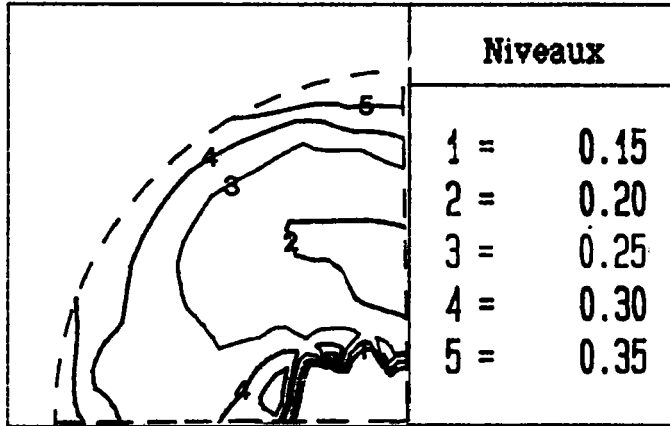
a) largeur intégrée

b) largeur à mi-hauteur



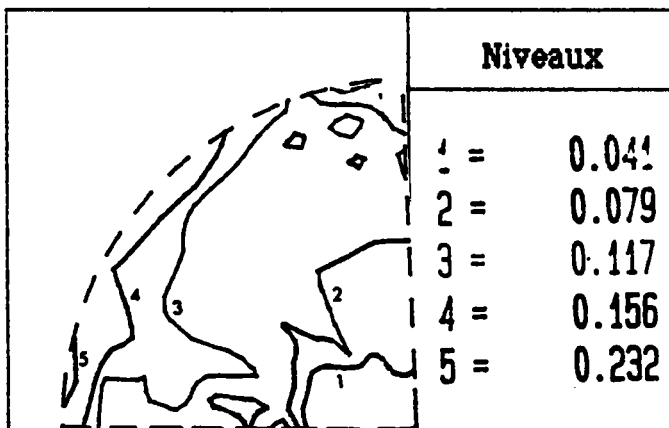
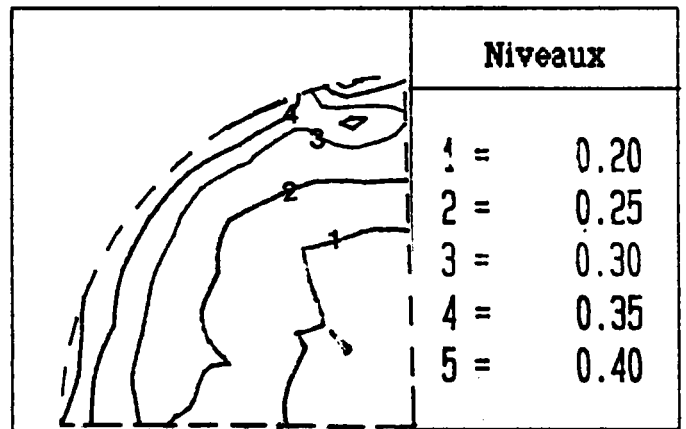
c) largeur de corde (80% de la hauteur maximale du pic de diffraction).

**Figure IV-12 : Indicatrices plan (111)**



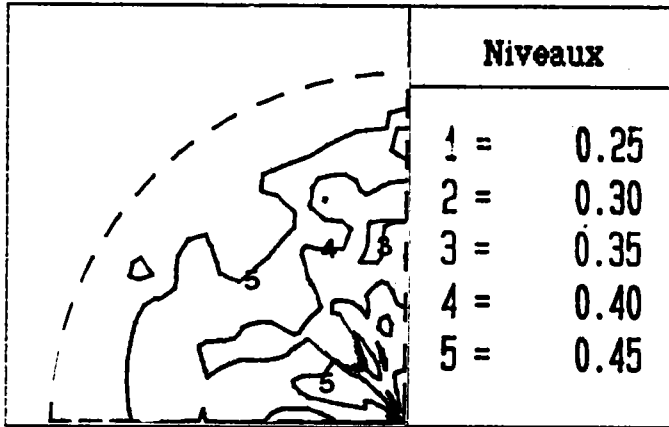
a) largeur intégrée

b) largeur à mi-hauteur



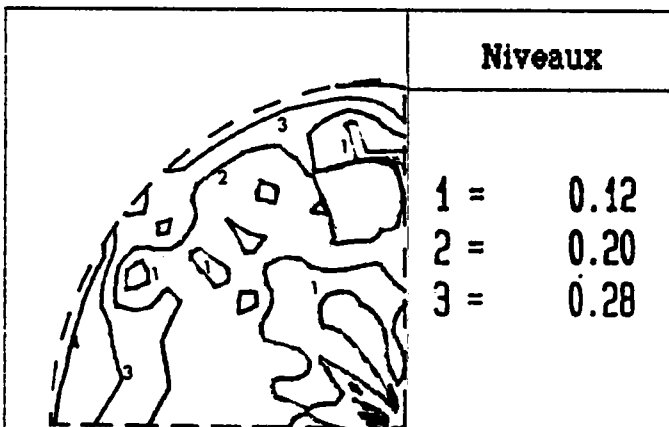
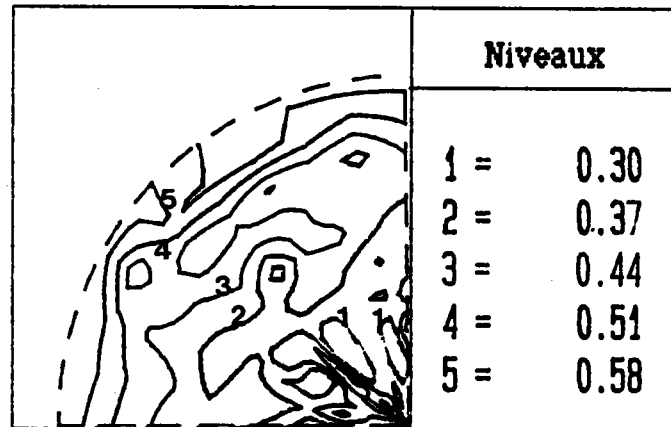
c) largeur de corde (80% de la hauteur maximale du pic de diffraction).

**Figure IV-13 : Indicatrices plan (220)**



a) largeur intégrée

b) largeur à mi-hauteur



c) largeur de corde (80% de la hauteur maximale du pic de diffraction).

## 4.2. Commentaires :

Notre propos est ici d'évaluer de façon qualitative les symétries et les corrélations des figures entre elles. Aussi, analysons nous successivement toutes les indicatrices d'un même plan.

- plan (111) : on note une forte corrélation entre la figure de pôles et l'indicatrice de la largeur intégrée (angle mort  $\omega = 3,57^\circ$ ),

- plan (200) : les diverses indicatrices présentent une symétrie axiale. Aucune corrélation avec la figure de pôles n'a pu être dégagée (figures en position de Bragg),

- plan (220) : l'analyse de ces indicatrices est ici fortement perturbée par le fait qu'elles ne sont pas tracées dans le repère standard (angle mort  $\omega = -11,86^\circ$ ),

- plan (331) : on note ici une corrélation entre toutes les figures. Le maximum de la figure de pôles (en pointé) se superpose aux maxima des indicatrices des déformations, des largeurs intégrée et à mi-hauteur (figures en position de Bragg),

- plan (420) : comme pour le plan (331), il y a le même type corrélation entre toutes les figures mais le maximum de la figure de pôles (en pointé) se superpose au minimum de l'indicatrice des déformations (angle mort  $\omega = -4,10^\circ$ ).

Ces informations purement qualitatives recourent certaines observations déjà effectuées par d'autres auteurs. On peut remarquer que seule l'allure des lignes de niveaux permet de déceler les corrélations possibles entre les figures. C'est pourquoi, il serait souhaitable d'adapter le programme de traçage des lignes de niveaux au cas particulier des indicatrices. Nous verrons par la suite que des informations plus générales peuvent être tirées de ces indicatrices à partir des données brutes.

## 5. RESULTATS EXPERIMENTAUX : INDICATRICES DES TAILLES ET DES MICRO-DEFORMATIONS :

### 5.1. Introduction :

Les indicatrices présentées dans ce paragraphe ont subi la séparation de Rachinger. Nous présentons les résultats relatifs à deux échantillons étudiés précédemment :

- cuivre recuit laminé Cu RP,
- aluminium 7075 état T6 billé.

Les conditions expérimentales sont les suivantes pour les deux échantillons :

- anticathode : Cu  $K\alpha$
- temps de comptage : 240 secondes
- $\Delta\psi = 5^\circ$  et  $\Delta\phi = 10^\circ$ , avec  $0 < \psi < 50^\circ$  et  $0 < \phi < 90^\circ$ .
- séparation de Rachinger.

### Remarques :

i. Notons que dans certains cas, les raies de diffraction de l'échantillon standart peuvent présenter des raies  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$  nettement séparées. La largeur à mi-hauteur mesurée correspond alors à celle de la raie  $K_{\alpha 1}$ . La séparation de Rachinger n'est pas effectuée dans ce cas. Nous divisons la largeur intégrée mesurée en chaque point  $(\phi, \psi)$  par  $1+R$  (le rapport des surfaces des raies  $K_{\alpha 1}/K_{\alpha 2}$  est supposé égal à  $R$ ). Cette technique a été préconisée par Keijser et all.<sup>(9)</sup>

ii. Pour certaines positions  $(\phi, \psi)$  des indicatrices, la valeur calculée pour le facteur de forme ne respecte pas la condition de définition d'une fonction de Voigt. Aussi, pour ces positions, aucun calcul n'est effectué. Cela explique le fait que l'indicatrice des micro-déformations présente des "creux" du fait du type d'interpolation effectué lors du traçage des lignes de niveau.

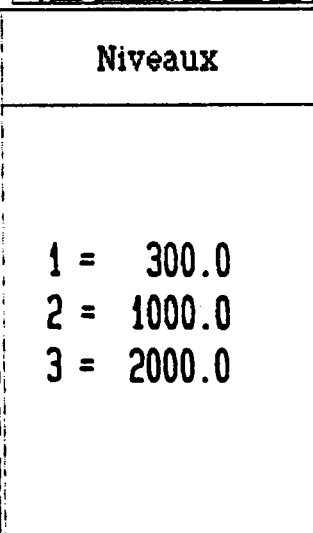
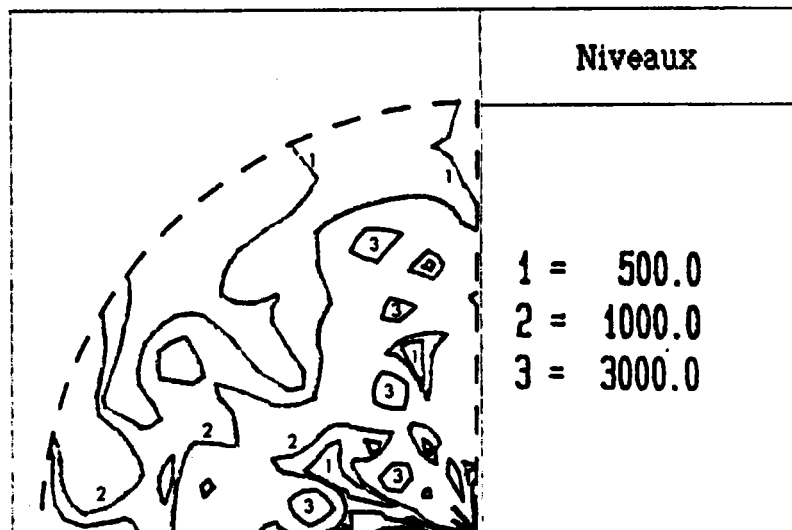
### 5.2. Figures :

Nous avons obtenu les figures :

- IV-14a...c: indicatrices des tailles plan (200), (111) et (220) Cu RP
- IV-15a...c: indicatrices des micro-déformations plan (200), (111) et (220) Cu RP
- IV-16a...c: indicatrices des tailles plan (200) et (111) Aluminium

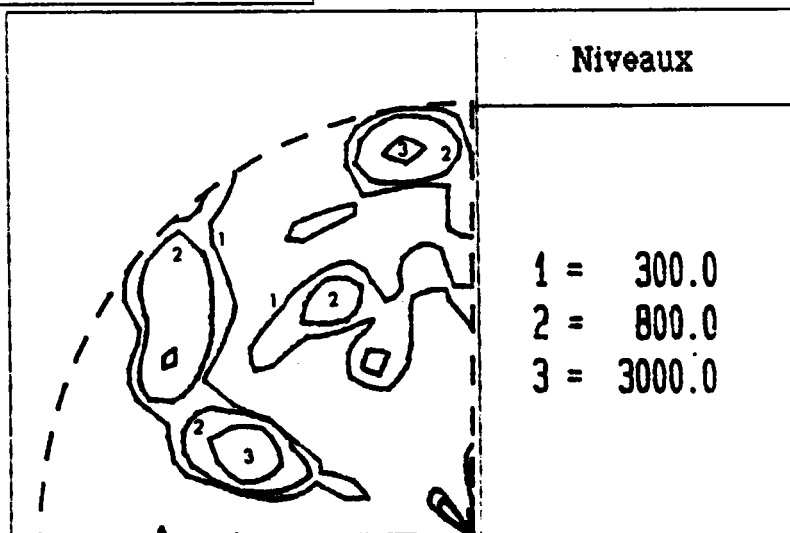
**Figure IV-14 : Indicatrices des tailles (Cu RP)**

**a) Indicatrice des tailles  
plan : (200)**



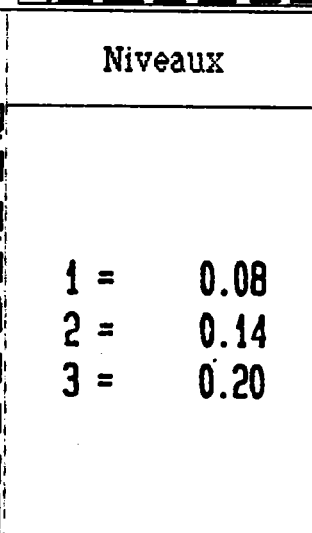
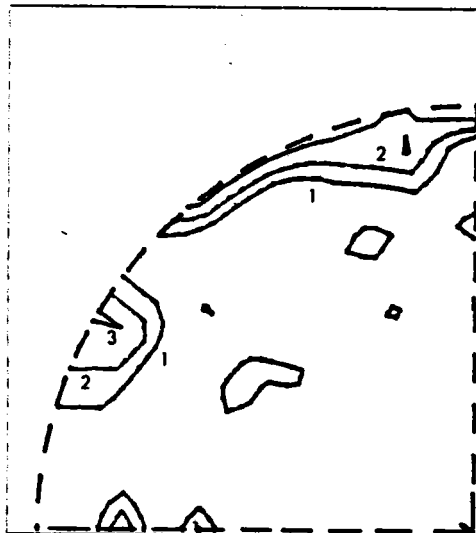
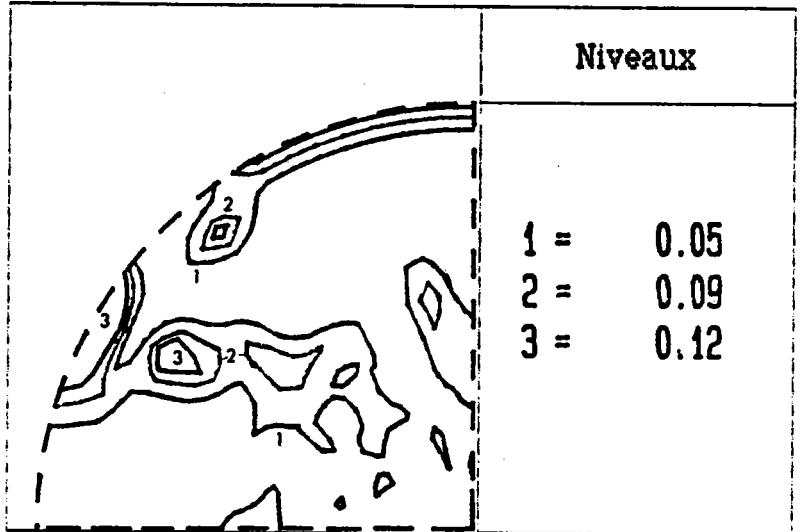
**b) Indicatrice des tailles  
plan : (111)**

**c) Indicatrice des tailles  
plan : (220)**



**Figure IV-15 : Indicatrices des micro-déformations (Cu RP)**

a) Indicatrice des micro-déformations plan : (200)



b) Indicatrice des micro-déformations plan : (111)

c) Indicatrice des micro-déformations plan : (220)

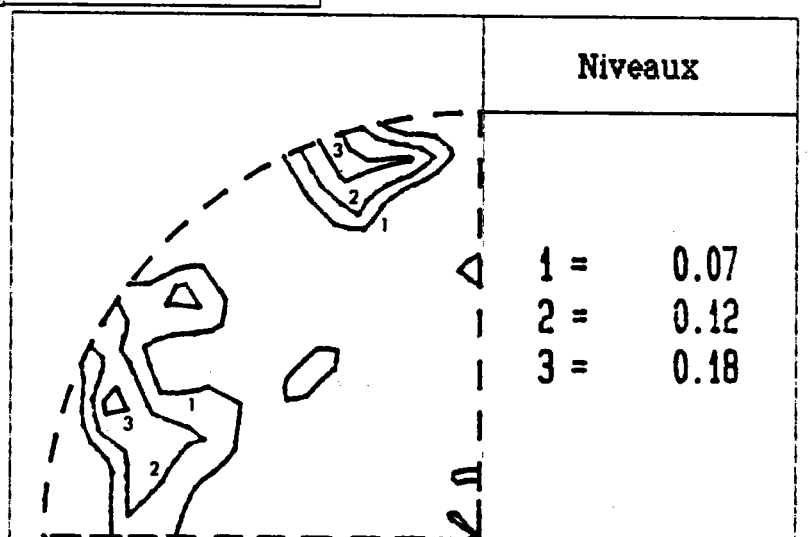
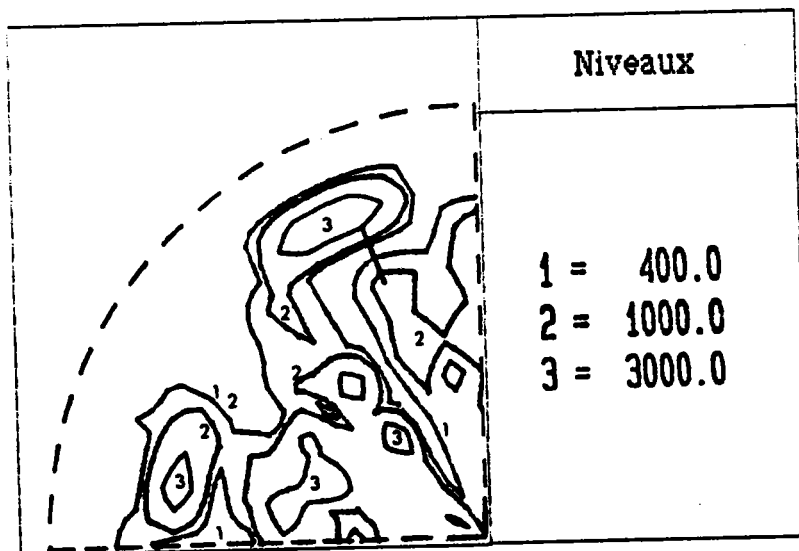
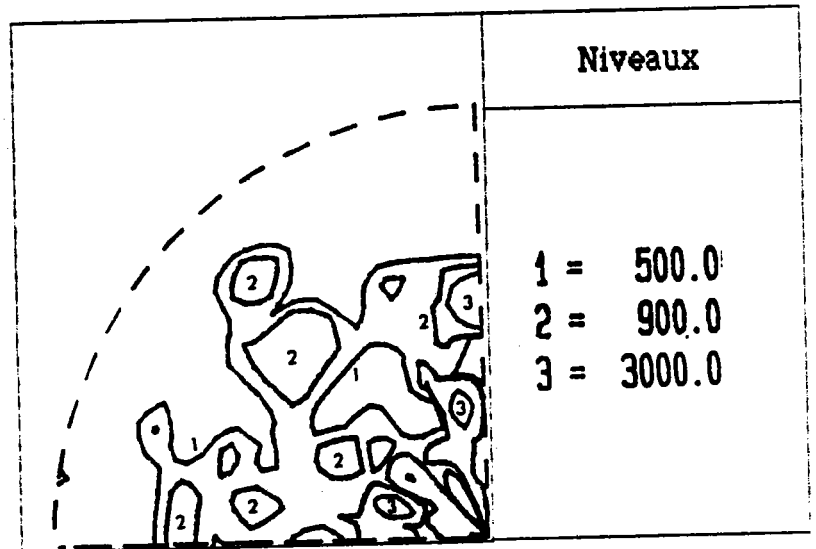


Figure IV-16 : Indicatrices des tailles (aluminium)

a) Indicatrice des tailles  
plan : (200)



b) Indicatrice des tailles  
plan : (111)



#### 5.4. Conclusions :

L'indicatrice des tailles illustre les variations de la taille des domaines de diffraction cohérente. On peut constater qu'il n'y a pas homogénéité de cette grandeur dans l'échantillon. Deux comportements bien distincts sont perceptibles sur certaines indicatrices :

- les lignes de niveaux de la figure de pôles de texture suivent les contours de l'indicatrice des tailles (exemple : cuivre RP plan (111)),
- la taille des domaines de diffraction cohérente varie très rapidement à partir de  $\psi = 0^\circ$  et de façon aléatoire (cas de l'aluminium billé).

L'indicatrice des micro-déformations illustre les variations des micro-déformations. Nous avons précisé que la grandeur obtenue n'est pas directement corrélée à la micro-déformation mesurée par la méthode de Warren-Averbach. Elle doit être interprétée dans le sens d'une variable relative.

Nous avons rappelé au § III.2.2. que l'élargissement d'une raie de diffraction est dû à l'effet combiné de la taille des domaines de diffraction cohérente et des micro-déformations. Les indicatrices de la largeur à mi-hauteur et de la largeur de corde (80%) présentent pour de nombreux plans une symétrie axiale. Elles ne varient qu'avec l'angle de déclinaison  $\psi$ . Il y a compensation des deux causes d'élargissement du profil de raie de diffraction. Cela montre donc que l'indicatrice de la largeur à mi-hauteur ne peut, seule et dans notre cas, nous renseigner sur les effets micro-structuraux.

En conclusion, on peut dire que :

- les indicatrices des micro-déformations et des tailles permettent de déterminer les rayons à  $\phi$  constant selon lesquels la mesure de contrainte ne sera pas perturbée par des effets micro-structuraux, elles peuvent ainsi compléter l'analyse classique des contraintes résiduelles,
- elles permettent une visualisation globale des causes d'élargissement des pics de diffraction,
- elles rendent compte de l'inhomogénéité des échantillons analysés.

Les améliorations à apporter à la construction des indicatrices sont de trois ordres :

- traçage des lignes de niveaux (nombreuses zones à valeur nulle),

- utilisation d'autres méthodes d'analyse à un seul profil de diffraction : méthode de Lebrun et all.<sup>(10)</sup>, méthode de la pente initiale<sup>(11)</sup>,

- séparation des composantes  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$  par une méthode analytique plus précise : Platbrood<sup>(12)</sup>, Delhez et all.<sup>(13)</sup>.

Ces améliorations permettront sans doute d'affiner les observations.

### Remarque :

L'utilisation de la méthode de Warren-Averbach par le biais des indicatrices est un problème complexe à résoudre. En effet, bien que le calcul des coefficients de Fourier ne pose pas de problème majeur par l'utilisation de la transformée de Fourier rapide, il est difficile de gérer l'ensemble de toutes les données de calcul d'un point de vue informatique. La construction d'une indicatrice nécessite au minimum une centaine de point de mesure, le nombre de coefficients de Fourier par profil de raie est de l'ordre de quarante pour la partie réelle et imaginaire. A ces coefficients de Fourier, se rajoutent les données nécessaires à l'exploitation (bornes des pics de diffraction qui doivent être recherchées comme nous l'avons indiqué au chapitre II), les caractéristiques des profils de raie, etc. Il s'ensuit que nous devrions stocker en mémoire des fichiers d'au moins  $(100 \times 45 \times 2 = 9000)$  valeurs réelles, plus les valeurs pour la construction des indicatrices des caractéristiques pour une seule raie de diffraction. Ce nombre doit, au minimum, être multiplié par quatre pour pouvoir effectuer la séparation des effets micro-structuraux (cf. chapitre III). La gestion et l'exploitation d'un tel ensemble de valeur est délicat à mettre en oeuvre et pose de sérieux problèmes informatiques, bien que les micro-ordinateurs actuels permettent le stockage de ce grand nombre de valeurs. Nous avons pu vérifier que la méthode de Warren-Averbach nécessite des traitements particuliers des profils de raie (choix des bornes, régulation des profils de raie,...). Ces traitements sont incompatibles avec la rapidité de calcul et de traitement nécessaires pour la construction d'une indicatrice. Rappelons tout de même que le logiciel développé permet l'analyse de Warren-Averbach en continu pour un maximum de trente positions spatiales ( $\phi, \psi$ ) de l'échantillon.

## **BIBLIOGRAPHIE CHAPITRE IV**

- (1) LEFFERS T., JENSEN D.J., in: Microstructural Characterisation of Materials by Non-Microscopical Techniques (1984), 5th. RISO Int. Symp. Metal. & Mat. Sc., Roskilde, Danemark
- (2) MAURER G., in : Compte Rendu des Journées de Strasbourg , (1985) E.N.S.A.I.S. (Strasbourg )
- (3) HOFFMANN J., NEFF H., SCHOLTES B., MACHERAUCH E., in : N.HELSEN ANDERSEN, MELDRUP et al. : Microstructural Characterisation of Materials by Non-Microscopical Techniques (1984), 5th. RISO Int. Symp. Metal. & Mat. Sc., Roskilde, Danemark
- (4) BRACKMAN C.M., *Cryst. Res. Technol.*, (1985), 20, 593-618
- (5) SPRAUEL J.M., BARRAL M., MAEDER G., in : ICOTOM 7, (1985), 555
- (6) OLIVO O., Thèse de Doctorat, Université de Dijon (1986)
- (7) RACHINGER W.A., *J. Sci. Inst.*, (1948), 25, 254-255
- (8) HEIZMANN J.J., LARUELLE C., VADON A., *Analysis*, (1986), 16, 6, 334-340
- (9) KEIJSER Th. H. de, LANGFORD J.I., MITTEMEIJER E.J., VOGEL A.B.P., *J. Appl. Cryst.*, (1982), 15, 308-314
- (10) LEBRUN J.L., MAEDER G., (1980), Communication à la réunion du Groupement Français pour l'Analyse des Contraintes par Diffractométrie X.
- (11) NANDI R.K., KUO H.K., SCHLOSBERG W., WISSLER G., COHEN J.B., CRIST B. Jr, *J. Appl. Cryst.*, (1984), 17, 22-26
- (12) PLATBROOD G., *J. Appl. Cryst.*, (1983), 16, 24-27
- (13) DELHEZ R., MITTEMEIJER E.J., *J. Appl. Cryst.*, (1975), 8, 609-611

## **CHAPITRE V :**

# **EXPLOITATION DES INDICATRICES**

### **Plan**

#### **Introduction**

#### **1. Micro-structure des matériaux déformés plastiquement**

- 1.1. Distribution des dislocations**
- 1.2. Interprétation des grandeurs mesurées par diffraction des rayons X**

#### **2. Relation taille de domaine ↔ micro-déformation**

- 2.1. Methodologie**
- 2.2. Mise en évidence de la relation**
- 2.3. Extension de la relation taille ↔ micro-déformation**
- 2.4. Commentaires sur les grandeurs mesurées**
- 2.5. Relation avec la densité de dislocation**
- 2.6. Interprétation du terme  $\alpha_{hk}$**

#### **3. Etude des relations intensité - taille des domaines**

- 3.1. Préparation des échantillons**
- 3.2. Résultats**
- 3.3. Etude des variations de l'intensité**

#### **4. Application à l'étude des contraintes résiduelles**

- 4.1. Distributions en fonction de  $\sin^2\psi$**
- 4.2. Hypothèses de travail**
- 4.3. Analyse des oscillations**

#### **5. Conclusions du chapitre**

#### **Bibliographie**

## Introduction

Comme nous l'avons précisé au chapitre précédent, les indicatrices de taille et de micro-déformation ne peuvent être exploitées que de façon qualitative par une analyse des lignes de niveaux.

Nous avons ainsi pu constater qu'il existe des corrélations entre certaines figures, plus particulièrement entre les indicatrices des taille/micro-déformation et la figure de pôles. Ces remarques nous ont conduit à étudier de façon approfondie les données brutes servant à la construction des indicatrices.

Cette étude, dont la démarche est purement descriptive, vise à formaliser analytiquement les corrélations observées. Nous présentons également différents types d'études qui peuvent être menées grâce aux indicatrices. C'est ainsi que ce chapitre se divise en trois parties :

- évolution des paramètres de la relation taille de domaine ↔ micro-déformation,
- évolution de l'intensité diffractée,
- évolution des grandeurs mesurées selon la direction de mesure et application à l'étude des contraintes résiduelles.

Ces études sont effectuées sur divers types d'échantillons.

Nous présentons, avant l'étude proprement dite des relations taille de domaine ↔ micro-déformation, une étude bibliographique concernant la déformation plastique des polycristaux. Nous tentons d'y clarifier les notions de domaines de diffraction cohérente et de micro-déformation.

Dans la construction des indicatrices des micro-déformations et de la taille des domaines de diffraction cohérente, nous n'avons tenté aucune description probable du type de déformation et de la nature des domaines autres que celles couramment admises dans le cadre de l'analyse de l'élargissement de raie de diffraction. Notre souci est d'éclaircir par une étude bibliographique la nature des causes d'élargissement au regard des observations microscopiques publiées dans le cas des matériaux CFC et des progrès réalisés dans l'étude de la déformation plastique des polycristaux.

A ce jour, les analyses micro-structurales et les théories de la déformation plastique permettent de distinguer trois principaux types de domaines aux propriétés différentes :

- le grain,
- la cellule,
- le domaine à glissement plastique uniforme homogène.

Nous pouvons, sans grands risques, retirer le grain comme description probable du domaine de diffraction cohérente du fait que dans le cas des matériaux massifs polycristallins, aucune étude n'a à ce jour pu corréler la taille des grains aux domaines de diffraction cohérente, sauf peut-être dans le cas de matériaux parfaitement recuits à petits grains.

Il nous reste donc deux types de domaine dont il conviendra de définir la nature et leurs propriétés vis-a-vis de la diffraction des rayons X.

Nous pensons que l'intérêt porté aux méthodes d'analyse à partir de l'élargissement des raies de diffraction ne pourra progresser que si les résultats obtenus par les théories récentes de l'écoulement plastique sont pris en compte. En effet, la description classique de la micro-structure issue de l'analyse de diffraction, est souvent en butte à des problèmes d'interprétation inhérente à la théorie développée en ce sens. En particulier, la plupart des grandeurs atteintes sont des grandeurs scalaires, alors que l'anisotropie des milieux polycristallins conduit généralement à l'utilisation de grandeurs tensorielles.

On compte aujourd'hui deux "écoles" dans l'analyse des profils de raies de diffraction des rayons X.

La première utilise les concepts classiques développés par Warren et Averbach dont nous avons développé la théorie en annexe. On a pu constater que les problèmes liés à l'interprétation des résultats de cette théorie appliquée aux matériaux déformés plastiquement ont fait que son intérêt s'est grandement atténué cette dernière décennie.

La seconde école, issue des travaux de Krivogiaz<sup>(1)</sup>, Krivogiaz et Ryaboshapka<sup>(2)</sup>, Wilkens<sup>(3)</sup> utilisent les concepts de dislocations et de distribution des dislocations pour parvenir à une théorie cohérente de la diffraction des rayons X.

Les oppositions entre ces deux écoles reposent essentiellement sur l'interprétation des résultats et dans la description du milieu polycristallin.

La théorie de Wilkens a été appliquée avec succès dans le cas de monocristaux déformés plastiquement. Les polycristaux présentent, comme le nous le rappellerons par la suite, un réseau de dislocations complexe, difficile à prendre en compte par la théorie de Wilkens. Aussi, utiliserons nous par la suite les formalismes de la méthode de Warren-Averbach et de Langford présentés dans les chapitres précédents.

## **1. MICRO-STRUCTURE DES MATERIAUX DEFORMES PLASTIQUEMENT :**

### **1.1. Distribution des dislocations :**

L'étude de la distribution des dislocations dans les matériaux a été entreprise dès l'apparition du concept de dislocation. Il a été démontré que dans tout cristal, il existe un réseau tridimensionnel de dislocations, appelé réseau de Franck<sup>(4)</sup>. Cette hypothèse est à rapprocher de l'hypothèse de Darwin<sup>(5)(6)</sup> qui suppose l'existence

d'une mosaïque de micro-cristaux. Les zones limitées par les dislocations sont donc comparables à des zones parfaitement cristallines. Dans un cristal bien recuit, le "pas" moyen de ce réseau est de l'ordre du micromètre.

Dans un matériau polycristallin déformé plastiquement, la distribution des dislocations est hétérogène. L'une des distributions généralement observée est une sous-structure cellulaire de dislocations<sup>(7)</sup>. Le terme sous-structure indique qu'il s'agit d'une structure intragranulaire. L'évolution et la forme de cette sous-structure dépend du type de matériau et de déformation, des conditions physiques. Le développement de cette sous-structure est considéré comme le résultat de la minimisation de l'énergie totale de déformation. La tendance, présentée par les dislocations à s'arranger dans un état d'équilibre énergétique minimum, est fonction de paramètres spécifiques tels que vecteur de Burgers des dislocations, système de glissement actif, habilité du matériau à accommoder contrainte et déformation, etc... L'une des caractéristiques influençant l'apparition de cette sous-structure est l'énergie de défaut d'empilement (stacking fault energy).

Pour les métaux à haute énergie de défaut d'empilement, cette sous-structure se développe dès le début de la déformation et en fonction de la déformation. Ces cellules sont peu désorientées (0,5 à 1°). Les dimensions de ces cellules se réduisent généralement avec l'avancement de la déformation.

Pour les métaux à basse énergie de défaut d'empilement, elle n'apparaît que pour des déformations plus élevées. Pour des déformations plus faibles, on constate généralement une relative homogénéité de la distribution des dislocations et l'apparition de déformation par maclage.

Etudions de plus près le cas des matériaux polycristallins de type C.F.C. comme le cuivre et l'aluminium.

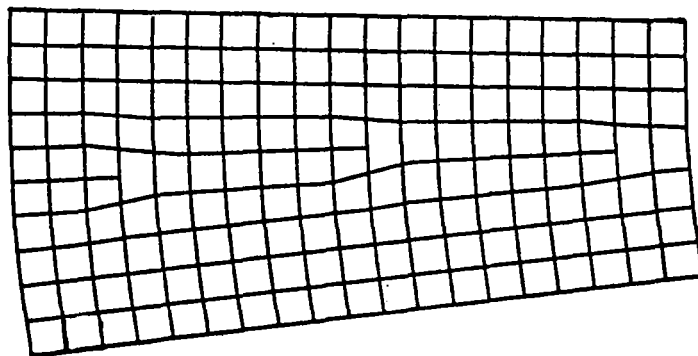


Figure V-1: Joint de faible désorientation

La déformation plastique de ces matériaux provoque la multiplication de dislocations. Celles-ci s'arrangent de façon hétérogène pour former une sous-structure de type cellulaire. Il a été remarqué que la taille de ces cellules est indépendante de la taille du grain. La densité de dislocation dans les parois des cellules (cell wall) est très largement supérieure à la densité de dislocation dans la cellule. Les parois de dislocations ont d'ailleurs tendance à se former sur les plans de glissements actifs de la déformation plastique. L'analyse de clichés micrographiques montre que, généralement, les parois de dislocations sont plus fines dans l'aluminium que dans le cuivre<sup>(8)</sup>.

Les parois de dislocations agissent alors comme des joints de faible désorientation (small angle boundary) ou sous-joint, mais, bien entendu, elles ont une structure plus complexe (cf. figure V-1). Il en résulte une désorientation entre chaque cellule pouvant atteindre 1°. Cette structure cellulaire peut donc rendre compte de la désorientation relative de certaines régions du grain. La désorientation entre cellule a d'ailleurs tendance à croître avec la déformation, alors que leur taille a tendance à décroître vers une valeur limite appelée taille de saturation.

Le tableau V-1 présente des exemples de dimension des cellules<sup>(9)</sup>.

matériau	déformation 10%	déformation 25%
Aluminium	3 $\mu\text{m}$	1,8 - 2,8 $\mu\text{m}$
Cuivre	1 $\mu\text{m}$	0,6 - 0,9 $\mu\text{m}$

Tableau V-1 : Exemple de taille de cellules (d'après Swann)

Le niveau d'énergie de défaut d'empilement détermine, en partie, la taille des cellules et donc la distribution des dislocations. Comme nous l'avons précisé, la diminution de l'énergie de défaut d'empilement rend difficile la production d'une structure cellulaire, car leur développement nécessiterait une déformation très importante. La fréquence de glissement dévié, proportionnel à l'énergie de défaut d'empilement, est donnée par la relation<sup>(10)</sup>  $\gamma/\mu b$  où  $\gamma$  est l'énergie de défaut d'empilement,  $\mu$  le module de cisaillement et  $b$  le vecteur de Burgers.

On peut donc penser que les structures cellulaires apparaissent d'autant plus facilement que les dislocations changent de plan de glissement.



## 1.2. Interprétation des grandeurs mesurées par diffraction des rayons X :

### 1.2.1. Micro-déformation :

Les frontières des cellules, et *a fortiori* celles d'un grain, sont formées d'un assemblage complexe de dislocations. Les rayons X sont sensibles à ces zones élastiquement déformées seulement en fin des profils de raie de diffraction X. L'intérieur des cellules contient également des dislocations intervenant lors du processus de déformation. Celles-ci sont localisées sur les plans de glissement facile et sur les autres plans de glissement possible comme le montrent les travaux de Wang Yuming et all.<sup>(11)</sup>. Ces dislocations, en densité bien plus faible que les dislocations de parois, agissent sur le profil de raie de diffraction du fait du champ de déformation qui leur est associé. Les micro-déformations mesurées sont donc dues aux micro-distorsions intra-cellulaires. Les parois des cellules peuvent devenir de taille relativement importantes par rapport à la cellule. La déformation associée à cette zone perturbée et à son voisinage se retrouve dans les queues des raies de diffraction ou participe au bruit de fond du profil. Cette interprétation est confirmée par les résultats de J.L. Lebrun et all.<sup>(12)</sup> et Wang Yuming et all.

Les variations de la micro-déformation sont généralement attribuées aux variations de densité des dislocations.

### Remarque :

Dans le modèle proposé par Wilkens<sup>(34)</sup> et ses collaborateurs, le profil de raie de diffraction X est décomposé en deux parties distinctes lorsque le matériau analysé est supposé être formé de cellules de dislocations. La première partie est associée aux dislocations se situant à l'intérieur de la cellule, et la seconde partie est associée aux dislocations contenues dans les parois des cellules. Le profil de raie présente alors une forme disymétrique due au fait que les contraintes sont de nature et de grandeur différentes. Compte tenu de ce modèle, la densité de dislocation peut être obtenue après une séparation de ces deux "sous-profils". Bien entendu la proportion de chacun de ces "sous-profils" est directement relié aux fractions volumiques des parois des cellules et de la zone intra-cellulaire.

Wilkens<sup>(3)</sup> montre par ailleurs que l'hypothèse d'une distribution de type gaussienne des micro-déformations n'est pas réaliste. En effet, à partir d'étude théorique il montre que le profil de raie associé à une distribution de dislocation varie en  $1/|s|^3$  où  $s$  représente la variable de l'espace réciproque. Une telle variation conduit donc à un profil élargi à longue distance. Cette conclusion est en total désaccord avec les hypothèses de bases des méthodes classiques de Warren-Averbach et des analyses des largeurs intégrales.

Wilkens<sup>(14)</sup> montre également que l'effet crochet (hook effect) est une conséquence inévitable de la présence de sous-joints de grain. Rappelons que cet effet est

considéré dans la méthode de Warren-Averbach comme le résultat de troncature et d'erreurs expérimentales sur les profils de raie.

### 1.2.2. Taille de domaine de diffraction cohérente :

Ce problème apparaît d'après la littérature tout aussi controversé du fait de la difficulté de corroborer observations microscopiques et mesures effectives. La notion de domaine de diffraction cohérente trouve une définition plus précise dans le cas de matériaux pulvérulents où les "frontières" du domaine sont rigoureusement déterminées. Dans le cas de matériaux polycristallins massifs, cette notion devient plus floue. Il est admis, généralement, que la déformation plastique des matériaux implique la subdivision du matériau en domaines, dont les dimensions sont très inférieures à celles des grains. A la notion de domaine de diffraction cohérente correspond une description intragranulaire. Des études expérimentales et théoriques ont montré l'existence de divers types de domaines intragranulaires :

- structure cellulaire par analyse microscopique,
- domaine à glissement uniforme intragranulaire.

L'étude bibliographique nous montre que la taille des domaines de diffraction cohérente a souvent été corrélée à la taille des cellules développées lors de la déformation plastique. Wagner et al.<sup>(13)</sup> trouvent en effet de fortes similitudes entre les valeurs théoriques obtenues par une méthode des largeurs intégrales et l'observation microscopique.

Néanmoins, peu d'auteurs ont retrouvé de telles similitudes. Nous avons également précisé que les parois de cellules se comportaient comme des sous-joints de grain de nature complexe. Si l'on suppose alors que ces sous-joints complexes agissent de la même façon qu'un sous-joint simple, nous sommes à même de penser que les problèmes soulevés par Wilkens<sup>(14)</sup> puissent se poser, à savoir qu'un sous-joint ne peut pas toujours être une représentation de frontière de domaine de diffraction cohérente. En effet, Wilkens montre que les sous-joints de faible désorientation ne peuvent être substitués à la notion de frontière par la diffraction des rayons X que si la distance séparant deux frontières de ce type est très petite devant  $1/\sqrt{\rho}$  où  $\rho$  est la densité de dislocation.

On voit donc que la notion de paroi de dislocation n'est pas une description toujours adéquate d'une frontière de domaine de diffraction cohérente. Une autre alternative consiste à dire que le domaine de diffraction cohérente correspond aux domaines à glissement uniforme défini par la théorie de l'écoulement plastique.

En effet, il a été montré que différents systèmes de glissement opèrent dans un grain (glissement multiple hétérogène)<sup>(15)</sup>. Le grain est alors supposé être constitué

de zones (ou domaines ou sous-grains) où le glissement est supposé multiple uniforme. Ces structures intragranulaires résultent généralement de la décomposition de gros grains alors que dans les petits grains la déformation est homogène. L'une des conséquences est une rotation différente des réseaux de chacun des sous-grains. Cette configuration a été démontrée théoriquement comme étant celle qui est énergétiquement favorable <sup>(16)</sup> (par rapport au glissement multiple homogène dans le grain comme on le suppose dans la théorie de Taylor). La désorientation des sous-grains peut varier de 0 à 1° degré, voire plus en cas de forte déformation.

L'existence de ces domaines intragranulaires à glissement uniforme a été démontrée expérimentalement par des techniques d'analyse microscopique <sup>(17)</sup> (microsonde de Kossel <sup>(18)</sup>) et théoriquement comme moyen d'accommodation plastique. La nature des frontières de ces domaines n'a pu être définie avec précision, mais on ne peut douter de sa nature complexe. Des travaux récents ont d'ailleurs montré la nature tout à fait comparable entre le plan d'habitat, défini par le plan commun à deux domaines et la paroi de dislocation <sup>(19)</sup>. En d'autres termes, ces domaines pourraient correspondre ou représenter une cellule de dislocation.

Dans la mesure où ces domaines sont désorientés les uns par rapport aux autres, ils diffractent vis-à-vis des rayons X dans des directions différentes de l'espace. Si la désorientation n'est pas trop importante, l'effet de désorientation se retrouve dans la dispersion autour des directions préférentielles de texture.

### 1.3.2. Relations avec d'autres grandeurs :

La déformation quadratique moyenne est liée à la densité de dislocation par la relation <sup>(20)</sup> :

$$\rho = \frac{\zeta_{hkl}^3}{a_0^2} \langle e^2 \rangle_{hkl} \quad V-1$$

où  $\zeta_{hkl}$  est un paramètre dont la valeur dépend de l'arrangement des dislocations. Or sa variation n'est pas connue et en général, on suppose que  $\zeta_{hkl}$  est indépendant, ou, tout au plus, varie peu avec l'arrangement des dislocations.

Une autre relation, en l'absence d'empilement de dislocation trop important et de polygonisation a été proposée <sup>(21)</sup> :

$$\rho = (\rho_s \cdot \rho_D)^{\frac{1}{2}} = \frac{2\sqrt{3}}{D_{eff} \cdot b} \langle e^2 \rangle^{\frac{1}{2}} \quad V-2$$

où  $D_{eff}$  : taille réelle du domaine,  
 $b$  : vecteur de Burgers.

L'énergie de défaut d'empilement est donnée par la relation<sup>(22)</sup> :

$$\gamma = \frac{\chi_{hkl} \cdot G \cdot a_0}{2\pi\sqrt{3}} \omega_0 \frac{e^2}{\alpha} \quad V-3$$

avec :

- G : module de cisaillement,
- a<sub>0</sub> : paramètre de maille,
- ω<sub>0</sub> : constante dépendant de l'interaction étendue limitant le ruban de défaut d'empilement et des constantes élastiques (pour un cristal isotrope ω<sub>0</sub> = 1/12 quand on néglige l'effet des dislocations étendues),
- α : densité de fautes d'empilement.

Des valeurs de ω<sub>0</sub> variant de 0,04 à 0,24 ont été obtenues pour le cuivre<sup>(23)</sup>.

#### Remarque :

Lorsque l'on parle de densité de dislocations, il faut avoir à l'esprit que les dislocations que nous faisons intervenir sont les dislocations bloquées après le processus de déformation, dans l'état déchargé. En aucun cas, ces dislocations ne doivent être confondues avec les dislocations mobiles qui participent à la déformation plastique. Il a par ailleurs été démontré qu'au cours du déchargement, le nombre de dislocations contenu dans les empilements de dislocation diminue de façon très sensible<sup>(24)</sup>. Bien entendu, la densité de dislocation bloquée est liée à la densité de dislocations mobiles apparues au cours du chargement<sup>(26)</sup>.

## **2. RELATION TAILLE DE DOMAINE ↔ MICRO-DEFORMATION :**

### **2.1. Méthodologie :**

Comme nous l'avons indiqué au chapitre précédent, les profils de raie de diffraction X ne peuvent être analysés en terme de composantes convoluées de Cauchy et de Gauss que si le facteur de forme de ce profil est compris dans les limites suivantes :

$$0,63662 < f < 0,93949$$

Tous les profils de diffraction analysés aux positions angulaires (θ, ψ) ne respectent malheureusement pas cette condition. Il peut arriver que les composantes de Cauchy ou de Gauss ne puissent être calculées.

Les résultats présentés dans la suite de cette étude ne concernent donc que les mesu-

res où les effets de taille et de micro-déformation ont pu être séparés sans ambiguïté. Le nombre de points correspondant est compris, généralement, entre 40 et 80% du nombre total de points de mesures imposés initialement. Outre le fait que le profil ne peut être décrit par une fonction de Voigt, ceci peut s'expliquer par d'autres facteurs :

- la qualité des profils ( $I_{\max} < 2 I_{BF}$ ) ne permet pas une mesure précise des caractéristiques des profils,

- le temps de comptage relativement court, ne nous permet pas d'assurer, pour toutes les raies, une distribution représentative des phénomènes observés.

L'étude des résultats obtenus pour l'échantillon de cuivre recuit laminé (Cu RP) et d'aluminium 7075 état T6 billé nous a permis d'établir une relation simple entre la micro-déformation et la taille des domaines de diffraction cohérente.

## 2.2. Mise en évidence de la relation :

### 2.2.1. Conditions expérimentales et échantillons :

Les conditions expérimentales sont les suivantes :

- anticathode : Cu  $K\alpha$
- monochromateur avant graphite :  $K\alpha_{1-2}$
- temps de mesure : 240 secondes par point
- rotation  $\psi$  :  $0 < \psi < 60^\circ$ ,  $\Delta\psi = 5^\circ$
- rotation  $\phi$  :  $0 < \phi < 90^\circ$ ,  $\Delta\phi = 10^\circ$
- fente collimateur : 0,4 x 0,8 mm.

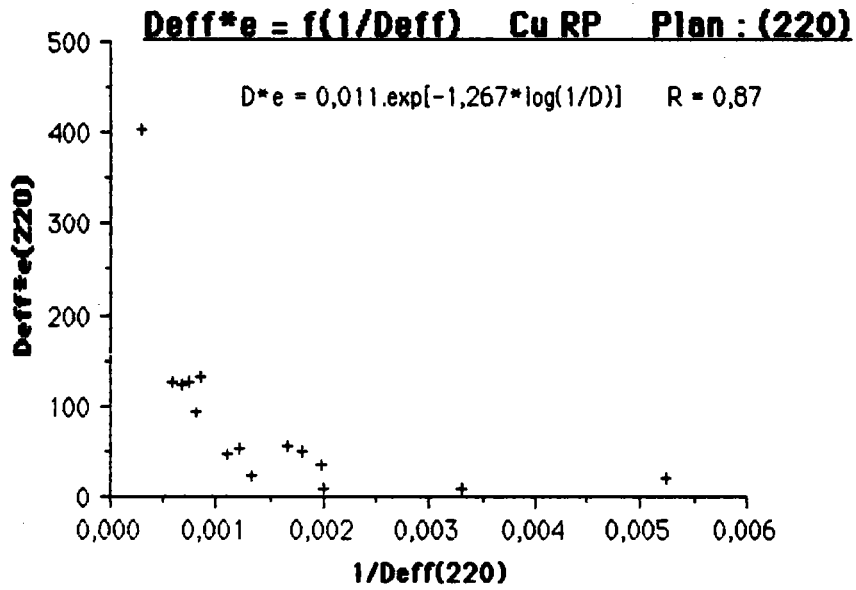
Les échantillons utilisés sont :

- aluminium 7075 état T6 billé ( $\sigma_p = - 75$  MPa)
- cuivre recuit laminé 80% (Cu RP).

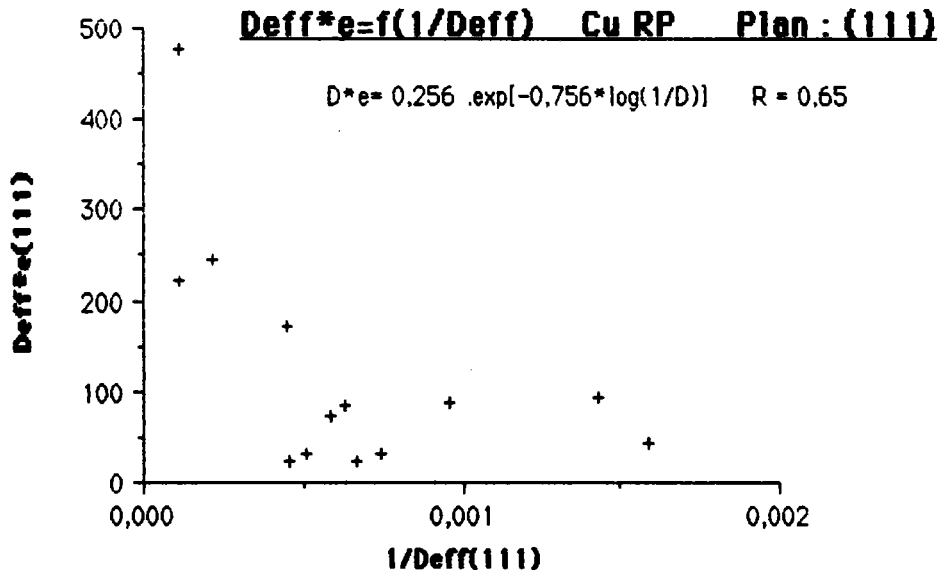
Les plans visés lors de la mesure des indicatrices pour l'échantillon d'aluminium sont les plans (200), (111) et (220). Les figures V-2a...c présentent les résultats obtenus. Dans le cas du cuivre les plans visés sont identiques. Les figures V-3a...c présentent les résultats obtenus.

### Remarque :

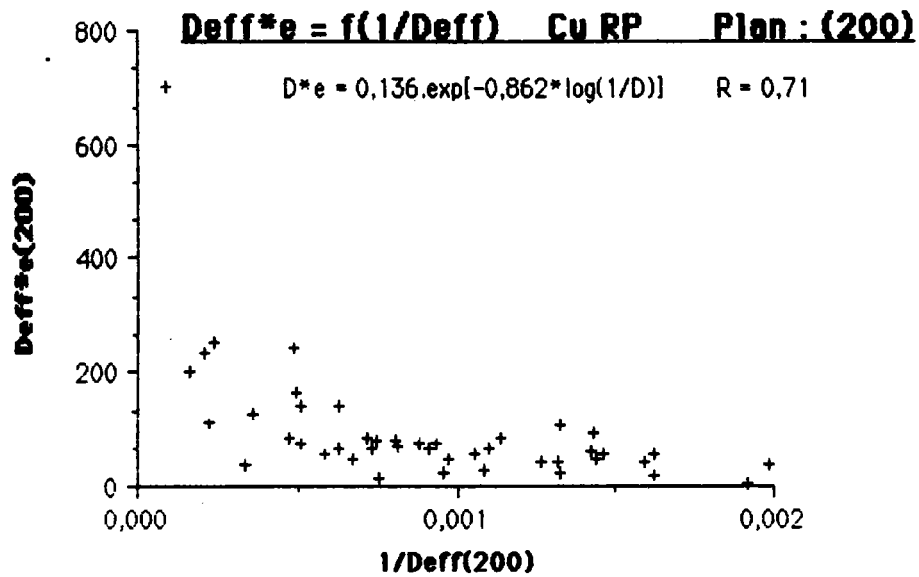
Pour des raisons de commodité d'écriture et de traçage des figures, la micro-déformation est à multiplier systématiquement par  $10^{-3}$ .



**Figure V-2a : Cuivre recuit laminé 80 % Cu RP plan : (220)**



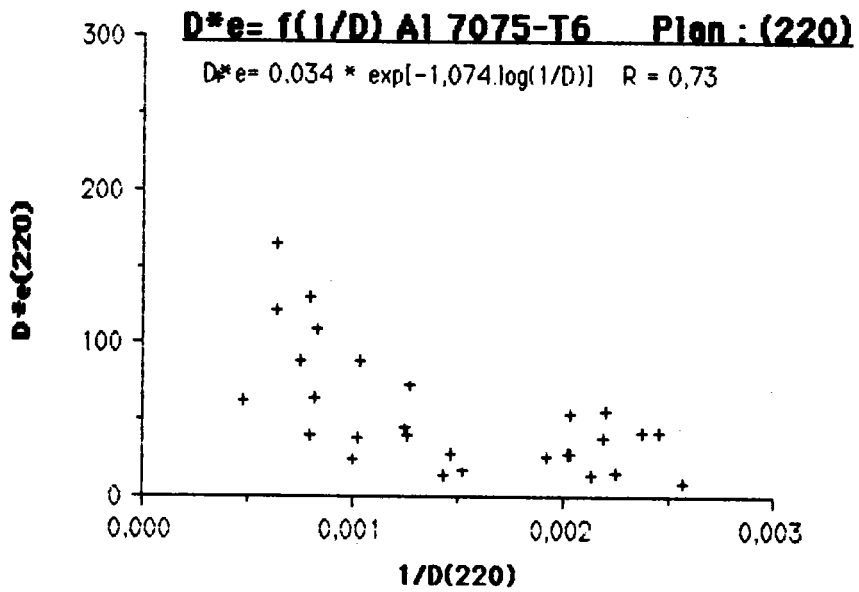
**Figure V-2b : Cuivre recuit laminé 80 % Cu RP plan : (111)**



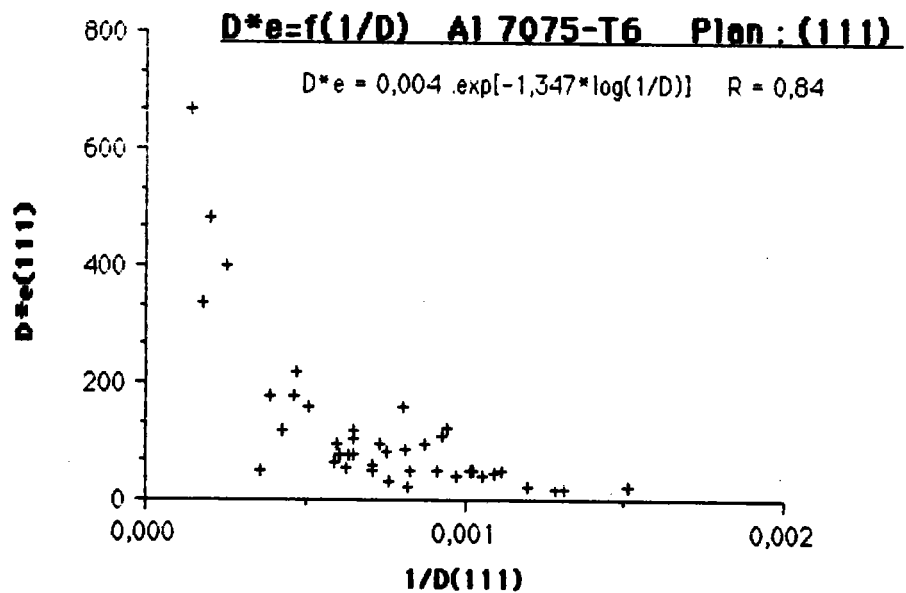
**Figure V-2c : Cuivre recuit laminé 80 % Cu RP plan : (200)**

Plan (hkl)	(111)	(200)	(220)
$a_{hkl}$	0,756	0,862	1,267
$K^*_{hkl}$	0,256	0,136	0,011

**Tableau V-2 : Coefficients  $a_{hkl}$  et  $K^*_{hkl}$  Cu RP**

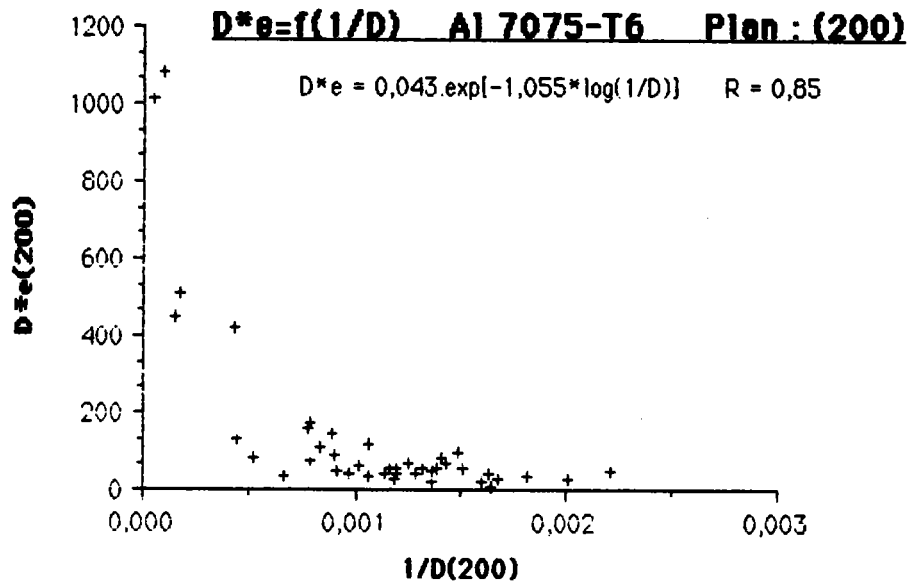


**Figure V-3a: Aluminium 7075-T6 billé plan : (220)**



**Figure V-3b: Aluminium 7075-T6 billé plan : (111)**





**Figure V-3c: Aluminium 7075-T6 billé plan : (200)**

Plan (hkl)	(111)	(200)	(220)
$a_{hkl}$	1,347	1,055	1,074
$K^*_{hkl}$	0,004	0,043	0,034

**Tableau V-3: Coefficients  $a_{hkl}$  et  $K^*_{hkl}$  Al 7075-T6 billé**

### 2.2.2 Analyse :

Les figures V-2a...c et V3a...c montrent clairement qu'il existe une relation entre la taille des domaines de diffraction cohérente et la micro-déformation.

Pour des raisons pratiques, nous avons représenté sur ces figures les grandeurs :

- ordonnée :  $D_{\text{eff}} \cdot e$
- abscisse :  $1/D_{\text{eff}}$

Cette relation peut se mettre sous la forme générale suivante quel que soit le plan (hkl) de mesure et l'échantillon :

$$\tilde{e} = K_{\text{hkl}}^* \cdot e^{(a_{\text{hkl}} - 1) \cdot \log D_{\text{eff}}} \quad \text{V-4}$$

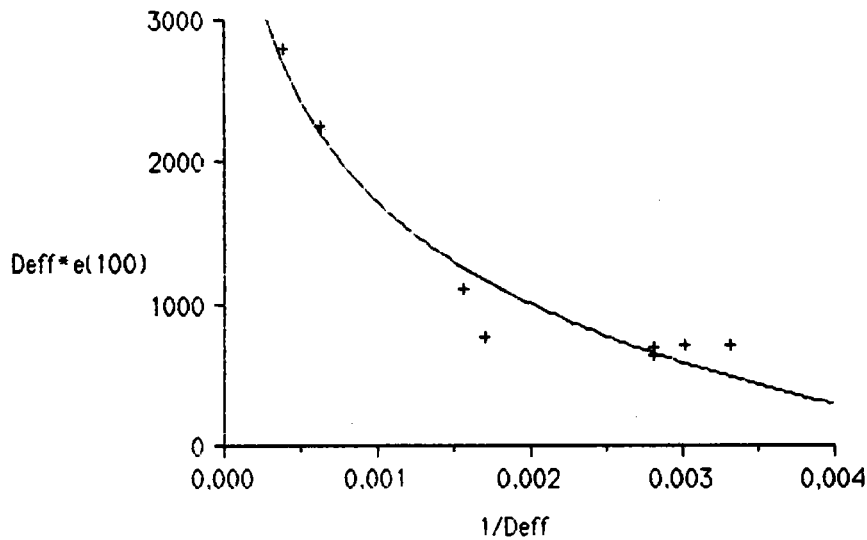
Cette relation fait intervenir les constantes  $K_{\text{hkl}}^*$  et  $a_{\text{hkl}}$ . On peut remarquer que la dimension de  $K_{\text{hkl}}^*$  est équivalente à celle d'une déformation. Elles sont dépendantes du plan de diffraction (hkl) visé. C'est pourquoi nous avons cherché une corrélation entre le type de plan visé et ces constantes.

### Remarques :

En examinant les travaux de R.J. De Angelis et C.N.J. Wagner (d'après D.E. Mikkola et all.<sup>(25)</sup>), nous avons pu retrouver une relation équivalente à partir de leurs mesures. Il semble que le nombre de mesures ait été insuffisant pour asseoir de façon rigoureuse la relation mise en évidence entre taille de domaine et micro-déformation. En effet la courbe équivalente obtenue avec leurs résultats est présentée figure V-4.

Cette figure relie en fait la micro-déformation au sens de Warren-Averbach pour une longueur de colonne de 50 angstroms à la taille des domaines de diffraction cohérente. Il est à noter que cette figure est construite à partir de plusieurs mesures provenant d'échantillons de cuivre ayant subi des traitements mécaniques différents. Nous avons dans ce cas :

$$- K_{\text{hkl}}^* = 9,986 \cdot 10^{-3} \text{ et } a_{\text{hkl}} = 0,721$$



**Figure V-4 : Relation micro-déformation ↔ taille de domaine (d'après Wagner et al.)**

Les valeurs de taille et de micro-déformation ont été obtenues pour une déformation macroscopique donnée, mais pour une position angulaire ( $\phi, \psi$ ) fixe. Dans nos manipulations, la position angulaire ( $\phi, \psi$ ) de l'échantillon est variable.

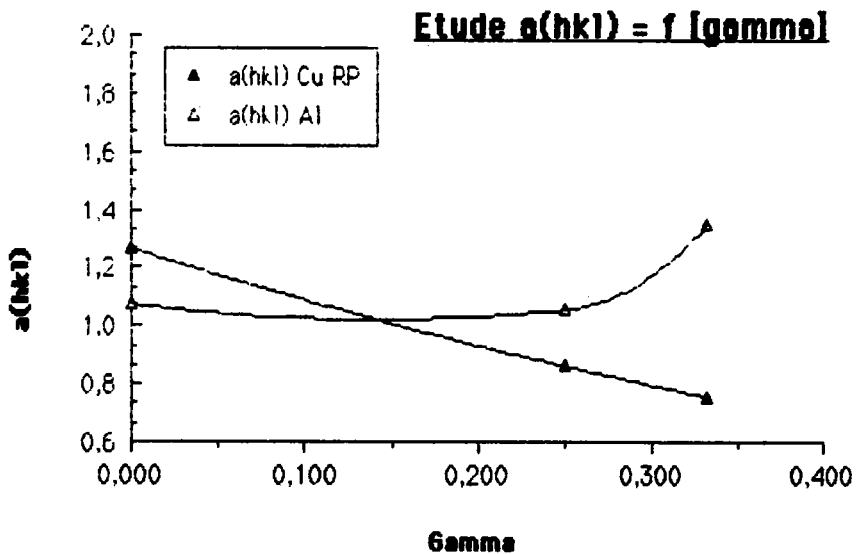
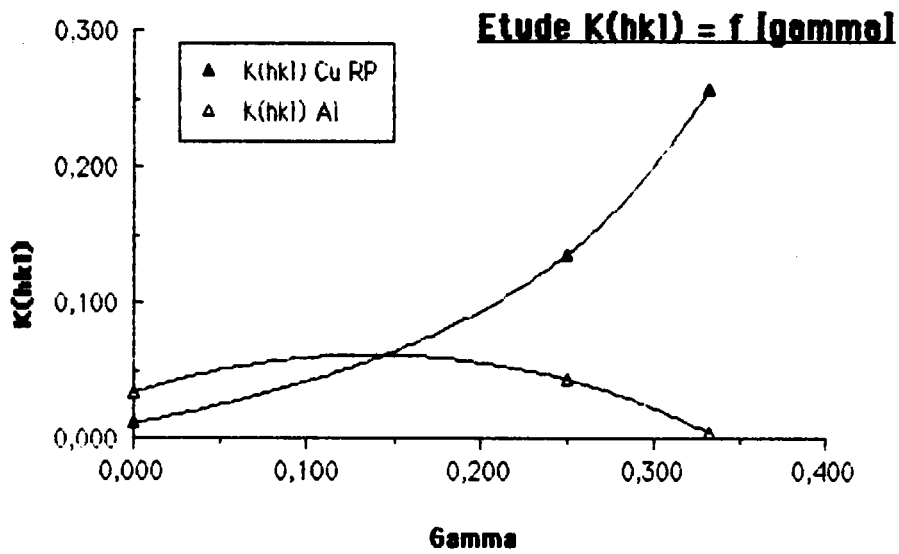
### 2.2.3. Relation entre les constantes :

L'une des grandeurs permettant de caractériser un plan de diffraction est le facteur d'orientation  $\Gamma(hkl)$  défini par la relation entre les indices de Miller :

$$\Gamma(hkl) = \frac{h^2 k^2 + k^2 l^2 + h^2 l^2}{(h^2 + k^2 + l^2)^2} \quad V-5$$

Les figures V-5a et b illustrent les variations des constantes en fonction de  $\Gamma(hkl)$ . On peut constater que les courbes présentent des variations proportionnelles opposées pour les deux échantillons. En effet, dans le cas du cuivre Cu RP et de l'aluminium, nous remarquons que les constantes  $a_{hkl}$  et  $K_{hkl}^*$  varient de façon opposée. Cette similitude de comportement nous a conduit à rechercher une relation entre ces coefficients.

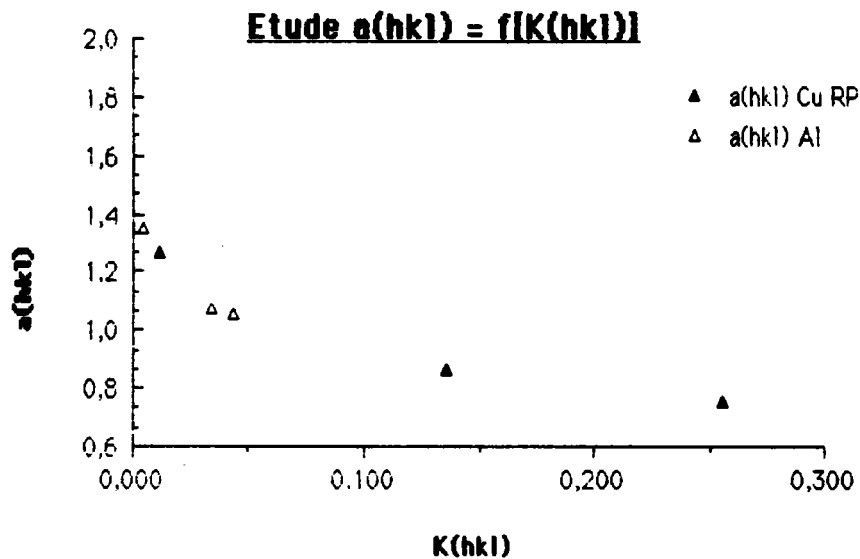
Aucune relation simple n'a pu être dégagée en fonction du facteur d'orientation  $\Gamma(hkl)$ .



**Figures V-5a,b : Courbes  $K_{hkl}^*$  et  $a_{hkl}$  en fonction de  $\gamma(hkl)$**

A partir des valeurs obtenues nous avons tracé la courbe figure V-6 illustrant les variations de  $a_{hkl}$  et de  $K_{hkl}^*$ .

Nous constatons que quel que soit l'échantillon et le plan de diffraction visé, il existe une relation simple entre les constantes précédemment déterminées.



**Figure V-6 : Courbe  $K_{hkl}^*$  en fonction de  $a_{hkl}$ .**

Il semble donc que les coefficients  $K_{hkl}^*$  et  $a_{hkl}$  représentent des caractéristiques des échantillons dans leur état actuel. La relation liant  $a_{hkl}$  et  $K_{hkl}^*$  est de la forme :

$$a_{hkl} = p \cdot e^{-q \cdot \log K_{hkl}^*} \quad \text{V-6}$$

Nous donnerons par la suite les valeurs des constantes  $p$  et  $q$ .

#### 2.2.4. Modification de la relation :

L'hypothèse d'une distribution gaussienne des micro-déformations conduit à une expression différente entre taille des domaines de diffraction cohérente et micro-déformation. En effet, comme nous l'indiquions au chapitre III, nous avons dans ce cas :

$$\tilde{e} = \frac{\sqrt{2\pi}}{2} \langle e^2 \rangle^{1/2} \quad \text{V-7}$$

D'autre part, les échantillons analysés présentent une déformation macroscopique moyenne due au champ de contraintes résiduelles induites par le traitement. La micro-déformation  $\langle e^2 \rangle^{1/2}$  représente alors la moyenne quadratique des déformations autour de la valeur macroscopique moyenne. Nous avons donc :

$$\tilde{\epsilon} = \frac{\sqrt{2\pi}}{2} \{ \langle e^2 \rangle - \langle e \rangle^2 \}^{1/2} \quad \text{V-8}$$

En supposant l'hypothèse de distribution gaussienne vérifiée, nous pouvons écrire :

$$\{ \langle e^2 \rangle - \langle e \rangle^2 \}^{\frac{1}{2}} = K_{hkl} \cdot e^{(a_{hkl} - 1) \cdot \log D_{eff}} \quad \text{V-9}$$

$$\text{avec } K_{hkl} = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \cdot K_{hkl}^*$$

Cette relation montre que la déformation quadratique moyenne est proportionnelle à la taille du domaine de diffraction cohérente.

### 2.3. Extension de la relation taille ↔ micro-déformation :

#### 2.3.1. Décomposition de la largeur intégrale de Cauchy :

La largeur intégrale de Cauchy a été jusqu'ici associée à la seule taille des domaines de diffraction cohérente. En fait une analyse plus fine permet de montrer que ce terme se découple en deux parties<sup>(26)</sup> :

- $D^T$  : taille réelle du domaine dans la direction perpendiculaire au plan (hkl) visé,
- $D^F$  : effet de taille lié aux fautes d'empilement et de maillage.

En fait de taille liée aux fautes d'empilement,  $D^F$  est l'image de la déformation associée aux fautes d'empilement intrinsèques et extrinsèques, et aux fautes de maillage. La relation liant ces deux grandeurs à  $D_{eff}$  (taille de domaine issue des calculs) est :

$$\frac{1}{D_{eff}} = \frac{1}{D^T} + \frac{1}{D^F} \quad \text{V-10}$$

La méthode des largeurs intégrales de Voigt, comme toutes les autres méthodes utilisant les largeurs intégrales, ne permet pas de séparer simplement ces deux grandeurs. Néanmoins on peut les obtenir par analogie aux formules découlant de l'analyse de Warren-Averbach. En effet on sait relier  $D^T$  et  $D^F$  aux termes analogues de la méthode de Warren-Averbach.

On a en effet :

$$D^F = 2 \cdot D_{WA}^F(hkl)$$

$$D^T = \frac{\langle D_{WA}^T(hkl)^2 \rangle}{D_{WA}^T(hkl)}$$
V-11

avec :

$$\frac{1}{D_{WA}^F(hkl)} = \frac{1}{D_{WA}^T(hkl)} + \frac{1}{D_{WA}^F(hkl)}$$
V-12

La méthode de Warren-Averbach nous donne alors :

$$\frac{1}{D_{WA}^F(hkl)} = \{ 1,5\alpha + \beta \} \cdot \frac{V_{hkl}}{a_0}$$

$$= \zeta \cdot \frac{V_{hkl}}{a_0}$$
V-13

avec :

- $\zeta = 1,5\alpha + \beta$
- $\alpha = \alpha' + \alpha''$  : probabilité de trouver une faute et une double faute d'empilement (ou fautes intrinsèque et extrinsèque),
- $\beta$  : probabilité de trouver une faute de maillage
- $a_0$  : paramètre de maille du réseau cristallin.

D'autre part, les fautes d'empilement et les fautes de maillage produisent deux effets distincts sur le pic de diffraction :

- déplacement proportionnel à  $(\alpha' - \alpha'')$ ,
- asymétrie proportionnelle à  $\beta$  et  $\alpha''$ .

Ainsi la déformation totale est donnée par la relation :

$$\langle e_t \rangle = \langle e \rangle + G_{hkl} \cdot (\alpha' - \alpha'')$$
V-14

Les termes  $V_{hkl}$  et  $G_{hkl}$  sont donnés dans le tableau V-4 :

plan (hkl)	111	200	220	331
$V_{hkl}$	0,43	1	0,71	0,80
$G_{hkl}$	-0,035	+0,069	-0,035	-0,007

Tableau V-4 : Valeurs de  $V_{hkl}$  et de  $G_{hkl}$

Remarque :

Dans l'étude des contraintes résiduelles, on constate qu'une variation selon  $\psi$  de la probabilité de fautes d'empilement provoquera des oscillations du graphe «e» en fonction de  $\sin^2\psi$ .

2.3.2. Expression en fonction des probabilités de fautes d'empilement et de maillage :

En utilisant les relations V-11 à V-13, nous pouvons modifier la relation proposée afin de faire intervenir les probabilités de fautes.

Nous obtenons ainsi :

$$\{ \langle e^2 \rangle - \langle e \rangle^2 \}^{\frac{1}{2}} = K_{hkl} \cdot e^{(1 - a_{hkl}) \cdot \log \left( \frac{1}{D^T} + \frac{1}{D^F} \right)}$$

$$\{ \langle e^2 \rangle - \langle e \rangle^2 \}^{\frac{1}{2}} = K_{hkl} \cdot e^{(a_{hkl} - 1) \cdot \log D^T} \cdot e^{(1 - a_{hkl}) \cdot \log \left( 1 + \frac{D^T}{D^F} \right)} \quad \text{V-15}$$

Remplaçons alors  $D^F$  par son expression en fonction  $\zeta$  :

$$\{ \langle e^2 \rangle - \langle e \rangle^2 \}^{\frac{1}{2}} = K_{hkl} \cdot e^{(a_{hkl} - 1) \cdot \log D^T} \cdot e^{(1 - a_{hkl}) \cdot \log \left( 1 + D^T \cdot \zeta \cdot \frac{V_{hkl}}{2a_0} \right)} \quad \text{V-16}$$

Remarquons que  $\zeta$  fait intervenir la somme des probabilités de fautes d'empilement et de maillage ( $\zeta$  est appelé probabilité cumulée de fautes).



On retrouve dans cette expression toutes les causes d'élargissement et de déplacement d'un pic de diffraction  $X$ , outre les contraintes résiduelles :

- les fautes d'empilement intrinsèques → déplacement du pic,
- les fautes extrinsèques et de maillage → asymétrie du pic,
- taille des domaines → élargissement du pic.

Remarquons que la relation en fonction de  $\zeta$ , probabilité totale de fautes, peut se simplifier si nous considérons que le terme :

$$\left( 1 + D^T \cdot \zeta \cdot \frac{V_{hkl}}{2a_0} \right)$$

est proche de l'unité. Cette approximation est justifiée si l'on considère que  $\zeta$  est très souvent de l'ordre de  $10^{-3}$  et si la taille réelle des domaines  $D^T$  est petite. Dans ce cas en effectuant le développement du terme exponentielle après celui du logarithme nous obtenons l'expression suivante :

$$\left\{ \langle e^2 \rangle - \langle e \rangle^2 \right\}^{\frac{1}{2}} = K_{hkl} \cdot e^{(a_{hkl} - 1) \cdot \log D^T} \cdot e^{(1 - a_{hkl})} \left( 1 + D^T \cdot \zeta \cdot \frac{V_{hkl}}{2a_0} \right)$$

Remarquons que le terme  $D^T/a_0$  correspond, virtuellement et à une constante près, au nombre de maille du domaine de taille  $D^T$ .

La dérivée de la déformation quadratique moyenne par rapport à  $\zeta$  est alors égale à :

$$\frac{\delta \left\{ \langle e^2 \rangle - \langle e \rangle^2 \right\}^{\frac{1}{2}}}{\delta \zeta} = K_{hkl} \cdot e^{(a_{hkl} - 1) \cdot \log D^T} \cdot e^{(1 - a_{hkl})} \cdot \frac{D^T \cdot V_{hkl}}{2 \cdot a_0} \quad \text{V-17}$$

On peut constater que cette dérivée est indépendante de  $\zeta$ . Ce résultat est conforme à ce qui est attendu si on suppose que :

$$\langle e_t \rangle - \langle e \rangle \text{ proportionnel à } \left\{ \langle e^2 \rangle - \langle e \rangle^2 \right\}$$

En effet, en dérivant l'expression de la déformation totale V-14 en présence de fautes, nous avons :

$$\frac{\delta \langle e_t \rangle}{\delta (\alpha' - \alpha'')} = G_{hkl} = \text{Constante}$$

#### 2.4. Commentaires sur les grandeurs mesurées :

Dans le cas de matériaux isotropes, la taille des domaines de diffraction cohérente et la micro-déformation sont indépendantes de la direction de mesure ( $\phi, \psi$ ). Pour les matériaux texturés, ces grandeurs dépendent de la direction de mesure et ont donc un caractère anisotrope. Les résultats obtenus par le biais des indicatrices souffrent donc de deux effets de moyenne distincts :

- moyenne dans l'ensemble du volume diffractant,

- les domaines diffractants n'ont pas tous la même orientation puisque l'expérience de diffraction X intègre l'ensemble des domaines par une rotation  $\zeta$  autour de la normale au plan (hkl) diffractant.

Nous avons donc, en notant  $X_{\phi\psi}$  l'une des grandeurs mesurées :

$$\bar{X}_{\phi\psi} = \frac{1}{V_d} \cdot \int_{V_d} \int_0^{2\pi} X_{\phi\psi} \cdot dV \cdot d\zeta \quad \text{V-18}$$

En raison de cet effet de moyenne, les grandeurs mesurées ne représentent pas l'état réel du matériau sauf dans les cas particuliers de distribution uniforme dans la totalité de l'échantillon ou dans la direction de mesure. Les corrélations ne peuvent alors être effectuées qu'avec des grandeurs macroscopiques à l'origine des variations de ces grandeurs, ou aux grandeurs macroscopiques liées à la direction de mesure (module d'Young par exemple).

Le problème de la pénétration des rayons X pose le problème de la zone volumique analysée. Dans le cas d'un goniomètre  $\psi$ , le volume diffractant est indépendant de l'orientation de la direction de mesure. Par contre, la zone étudiée devient de plus en plus fine lorsque la déclinaison  $\psi$  augmente. Nous supposons par hypothèse que les grandeurs mesurées ne présentent pas de gradient dans la direction de mesure (hypothèse d'homogénéité commune aux mesures de texture).

#### 2.5. Relation avec la densité de dislocation :

Comme nous l'avons rappelé au paragraphe V-1.3., la densité de dislocation peut être approchée par une relation du type :

$$\rho = (\rho_S \cdot \rho_D)^{\frac{1}{2}} = \chi_{hkl} \cdot \frac{\langle e^2 \rangle^{\frac{1}{2}}}{D_{eff}}$$

où  $\chi_{hkl}$  représente un paramètre dépendant de l'arrangement des dislocations, du vecteur de Burgers et du paramètre de maille  $a_0$ .

En substituant la micro-déformation par son expression en fonction de la taille des domaines de diffraction cohérente, nous obtenons :

$$\rho = \chi_{hkl} \cdot K_{hkl} \cdot e^{(a_{hkl} - 2) \cdot \log D_{eff}} \quad V-19$$

Supposons que la micro-contrainte associée aux micro-déformations suit une loi identique à celle observée lors de l'écoulement plastique à savoir  $\sigma$  proportionnel à  $\rho^{1/2}$  comme cela a été montré pour le cuivre et l'argent<sup>(27)(28)</sup>.

La micro-contrainte obtenue représente en fait l'écart de contrainte par rapport à la contrainte macroscopique. Nous avons alors :

$$\{ \langle \sigma^2 \rangle - \langle \sigma \rangle^2 \}^{\frac{1}{2}} \propto \chi_{hkl}^{\frac{1}{2}} \cdot K_{hkl}^{\frac{1}{2}} \cdot D_{eff}^{\frac{a_{hkl} - 2}{2}} \quad V-20$$

Suivant les valeurs du paramètre  $a_{hkl}$ , nous avons des comportements distincts. En particulier pour les valeurs :

$$\begin{aligned} a_{hkl} \rightarrow 1 & \quad \{ \langle \sigma^2 \rangle - \langle \sigma \rangle^2 \}^{\frac{1}{2}} \propto D_{eff}^{-\frac{1}{2}} \\ a_{hkl} \rightarrow 0 & \quad \{ \langle \sigma^2 \rangle - \langle \sigma \rangle^2 \}^{\frac{1}{2}} \propto D_{eff}^{-1} \\ a_{hkl} \rightarrow 2 & \quad \{ \langle \sigma^2 \rangle - \langle \sigma \rangle^2 \}^{\frac{1}{2}} \propto \text{constante} \end{aligned} \quad V-21$$

Ces comportements sont à rapprocher des lois de type Hall-Petch et des observations présentées au paragraphe V-1.

\* N.B. : Le symbole  $\propto$  signifie proportionnel.

## 2.6. Interprétation du terme $a_{hkl}$ :

Il est admis que la relation de Hall-Petch<sup>(29)(30)(31)</sup> décrit le comportement élastique d'échantillons en fonction de la taille des grains. Cette relation s'écrit sous la forme suivante :

$$\sigma_y = \sigma_0 + k_y \cdot e^{-0,5 \cdot \log D} \quad \text{avec :} \quad \text{V-22}$$

$\sigma_0$  contrainte limite d'écoulement,

$k_y$  constante d'orientation,

D taille du grain.

Le terme  $\sigma_0$  n'est pas rigoureusement égal à la limite d'élasticité des monocristaux, on l'appelle généralement force de frottement.

Il est couramment admis que le coefficient 0,5 de la loi de Hall-Petch n'est pas toujours valable. Il a été démontré que très souvent des variations linéaires en  $(1/D)$  permettent une description tout aussi satisfaisante des résultats expérimentaux. Des études théoriques montrent d'ailleurs que les variations en  $(1/D)$  sont tout à fait justifiées<sup>(15)</sup>

Une relation analogue à la loi de Hall-Petch a été établie entre la contrainte d'écoulement et la dimension des cellules de dislocations qui limitent les sous-joints de grains<sup>(32)(33)</sup>. La figure V-7 en montre un exemple.

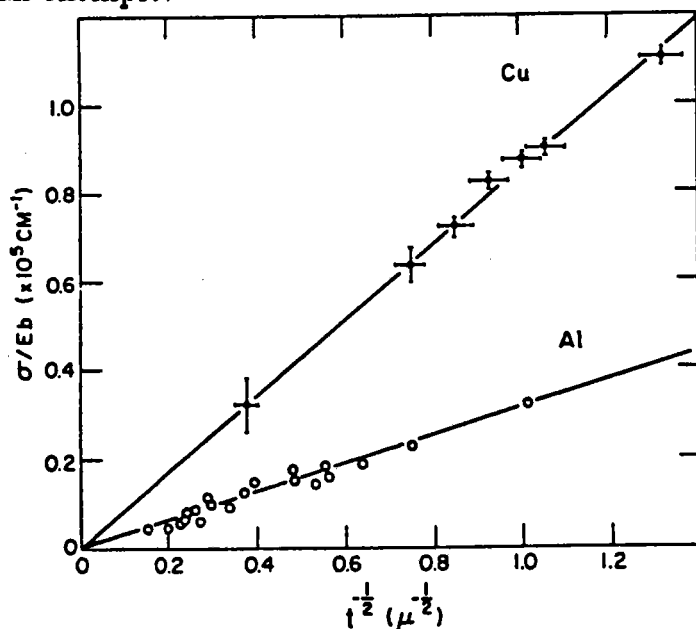
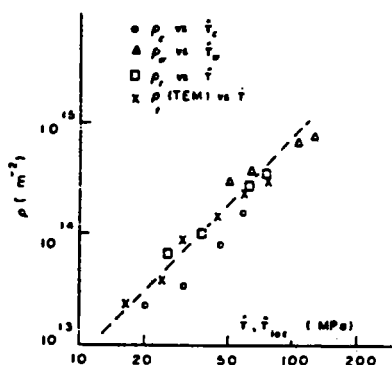


Figure V-7 :

Relation taille des sous-grains  
contrainte d'écoulement

Par une analyse radiocristallographique, Ungar et al.<sup>(34)</sup> trouvent une relation de type Hall-Petch liant la densité de dislocation à la déformation dans les monocristaux de cuivre. La figure V-8 présente les résultats obtenus par ces auteurs. Une analyse

par microscopie à transmission électronique confirme ces mesures (Ambrosi et al. (35)).



**Figure V-8:** Relation densité de dislocation ↔ contrainte appliquée

Nous pensons donc que le terme  $a_{hkl}$  est lié aux types de distribution des dislocations après déchargement de l'échantillon. Nous pouvons constater que sa valeur dépend du plan (hkl) visé. Cette dépendance est sans doute liée aux variations de densité de dislocations présentes sur ces plans. Remarquons que généralement la densité de dislocation est considérée comme une grandeur scalaire. Dans notre analyse, il est facile de voir que la densité de dislocation est différente suivant les plans (hkl) et donc de l'orientation cristallographique. Ne disposant pas d'étude permettant de justifier cette affirmation, nous pensons que des analyses associant diverses techniques d'analyse microscopiques permettront d'éclaircir le rôle et la nature du terme  $a_{hkl}$ .

### **3. ETUDE DES RELATIONS INTENSITE ↔ TAILLE DES DOMAINES :**

Cette étude a été effectuée sur des échantillons de cuivre présentant des textures différentes dues à des traitements thermique et mécanique différents.

#### **3.1 Préparation des échantillons :**

A partir d'une tôle de cuivre brut dont l'histoire des déformations et de préparation nous est inconnue, nous avons découpé trois échantillons qui ont subi les traitements suivants :

- Cu B : échantillon brut,

- Cu BL : échantillon brut laminé (réduction d'épaisseur 50%),

- Cu RL : échantillon brut recristallisé (30 minutes à 900°C) laminé comme le précédent.

Chaque échantillon a ensuite été poli électrolytiquement en vue de son étude.

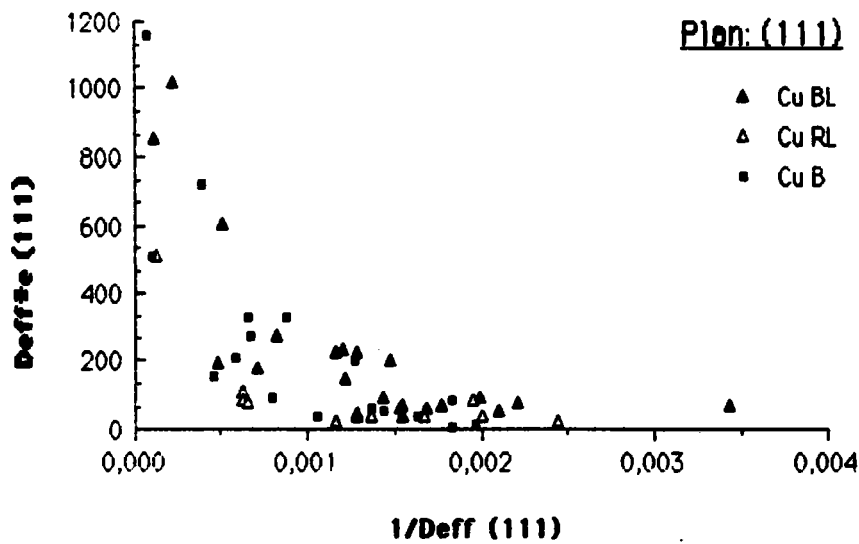
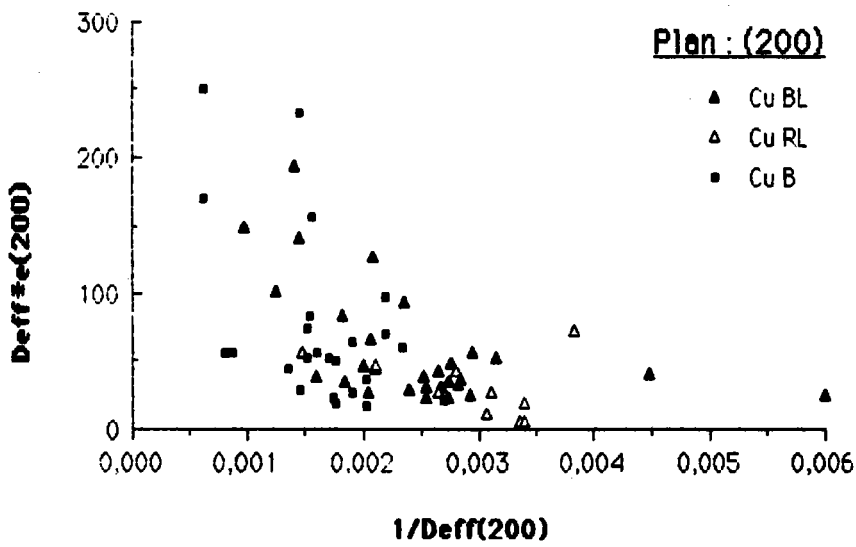
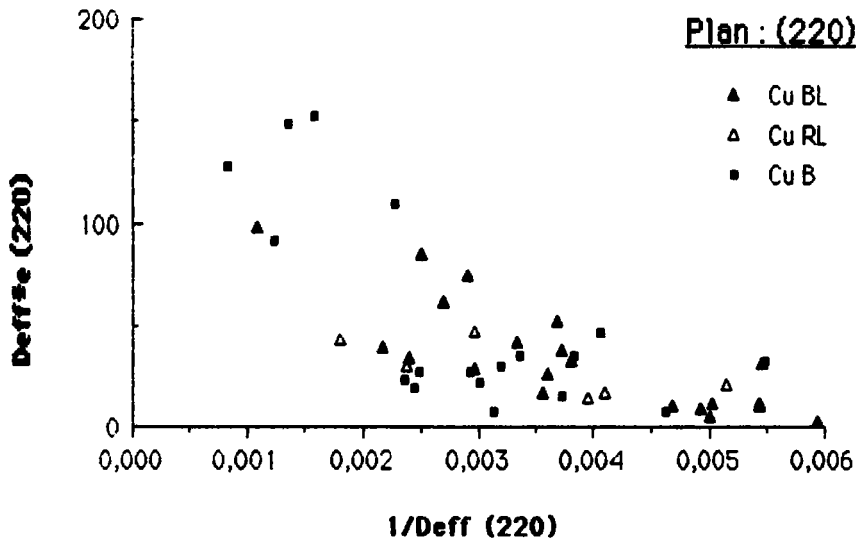
### 3.2. Résultats :

Les figures V-9a...c présentent les résultats obtenus pour les échantillons de cuivre Cu B, Cu BL et Cu RL. Nous constatons que la relation observée précédemment s'applique également à ces échantillons. Les valeurs des constantes  $K^*_{hkl}$  et  $a_{hkl}$  sont présentées dans le tableau V-5. Les figures V-10a...c à V-12a...c présentent les figures de pôles de ces échantillons : plans (200), (111) et (220). La figure V-13 présente la courbe  $a_{hkl} = f(K^*_{hkl})$  pour l'ensemble des échantillons utilisés, y compris les échantillons de cuivre recuit laminé (Cu RP) et d'aluminium 7075-T6 billé.

Plan (hkl)	Cu B		Cu BL		Cu RL	
	$a_{hkl}$	$K^*_{hkl}$	$a_{hkl}$	$K^*_{hkl}$	$a_{hkl}$	$K^*_{hkl}$
(111)	1,111	0,041	0,990	0,156	0,934	0,096
(200)	0,984	0,097	1,093	0,065	1,494	0,004
(220)	1,322	0,014	1,816	0,0005	0,976	0,094

Tableau V-5 : Coefficients  $a_{hkl}$  et  $K^*_{hkl}$

Figure V-9a,b,c :



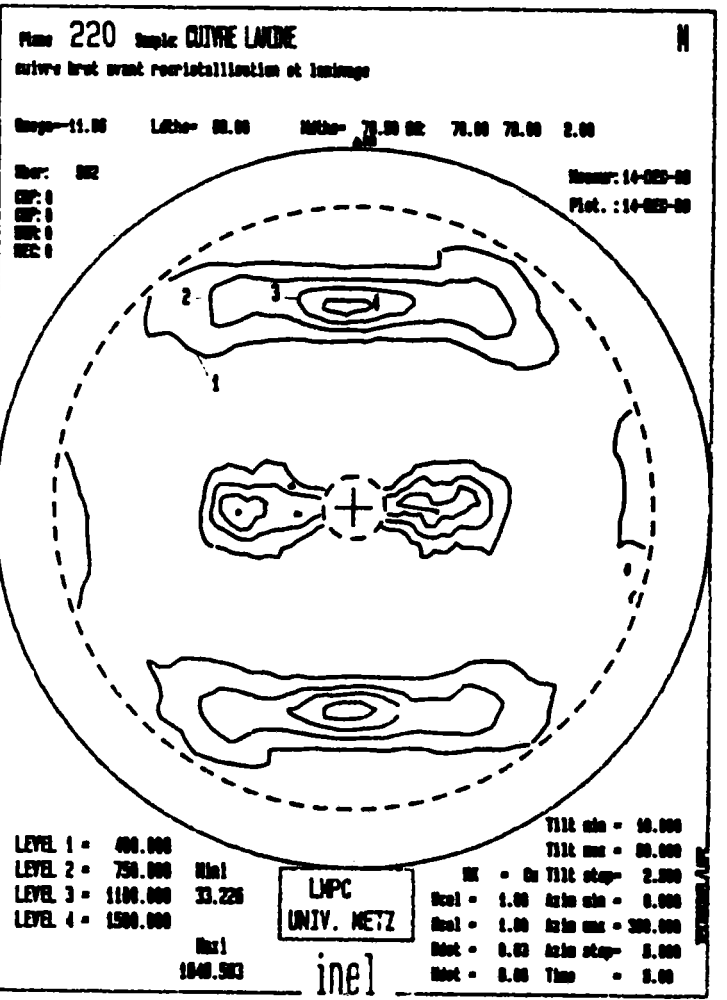
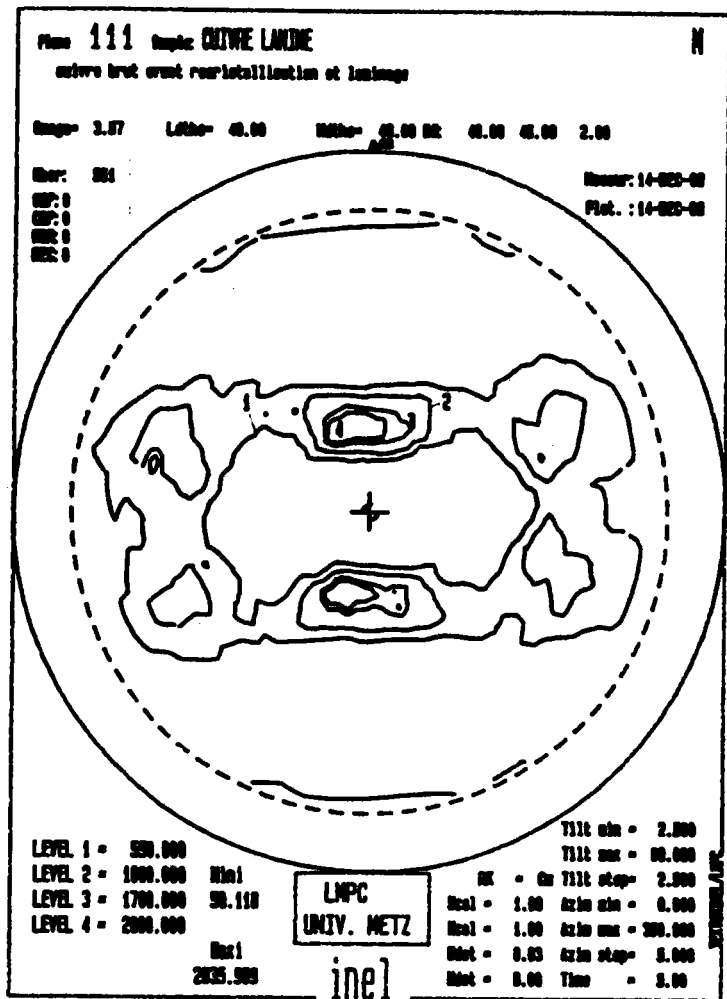
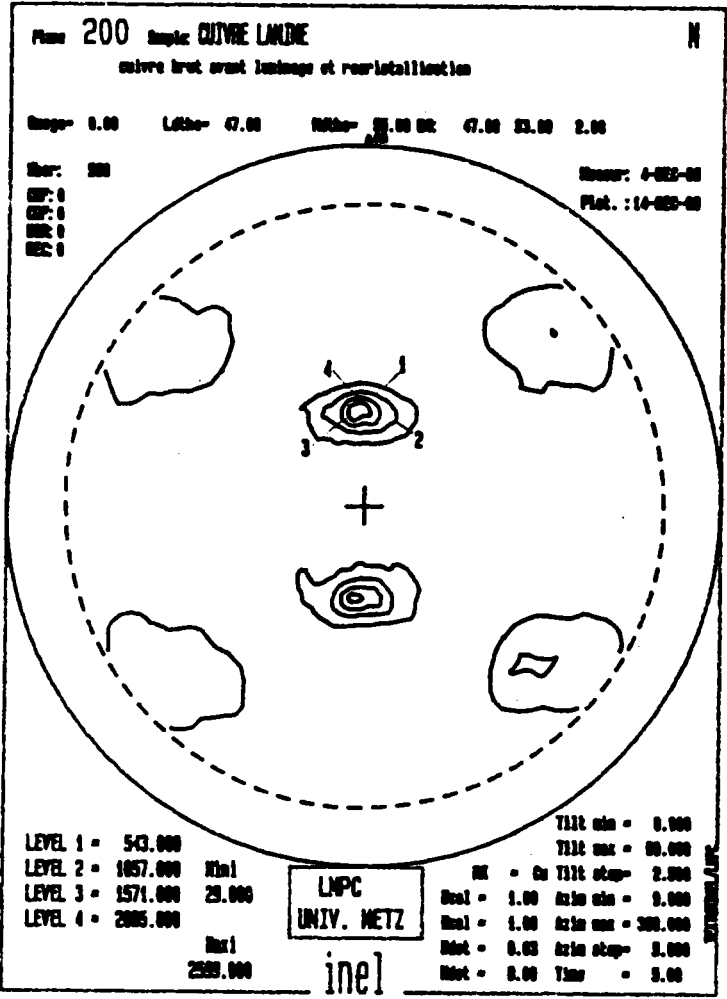


Figure V-10a...c : Figures de pôles Cu B (repère standard)



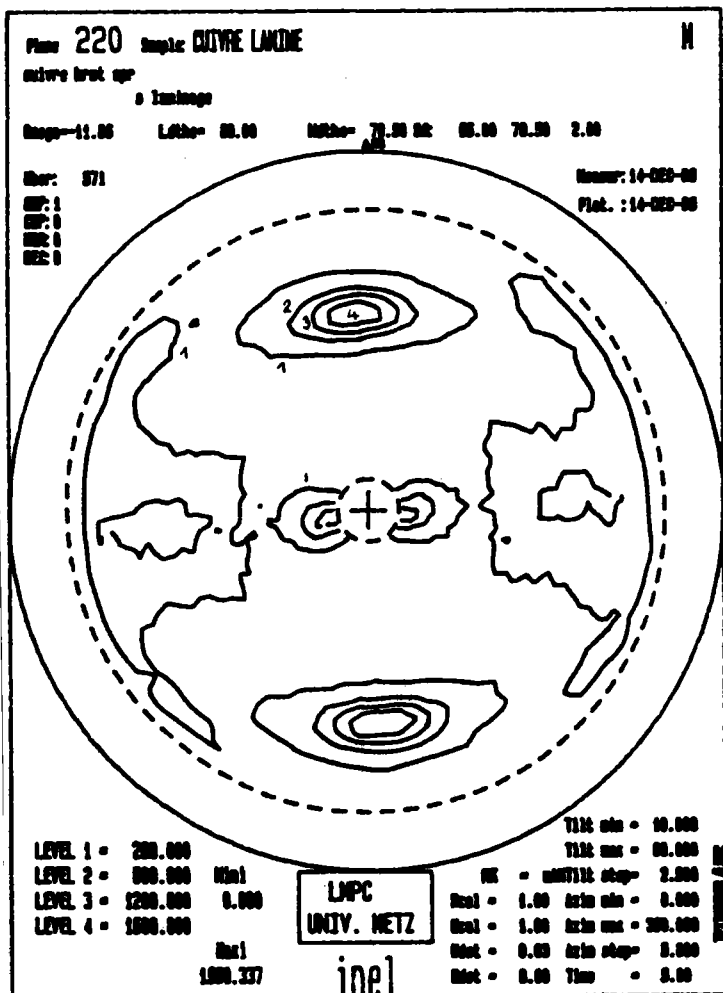
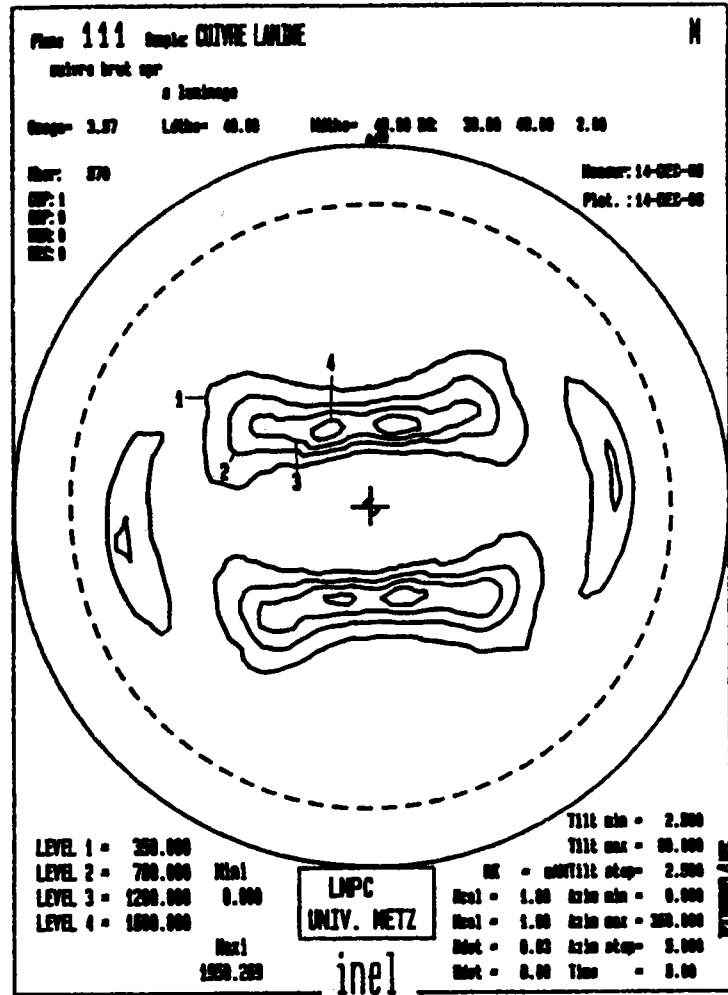
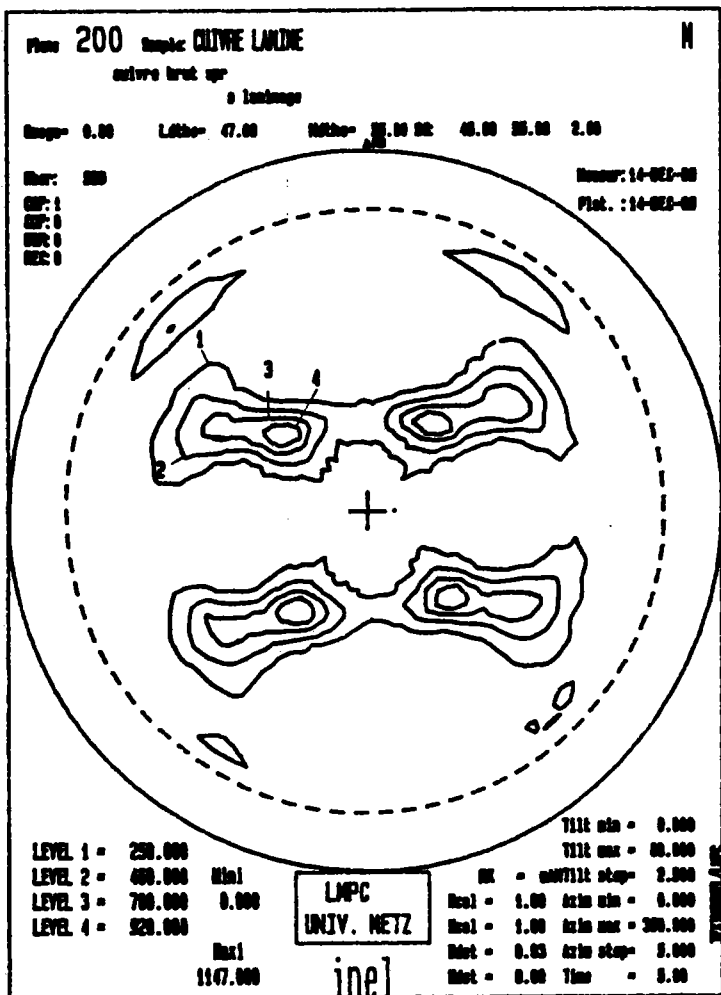


Figure V-11a...c : Figures de pôles Cu BL  
 (repère standart)

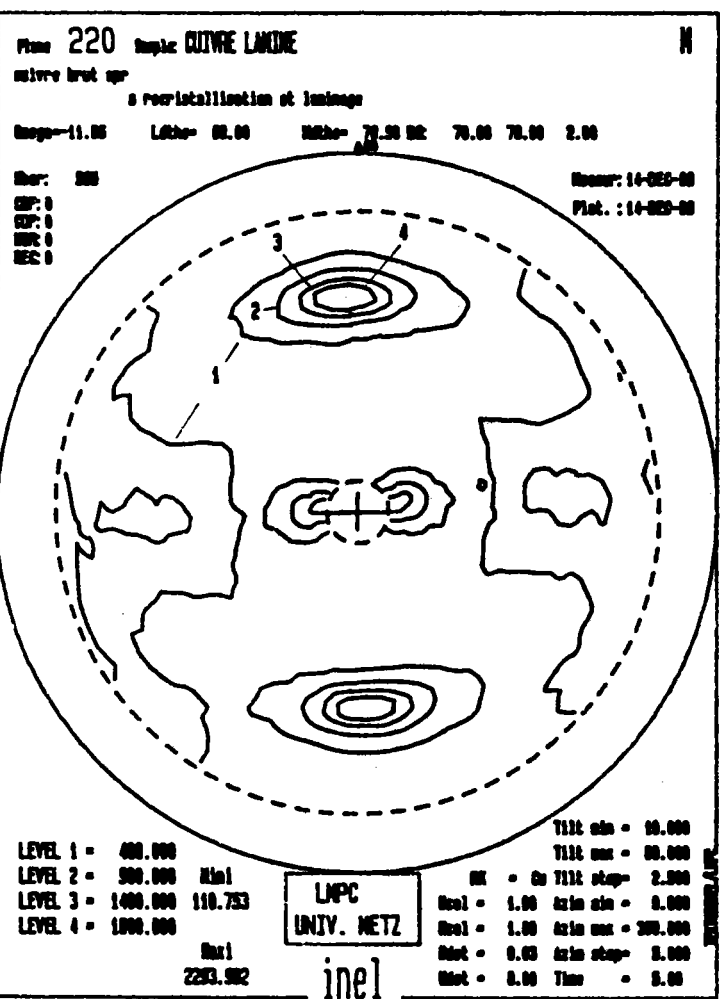
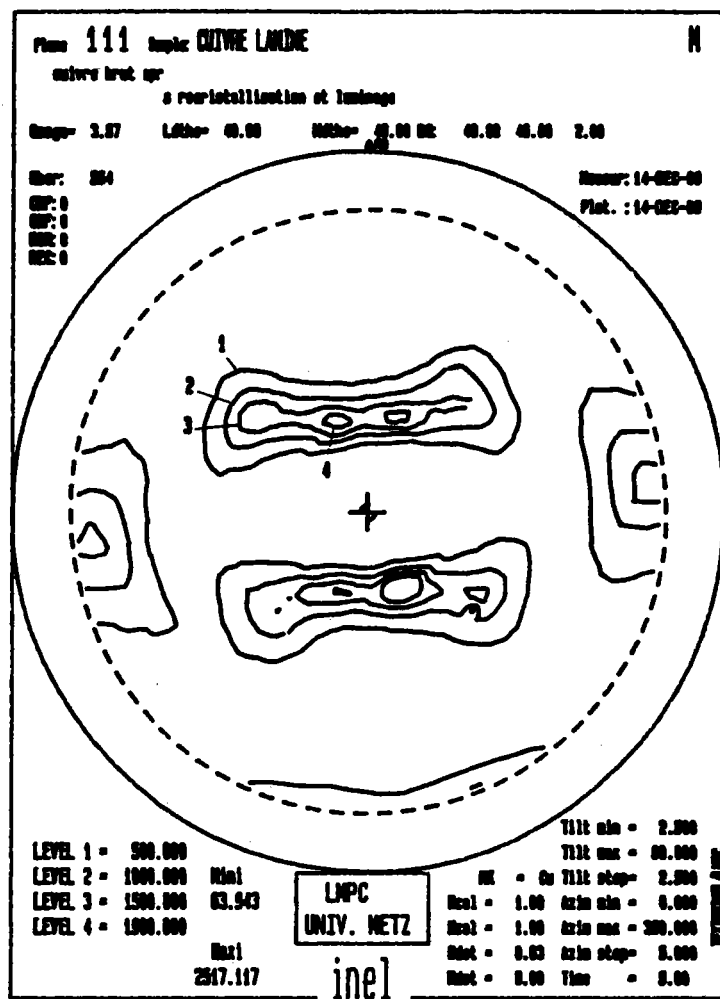
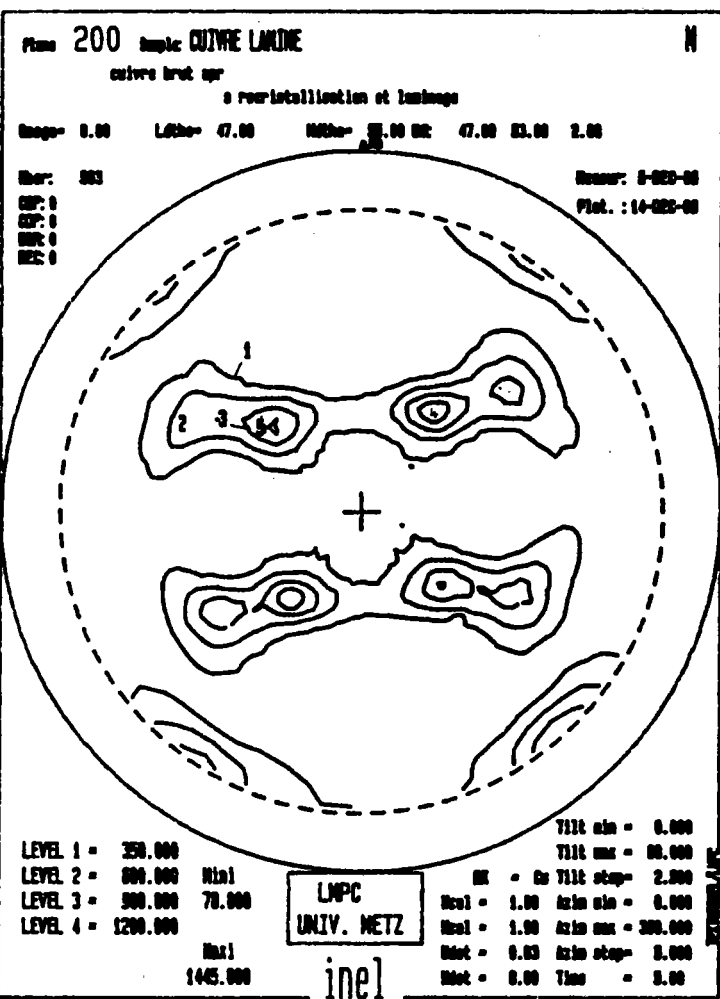
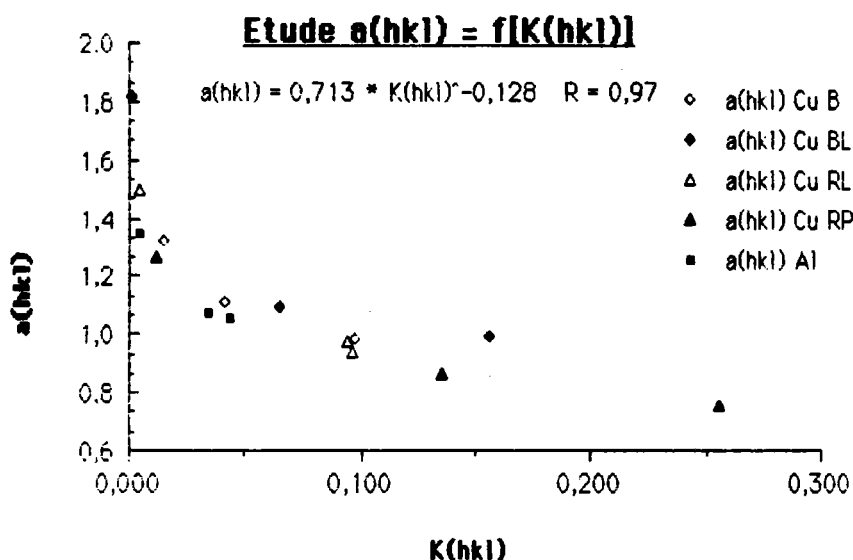


Figure V-12a...c : Figures de pôles Cu RL (repère standart)



**Figure V-13 :** Courbe  $a_{hkl} = f(K_{hkl}^*)$  pour tous les échantillons étudiés.

### 3.3. Etude des variations de l'intensité :

Nous nous proposons dans ce paragraphe d'étudier les relations entre la taille des domaines de diffraction cohérente et l'intensité diffractée. De même nous présentons les variations, en fonction de l'intensité, du facteur de forme défini par le rapport de la largeur à mi-hauteur par la largeur intégrale.

#### Remarque :

L'intensité diffractée présentée sur les figures a été systématiquement multipliée par le pas angulaire du compteur courbe. La surface du pic est donc donnée en  $^{\circ}2\theta \cdot \text{coups}$ .

Les figures présentées en fonction de l'intensité diffractée sont les suivantes :

- n° V-14a...c : plan (200) Cu B, Cu BL et Cu RL taille de domaine,
- n° V-15a...c : plan (200) Cu B, Cu BL et Cu RL facteur de forme,
- n° V-16a : plan (200) Cu RP taille de domaine,
- n° V-16b : plan (200) Cu RP facteur de forme.

Nous ne présentons que les figures relatives aux plans (200) des échantillons analysés.

**Figures V-14a,b,c :** Taille de domaine en fonction de l'intensité Plan : (200)

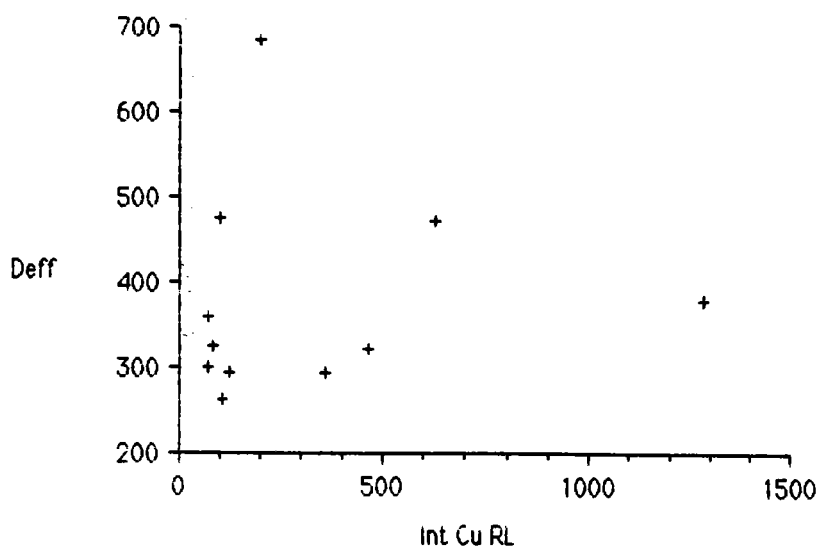
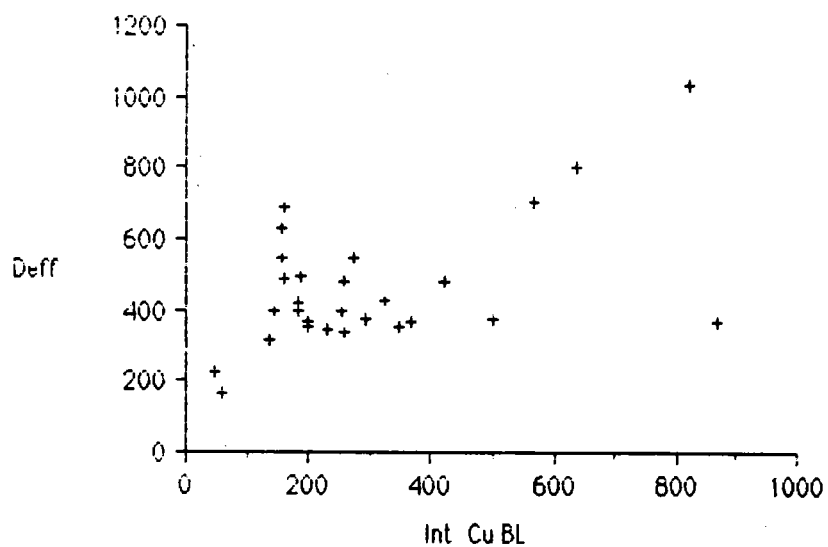
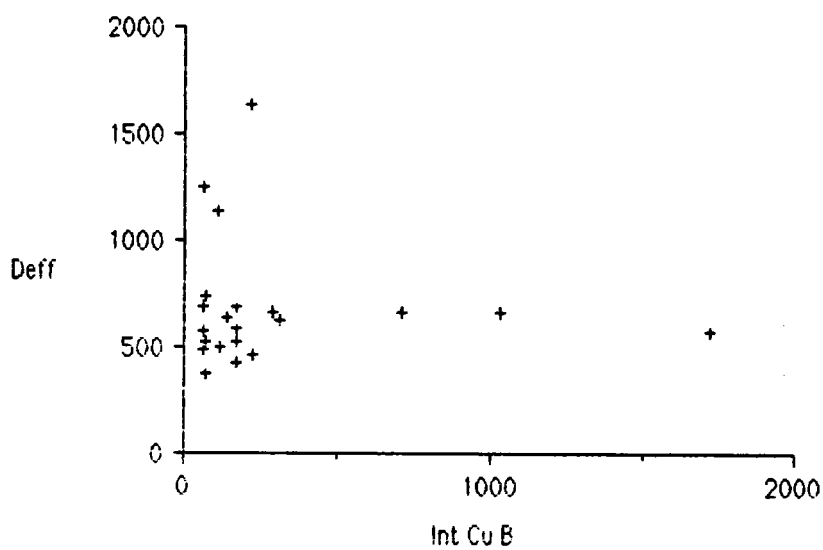
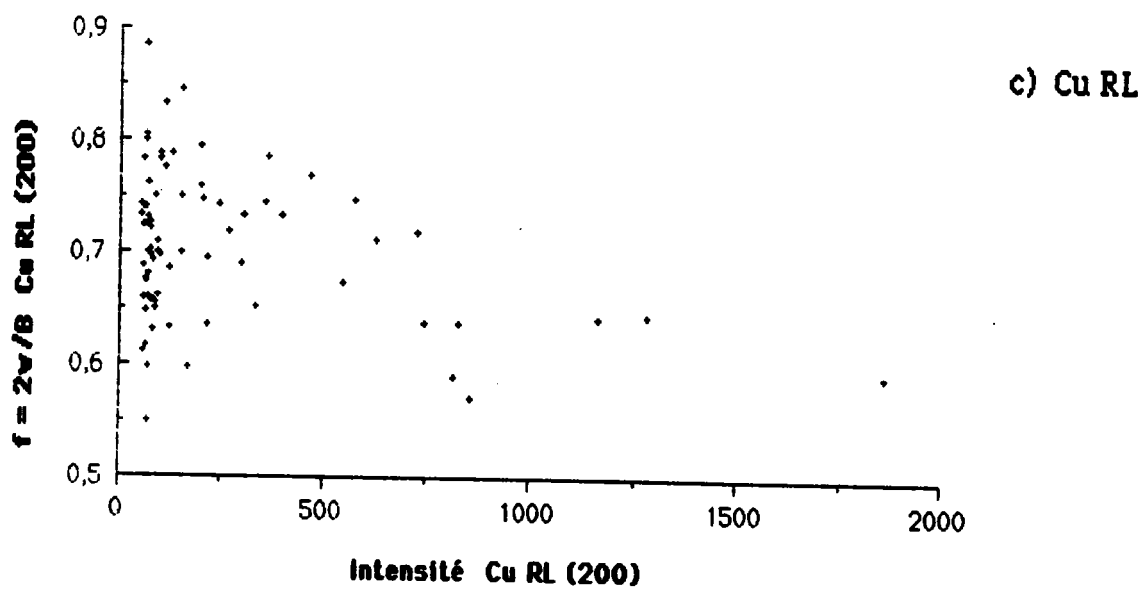
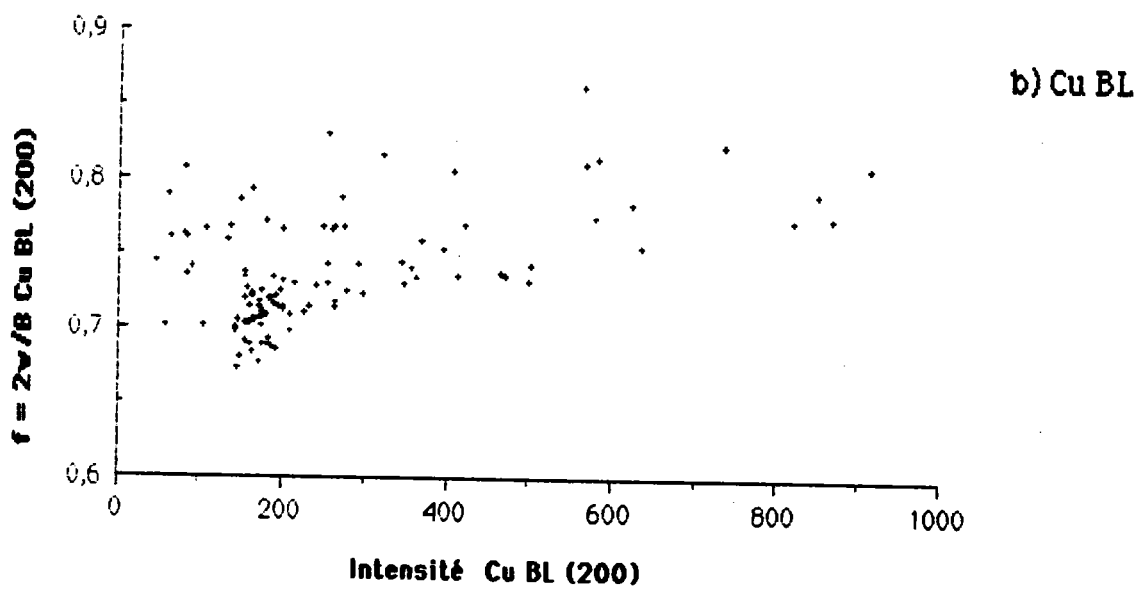
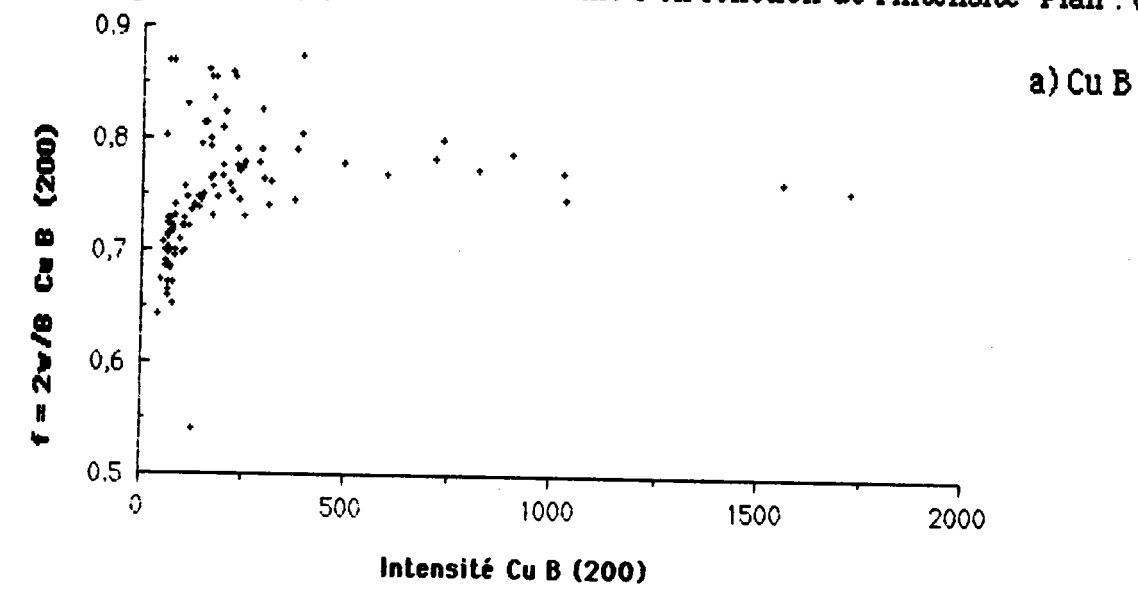
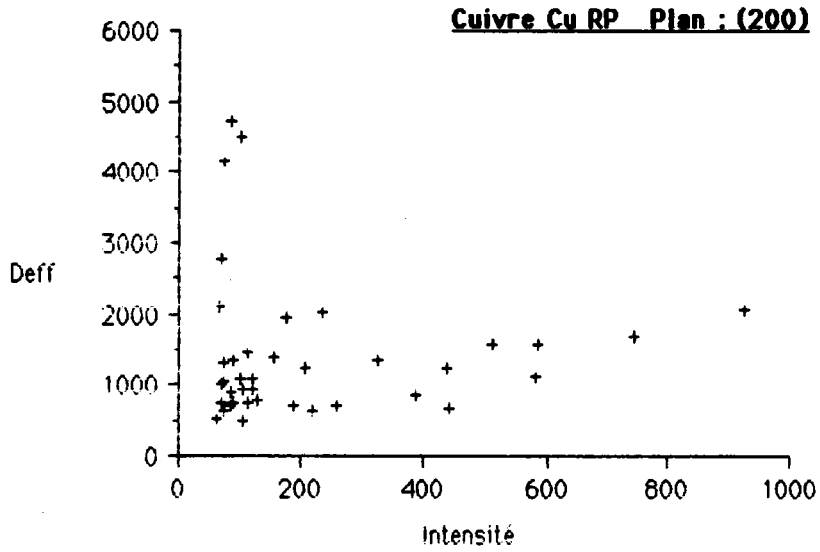


Figure V-15a,b,c : Facteur de forme f en fonction de l'intensité Plan : (200)

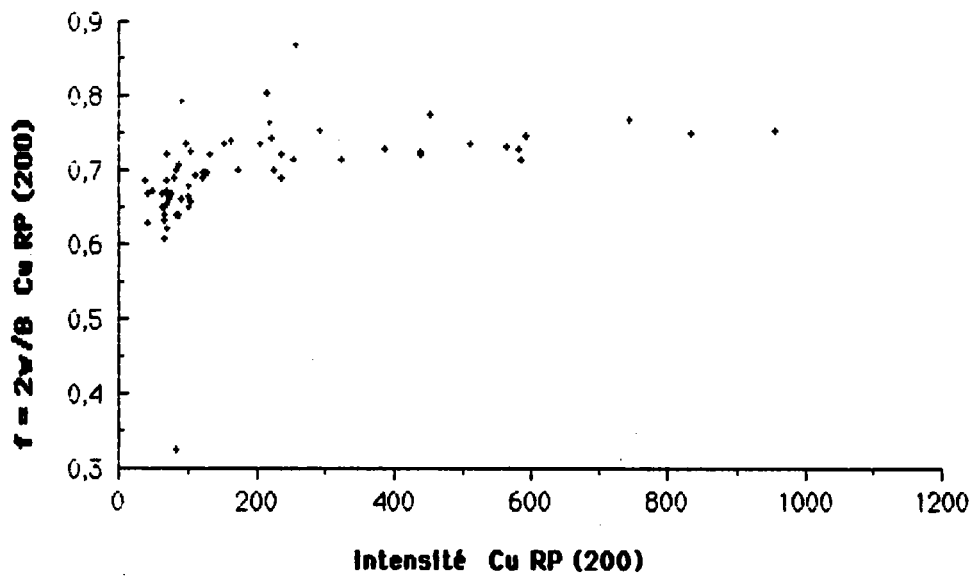


**Figure V-16a,b : Echantillon Cu RP**

**a) Courbe Deff en fonction de l'intensité**



**b) Facteur de forme en fonction de l'intensité**



### 3.3.1. Evolution de la taille des domaines de diffraction cohérente :

Nous pouvons constater qu'aux fortes intensités, la taille des domaines reste soit uniforme (cas de Cu B, Cu RP), soit évolue de façon plus ou moins linéaire (Cu BL). Le nombre de point insuffisant pour l'échantillon Cu RL ne nous permet pas de tirer de constatations simples. Aux faibles intensités, on constate une relative dispersion de la taille des domaines. Cette dispersion peut être attribuée à deux causes :

- hétérogénéité de cette grandeur pour les domaines n'appartenant pas aux orientations préférentielles de texture,
- erreurs de mesure expérimentale ou de calcul par application de la méthode des largeurs intégrales de Voigt.

Il apparait toutefois comme acquis une certaine homogénéité de la taille des domaines appartenant aux directions de forte intensité (500 Å pour Cu B, 1000Å pour Cu RP, 600-1000Å Cu BL).

### 3.3.2. Variations du facteur de forme en fonction de l'intensité :

On peut constater le caractère très marqué de ces différentes distributions. Il apparait de façon évidente trois classes de distribution :

- croissance rapide aux faibles intensités puis prolongement asymptotique vers une valeur limite aux intensités élevées (cf. figures V-15a et V-16b),
- croissance linéaire très dispersée en fonction de l'intensité (cf. figure V-15b),
- forte dispersion aux faibles intensités puis décroissance lente aux fortes intensités (cf. figure V-15c).

Malgré le caractère très marqué de ces distributions, on peut constater une plus grande dispersion aux faibles valeurs de l'intensité qui, comme auparavant, peuvent être attribuées aux erreurs expérimentales de mesure.

On peut néanmoins corrélérer sans grande difficulté ces distributions aux variations de la taille des domaines en fonction de l'intensité en visualisant simultanément les courbes relatives à chaque échantillon. Nous avons ainsi :

- Cu BL : la dimension des domaines et le facteur de forme évoluent de façon plus au moins linéaire avec l'intensité,
- Cu RL : toutes les valeurs de taille mesurée sont faibles et le facteur de forme décroît avec l'intensité,
- Cu RP : la taille des domaines et le facteur de forme tendent vers une valeur limite ou légèrement croissante avec l'intensité,

- Cu B : la taille des domaines et le facteur de forme tendent vers une valeur limite ou légèrement décroissante avec l'intensité.

Si nous revenons à la définition et la signification du facteur de forme, ces résultats sont tout à fait cohérents. Nous avons rappelé à plusieurs reprises que le facteur de forme d'une fonction de Voigt évolue entre celui d'une fonction de Cauchy et celui d'une fonction de Gauss (cf. Annexe 2). D'après les hypothèses de base de la méthode des largeurs intégrales de Voigt, on sait qu'à un profil Cauchien correspond un effet de taille et à un profil Gaussien correspond un effet de distorsion. Mais en principe, il faut considérer le facteur de forme de la fonction déconvoluée, c'est à dire après suppression de la fonction instrumentale. Le facteur de forme considéré sur ces figures correspond au facteur de forme de la raie  $K_{\alpha 1}$  mesurée. Nous ne pouvons donc, en principe, l'utiliser pour en déduire des caractéristiques microstructurales.

Néanmoins et malgré ces réserves, nous constatons que le facteur de forme de la raie "brute" nous renseigne sur l'évolution de la taille des domaines. Généralement les effets micro-structuraux sont estimés par l'étude des variations de la largeur à mi-hauteur. Or pour tous les échantillons étudiés, les figures similaires relatant les variations de la largeur à mi-hauteur en fonction de l'intensité ne présentent aucune corrélation de ce type. Comme le montre la figure V-17, à une largeur à mi-hauteur donnée peut correspondre une infinité de fonctions comprises entre la fonction de Cauchy et de Gauss. La largeur à mi-hauteur ne peut fournir d'informations que sur l'évolution globale des effets d'élargissement.

Cette étude montre donc que le facteur de forme représente un paramètre de choix pour la description des caractéristiques microstructurales d'un échantillon polycristallin.

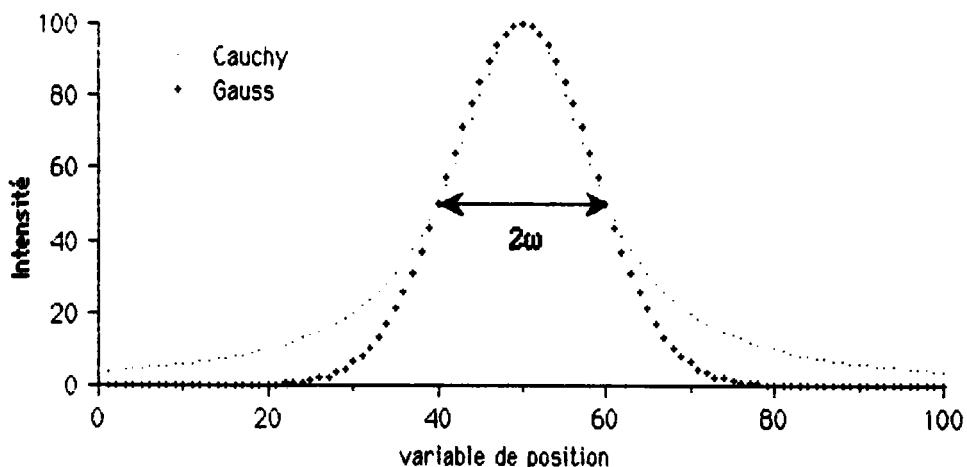


Figure V-17 : Courbes de Cauchy et de Gauss de même largeur à mi-hauteur.



L'étude des distributions des tailles de domaines en fonction de l'intensité montrent clairement l'hétérogénéité de cette grandeur aux faibles intensités. Il en sera donc de même pour les distorsions. Par contre aux fortes intensités, on peut constater que les effets de taille et de distorsion restent quasi-uniformes ou varient de façon régulière.

#### **4. APPLICATION A L'ETUDE DES CONTRAINTES RESIDUELLES :**

Nous nous proposons dans ce paragraphe d'étudier les variations des grandeurs micro-structurales en fonction de  $\sin^2\psi$ . En effet, nous avons remarqué que les courbes en fonction de  $\sin^2\psi$  présentent de légères oscillations. Elles ont été observées pour les plans (331) et (420) du cuivre recuit laminé Cu RP. Il est généralement admis que ces oscillations sont dues à la texture cristallographique. On trouvera en Annexe 5 une étude bibliographique relatant les diverses interprétations données pour expliquer ces oscillations.

Grâce aux indicatrices nous avons montré que la taille des domaines de diffraction cohérente variait selon la direction de mesure définie par les angles  $\phi$  et  $\psi$ . Au paragraphe précédent nous avons montré que la micro-déformation mesurée est fonction de la taille du domaine de diffraction cohérente.

##### **4.1. Distribution en fonction de $\sin^2\psi$ :**

###### **4.1.1. Figures :**

Nous présentons ici les diverses figures en fonction de  $\sin^2\psi$  pour le plan (331) du cuivre recuit laminé Cu RP. Ces figures ont été obtenues pour les deux directions de mesures définies par  $\phi = 0^\circ$  et  $\phi = 90^\circ$ . Ces variations sont comparées à la distribution du centroïde du pic de diffraction.

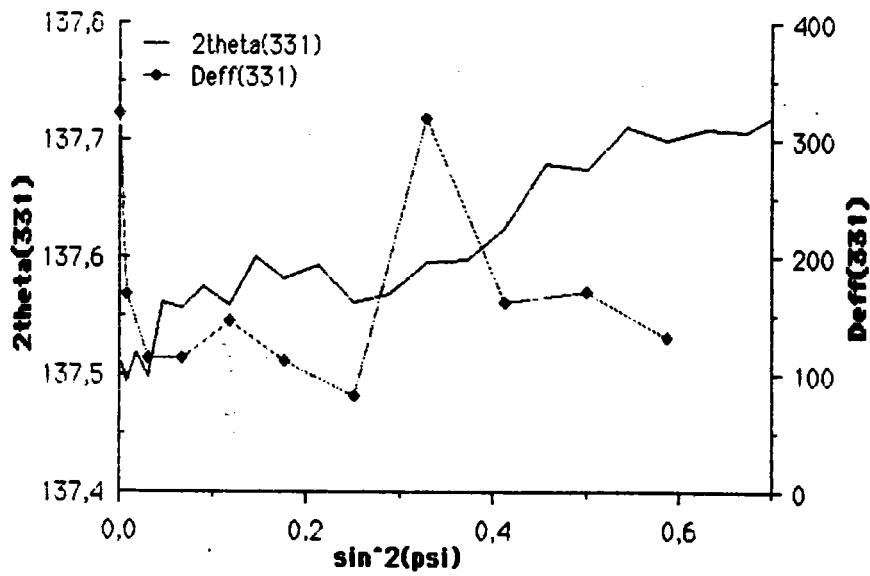
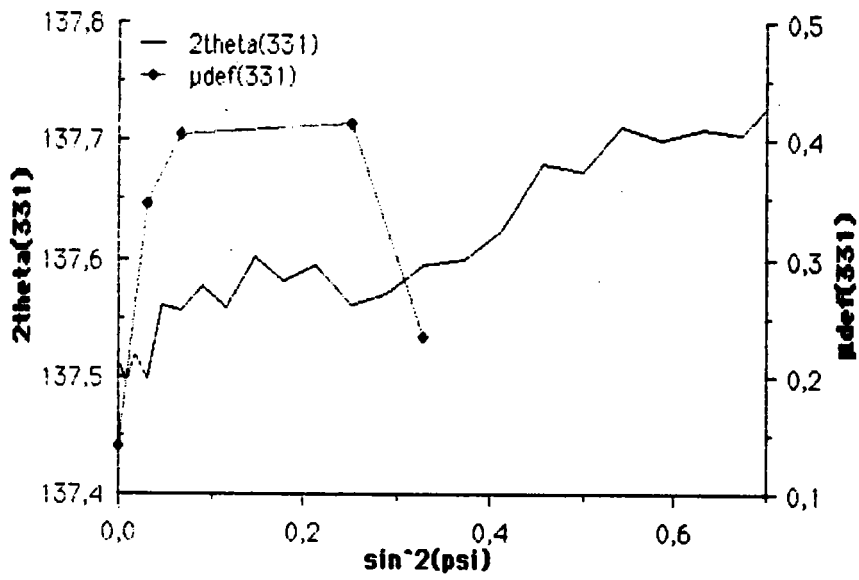
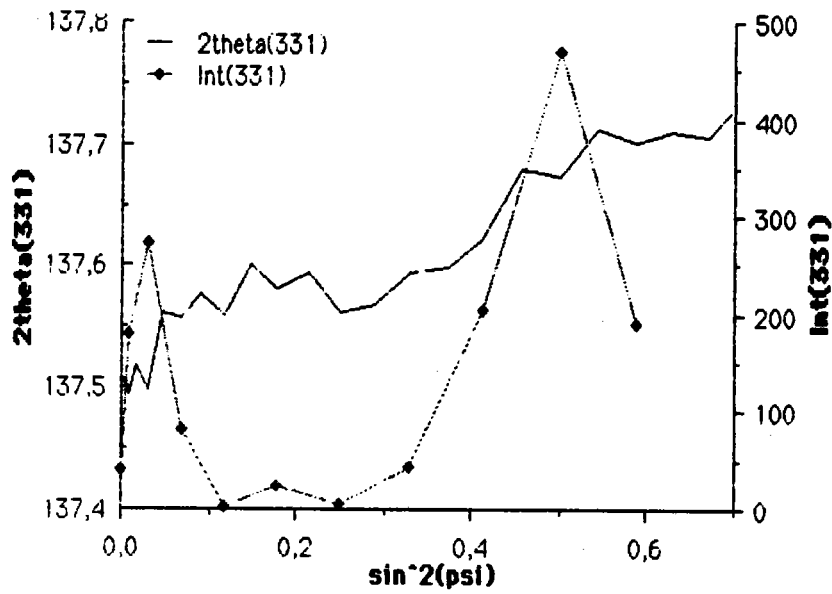
Ces deux directions représentent en fait deux "rayons" des indicatrices présentées au chapitre précédent. Les figures V-18a...c et V-19a...c présentent :

- figures V-18 : mesures à  $\phi = 0^\circ$  : intensité, micro-déformation et taille.
- figures V-19 : mesures à  $\phi = 90^\circ$  : intensité, micro-déformation et taille.

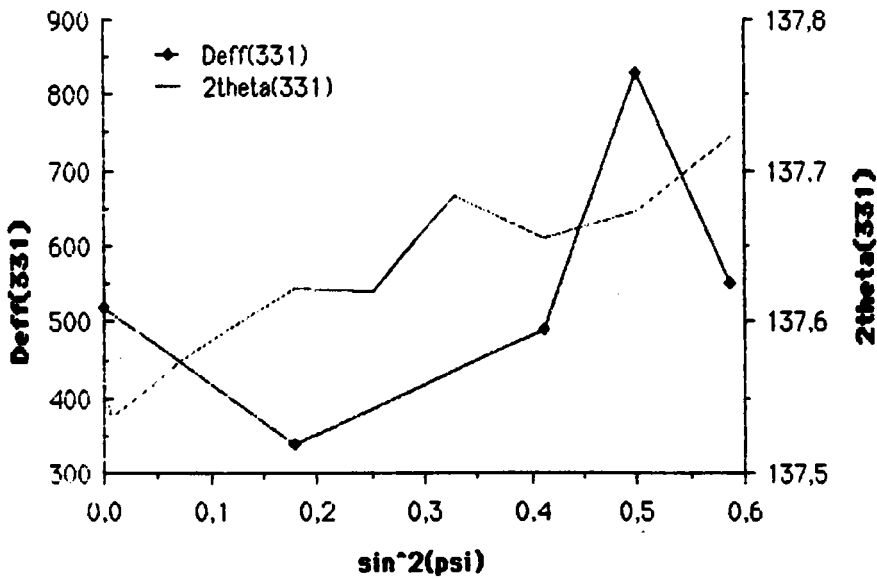
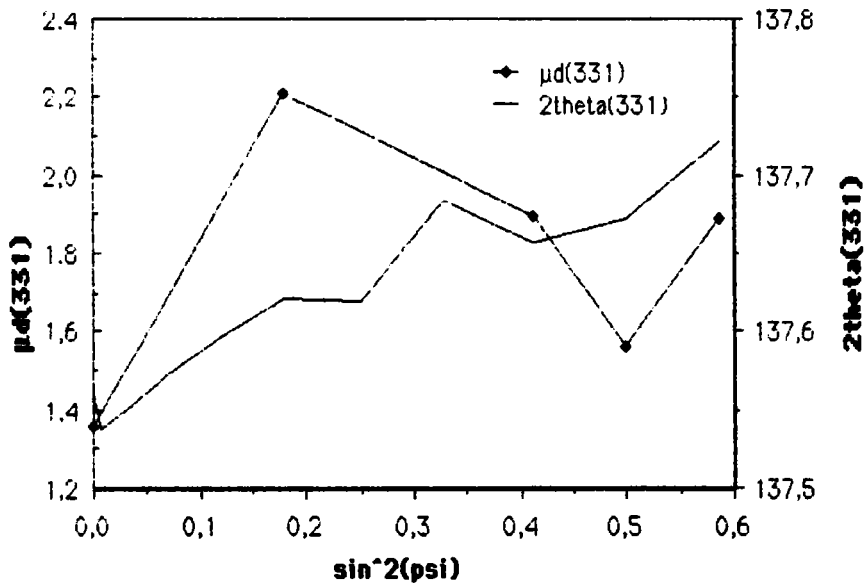
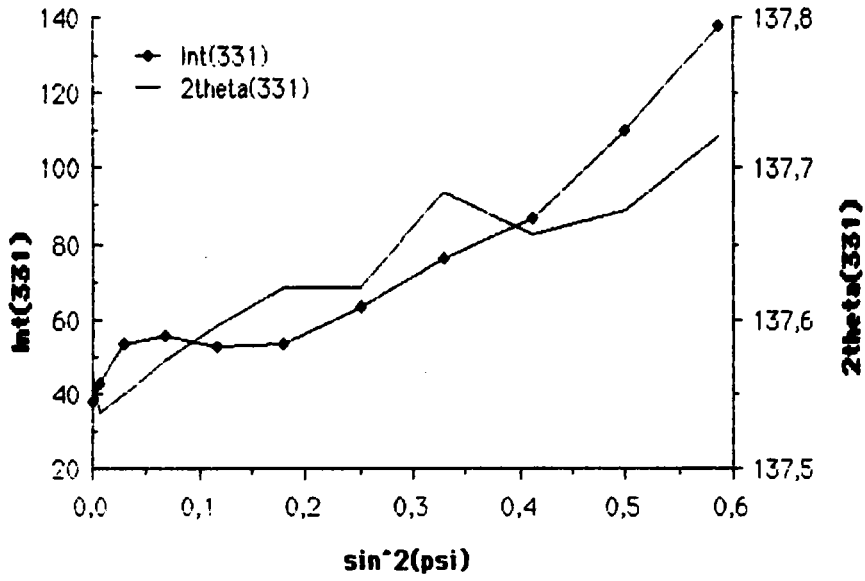
###### **4.1.2. Commentaires :**

Comme nous le constatons, aucune corrélation entre l'intensité du pic de diffraction et la distribution du centroïde en fonction de  $\sin^2\psi$  n'est observée sur ces figures. Il en est de même avec les deux autres grandeurs représentées.

Dans la direction  $\phi = 0^\circ$ , le pas  $\Delta\psi$  est égal à  $2.5^\circ$  et dans la direction transverse le pas est de  $5^\circ$ .



Figures V-19a...c :  $\phi = 90^\circ$



#### 4.2. Hypothèses de travail :

Supposons que la déformation totale mesurée dans une direction  $(\phi, \psi)$  de l'échantillon puisse se mettre sous la forme suivante :

$$\epsilon = \epsilon_0 + \Delta\epsilon(\psi) \quad \text{V-23}$$

Dans cette expression  $\epsilon_0$  représente une déformation moyenne uniforme étendue à l'ensemble du volume diffractant et  $\Delta\epsilon(\psi)$  représente l'écart entre la déformation totale mesurée et la déformation moyenne.

Si nous considérons un échantillon pour lequel  $\Delta\epsilon(\psi)$  est nul, alors la représentation de la distribution des centroïdes en fonction de  $\sin^2\psi$  est une droite. Supposons alors que la droite de régression linéaire dans les distributions des centroïdes pour le plan (331) soit la représentation de cette déformation uniforme.

Dans ce cas les oscillations autour de la droite moyenne seraient dues soit aux micro-déformations, soit à d'autres effets mécaniques comme l'anisotropie plastique et élastique.

#### Remarques :

Hauk<sup>(36)</sup> considère d'ailleurs que les micro-déformations sont dues aux effets combinés de l'anisotropie élastique et plastique. Noyan<sup>(37)</sup> confirme cette hypothèse en montrant, par une analyse aux éléments finis, que les oscillations sont dues à des incompatibilités élastiques entre grains voisins ou à l'inhomogénéité de la déformation plastique dans les grains. Il propose d'ailleurs une méthode permettant de scinder ces deux effets pour en donner les contributions relatives aux oscillations en utilisant une relation du type :

$$\epsilon = \epsilon_0 + \epsilon_{el} + \epsilon_{plas}$$

Penning et al.<sup>(38)</sup> montrent, dans une étude sur le cuivre laminé, que les oscillations sont dues à l'anisotropie élastique due à la texture cristallographique.

Posons alors :

$$\delta(hkl) = \langle 2\theta_{R.L.}(\psi) \rangle - \langle 2\theta_{R.P.}(\psi) \rangle \quad \text{V-24}$$

où  $\langle 2\theta_{R.L.}(\psi) \rangle$  et  $\langle 2\theta_{R.P.}(\psi) \rangle$  représentent les positions des centroïdes sur la droite de régression linéaire et sur la courbe de régression polynomiale de la distribution vraie. Supposons alors que  $\delta(hkl)$  soit proportionnel à  $\Delta\epsilon(\psi)$ . Si la micro-déformation est responsable des oscillations des distributions en  $\sin^2\psi$ , ou en d'autres termes, si les

micro-déformations sont représentées par l'écart  $\Delta\varepsilon(\psi)$ , alors on doit avoir des variations proportionnelles entre les graphes :

$$\delta(hkl) = f(\sin^2\psi) \text{ et } D_{\text{eff}}(hkl) = f(\sin^2\psi)$$

$$\delta(hkl) = f(\sin^2\psi) \text{ et } \mu_{\text{deff}}(hkl) = f(\sin^2\psi)$$

#### 4.3. Analyse des oscillations :

Conformément aux données présentées ci-dessus, nous avons tracé les courbes suivantes :

- figure V-20 :  $\delta(hkl)$  et  $D_{\text{eff}}(hkl) = f(\sin^2\psi)$  plan (331)  $\phi = 0^\circ$ ,
- figure V-21 :  $\delta(hkl)$  et  $D_{\text{eff}}(hkl) = f(\sin^2\psi)$  plan (331)  $\phi = 90^\circ$ ,

Les figures V-22 et V-23 présentent les courbes équivalentes relatives à la micro-déformation. Ces distributions ne se superposent pas exactement, mais en première approximation, nous constatons que la taille des domaines varie en sens opposé à celui de  $\delta(331)$  alors que la micro-déformation varie dans le même sens. L'hypothèse d'une micro-déformation se "rajoutant" à une déformation macroscopique semble être vérifiée.

Néanmoins, on peut opposer à cette analyse plusieurs remarques. Tout d'abord, le nombre de points figuratifs est trop faible pour affirmer sans ambiguïté cette hypothèse. D'autre part, nous ne connaissons pas l'influence exacte de la texture. Nous pensons donc qu'une étude combinant une correction de texture et la mesure des caractéristiques micro-structurales permettrait d'évaluer le rôle de chaque effet sur ces distributions.

Nous pouvons tout de même affirmer que ces résultats montrent que les oscillations des distributions de la déformation en fonction de  $\sin^2\psi$  sont largement tributaires des variations des grandeurs micro-structurales.

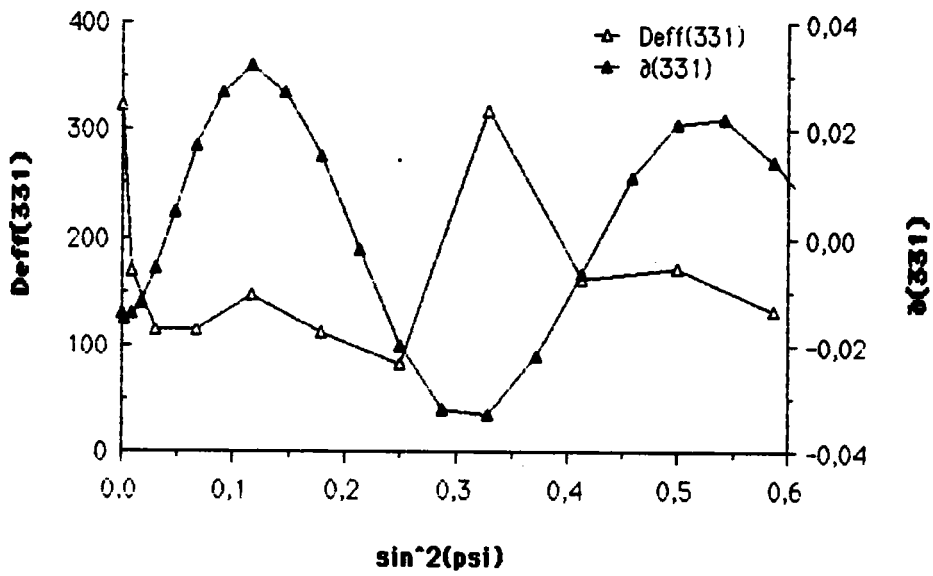


Figure V-20 : Variations de  $\delta(331)$  et  $D_{eff}(331)$  en fonction de  $\sin^2\psi$  à  $\phi = 0^\circ$ .

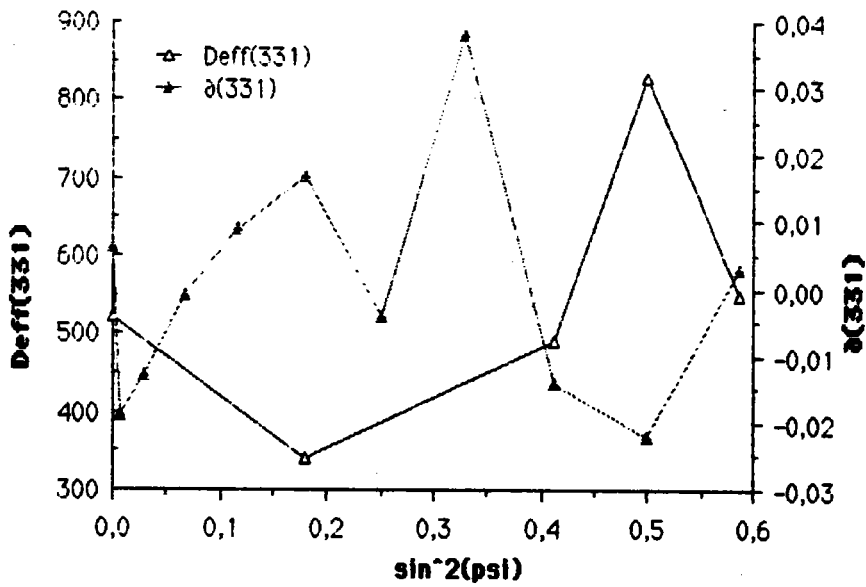


Figure V-21 : Variations de  $\delta(331)$  et  $D_{eff}(331)$  en fonction de  $\sin^2\psi$  à  $\phi = 90^\circ$ .

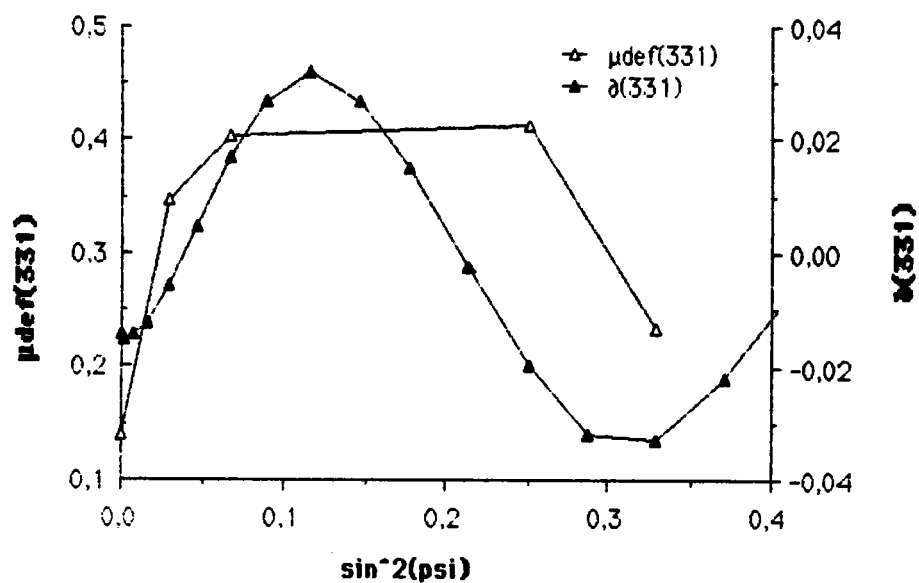


Figure V-22: Variations de  $\delta(331)$  et  $\mu_{\text{def}}(331)$  en fonction de  $\sin^2\psi$  à  $\phi = 0^\circ$ .

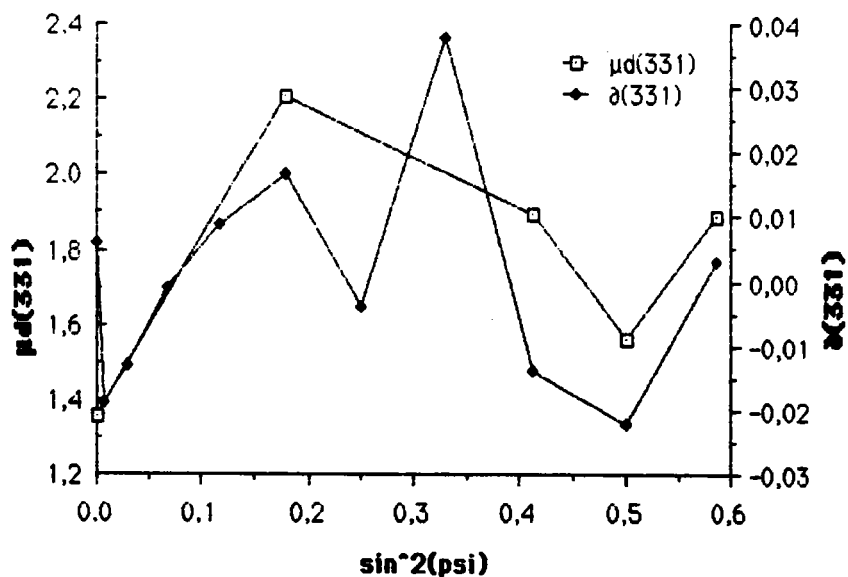


Figure V-23: Variations de  $\delta(331)$  et  $\mu_{\text{def}}(331)$  en fonction de  $\sin^2\psi$  à  $\phi = 90^\circ$ .

## 5. Conclusions :

Nous avons montré dans ce chapitre que les indicatrices constituent des outils très puissants dans le cadre de l'analyse des matériaux polycristallins plastiquement déformés. Les corrélations observées entre les diverses grandeurs mesurées nous incitent à développer de façon plus approfondie la construction des indicatrices par l'introduction de méthodes plus précises d'analyse et de traitement des raies de diffraction.

Un fait important démontré dans cette étude est les liaisons entre la dimension des domaines de diffraction cohérente et les micro-distorsions. Il nous semble que la distribution des dislocations, élément descriptif essentiel du milieu polycristallin, est à l'origine de l'élargissement des raies de diffraction. Sa nature et sa morphologie conditionnent l'interprétation des résultats de toutes analyses de profils de raie de diffraction.

Le facteur de forme d'un profil de raie de diffraction  $X$  peut remplacer avantageusement la largeur à mi-hauteur pour l'interprétation des caractéristiques microstructurales. Si la largeur à mi-hauteur indique l'évolution globale des causes d'élargissement et la quantité de défauts, le facteur de forme indique plutôt la nature de ces défauts sans préciser ni leurs proportions et leurs quantités. Nous avons montré que les domaines appartenant aux directions préférentielles de texture présentent une certaine homogénéité que l'on retrouve aussi bien dans l'évolution de la taille des domaines que dans l'évolution du facteur de forme. Par contre pour les directions non préférentielles nous observons, pour ces mêmes grandeurs, de fortes dispersions dont les causes restent encore à définir.

L'étude sommaire conduite dans le cadre de l'analyse des contraintes résiduelles montre que les oscillations des distributions de la déformation en fonction de  $\sin^2\psi$  sont intimement liées aux facteurs microstructuraux que sont les domaines de diffraction cohérente et la micro-déformation. Des analyses ultérieures permettront sans doute d'évaluer le rôle de la texture et les corrélations probables entre la texture et la microstructure.

D'un point de vue expérimental, il serait souhaitable de disposer d'échantillons standart de meilleure qualité. En effet, le faible nombre de points obtenus dans la plupart des études résulte essentiellement de la "mauvaise qualité" du standart. Nous pensons utiliser par la suite des poudres recuites. Mais il est bien évident qu'il faudra alors faire intervenir des corrections supplémentaires lors de la déconvolution.



## **BIBLIOGRAPHIE CHAPITRE V**

- (1) KRIVOGLAZ M.A., Theory of X-Ray and Thermal Neutron scattering by real crystals, (1969), Plenum Press, New-York
- (2) KRIVOGLAZ M.A., RYABOSHAPKA K.P., *Fizika Metall*, (1963), 15 , 1, 18-31
- (3) WILKENS M., in: Microstructural Characterisation of Materials by Non-Microscopical Techniques, (1984), 153-168 , 5th. RISO Int. Symp. Metal. & Mat. Sc., Roskilde , Dane-mark
- (4) FRANCK F.C., Symposium on Plastic Deformation of Crystalline Solids, Pittsburgh, O.N.R., (1950)
- (5) DARWIN C.G., *Phil. Mag.*, (1914), 27 , 315-675
- (6) DARWIN C.G., *Phil. Mag.*, (1922), 43 , 800
- (7) SHAW M.P. , COMINS N.R. in : Microstructural Characterisation of Materials by Non-Microscopical Techniques, (1984), 513-517, 5th. RISO Int. Symp. Metal. & Mat. Sc., Roskilde , Danemark
- (8) HANSEN N., *Metall. Trans.*, (1985), 16A , 2167-2189
- (9) SWANN P.R., Electron Microscopy and Strength of Crystals, G. Thomas and Washburn, eds Intersciences, N.Y. 1963.
- (10) CLEMENT A. , WIERZBANOWSKY K. , in: Proceedings ICOTOM 6, 408 - 417
- (11) WANG YUMING, LEE SHANSAN, LEE YENCHIN, *J. Appl. Cryst.*, (1982), 15, 35-38
- (12) LEBRUN J.L., MAEDER G., PARNIERE P., in : Proceedings of ICOTOM 6, (1981), 787-796
- (13) WAGNER C.N.J., AQUA E.N., *Trans. Metall. Soc. AIME*, (1967), 239, 1001-1004
- (14) WILKENS M., *J. Appl. Cryst.*, (1979), 12, 119-125
- (15) BERVEILLER M., Thèse d'Etat, Université Paris XIII, (1978)
- (16) WIERZBANOWSKY K., BERVEILLER M., In : Proceedings of ICOTOM 7, 173-178
- (17) REY C., VROUX A.M., in: Microstructural Characterisation of Materials by Non-Microscopical Techniques, (1984), 451-455, 5th. RISO Int. Symp. Metal. & Mat. Sc., Roskilde , Danemark,
- (18) E.T. PETTERS , R.E. OGILVIE, *Trans. Metall. Soc. AIME*, 233 , (1965), 89 - 95
- (19) BERVEILLER M., BOUAOUINE H., *Arch. of Met.*, (1987), 32 , 2 , 171-191
- (20) WILLIAMSON G.K. , SMALLMAN R.E. , *Phil. Mag.*, (1956), 1 , 34-46
- (21) SMALLMAN R.E. ; WESTMACOTT K.H., *Phil. Mag.*, (1957), 2 , 669
- (22) FOREMAN A.J.E., *Acta Met.*, (1955), 3 , 322-330
- (23) TEUTONICO L.J., *Phil. Mag.*, (1964), 10 , 401-421
- (24) OTTE M., ADLER R.P.I., *Trans. Metall. Soc. AIME*, (1967), 239, 1092-1093
- (25) MIKKOLA D.E. , COHEN J.B. , in : in : Local Atomic Arrangements studied by X-Ray

- Diffraction , (1965), 3 , 289-333, Eds. COHEN J.B. and HILLIARD J.E., Gordon and Breach , New York
- (26) WAGNER C.N.J., in : Local Atomic Arrangements studied by X-Ray Diffraction , (1965), 32 , 219-269, Eds. COHEN J.B. and HILLIARD J.E. , Gordon and Breach , New York
- (27) BAILEY J.E., HIRSCH P.B., *Phil. Mag.* , (1960), 5 , 485-497
- (28) BAILEY J.E., *Phil. Mag.* , (1963), 8 , 223-236
- (29) PETCH N.J. , *J. Iron Steel Inst.* , (1953) , 174, 25-28
- (30) HALL E.O. , *Proc. Phys. Soc.* , (1951) , B64 , 747-753
- (31) ARMSTRONG R., CODD I., DOUTHWAITE R.M., PETCH N.J., *Phil. Mag.* , (1962) , 7 , 45-58
- (32) ZACKAY V.F., High Strength Materials, Proc. Sec. Berkeley Int. Mat. Conference, J. Wiley and Sons, New-York, (1965)
- (33) BALL C.J., *Phil. Mag.* , (1957), 2 , 1011
- (34) UNGART T. , MUGHRABI H. , WILKENS M. , in : Microstructural Characterisation of Materials by Non-Microscopical Techniques (1984) , 539- 544, 5th. RISO Int. Symp. Metal. & Mat. Sc., Roskilde , Danemark
- (35) AMBROSI P. , HOMEIER W. , SCHWINK C. , *Scripta Met.* , (1980) , 14 , 325-329
- (36) HAUKE V.M. , in : *Advances in X-Ray Analysis* , (1986), 29 , 1-15 , Eds. BARRET C.S. et al. , Plenum Press , New York
- (37) NOYAN I.C. , NGUYEN L.T. , in : *Advances in X-Ray Analysis* , (1989), 32 , 355-376 , Eds. BARRET C.S. et al. , Plenum Press , New York
- (38) PENNING P. , BRAKMAN C.M. , *Acta Cryst.* , (1988), A44 , 157-163

## **CONCLUSION**

Ce mémoire présente l'état actuel des travaux développés grâce au détecteur courbe CPS120. Nous avons montré que la précision du compteur courbe et son utilisation sont compatibles avec les analyses courantes effectuées en diffraction des rayons X. Les conditions d'utilisation pour une meilleure qualité des mesures ont été proposées. L'une des limitations potentielle de ce compteur pourrait être le pas d'échantillonnage des profils de raie. Nous n'avons pu vérifier ce point.

Nous avons montré qu'il est possible d'utiliser les fonctions de Pearson VII sous une forme asymétrique pour le lissage de raies. Les résultats obtenus pour la poudre de ZnO-ex  $Zn(OH)_2$  ont montré une bonne adéquation entre les profils réels et les profils reconstruits après séparation et lissage. Cette fonction a ensuite été utilisée avec succès dans la mesure des contraintes résiduelles sur l'échantillon d'aluminium de référence.

Nous avons appliqué avec succès le principe de mesure en intégration discontinue et de filtrage numérique par filtre de Fourier des raies de diffraction dans le cadre de la mesure des contraintes résiduelles. Ces deux méthodes permettent une mesure plus précise lorsque le matériau analysé est constitué de gros grains.

Grâce à ce compteur, nous avons pu développer le concept d'indicatrices et montrer leurs champs d'application dans la mesure des contraintes résiduelles. Nous avons ainsi montré que la mesure de contraintes est largement tributaire de la taille des domaines diffractants. Ces indicatrices permettent en fait de juger de façon qualitative le degré d'inhomogénéité des échantillons analysés. Ces indicatrices ont été obtenues en utilisant les techniques de filtrage par filtre de Fourier. Nous avons montré que dans certains cas, le filtrage permet une analyse plus aisée des raies de diffraction, et surtout qu'il ne modifie pas de façon appréciable la valeur des caractéristiques mesurées. Il est permis de penser qu'il est possible de créer bien d'autres indicatrices, en exploitant le concept de multi-indicatrices présenté. Nous pensons ainsi construire, à partir des indicatrices du centroïde et du maximum, une indicatrice relative aux densités cummulées de fautes. Dans le cas de raies bien formées, on peut calculer par transformée de Fourier rapide (F.F.T.) les coefficients de Fourier du profil de raie de diffraction et ainsi créer des indicatrices en utilisant des méthodes simplifiées à un pic en continu.

On voit donc que le concept d'indicatrice peut encore être étendu et son analyse amélioré. En effet, la méthode de séparation de Rachinger des raies  $K_{\alpha,1}$  et  $K_{\alpha,2}$  ne donne pas entière satisfaction (oscillations au pied de raie). Il est souhaitable d'utiliser d'autres méthodes numériques plus précises. La construction des indicatrices relatives aux tailles de domaines de diffraction cohérente et de distorsions nécessite bien entendu quelques perfectionnements, notamment en utilisant d'autres techniques de séparation des effets d'élargissement d'un profil de raie.

L'analyse des indicatrices a montré que l'échantillon d'aluminium 7075 état T6

billé présente de grandes tailles de domaine de diffraction cohérente. Les oscillations des graphes en  $\sin^2\psi$  sont dues essentiellement à l'effet de taille. Aucune corrélation précise n'a pu être définie entre les figures de pôles et les diverses indicatrices. Ceci est sans doute dû au caractère faiblement marqué de la texture. *A fortiori*, aucune corrélation entre intensité de diffraction et position angulaire  $2\theta$  n'a pu être dégagée comme l'indique Marion et Cohen.

Nous avons également montré qu'il existe une relation simple de type Hall-Petch ou de ses formes dérivées entre la dimension des domaines de diffraction cohérente et la valeur de la micro-déformation mesurée. Cette étude montre clairement l'ambiguïté des notions de taille de domaine de diffraction cohérente et de distorsion dans le cas de matériaux ayant subi une déformation plastique importante. Il semble d'après ces résultats que ces deux notions se recouvrent totalement et qu'elles expriment en fait la façon dont s'organise le matériau après déformation. Elles ne permettent pas de décrire cet arrangement car elles intègrent statistiquement l'ensemble des grandeurs qui décrivent localement le matériau. Comme nous le soulignons, il serait souhaitable d'affiner les mesures afin d'obtenir des valeurs quantitatives concernant les principales variables intervenant dans l'expression de la micro-déformation.

L'utilisation des résultats bruts des indicatrices nous a permis de corrélérer les variations de la taille des domaines de diffraction cohérente en fonction de l'intensité diffractée, c'est à dire en fonction des orientations préférentielles. Nous montrons également que le facteur de forme d'un profil de raie de diffraction  $X$  représente la variable la plus adéquate pour décrire les caractéristiques microstructurales d'un matériau polycristallin.

Dans une première approche dans l'étude des contraintes résiduelles, nous avons montré qu'il existe des corrélations entre les oscillations des graphes en  $\sin^2\psi$  et la micro-déformation ou la taille des domaines de diffraction cohérente. Cette étude nous invite à admettre que les analyses "élastiques" de ces oscillations, généralement effectuées en utilisant la fonction de texture (méthode harmonique ou vectorielle), doivent être complétées par une analyse utilisant les indicatrices développées dans ce travail. Nous n'avons pas pu montrer s'il existe une corrélation entre l'analyse élastique des oscillations et les variations des paramètres micro-structuraux. Il nous apparaît nécessaire d'étudier ce problème de manière approfondie par une correction préalable de l'effet de texture de ces oscillations.

L'utilisation des indicatrices de taille et de micro-déformation nous conduit à penser qu'elles représentent des outils performants susceptibles d'éclairer de façon plus précise les caractéristiques micro-structurales et de corréler certaines grandeurs et variations entre elles.

Il est bien entendu que les travaux présentés dans ce mémoire doivent avant tout être complétés et vérifiés sur d'autres matériaux ayant subi divers types de traitement mécanique.

## RESUME

Cette étude présente les travaux réalisés grâce à un détecteur courbe dans le cadre d'analyses classiques de diffraction des rayons X. L'introduction de critères expérimentaux permet une utilisation rationnelle de ce détecteur.

Nous proposons une expression simplifiée des fonctions de Pearson VII asymétriques pour le lissage et la séparation de profils de raies de diffraction X. Nous introduisons des techniques d'analyse adaptées aux matériaux à gros grains lors de la mesure des contraintes résiduelles (intégration discontinue et filtrage numérique des raies de diffraction).

Nous développons et étendons le principe des figures de pôles aux caractéristiques des raies de diffraction (notion d'indicatrice). Grâce à celles-ci nous obtenons des relations formelles entre la taille des domaines de diffraction cohérente et la micro-déformation. Les distributions de l'intensité diffractée en fonction du facteur de forme du profil de raie de diffraction X montre qu'il représente, combiné avec les variations de la largeur à mi-hauteur, une variable adéquate pour la description des matériaux polycristallins déformés. Dans le cadre d'hypothèses généralement admises, les relations micro-contrainte/taille des domaines de diffraction cohérente rappellent les diverses formes de la relation de Hall-Petch. L'étude des oscillations des graphes relatant les variations de la déformation en fonction de la direction de mesure précise le caractère prédominant des caractéristiques microstructurales.

Ce travail montre d'une façon générale que l'analyse des matériaux polycristallins peut être significativement améliorée par l'utilisation et la construction d'indicatrices qui reflètent l'anisotropie du milieu polycristallin.

## ABSTRACT

This study presents works done by using a curved position sensitive detector in the field of X-ray diffraction analysis. The introduction of experimental technics allow us to use this detector with a very high accuracy.

We propose a simplified expression of asymmetric Pearson VII distribution for the fitting and decomposition of mixed X-ray line profiles. We introduce useful technics for the measurement of residual stresses analysis for large grain materials (discontinuous integration and diffraction lines smoothing).

We develop and extended the pole figure concept to the other X-ray line characteristics (named indicatrix). Using them, formal relation between size of the coherently diffracting domains and micro-strain are obtained. The distribution of integrated intensity versus form factor of X-ray line profile show us, in conjunction with x-ray line breadth, that it is one of the best descriptive parameter for polycrystalline materials analysis. Using well-known relationships, the relation between size and micro-stress present some analogy with the Hall-Petch relationship. The study of oscillation in graph giving the deformation versus the measurement direction present predominant effect of microstructural parameter such as domain size or micro-strain.

This work allow us to say that the indicatrices, which reflect structural anisotropy, are useful tools for polycrystalline materials analysis.

## MOTS-CLES :

détecteur courbe, analyse de profil de raie, lissage de raie, séparation de raie, microdéformation, contraintes résiduelles, indicatrice