



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

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.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>



INSTITUT SUPERIEUR DE GENIE MECANIQUE
ET PRODUCTIQUE

THESE

Présentée à



UNIVERSITE DE METZ
PAR

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE - METZ	
N° inv.	49980545
Cote	S/113 98/26
Loc	Magasin

Kamal EL GHAZOULI

Pour l'obtention du grade de :
DOCTEUR de L'UNIVERSITE de METZ

SPECIALITE : SCIENCES DE L'INGENIEUR
OPTION : Mécaniques, Matériaux et Structures

**NOUVELLE METHODE D'ANALYSE, PAR LA DIFFRACTION DES
RAYONS X, DES VARIATIONS DE TEXTURE DANS LES COUCHES
MINCES**

Soutenue le 07 juillet 1998 devant le jury composé de:

M. PERNET

Professeur à l'Université de GRENOBLE

Rapporteur

A. STEINBRUN

Professeur à l'Université de BOURGOGNE

Rapporteur

J.J. HEIZMANN

Professeur à l'Université de METZ

Directeur de thèse

A. VADON

Maître de conférences à l'E.N.I. de METZ

Examineur

F. WAGNF

Professeur à l'Université de METZ

Examineur

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE DE METZ



022 234192 7

Laboratoire

*aux Matériaux CNRS URA 2090
Cedex01*

Remerciements

Mes remerciements vont avant tout à Monsieur J.J. HEIZMANN, professeur à l'Université de Metz et directeur de thèse, pour m'avoir accordé son temps et toute sa compétence avec une grande générosité tout au long des quatre années nécessaires à l'aboutissement de ces travaux.

Je remercie également, Monsieur Christian LARUELLE Ingénieur, de ses conseils constants, soit en technique des rayons X soit en informatique, tout au long de ce travail. Il a été à l'origine de ma formation et mon adaptation à la diffractométrie. Qu'il me soit permis de le remercier et de lui exprimer ici ma profonde reconnaissance.

Je remercie, Monsieur M. PERNET, Professeur de l'Université de Grenoble pour l'honneur qu'il me fait de bien vouloir accepter d'être à la fois Rapporteur et Président de ce jury.

Je remercie également, Monsieur A. STEINBRUN, Professeur de l'Université de Bourgogne pour l'honneur d'accepter de juger ce travail en tant que Rapporteur de cette thèse.

Je remercie également, Monsieur A. VADON, Maître de Conférences à l'E.N.I. de Metz, pour son aide généreuse et efficace lors de l'utilisation de la méthode vectorielle.

Je remercie, Monsieur F. WAGNER, Professeur de l'université de Metz, qui m'a fait l'honneur de participer à la commission d'examen et de l'intérêt qu'il a bien voulu porter à ce travail.

Je remercie aussi, Monsieur J. BESSIERES de ces conseils et son soutien efficace qu'il m'a accordé tout au long de la correction de cette thèse.

Mes remerciements vont à ma femme, Marie El GHAZOULI, pour son soutien et son aide à la rédaction de cette thèse, tant pour l'orthographe que pour la présentation.

Mes remerciements vont aussi à tous les membres du L.E.T.A.M., mes camarades du groupe GMPC, B.BOLLE., F. BAGDOUCHE, J. BOUSAID, L. JOLLY, A. MODARESSI, F. MOREAU et A. TIDU, pour les discussions scientifiques et leur aide lors de ces années d'études.

TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION GENERALE.....	1
----------------------------	---

CHAPITRE I:

Généralités sur l'étude de la texture cristallographique

1. INTRODUCTION:	4
2. COMMENT REPRESENTER LA TEXTURE:	4
3. LES FIGURES DE POLES:	5
4. GONIOMETRIE DE TEXTURE:.....	6
5. CORRECTIONS APPORTEES AUX FIGURES DE POLES:.....	10
5.1 . FOND CONTINU:	10
5.2 . LE VOLUME DIFFRACTANT:	10
6. ANALYSE QUANTITATIVE DE LA TEXTURE:	13
7. PRINCIPE DE LA METHODE VECTORIELLE:	14
7.1 DOMAINE DES AXES DE FIBRES:	14
7.2 .DOMAINE DES ORIENTATIONS:.....	16
7.3 .VECTEUR DE TEXTURE:	18
8. CONCLUSION:	21

CHAPITRE II:

Différentes techniques de mesures de la texture des couches minces

1. METHODE DE SCHULZ :.....	23
1.1. INTENSITE DIFFRACTEE PAR UN ECHANTILLON D'EPAISSEUR INFINIE:	24
1.2. INTENSITE DIFFRACTEE PAR UNE COUCHE MINCE D'EPAISSEUR t:.....	26
1.3. CONCLUSION :	28
2. GEOMETRIE DE DIFFRACTION SOUS FAIBLE INCIDENCE :	28
2.1. INTENSITÉ DIFFRACTEE PAR UNE COUCHE MINCE:	29
2.2. LIMITATION de LA FAIBLE INCIDENCE:.....	32
2.2.1. Réflexion totale:	32
2.2.2. Elargissement du faisceau diffracté:.....	33
2.3. CONCLUSION:	34
3. GEOMETRIE DE DIFFRACTION A EPAISSEUR CONSTANTE:.....	34

3.1. ASPECT GEOMETRIQUE:	35
3.2. ETUDE DE LA ZONE DE MESURE EN FONCTION DU CHOIX DE $P(\psi_g, \omega_g, t)$ ET t :	38
4. CORRECTIONS APPORTEES AUX FIGURES DE POLES ($\omega_g \neq 0$):	39
4.1. STANDARDISATION:	39
4.2. NORMALISATION:	41
4.3. CHRONOLOGIE DES CORRECTIONS: POUR LES COUCHES MINCES	42
5. EXEMPLE D'APPLICATION EXPERIMENTALE:	42
6. CONCLUSION:	45

CHAPITRE III:

Etude des textures hétérogènes dans les couches minces par diffraction X

1. INTRODUCTION: EXEMPLES DE TEXTURE HETEROGENE	47
2. NOUVELLE METHODE DE DETERMINATION DE TEXTURE HETEROGENE:	49
2.1. RAPPEL DES AUTRES METHODES:	49
2.2. PRINCIPE DE LA METHODE:	52
2.3. RESOLUTION DU SYSTÈME:	54
2.4. EXAMEN DE LA VALIDITÉ DES SOLUTIONS:	56
2.5. TEST DE LA METHODE ET DES PROGRAMMES DE CALCULS:	58
2.5.1. Exemple 1: combinaison entre la géométrie de Schulz et la géométrie à épaisseur constante :	59
2.5.2. Exemple 2: combinaison entre la géométrie de Schulz et la géométrie à forte incidence:	62
2.5.2.1. $\omega_g = 10^\circ$	62
2.5.2.2. $\omega_g = 20^\circ$	64
3. CONCLUSION:	67

CHAPITRE IV:

Applications expérimentales

1. GRADIENT DE TEXTURE ARTIFICIEL :	69
1.1. FIGURES DE POLES MESUREES DE LA BICOUCHE:	70
1.2. DÉTERMINATION DES FIGURES DE POLES RELATIVES À CHACUNE DES SOUS COUCHES:	72
1.2.1. Figures de pôles (111):	72
1.2.2. Figures de pôles (200):	73
1.2.3. Comparaison qualitative:	74
1.2.4. Comparaison quantitative:	76

1.2.4.1. Analyse vectorielle des figures de pôles de la couche de 3 microns:	77
1.2.4.2. Analyse vectorielle des figures de pôles de la couche de 6 μ m:	79
1.3. CALCUL D'ERREUR COMMISE SUR LES FIGURES DE POLES DE CHACUNE DES SOUS COUCHES LORS DE LA SEPARATION:	81
1.4. DETERMINATION DE LA FRONTIERE ENTRE LES DEUX SOUS COUCHES:	86
2. GRADIENT DE TEXTURE REEL:	89
3. CONCLUSION:	92
CONCUSION GENERALE.....	95

Angles:

ψ_g , φ_g et ω_g angles du goniomètre.

ψ_m et φ_m angles de $[hkl]^*$ dans le repère de l'échantillon.

Coefficients de texture:

$K_{\psi_m \varphi_m}$: densité par rapport à l'isotrope des grains en position de diffraction, dont les normales ont la position ψ_m et φ_m .

$K^i_{\psi_m \varphi_m}$: coefficient de texture pour la $i^{\text{ème}}$ couche.

Filtre:

F^1 : effet de filtre de la première couche sur l'intensité diffracté par la deuxième couche.

Géométries de mesure:

Méthode de Schulz ($\omega_g=0$): $\psi_m=\psi_g$ et $\varphi_m=\varphi_g$.

Autres méthodes ($\omega_g \neq 0$): $\psi_m \neq \psi_g$ et $\varphi_m \neq \varphi_g$.

Intensités:

i : intensité diffractée par un échantillon isotrope de volume unitaire situé en surface.

$I_{\psi_g \varphi_g \omega_g}$: intensité diffractée par l'échantillon à la position $(\psi_g, \varphi_g, \omega_g)$.

$I'_{\psi'_g \varphi'_g \omega'_g}$: intensité diffractée par l'échantillon à la position $(\psi'_g, \varphi'_g, \omega'_g)$.

$I_{\psi_m \varphi_m}$: intensité mesurée aux angles ψ_g, φ_g et ω_g qui a été transférée aux angle ψ_m et φ_m .

$P(\psi_g, \omega_g, t)$:

proportion d'intensité provenant d'une couche d'épaisseur t par rapport à celle qui proviendrait d'un échantillon d'épaisseur infinie.

Standardisation = correction de localisation:

transfert des intensités, mesurées à la position $(\psi_g, \varphi_g, \omega_g)$, à la position (ψ_m, φ_m) .

Volumes:

$V(\psi_g, \varphi_g, \omega_g)$: volume irradié à la position $(\psi_g, \varphi_g, \omega_g)$ du goniomètre.

$V_d(\psi_g, \varphi_g, \omega_g)$: volume diffractant à la position $(\psi_g, \varphi_g, \omega_g)$ du goniomètre. Il est égal au volume irradié pondéré par l'absorption.

$V_d^\infty = \frac{S_0}{2\mu}$: volume diffractant d'un échantillon d'épaisseur infinie. C'est volume constant.

V_d : volume diffractant d'une couche mince.

V_d^i : volume diffractant de la $i^{\text{ème}}$ sous couche.

INTRODUCTION GENERALE

Les matériaux sous forme de couches minces, ou multicouches sont utilisés dans plusieurs domaines. Dans l'industrie électronique où l'évolution se base sur les performances des capacités des composants, exigeant alors une production très contrôlée de couches minces (fabrication des circuits intégrés). Ces couches minces se retrouvent également dans le domaine des revêtements pour la protection des matériaux contre l'oxydation ou la corrosion (exemple d'une couche d'aluminium sur des aciers) et pour atténuer les effets du rayonnement solaire (cas des verres teintés). Ces couches minces se rencontrent aussi dans les miroirs à rayons X, ou encore dans le laitonage des fils d'acier, pour augmenter l'adhérence caoutchouc-fil des pneumatiques d'automobile. Toutes ces couches peuvent varier de quelques centaines d'Angströms à quelques dixièmes de millimètres d'épaisseur.

Plusieurs méthodes de dépôt sont utilisées pour déposer les couches minces et les multicouches. Soit par pulvérisation sous vide, utilisée surtout dans le domaine de l'électronique, soit par déposition électrolytique pour obtenir des couches d'épaisseur de l'ordre du micron à plusieurs dizaines de microns, avec des vitesses de dépôt élevées (revêtement).

Quelque soit le procédé de mise en œuvre, la formation du dépôt comporte trois étapes très importantes: la germination, la coalescence des germes et la croissance de ceux-ci. Cette croissance cristalline conduit à un revêtement cristallisé dans lequel les cristallites sont plus ou moins orientés par rapport au substrat. La texture de la couche déposée sera souvent influencée par la structure du substrat, son état de surface ainsi que par les conditions de préparation du dépôt.

Actuellement, lors de l'étude des orientations préférentielles des cristallites qui composent la couche mince, on considère une répartition homogène des orientations sur toute l'épaisseur, car c'est une des hypothèses de base des différentes méthodes d'analyse de la texture.

Pour déterminer l'orientation cristalline, plusieurs méthodes basées sur la diffraction X sont utilisées: la méthode conventionnelle θ - 2θ et l'incidence rasante. Ces techniques permettent de connaître les plans réticulaires qui sont soit parallèles soit perpendiculaires à la surface du substrat de la couche mince. Quelques travaux font état de la goniométrie de texture pour déterminer l'orientation des cristallites de la couche mince (Knorr et son équipe [1] ; Knorr [2]).

Parallèlement à des travaux du laboratoire ([3], [4], [5] et [6]), Chateigner et son équipe ([7], [8]) ont développé une méthode de correction d'intensité diffractée par les multicouches afin de pouvoir quantifier la texture.

Généralement dans les couches minces, la texture n'est pas homogène car il existe deux discontinuités de surface ; l'interface avec le substrat où il peut exister des relations plus ou moins fortes d'épitaxie par exemple et la surface externe libre des contraintes. Dans les échantillons "massifs", la couche superficielle peut également posséder des orientations différentes de celles du cœur. Cette différence est souvent due aux conditions de fabrication (laminage Duggan [9] ou tréfilage Montesin [10]).

Le problème de variation de texture dans les couches superficielles est partiellement résolu pour des échantillons de taille relativement importante en utilisant des moyens d'abrasion mécanique ou chimique afin de pouvoir observer des tôles, des fils.....Mais ce problème reste entier pour les matériaux de faible épaisseur.

Dans cette étude, nous allons présenter une méthode basée sur les variations de la profondeur de pénétration des rayons X dans le matériau, en utilisant différentes techniques goniométriques d'observation de ce dernier, pour évaluer les variations de textures dans les couches minces.

En effet, lorsqu'une couche mince possède une texture hétérogène dans son épaisseur, les variations d'intensité d'une raie de diffraction traduisent d'une part les variations du volume observé et d'autre part les variations de texture qui dépendent de la position de la couche par rapport au faisceau incident.

Dans les deux premiers chapitres, nous décrirons de façon critique les différentes techniques goniométriques qui sont utilisées par la méthode de séparation.

Dans le troisième chapitre sera présenté le principe de la méthode de détermination de variation de texture que nous avons mis au point. Cette méthode fait appel à des calculs numériques traités par des programmes informatiques qui ne seront pas présentés.

Dans le dernier chapitre, cette nouvelle méthode sera appliquée sur deux sortes d'échantillon, l'un dont la variation de texture est connue et qui servira d'échantillon test et l'autre dont le gradient de texture est initialement inconnu.

Références Bibliographiques:

- [1]: D. R. Knorr, P. Bai and T.M. Lu ; Appl. Phys. Lett. ; volume(19) **56** ; 1859-1861 ; 1990.
- [2]: D. B. Knorr ; ICOTOM 10 ; septembre 1993.
- [3]: A. Tizliouine, J. Bessièrès, J.J. Heizmann et J. F. Bobo ; ICOTOM 10 ; septembre 1993.
- [4]: A. Tizliouine, J. Bessièrès, J.J. Heizmann et J. F. Bobo ; ICOTOM 10 ; septembre 1993.
- [5]: H. Chaouni, P. Maigri, J. Bessièrès, J.J. Heizmann ; ICOTOM 10; septembre 1993.
- [6]: J. J. Heizmann, A. Vadon, D. Schlatter, J. Bessièrès, Advances in X-ray Analysis ; volume (32) ; 285-292 ; 1989.
- [7]: D. Chateigner, P. Germi, M. Pernet, P. Fréchard et S. Andrieu ; J. Appl. Crys. ;1994
- [8]: D. Chateigner, P. Germi, M. Pernet ; ICOTOM 10 ; septembre 1993.
- [9]: B. J. Duggan, C. S. Lee and R. E. Smallman ; Proceedings of ICOTOM 10 ; 659.
- [10]: T. Montesin, J.J. Heizmann ; Textures and Microstructures ; Volume(14-18) ; 573-578 ; 1991.

Chapitre I:

Généralités sur l'étude de la texture cristallographique

1. INTRODUCTION:

Les échantillons métalliques doivent présenter des propriétés physiques et mécaniques bien précises qui dépendent de leur utilisation ultérieure. Le résultat des mesures de ces propriétés peuvent varier en fonction de l'endroit étudié ; l'échantillon est alors dit hétérogène. Lorsque la mesure varie en fonction de la direction sollicitée, l'échantillon est dit anisotrope.

L'anisotropie dépend généralement de deux familles de paramètres:

- ceux liés aux propriétés des cristallites (nature du cristallite, forme du réseau...).
- ceux caractérisant le milieu polycristallin (dimensions des cristallites, orientation des cristallites, joint des grains, contraintes internes....).

Lorsqu'un échantillon a une répartition non aléatoire des orientations de ses cristallites, on dit qu'il présente une texture cristallographique. La détermination de la texture cristallographique d'un matériau revient à déterminer les orientations prédominantes des éléments cristallins qui le composent.

2. COMMENT REPRESENTER LA TEXTURE:

A l'état solide, le métal (polycristal) est constitué d'un ensemble de grains. Dans l'hypothèse d'une structure homogène, chaque grain est un monocristal.

Pour désigner les plans et directions dans le cristal, on utilise le système de notation des indices de Miller.

Les rangées $[100]$, $[010]$ et $[001]$ de la maille élémentaire définissent un repère lié au cristal, ce repère est appelé repère cristallographique noté R_C .

L'orientation cristalline d'un grain dans un matériau sera alors définie par la position des plans cristallographiques (hkl) de son réseau cristallin dans un repère lié au matériau lui même. Ce repère est appelé repère macroscopique noté R_E .

Un grain étant considéré comme un solide rigide immobile, trois paramètres suffisent à définir son orientation par rapport au repère R_E , par exemple les angles d'Euler (ψ, θ, ϕ) .

Dans un polycristal, un grand nombre de grains peuvent avoir la même orientation. Cette orientation préférentielle dans le polycristal est alors l'orientation $g(\psi, \theta, \phi)$ que l'on retrouve le plus souvent parmi l'ensemble des grains qui le composent.

La détermination de ces orientations préférentielles passe par:

- la mesure des figures de pôles expérimentales,
- le calcul de la fonction de distribution des orientations à partir des figures de pôles.

3. LES FIGURES DE POLES:

Une figure de pôles donne la densité des pôles (hkl) en fonction de leur orientation, par rapport à l'échantillon. La sphère des pôles (figure-I-1 (a)) est une surface sphérique de rayon égal à l'unité, sur laquelle est matérialisée, par un point P appelé pôle, l'intersection de la normale $N^*_{(hkl)}$ avec la sphère.

On appelle figure de pôles (F.D.P.) $_{(hkl)}$ la projection stéréographique, sur un plan de référence de l'ensemble de ces points, de tous les grains d'un échantillon. Le plan de référence choisi est généralement le plan de l'échantillon (figure-I-1 (b)).

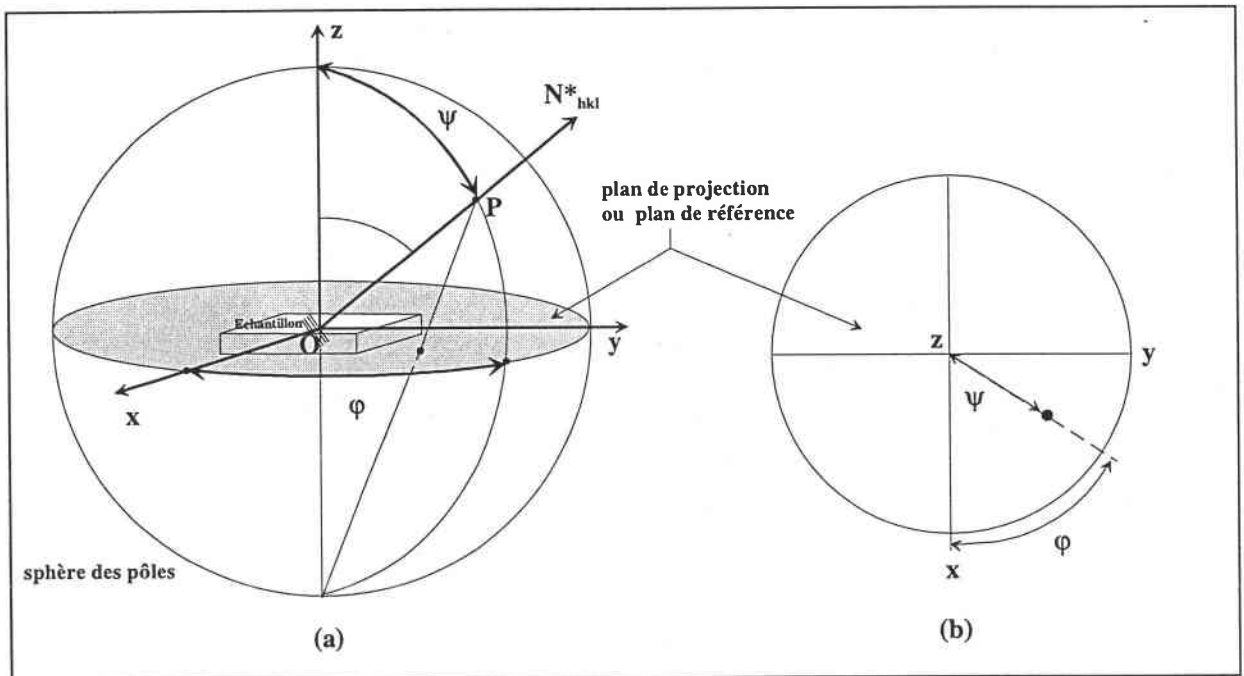


Figure-I-1: (a) sphère des pôles, (b) plan de projection

Une orientation cristalline étant parfaitement définie par trois directions non coplanaires, il est nécessaire d'utiliser plusieurs F.D.P. d'un même échantillon pour définir son orientation cristallographique. Cependant, compte tenu de la multiplicité des plans $\{hkl\}$, une seule F.D.P.

même incomplète peut être suffisante pour déterminer l'orientation d'un matériau (Rüer et Vadon [1]).

4.GONIOMETRIE DE TEXTURE:

Les figures de pôles $\{hkl\}$ sont obtenues expérimentalement par la diffraction des rayons X ou des neutrons sur les plans réticulaires (hkl) , à l'aide d'un goniomètre de texture. Le principe de ce dernier sera brièvement décrit, ainsi que les corrections à apporter après mesure.

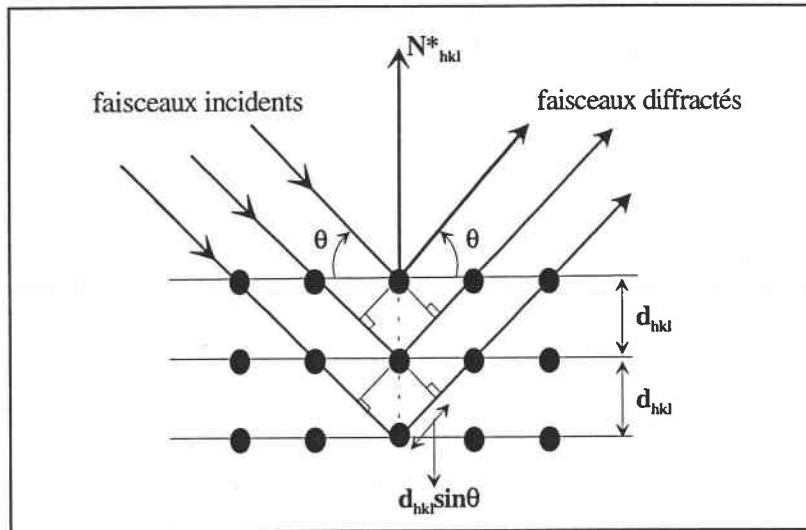


Figure-I-2: Géométrie de la diffraction de Bragg.

Quand un faisceau parallèle de rayons X, de longueur d'onde, λ irradie un ensemble de grains d'un matériau, il est diffracté par une famille de plans cristallographiques (hkl) si la différence de marche entre les rayons réfléchis par deux plans cristallographiques successifs est égale à un nombre entier de longueur d'onde (figure-I-2). Cette condition est satisfaite si l'angle θ formé par le faisceau incident et les plans cristallographiques obéit à la relation de Bragg:

$$2d_{hkl}\sin\theta = n\lambda$$

où

d_{hkl} : distance réticulaire de la famille des plans cristallographiques $\{hkl\}$,

θ : angle de Bragg,

n : nombre entier,

λ : longueur d'onde du faisceau.

Pour un échantillon polycristallin, le faisceau diffracté décrit un cône ayant pour axe le faisceau incident et pour angle au sommet 4θ . Ce cône est appelé cône de Debye (figure-I-3). L'intersection de ce cône avec un plan perpendiculaire au faisceau incident donne l'anneau de Debye. Quand la répartition des cristallites est isotrope, l'intensité de l'anneau est uniforme. Par

contre, si la répartition des cristallites est anisotrope, l'intensité varie le long de l'anneau de Debye.

Les points situés sur le cône de Debye correspondent à des plans réticulaires (hkl) dont les normales sont situées sur un cône d'ouverture ($\pi/2-\theta$).

Pour observer le point **D'** de l'anneau de Debye (correspondant aux normales **N'**), il suffirait de déplacer le détecteur initialement en **D** au point **D'**.

L'examen de l'ensemble des points de l'anneau de Debye correspond seulement au cercle décrit par le cône des normales sur la sphère des pôles.

Pour pouvoir déterminer la texture de l'échantillon, il faut observer tous les points relatifs aux normales des plans (hkl) de l'ensemble des grains. Ces points sont répartis sur toute la sphère des pôles. La diffraction rendant les cristaux centrosymétriques (loi de Friedel), l'étude de la répartition des normales sur la sphère des pôles se réduit en fait à l'étude de leur répartition sur une demi sphère.

Généralement la source des rayons X "**S**" et le détecteur "**D**" sont fixes dans le repère laboratoire.

Lorsque le détecteur est un détecteur monocanal, situé au point **D** par exemple, seuls les plans (hkl) dont les normales sont situées en **N**, appartenant au plan d'incidence **SOD**, diffractent dans la direction du compteur.

Pour étudier la répartition des normales N^*_{hkl} appartenant à la demi sphère, nous devons pouvoir amener un point **N''** quelconque de la demi sphère à la position **N**. Pour cela au moins deux rotations de l'échantillon sont nécessaires. Ces rotations permettent de "balayer" la demi sphère des pôles.

En fonction des axes des rotations utilisées, plusieurs stratégies de balayage sont possibles. Ces axes de rotations sont définis par la mécanique du goniomètre.

Le goniomètre le plus utilisé pour la détermination des textures est le goniomètre quatre axes dont les axes de rotations sont concourants (figure-I-4).

- l'axe ω (rotation du goniomètre) est perpendiculaire au plan d'incidence (défini par le faisceau incident et le faisceau diffracté capté par le compteur).
- L'axe ψ de la déclinaison appartient au plan d'incidence et à la surface de l'échantillon.
- L'axe ϕ de l'azimut est perpendiculaire à la surface de l'échantillon (donc à ψ).
- L'axe 2θ confondu avec ω permet de fixer l'angle de Bragg 2θ .

La stratégie de balayage la plus utilisée est celle de Schulz [2] qui utilise les rotations ψ_g et φ_g avec $\omega_g=0$, nous la décrirons plus en détail dans le chapitre suivant.

La stratégie de Field et Merchand [3] utilisant les rotations ω_g et φ_g avec $\psi_g=0$.

La méthode des MFDP (multifigures de pôles) élaborée par Heizmann et Laruelle [4] dans notre laboratoire qui est une combinaison des deux précédentes méthodes. ω_g est égale à une constante qui permet de mesurer simultanément plusieurs figures de pôles et qui a donné naissance aux méthodes de mesure en faible incidence.

La méthode de mesure des figures de pôles gardant une profondeur de pénétration constante des rayons X (Jolly et al [5]), que nous décrirons plus en détail. Cette méthode utilise trois rotations ψ_g , φ_g et ω_g .

D'autres méthodes existent, mais elles nécessitent un autre type de goniomètre qui permette deux ou trois rotations autour d'axes non "conventionnels".

La méthode de Player [6] pour laquelle un axe de rotation est confondu avec le faisceau incident. Cette méthode permet de conserver un angle d'incidence des rayons X par rapport à la surface de l'échantillon constant au cours du balayage de la sphère des pôles.

Les méthodes utilisant un goniomètre Kappa pour lesquelles un axe de rotation nommé Kappa fait un angle Kappa donné avec le plan d'incidence.

Certains goniomètres utilisent des détecteurs linéaires, courbes ou surfaciques (Heizmann et al [7] , Jensen [8] et Bunge [9]). Selon la position du détecteur par rapport à l'échantillon, tout ou partie de l'anneau de Debye est analysé. Dans ce cas une seule rotation de l'échantillon est suffisante pour que le cercle des normales, inscrit sur la sphère des pôles, balaye toute ou partie de la sphère des pôles.

Le goniomètre que nous utiliserons durant toute cette étude a été développé au laboratoire. C'est un goniomètre quatre axes "classiques". Le dernier axe 2θ permet de faire tourner un détecteur courbe INEL CPS 120°.

Ce goniomètre nommé "MFDP" (multifigure de pôles) permet l'enregistrement simultané de plusieurs figures de pôles avec leurs bruits de fond respectifs.

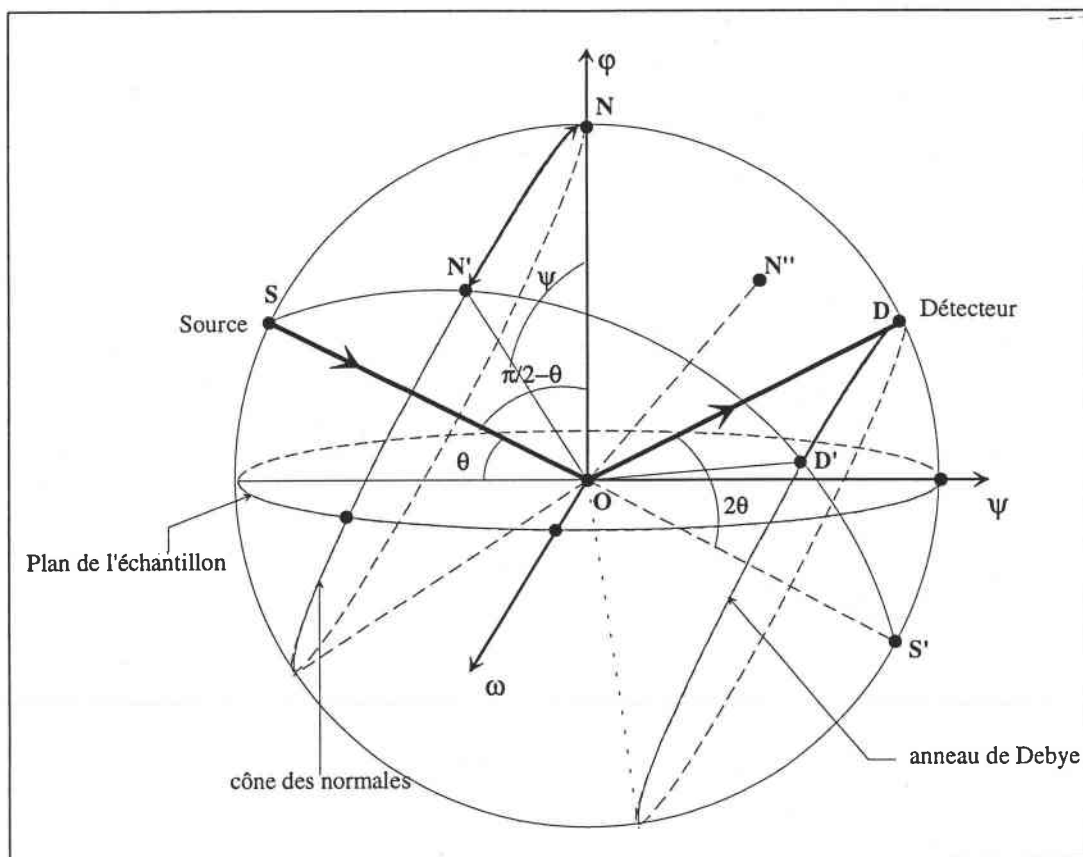


Figure-I-3: anneau de Debye des plans (hkl) et anneau des normales

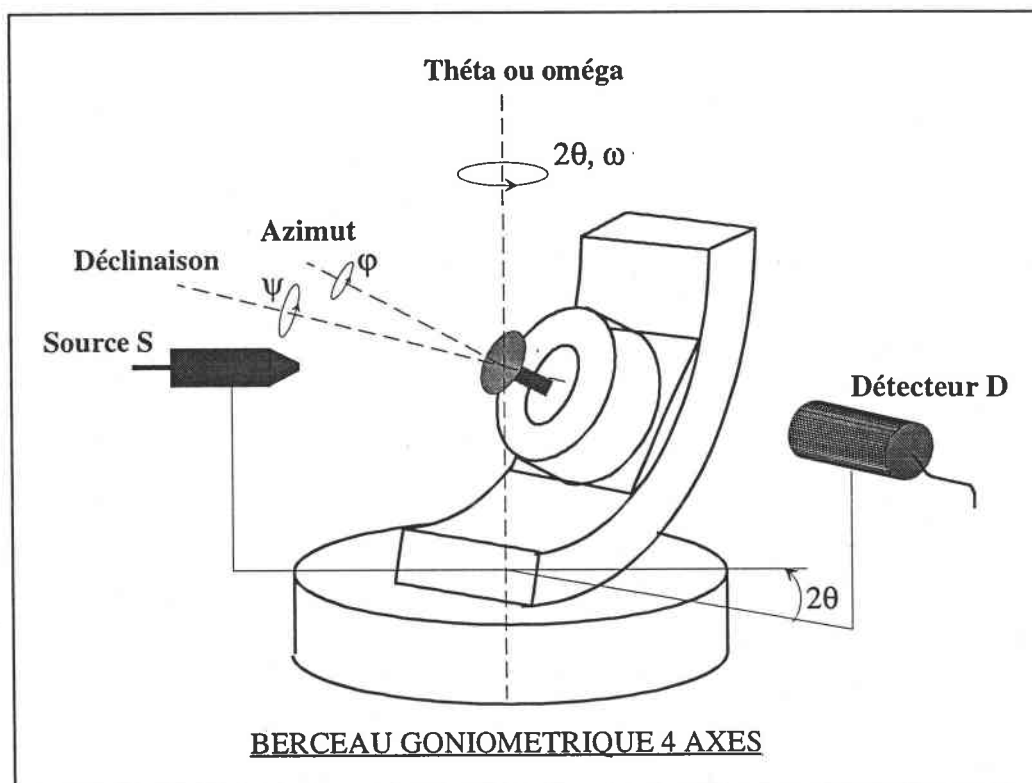


Figure-I-4: Axes de rotation goniométriques.

5. CORRECTIONS APPORTEES AUX FIGURES DE POLES:

5.1. FOND CONTINU:

Lors de la mesure par rayons X, le signal enregistré est composé du signal provenant de la diffraction du matériau et d'un signal parasite appelé le fond continu. Celui-ci a de multiples origines: réflexions parasites, fluorescence du matériau analysé, diffusion des faisceaux incidents et diffractés dans l'air, bruit de fond instrumental,... . Les premiers phénomènes croissent proportionnellement avec l'ouverture de la fente du collimateur tandis que le dernier est généralement très faible (Croche et al [10]).

Pour résoudre ce problème, souvent gênant pour une mesure de qualité, nous exploitons un des avantages du détecteur courbe. En effet, pour chaque position (ψ, ϕ) de l'échantillon, nous pouvons mesurer l'ensemble du diffractogramme sur une plage angulaire de $2\theta = 120^\circ$. On peut donc définir, de part et d'autre du pic de diffraction de la famille de plans $\{hkl\}$ visée, deux zones de mesure du fond continu, qui indiquent en permanence sa valeur à gauche et à droite du pic choisi (figure-I-5). Une droite reliant ces deux zones est alors tracée pour définir la valeur du bruit de fond (I_{bdf}) sous le pic. Par soustraction, nous pouvons donc déterminer l'intensité intégrée réelle du faisceau diffracté sous le pic (I_{hkl}).

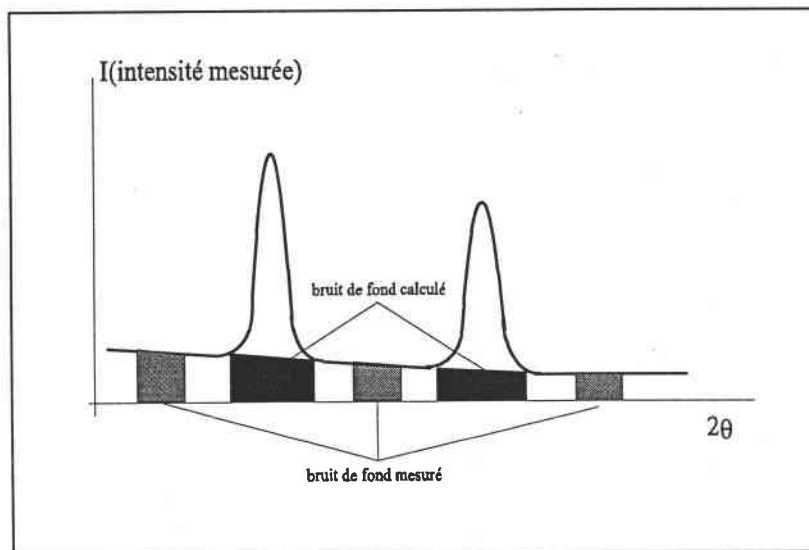


Figure-I-5: méthode expérimentale de correction du bruit de fond

5.2. LE VOLUME DIFFRACTANT:

La figure-I-6 représente un faisceau de section S_0 arrivant sur un échantillon de forme quelconque. On peut remarquer que:

- le faisceau transmis est absorbé par le matériau suivant la loi générale de l'absorption (Beer-Lambert):

$$I = I_0 \exp(-\mu x)$$

où μ est le coefficient d'absorption linéaire et x la distance parcourue par le faisceau à travers le matériau.

- Le faisceau diffracté sera également absorbé par le matériau selon la même loi.

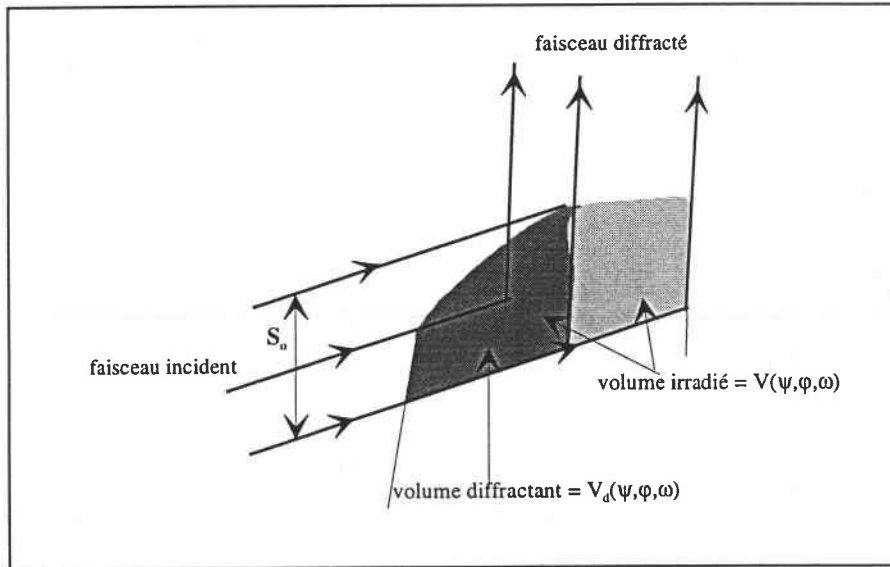


Figure-I-6: volume irradié et diffracté d'un échantillon de forme quelconque.

Soit $V(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$ le volume irradié par le faisceau X incident, à la position $(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$ de l'échantillon. D'une manière générale, nous pouvons dire qu'un volume élémentaire **isotrope** dV , situé à la surface (absorption négligeable) diffracte une intensité donnée par la relation suivante:

$$dI = i dV$$

où : i est l'intensité émise par un volume unitaire **isotrope** situé en surface

dV est le volume élémentaire participant à la diffraction.

L'intensité issue d'un élément de volume dV , situé à une profondeur x de la surface, lorsque le matériau a un coefficient d'absorption μ est alors de la forme:

$$dI = i \exp(-\mu d_{\psi_g, \phi_g, \omega_g}) dV$$

où: $d_{\psi_g, \phi_g, \omega_g}$ est le chemin parcouru dans l'échantillon par les rayons X incidents et diffractés.

L'intensité totale diffractée est:

$$I_{\psi_g, \phi_g, \omega_g} = i \int_{V(\psi_g, \phi_g, \omega_g)} \exp(-\mu d_{\psi_g, \phi_g, \omega_g}) dV = i V_d(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$$

$V_d(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$ est le volume diffractant pour une position $(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$ donnée, c'est en fait le volume irradié $V(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$ pondéré par l'absorption. Pour un échantillon isotrope, l'intensité diffractée est donc proportionnelle au volume diffractant.

Pour étudier la texture des matériaux il est essentiel que ce volume $V_d(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$ soit constant, de manière à ce que les intensités mesurées ne soient pas affectées par sa variation.

En effet, lorsque l'échantillon n'est pas isotrope, l'intensité diffractée peut s'écrire:

$$I_{\psi_g, \phi_g, \omega_g} = i \int_{V(\psi_g, \phi_g, \omega_g)} K(\psi_g, \phi_g, \omega_g) \exp(-\mu d_{\psi_g, \phi_g, \omega_g}) dV$$

avec $K(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$ est appelé facteur d'orientation: est un nombre représentant la densité, par rapport à l'isotropie, des grains du volume dV qui sont en position de diffraction.

- Si $K(\psi_g, \phi_g, \omega_g)=1$ il y a le même nombre de grains en position de diffraction que dans un échantillon isotrope.
- Si $K(\psi_g, \phi_g, \omega_g) < \text{ou} > 1$ il y a plus ou moins de grains en position de diffraction par rapport à l'isotrope.

Deux cas peuvent se présenter:

a) Lorsque l'échantillon possède une texture homogène:

Dans ce cas, chaque élément de volume dV a la même orientation. $K(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$ est donc indépendant de la position dans l'échantillon du volume élémentaire dV . L'intensité s'écrit:

$$I(\psi_g, \phi_g, \omega_g) = i K(\psi_g, \phi_g, \omega_g) V_d(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$$

Les variations des intensités représentent alors les variations des orientations dans le volume diffractant. Dans le cas de l'étude de la texture des couches minces, le faisceau n'étant pas complètement absorbé par le matériau (Tizliouine [11]), la correction du volume diffractant est donc nécessaire (figure-I-7). Cette correction tient compte du coefficient d'absorption linéaire μ du matériau étudié qui est fonction de la longueur d'onde du tube utilisé.

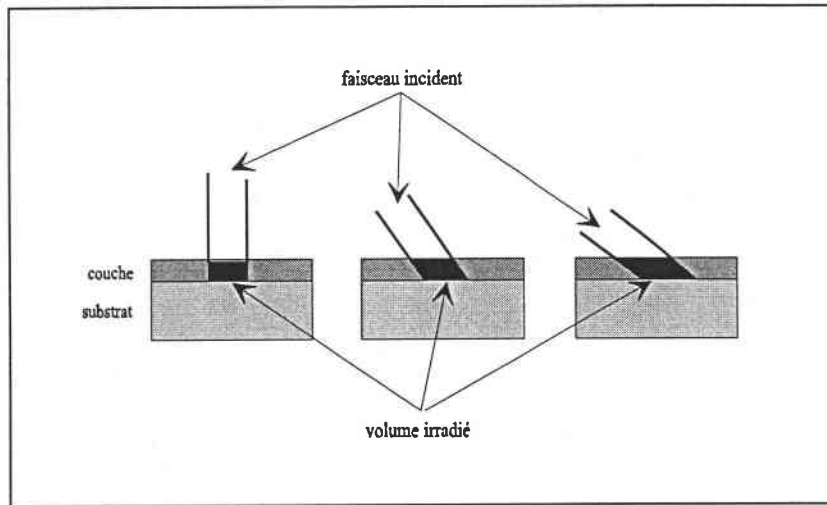


Figure-I-7: effet de la déclinaison sur le volume irradié $V(\psi, \varphi, \omega)$ d'un échantillon plan.

b) Lorsque l'échantillon n'a pas une texture homogène:

La détermination de celle-ci devient quasiment impossible. En effet le coefficient $K(\psi_g, \varphi_g, \omega_g)$ étant variable, on ne peut pas le sortir de l'intégrale et l'intensité diffractée ne permet pas de localiser l'élément de volume qui diffracte. Néanmoins, une valeur moyenne $\langle K(\psi_g, \varphi_g, \omega_g) \rangle$ de $K(\psi_g, \varphi_g, \omega_g)$ peut être définie à partir de la relation:

$$\langle K(\psi_g, \varphi_g, \omega_g) \rangle = \frac{\int_{V(\psi_g, \varphi_g, \omega_g)} K(\psi_g, \varphi_g, \omega_g) \exp(-\mu d_{\psi_g, \varphi_g, \omega_g}) dV}{\int_{V(\psi_g, \varphi_g, \omega_g)} \exp(-\mu d_{\psi_g, \varphi_g, \omega_g}) dV}$$

Et l'intensité diffractée s'écrit:

$$I(\psi_g, \varphi_g, \omega_g) = i \langle K(\psi_g, \varphi_g, \omega_g) \rangle V_d(\psi_g, \varphi_g, \omega_g)$$

Nous pouvons donc traiter le problème comme si la texture était homogène dans tout l'échantillon. Cependant, la valeur $\langle K(\psi_g, \varphi_g, \omega_g) \rangle$ déduite de l'intensité n'est qu'une valeur moyenne du facteur d'orientation pondérée par le volume diffractant. Cette valeur sera proche de la réalité quand les variations de $K(\psi_g, \varphi_g, \omega_g)$ seront faibles.

6. ANALYSE QUANTITATIVE DE LA TEXTURE:

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 3, la mesure expérimentale d'une F.D.P n'est pas toujours suffisante pour définir la texture et déterminer son effet sur les propriétés mécaniques et physiques d'un matériau. Une description quantitative de la texture est souvent nécessaire. La façon la plus complète de décrire quantitativement une texture est de déterminer la fonction de distribution des orientations $F(g)$, positive, définie par:

$$F(g)dg = dV_g / V$$

= (volume de l'échantillon ayant l'orientation $g \pm dg$) / volume de l'échantillon

où $F(g)$ indique la fraction volumique de l'échantillon pour laquelle l'orientation des cristallites est $g(\psi, \theta, \varphi)$ à dg près, indépendamment de leur situation dans le polycristal.

Il existe plusieurs méthodes d'analyse des textures, les plus connues étant:

- la méthode d'analyse harmonique proposée conjointement par H. J. Bunge [12] et R. J. Roe [13],
- la méthode de discrétisation proposée à l'origine par W. D. Williams [14] et développée par D. Ruer, A. Vadon et R. Baro [15], D. Ruer [16] et A. Vadon [17] sous le nom de méthode vectorielle.

Nous utiliserons cette dernière méthode qui a été développée au laboratoire.

7. PRINCIPE DE LA METHODE VECTORIELLE:

Soient les deux repères suivant:

le repère macroscopique R_E lié à l'échantillon, d'axes (OX, OY, OZ), qui tient compte des symétries de l'échantillon.

le repère microscopique R_C lié au cristal.

Dans le système cubique et la méthode vectorielle, le repère R_C est oblique. Il est défini par les trois directions suivantes: $[111], [-111]$ et $[001]$ qui définissent deux triangles standards.

Dans le système cubique, l'orientation de référence du cristal est telle que les directions microscopiques $[100], [010]$ et $[001]$ coïncident respectivement avec OX, OY et OZ (figure-I-9 (a)). Le repère R_C est alors en position de référence (R_{CR}).

L'orientation g est la rotation qui fait passer le repère du cristal en position de référence à l'orientation R_C du cristallite qui a une orientation quelconque. On peut donc écrire:

$$R_{CR} \xrightarrow{g} R_C$$

Le choix des trois coordonnées de la rotation g n'est pas unique. La méthode vectorielle utilise le triplet $g = \{\psi, \lambda, \zeta\}$, telle que (ψ, λ) sont les coordonnées polaires dans le repère cristallographique de l'axe de fibre F (figure-I-9 (b)). ζ est l'angle de la rotation autour de la normale de l'échantillon qui amènera les deux repères en coïncidence.

7.1 DOMAINE DES AXES DE FIBRES:

Dans le cas du système cubique ($m3m$), il existe 24 positions équivalentes. La représentation de celles-ci peut-être réduite à une seule orientation, située dans un double

triangle standard, parmi les 48 triangles unitaires portés par la sphère des pôles. La figure-I-8 montre un triangle standard découpé en 28 classes d'équivalences d'axes de fibre, d'aire égale.

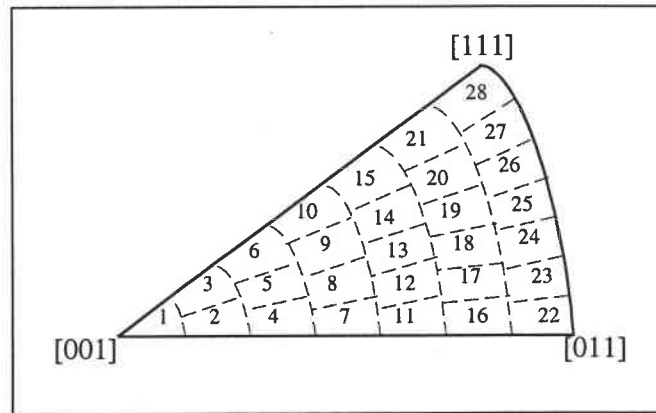


Figure-I-8: partage du triangle standard dans le système $m\bar{3}m$ en 28 cases d'aire égale.

Dans la méthode vectorielle, une orientation est repérée par les angles (ψ, λ, ζ) . Sur la figure-I-9, on montre comment se déplace le triangle unitaire sur la projection stéréographique lorsqu'on passe de l'orientation de référence $(0,0,0)$ à une orientation quelconque (ψ, λ, ζ) , par le produit des deux rotations de la méthode vectorielle.

$$(0,0,0) \xrightarrow{\text{Rot}(\mathbf{OD}, \lambda)} (\psi, \lambda, 0) \xrightarrow{\text{Rot}(\mathbf{OZ}, \zeta)} (\psi, \lambda, \zeta).$$

La première rotation autour de l'axe **OD** amène le point **F** appelé axe de fibre à coïncider avec **OZ** (normale à l'échantillon).

La deuxième rotation autour de **OZ**, d'angle ζ , amène le cristal dans son orientation finale.

Toutes les orientations définies par les deux angles ψ, λ avec l'angle ζ variant de 0 à 2π , constituent une fibre complète d'axe de fibre **F** parallèle à la normale de l'échantillon **OZ**.

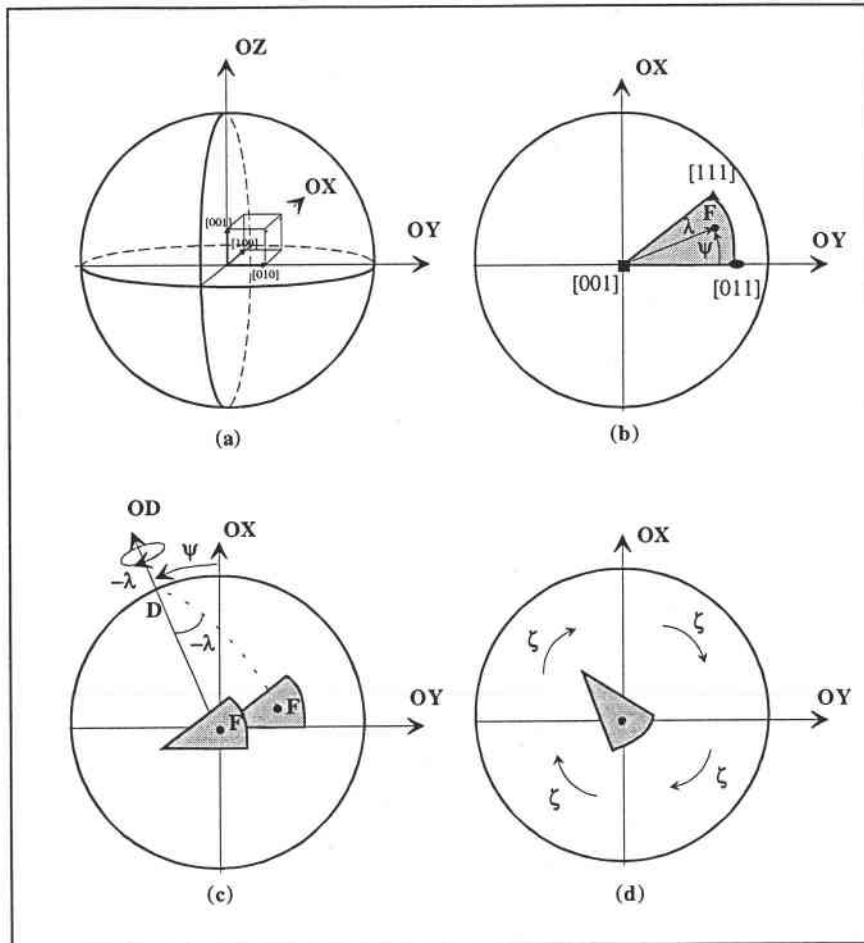


Figure-I-9: les deux rotations permettant de ramener le cristal de la position de référence à la position (ψ, λ, ζ) .

Figure-I-9-a: position de référence $[100]//OX$, $[010]//OY$, $[001]//OZ$.

Figure-I-9-b: triangle unitaire en position de référence.

Figure-I-9-c: orientation $(\psi, \lambda, 0)$.

Figure-I-9-d: orientation (ψ, λ, ζ) .

7.2.DOMAINE DES ORIENTATIONS:

Il est constitué de deux prismes droits bâtis sur deux triangles unitaires contigus. Ceux-ci sont choisis généralement comme le montre la figure-I-10:

- Triangle unitaire 1 (TU1) limité par (-111) , (001) et (011) .
- Triangle unitaire 2 (TU2) limité par (111) , (001) et (011) .

L'axe perpendiculaire aux triangles unitaires représente l'axe de coordonnée ζ . ζ varie de -2π à 0 , pour des axes de fibres situés sur le triangle unitaire 2 et de 0 à 2π pour des axes de fibres situés sur le triangle unitaire 1.

Dans cet espace, représentatif des orientations, une fibre est représentée par un prisme vertical basé sur une case de coordonnées (ψ, λ) et de hauteur 2π . Une orientation est représentée par une case de ce prisme.

La précision dans la définition de cette orientation dépend de la discrétisation de l'espace des orientations en N éléments. Généralement, le triangle standard est découpé en 28, 36 ou 45 cases d'aire égale et l'axe ζ en 72 segments de 5° .

La discrétisation de l'espace des pôles en P élément(s) (nombre de cases de la figure de pôles) et de l'espace des orientations en N élément(s) fait apparaître une relation linéaire entre la densité de pôles et la densité d'orientations dans l'espace des orientations. Cette application linéaire se traduit par la relation matricielle suivante:

$$(X_P) = [\sigma_{pn} \{hkl\}] (Y_n) \quad (A)$$

où X_P est la densité de pôles dans les cases p de la sphère des pôles, et Y_n la densité d'orientations dans les cases n d'orientations.

La matrice $\sigma_{pn} \{hkl\}$ est la matrice densité de probabilité correspondant à la distribution uniforme des pôles des plans $\{hkl\}$ du cristal.

La suite des valeurs (Y_n) représentent chacune le volume des cristallites dont les orientations appartiennent à la classe d'orientation $g(n)$, ce volume est normé au nombre total de cases d'orientations. La suite des valeurs (Y_n) est assimilée à un vecteur de l'espace vectoriel appelé **vecteur de texture**.

Les valeurs $(X_P \{hkl\})$ sont obtenues par la diffraction des rayons X ou des neutrons.

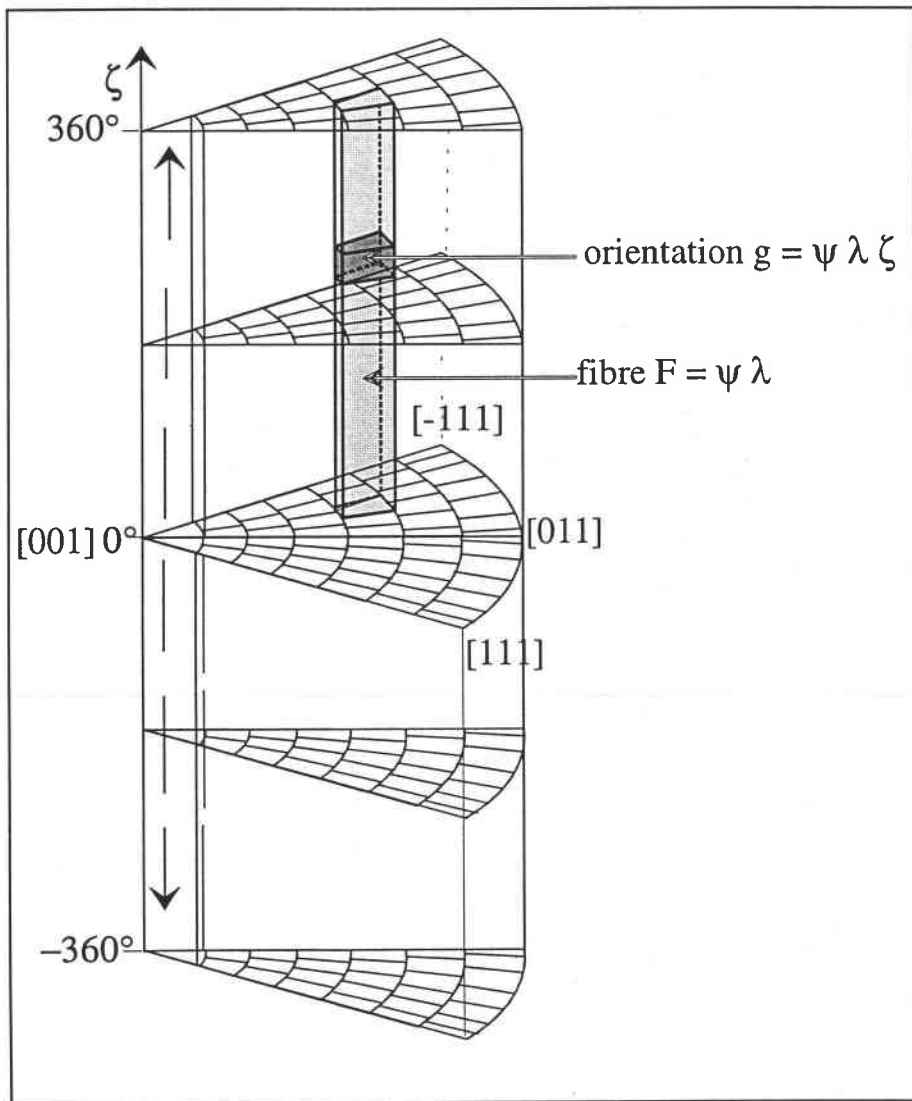


Figure-I-10: découpage de l'espace des orientations dans le système cubique $m\bar{3}m$.

7.3. VECTEUR DE TEXTURE:

dans la méthode vectorielle, la distribution des orientations est représentée par un vecteur dont les composantes représentent le poids relatif de chacune des orientations. Pour trouver le vecteur de texture (Y_n), il faut inverser la relation (A). La méthode d'inversion utilisée est celle décrite par E. Durand [18].

Le vecteur de texture obtenu est représenté par un spectre, avec en abscisse les orientations $g=(\psi,\lambda,\zeta)$ et en ordonnée les fractions volumiques $f(g)$ correspondantes. Pour mettre en évidence les symétries macroscopiques de l'échantillon, nous partageons le volume figuratif des composantes de texture en quatre sous domaines symétriques par rapport aux faces du trièdre macroscopique (figure-I-11). Le spectre correspondant à chacun de ces sous volumes est tracé dans l'un des quadrants délimités par les axes de coordonnées rectangulaires.

Comme le montre la figure-I-12, un spectre de vecteur de texture se décompose en quatre quadrants: les quadrants 1 et 2 sont associés au triangle TU1 et les quadrants 3 et 4 sont associés au triangle TU2.

- Deux composantes symétriques par rapport au plan (OX,OZ) sont représentées par deux segments d'égale longueur, symétriques par rapport à l'axe OY (figure-I-12 (a)).
- Deux composantes symétriques par rapport au plan (OY,OZ) sont représentées par deux segments d'égale longueur, symétriques par rapport à l'axe OX (figure-I-12 (b)).

Pour un découpage du triangle standard en 28 cases, l'axe des abscisses est subdivisé en 28 segments représentant les fibres du triangle standard et l'intérieur d'un segment est subdivisé en 18 sous-segments chacun d'eux représentant une orientation (figure-I-13).

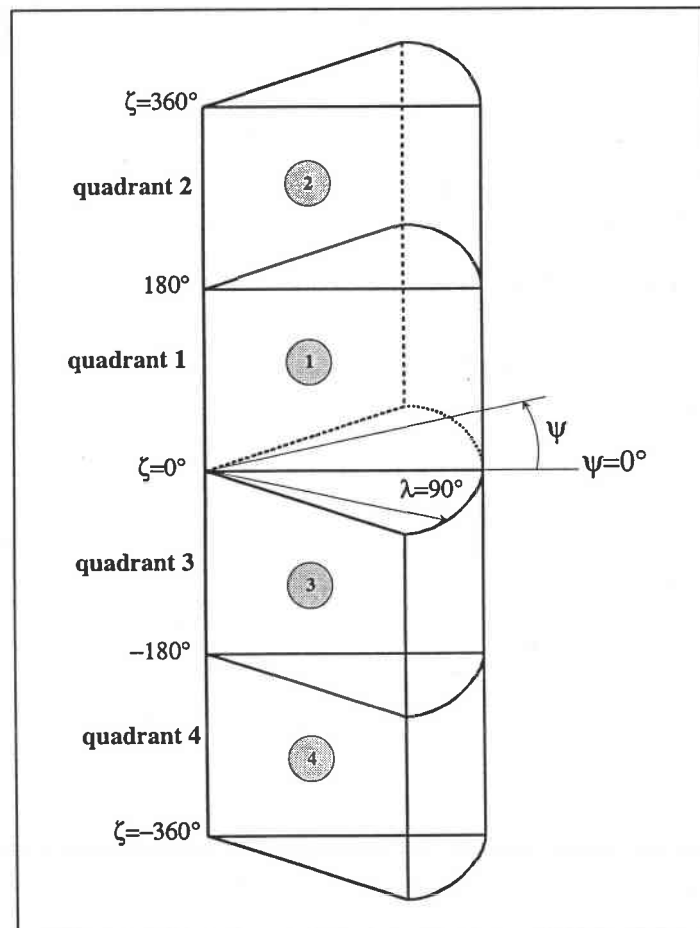


Figure-I-11: découpage de l'espace des orientations en 4 sous-espaces correspondant chacun à des orientations symétriques par rapport au repère macroscopique.

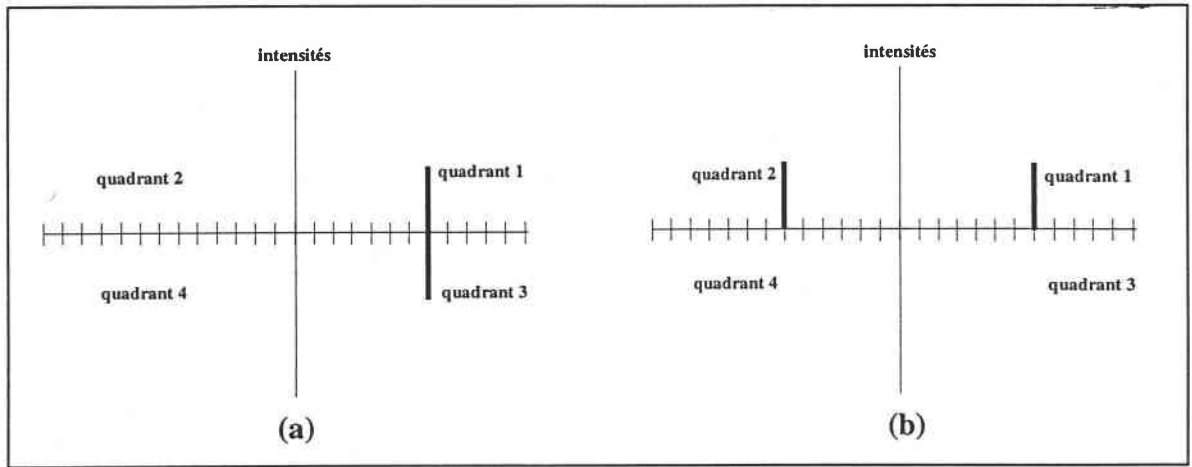


Figure-I-12: (a) deux composantes symétriques par rapport (OX,OZ)

(b) deux composantes symétriques par rapport (OY,OZ) .

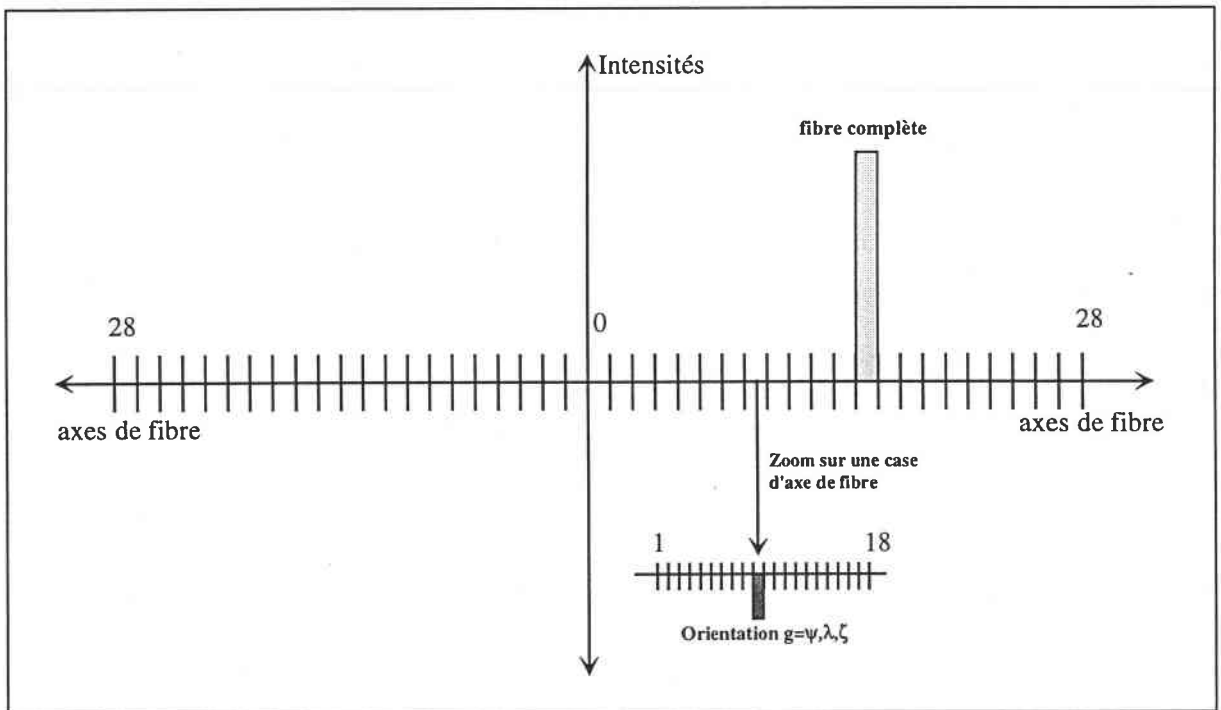


Figure-I-13: cadre dans lequel sont tracés les composantes de texture pour faire apparaître les symétries macroscopiques de l'échantillon.

La méthode vectorielle permet de trouver une approximation de la texture au sens des moindres carrés avec un nombre très réduit de figures de pôles complètes ou incomplètes, ce qui rend de très grands services lorsque la symétrie cristalline est faible. En plus, elle s'applique à des matériaux de n'importe quelle classe cristalline, sans aucune restriction ou hypothèse sur les symétries de l'échantillon.

8.CONCLUSION:

Nous venons de voir les principes généraux de détermination de la texture d'un échantillon. Actuellement, il n'y a pas de problème majeur lorsque l'échantillon est massif, de forme plane et de texture homogène.

Pour des échantillons plans en couches minces, ou des échantillons de formes particulières comme des fils par exemple (Montesin et Heizmann [19]), l'étude de la texture devient plus complexe même si celle-ci est homogène. En effet, il y a une variation continue du volume diffractant pendant la mesure.

Nous verrons dans le prochain chapitre, l'étude de la texture des matériaux en couches minces par différentes méthodes goniométriques et leur limite lorsque la texture est hétérogène.

Références Bibliographies:

- [1]: D.Ruer, A. Vadon ; MPDS ; 28th conférence of X-ray analysis ; Denver (U.S.A.) ; 1979.
- [2]: L. G. Schulz ; J. Appl. Phys. ; volume (20) ; 1030-1036 ; 1949.
- [3]: Field and Merchant ; J. Appl. Phys. ; volume (20) ; 741 ; 1949.
- [4]: J. J. Heizmann, C. Laruelle, A. Vadon ; J. Appl. Cryst. ; volume (19); 467-472 ; 1986.
- [5]: L. Jolly, B. Bolle, C. Valot, C. Laruelle and J.J. Heizmann ; Textures of materials ; ICOTOM-11 ; China 1996 ; Volume 1 ; 116-121.
- [6]: M. A. player, G. V. Marr, E. Gu, H. Salavoni and N. Öncan ; J. Appl. Cryst. ; volume (25) ; 770-777 ; 1992.
- [7]: J. J. Heizmann, C. Laruelle and A. Vadon ; Advances In X-Ray Analysis ; volume (30) ; 421-427 ; 1987.
- [8]: Juul Jensen, ICOTOM 10 ; Clausthal ; septembre 93
- [9]: Bunge
- [10]: R. Croche, L. Gattineau; J. Appl. Cryst. ; volume (10); 479-485 ; 1977.
- [11]: Tizliouine A. ; Thèse à l'Université de METZ ; 1994
- [12]: H. J. Bunge ; Z. metallkunde ; volume (56) ; 872 ; 1965.
- [13]: R. J. Roe ; J. Appl. Cryst. ; volume (39) ; 2069 ; 1966.
- [14]:R.O. Williams, L.K. Jetter and C.J. Mc Hargue ; J. Appli. Phys ; volume (27) ; 365 ; 1956.
- [15]: D. Ruer, A. Vadon, R. Baro ; Texture of Crystalline Solids ; Volume (3) ; 154-245 ; 1979.
- [16]: D. Ruer ; Thèse d'état ; Institut Universitaire De Technologie De Metz ; 1979.
- [17]: A. Vadon ; Thèse d'état ; Université De Metz ; 1981.
- [18]: E. Durand ; Solutions Numériques Des Equations Numériques ; tome 2 ; collection Masson ; 1961.
- [19]: T. Montesin ; J.J. Heizmann ; Mem. Sci. Revue de Métallurgie ; 217-232 ; 1991.

Chapitre II:

Différentes techniques de mesure de la texture des couches minces

Dans ce chapitre nous allons présenter différentes techniques de mesure et leurs limites, pour déterminer la texture cristallographique des couches minces. Ces techniques sont possibles avec un goniomètre quatre axes conventionnel dont les mouvements peuvent être pilotés par ordinateur. La base théorique de ces techniques est celle des multifiures de pôles, mise au point au laboratoire par Heizmann et son équipe [1]. Mais on rappellera, avant tout la technique de Schulz [2] qui est alors un cas particulier de ces méthodes.

1.METHODE DE SCHULZ :

Cette méthode est actuellement la plus employée. Les faisceaux incidents et diffractés en géométrie de Bragg-Brentano, permettent une focalisation angulaire des rayons diffractés au niveau du compteur. Les rotations utilisées pour décrire la figure de pôles sont: la rotation de déclinaison d'axe ψ appartenant à la surface de l'échantillon et la rotation azimutale φ d'axe **OZ** perpendiculaire à la surface de l'échantillon. La valeur de l'angle ω_g du goniomètre est égale à zéro de sorte que la normale aux plans diffractants (hkl) soit la bissectrice de l'angle $(\pi-2\theta)$. Pour une déclinaison du goniomètre $\psi_g \neq 0$ tous les plans, dont les normales $[hkl]^*$ sont situées sur un cône d'axe **OZ** d'ouverture ψ_g , viendront en position de diffraction lors de la rotation azimutale φ (figure-II-1).

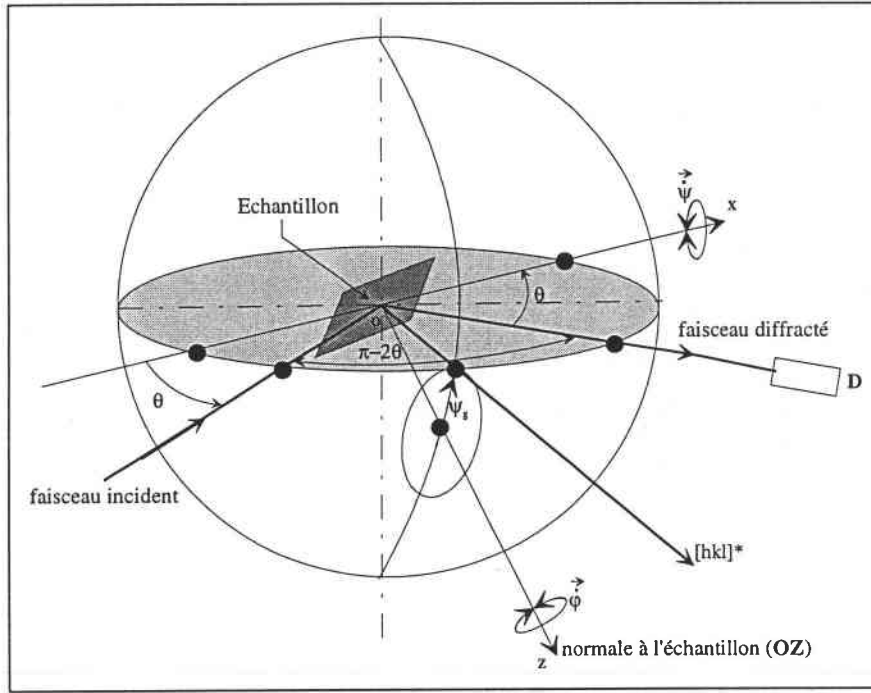


Figure-II-1: principe de la géométrie de Schulz.

1.1. INTENSITE DIFFRACTEE PAR UN ECHANTILLON D'EPaisseur INFINIE:

Soit un faisceau de rayons X de section S_0 faisant un angle d'incidence égal à l'angle de Bragg, avec la surface d'un échantillon de texture homogène, lorsque cette surface est perpendiculaire au plan d'incidence c'est-à-dire quand $\psi_g=0$ (figure-II-2). A la position (ψ_g, ϕ_g) de l'échantillon, l'intensité diffractée dI par un volume dV peut se mettre sous la forme suivante:

$$dI = iK_{\psi_g, \phi_g} e^{-\mu(a+b)} dV$$

Où a et b sont les distances parcourues respectivement par les faisceaux incidents et diffractés dans la matière:

$$a = b = \frac{x}{\sin \theta \cos \psi_g} \quad [\text{II-1}]$$

et

$$dV = S dx = \frac{S_0}{\sin \theta \cos \psi_g} dx \quad [\text{II-2}]$$

où

- ψ_g est l'angle de déclinaison.
- S_0 est la surface de la section du faisceau incident.
- $dV = S dx$ est l'élément du volume irradié.

- dx est l'épaisseur de l'élément de volume V considéré.

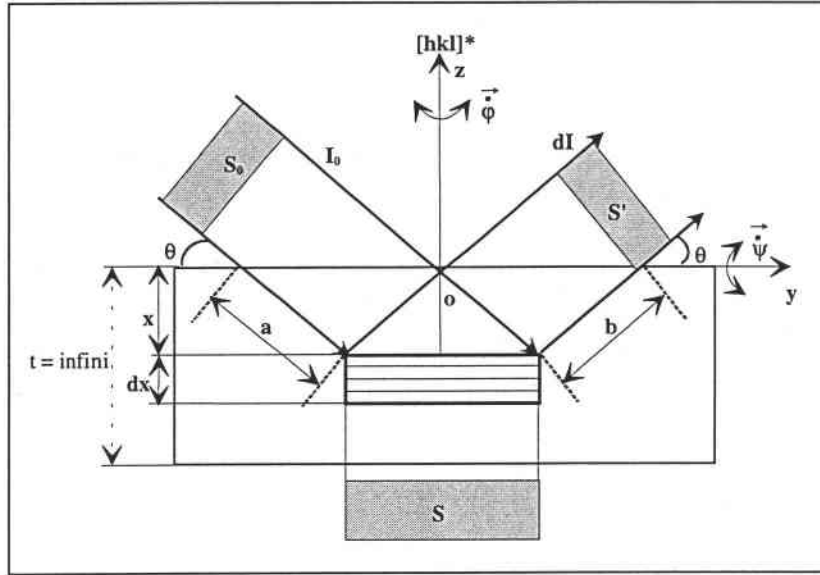


Figure-II-2: montage classique en Bragg-Brentano.

L'intensité diffractée, par un échantillon d'épaisseur infinie à la position (ψ, φ) et pour un angle de diffraction θ donné est:

$$I_{\theta, \infty} = iK_{\psi_g, \varphi_g} \int_0^{\infty} \exp(-\mu d_{\psi_g, \varphi_g}) dV \quad [\text{II-3}]$$

où $d_{\psi_g, \varphi_g} = a + b$ est la distance parcourue par les rayons X dans l'échantillon.

En explicitant dV et d_{ψ_g, φ_g} la relation précédente devient:

$$I_{\theta, \infty} = iK_{\psi_g, \varphi_g} \frac{S_0}{\sin \theta \cos \psi_g} \int_0^{\infty} \exp\left(-\frac{2\mu x}{\sin \theta \cos \psi_g}\right) dx \quad [\text{II-4}]$$

$$I_{\theta, \infty} = iK_{\psi_g, \varphi_g} S^* e \quad [\text{II-5}]$$

$$I_{\theta, \infty} = \frac{iS_0}{2\mu} K_{\psi_g, \varphi_g} \quad [\text{II-6}]$$

Si l'échantillon est isotrope $K_{\psi_g, \varphi_g} = 1$. L'intensité diffractée est alors:

$$I_{\text{iso}, \infty} = \frac{iS_0}{2\mu} \quad [\text{II-7}]$$

Le rapport $\frac{S_0}{2\mu}$ est un volume, exprimé en cm^3 , constant. Il représente le volume diffractant V_d^{∞} de l'échantillon d'épaisseur infinie. Ce volume est le volume irradié pondéré par l'absorption.

On remarque qu'en géométrie de Schulz le volume diffractant d'un échantillon infini est constant au cours du mouvement (ψ_g, φ_g) de l'échantillon. Les variations des intensités diffractées par un échantillon homogène ne dépendent que du facteur d'orientation K_{ψ_g, φ_g}

Le volume diffractant peut être défini comme étant le produit de la surface irradiée $S = \frac{S_0}{\sin \theta \cos \psi_g}$ par l'épaisseur de l'échantillon pondérée par l'absorption $e = \frac{\sin \theta \cos \psi_g}{2\mu}$. Dans le cas d'un échantillon d'épaisseur infinie, cette épaisseur est appelée profondeur de pénétration. L'augmentation de la surface irradiée quand l'angle de déclinaison ψ augmente est directement contrebalancée par la diminution de l'épaisseur.

L'avantage de la méthode de Schulz par rapport à celle de Field et Merchand [3] est de mesurer à volume diffractant constant. Néanmoins au cours du mouvement de déclinaison, l'épaisseur participant à la diffraction varie de façon décroissante du centre vers le bord de la figure de pôles. Ce phénomène devient gênant lorsque la texture dépend de l'épaisseur.

1.2. INTENSITE DIFFRACTEE PAR UNE COUCHE MINCE D'ÉPAISSEUR t :

Soit une couche texturée homogène d'épaisseur t . L'intensité totale diffractée par cette couche est donnée par la relation suivante:

$$I_{\theta, t} = i \frac{S_0}{\sin \theta \cos \psi_g} K_{\psi_g, \varphi_g} \int_0^t \exp\left(-\frac{2\mu x}{\sin \theta \cos \psi_g}\right) dx \quad [\text{II-8}]$$

soit après intégration:

$$I_{\theta, t} = i K_{\psi_g, \varphi_g} S^* e \quad [\text{II-9}]$$

avec:

$$e = \frac{\sin \theta \cos \psi_g}{2\mu} (1 - \exp(-\frac{2\mu t}{\sin \theta \cos \psi_g})) : \text{épaisseur pondérée par l'absorption pour une}$$

couche mince.

Pour une couche mince, on ne peut pas définir une profondeur de pénétration car les rayons X peuvent pénétrer, bien au delà de la couche, dans le substrat. L'épaisseur pondérée par l'absorption peut être vue comme une épaisseur équivalente.

$$I_{\theta, t} = \frac{i S_0}{2\mu} K_{\psi_g, \varphi_g} [1 - \exp(-\frac{2\mu t}{\sin \theta \cos \psi_g})] \quad [\text{II-10}]$$

$$I_{\theta, t} = i V_d^\infty K_{\psi_g, \varphi_g} [1 - \exp(-\frac{2\mu t}{\sin \theta \cos \psi_g})] = i V_d K_{\psi_g, \varphi_g} \quad [\text{II-11}]$$

- $I_{\theta,t}$ est l'intensité recueillie par le compteur, pour un échantillon d'épaisseur t , observé dans une position (ψ_g, ϕ_g) de l'échantillon.
- L'expression $[1 - \exp(-\frac{2\mu t}{\sin \theta \cos \psi_g})]$ représente la variation par rapport à V_d^∞ du volume diffractant à la position (ψ_g, ϕ_g) (figure-I-7 chapitre I).
- V_d est le volume diffractant de la couche mince d'épaisseur t .

Les mesures de texture étant basées sur les variations de l'intensité diffractée, nous devons donc supprimer impérativement toute variation provenant des évolutions du volume diffractant en cours de mesure.

Pour ramener l'intensité diffractée à un volume diffractant constant, nous avons choisi comme volume de référence le volume V_d^∞ .

L'intensité diffractée corrigée correspondant à ce volume de référence est:

$$I_{\text{corr}} = I_{\theta,t} * \frac{1}{[1 - \exp(-\frac{2\mu t}{\sin \theta \cos \psi_g})]} \quad [\text{II-12}]$$

$$I_{\text{corr}} = iV_d^\infty K_{\psi_g, \phi_g} \quad [\text{II-13}]$$

Cette intensité corrigée correspond à celle d'un échantillon massif ayant la même distribution des orientations que la couche observée.

A titre d'exemple, nous avons représenté sur la figure-II-3 la variation du rapport $\frac{V_d}{V_d^\infty}$ en fonction de la déclinaison ψ_g , pour les plans (111) d'une couche d'aluminium d'épaisseur $6\mu\text{m}$, observés avec la radiation K_α du Fer.

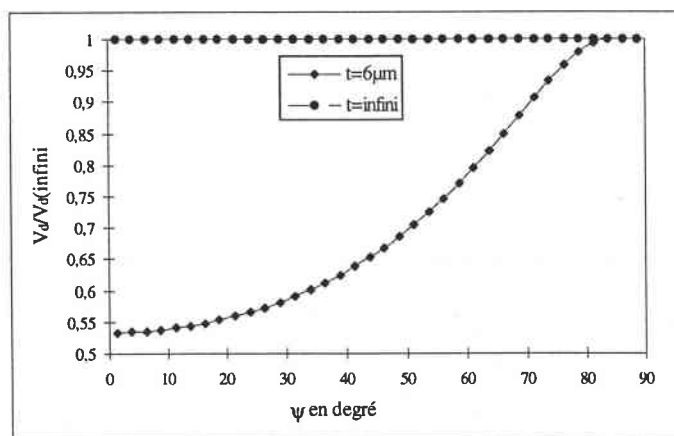


Figure-II-3: variation du volume diffractant en fonction de ψ_g pour les plans (111) d'Al, $\theta=24.475$ pour la radiation K_α du Fer.

On remarque que le bord de la figure de pôles mesurée est amplifié par rapport au centre. Il est donc obligatoire de corriger l'intensité des figures de pôles.

1.3.CONCLUSION :

Afin de connaître les textures des couches minces déduites des figures de pôles obtenues par la méthode de Schulz, il est nécessaire d'apporter des corrections aux intensités mesurées. Ces corrections ont pour but de ramener le volume du matériau participant à la diffraction à un volume constant, quelles que soient les conditions expérimentales et l'épaisseur de l'échantillon étudié.

Ceci est aisé, comme nous venons de le voir, lorsque la texture de la couche mince est indépendante de l'épaisseur. Par contre, s'il existe une variation importante de texture en fonction de l'épaisseur, il est pratiquement impossible d'effectuer ce type de correction car on ne sait pas de quelle profondeur provient l'intensité diffractée. Même si l'on traite le problème en utilisant la texture moyenne. En méthode de Schulz, l'intensité diffractée au centre de la figure de pôles provient aussi bien de l'intérieur que de la surface de la couche, alors qu'au bord l'intensité diffractée ne provient que des couches superficielles, on risque alors de commettre de grandes erreurs d'interprétation de données.

2.GEOMETRIE DE DIFFRACTION SOUS FAIBLE INCIDENCE :

Les couches minces ont un pouvoir diffractant faible, du fait que le volume diffractant participant à la diffraction est petit. Pour remédier à ce problème, une géométrie de diffraction sous faible incidence permet d'augmenter le volume diffractant. En effet, le seul moyen géométrique, d'augmenter le volume diffractant d'un échantillon plan de faible épaisseur, est d'accroître la surface irradiée en diminuant l'angle d'incidence.

Nous traitons également le cas de la forte incidence car les lois géométriques sont similaires.

Dans ce type de montage l'angle α du faisceau X incident, quand $\psi_g=0$, est différent de l'angle de Bragg. Dans ce cas l'angle ω_g est différent de zéro et constant pendant les mouvements (ψ_g, φ_g) du goniomètre.

- Les chemins parcourus par les faisceaux diffractés et incidents sont très différents de ceux correspondant à la méthode de Schulz.

- Les plans diffractants ne sont plus parallèles à la surface de l'échantillon et leurs normales ne sont plus confondues avec la normale (OZ_0) de l'échantillon, (quand $\psi_g=0$), contrairement à la géométrie de Schulz.

Dans ces nouvelles géométries, pour une position angulaire $(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$ du goniomètre, le compteur, fixé à la position 2θ par rapport au faisceau incident, enregistre l'intensité des plans diffractants dont les normales $[hkl]^*$, situées dans le plan d'incidence, sont les bissectrices de l'angle $(\pi-2\theta)$. Les coordonnées de ces normales dans le repère lié à l'échantillon sont ψ_m et $\phi_m = \phi_g + \Delta\phi$ (figure-II-4). Ces techniques de mesure vont conduire d'une part à des formes et intensités de pics diffractés différentes de celles obtenues par la méthode classique de Schulz et d'autre part à viser des plans réticulaires localisés à des positions différentes de celles de Schulz.

Il y aura deux types de corrections à effectuer:

- des corrections d'intensité.
- des corrections de localisation.

Il faudra également prendre en considération les variations géométriques de la forme du faisceau.

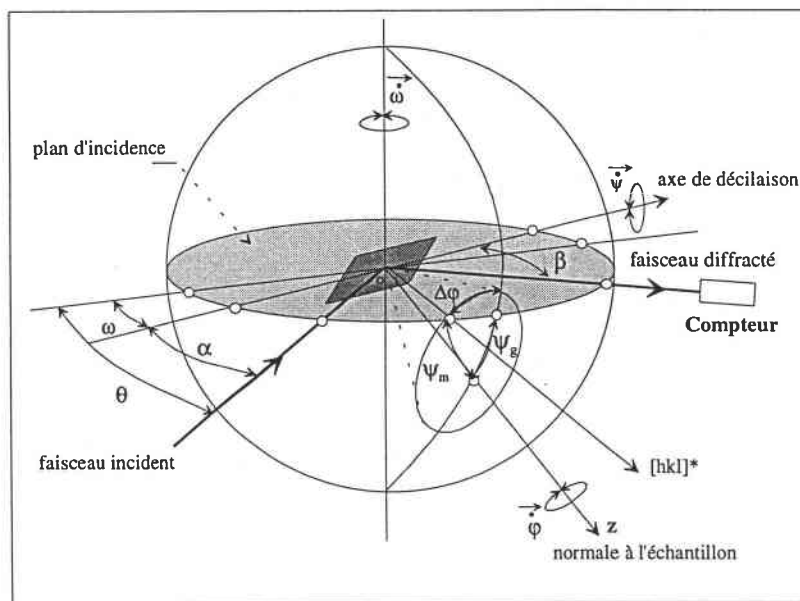


Figure-II-4: les normales $[hkl]^*$, localisées par les angles ψ_m et ϕ_m dans le repère de l'échantillon, sont détectées par le compteur, quand le goniomètre est à la position (ψ_g, ϕ_g) .

2.1. INTENSITE DIFFRACTEE PAR UNE COUCHE MINCE:

Nous conservons les notations utilisées par la méthode de Schulz:

- α , l'angle choisi entre le faisceau incident des rayons X et la surface de la couche à $\psi_g=0$, $(-\theta < \alpha < \theta)$,
- β , l'angle entre le faisceau diffracté et la surface de la couche à $\psi_g=0$, $(\beta=2\theta-\alpha)$,
- ψ_g , l'angle de déclinaison,
- ω_g , l'angle entre la normale à la couche et la normale $[hkl]^*$ de la famille des plans $\{hkl\}$ choisie ($\omega_g < 0$ pour la faible incidence et $\omega_g > 0$ pour la forte incidence).

Pour atteindre un élément de volume dV , situé à une profondeur x dans la couche mince, le faisceau incident parcourt une distance a (figure-II-5) telle que:

$$a = \frac{x}{\sin \alpha \cos \psi_g} \quad [\text{II-14}]$$

De même, le faisceau diffracté provenant de l'élément dV parcourt une distance b dans l'échantillon, telle que:

$$b = \frac{x}{\sin \beta \cos \psi_g} = \frac{x}{\sin(2\theta - \alpha) \cos \psi_g} \quad [\text{II-15}]$$

La surface irradiée à une position ψ_g du goniomètre a pour valeur:

$$S_{\alpha, \psi_g} = \frac{S_0}{\sin \alpha \cos \psi_g} \quad [\text{II-16}]$$

On remarque que cette surface augmente très fortement quand les angles d'incidences sont petits et croît avec la déclinaison. Il en découle que les échantillons à observer sous faible incidence doivent posséder une surface relativement importante par rapport à la surface de la section droite du faisceau.

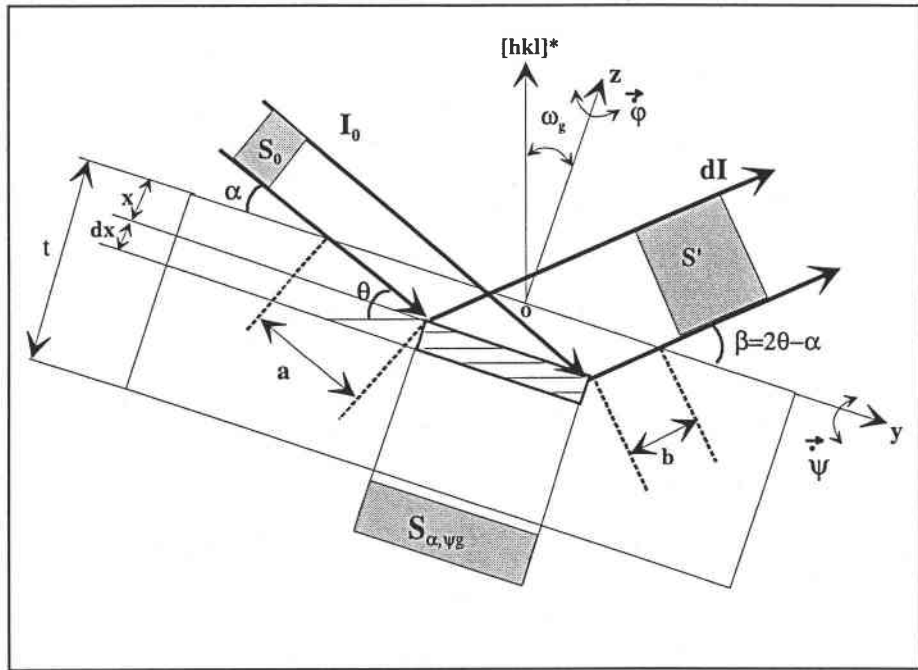


Figure-II-5: géométrie de diffraction sous faible incidence.

Lorsque le goniomètre est à la position $(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$ seuls les plans dont la normale $[hkl]^*$ définie par les angles (ψ_m, ϕ_m) dans le repère de l'échantillon diffractent en direction du détecteur. Les deux angles ψ_m et ϕ_m sont fonction des trois angles ψ_g, ϕ_g et ω_g du goniomètre [1] par les relations suivantes:

$$\cos \psi_m = \cos \psi_g \cos \omega_g$$

$$\phi_m = \phi_g + \Delta\phi \quad \text{avec} \quad \sin \Delta\phi = \frac{\sin \omega_g}{\sin \psi_m}$$

Dans ce cas chaque élément de volume dV possède un facteur d'orientation $K_{\psi_m \phi_m}$ considéré pour le moment constant pour chaque position $(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$ du goniomètre.

L'intensité élémentaire dI mesurée à cette position est:

$$dI = iK_{\psi_m \phi_m} \frac{S_0}{\sin \alpha \cos \psi_g} \exp\left(-\frac{\mu x}{\cos \psi_g} \left(\frac{1}{\sin \alpha} + \frac{1}{\sin(2\theta - \alpha)}\right)\right) dx \quad [\text{II-17}]$$

$$I_{\psi_g, \phi_g, \omega_g, t} = iK_{\psi_m, \phi_m} S^* e$$

Pour une couche mince d'épaisseur t , l'intégrale de cette intensité élémentaire s'écrit:

$$I_{\psi_g, \phi_g, \omega_g, t} = \frac{iS_0}{2\mu} K_{\psi_m \phi_m} \left(1 - \frac{\tan \omega_g}{\tan \theta}\right) \left[1 - \exp\left(-\frac{\mu t}{\cos \psi_g} \left(\frac{1}{\sin(\theta - \omega_g)} + \frac{1}{\sin(\theta + \omega_g)}\right)\right)\right]$$

$$I_{\psi_g, \phi_g, \omega_g, t} = iK_{\psi_m \phi_m} V_d \quad [\text{II-18}]$$

où:

$$V_d = V_d^\infty \left(1 - \frac{\tan \omega_g}{\tan \theta}\right) \left[1 - \exp\left(-\frac{\mu t}{\cos \psi_g} \left(\frac{1}{\sin(\theta - \omega_g)} + \frac{1}{\sin(\theta + \omega_g)}\right)\right)\right] \text{représente le volume}$$

diffractant de la couche mince.

Comme dans la technique de Schulz, il est possible de corriger l'intensité diffractée dans le cas d'une texture homogène. Il faut noter que l'incidence faible permet surtout d'obtenir des informations sur les cristallites, situés dans une faible épaisseur en dessous de la surface (Arnaud [4], Brunel [5] et Segmuller et son équipe [6]).

Notons également que si la texture est hétérogène, les mêmes problèmes liés à la variation de texture dans l'épaisseur seront les mêmes que ceux rencontrés dans la méthode de Schulz.

2.2.LIMITATION DE LA FAIBLE INCIDENCE:

2.2.1. Réflexion totale:

Lors d'une déclinaison ψ_g , l'angle d'incidence réel (α_r) du faisceau incident avec la surface de l'échantillon obéit la relation suivante:

$$\sin \alpha_r = \sin \alpha \cos \psi_g \quad [\text{II-19}]$$

où α est l'angle d'incidence quand $\psi_g=0$

L'angle d'incidence réel α_r décroît au fur et à mesure que l'angle de déclinaison augmente (figure-II-6). Cet angle α_r est nul, lorsque le plan d'incidence est confondu avec le plan de l'échantillon ($\psi_g=90^\circ$). La variation de α_r en fonction de l'angle ψ_g pour différentes valeurs de l'angle d'incidence est présentée par la figure-II-7.

Lorsque l'incidence initiale est faible, l'incidence réelle α_r peut atteindre l'angle d'incidence critique α_c de la réflexion totale. A titre d'exemple, pour une couche de Tungstène irradiée par un rayonnement K_α du Cobalt ($\lambda_{K\alpha}=1.79\text{\AA}$), avec une incidence $\alpha=5^\circ$ et une déclinaison $\psi_g=85^\circ$ (bord de la figure de pôle), l'angle α_r est égal à 0.44° alors que l'angle critique pour la réflexion totale (α_c) est de l'ordre de 0.72° (Tizliouine [7]).

Pour éviter ce phénomène, nous limitons donc l'angle d'incidence à des valeurs supérieures à 5° pour pouvoir atteindre des angles de déclinaison ψ_g de l'ordre de 80° .

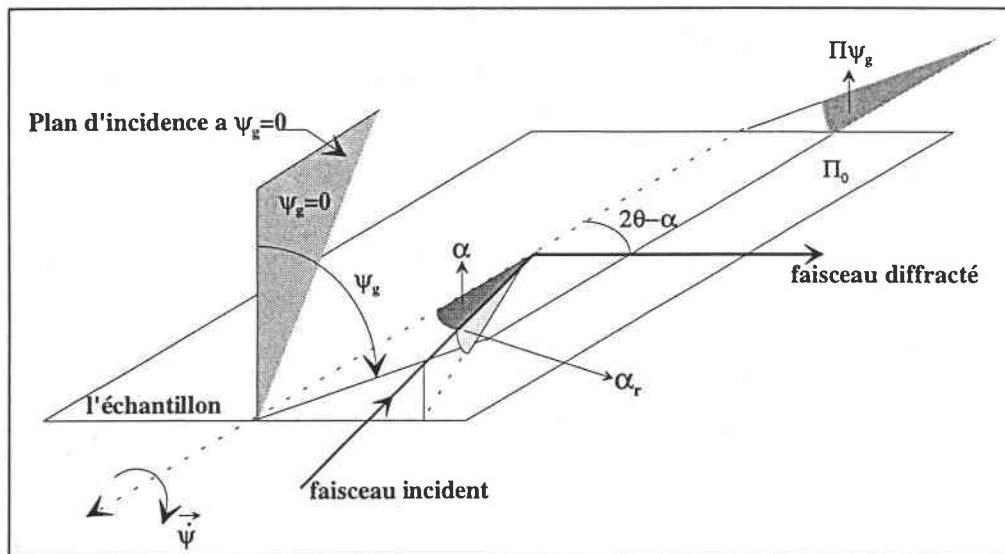


Figure-II-6: variation de l'angle réel (α_r) par rapport au plan de l'échantillon en fonction de la déclinaison ψ_g .

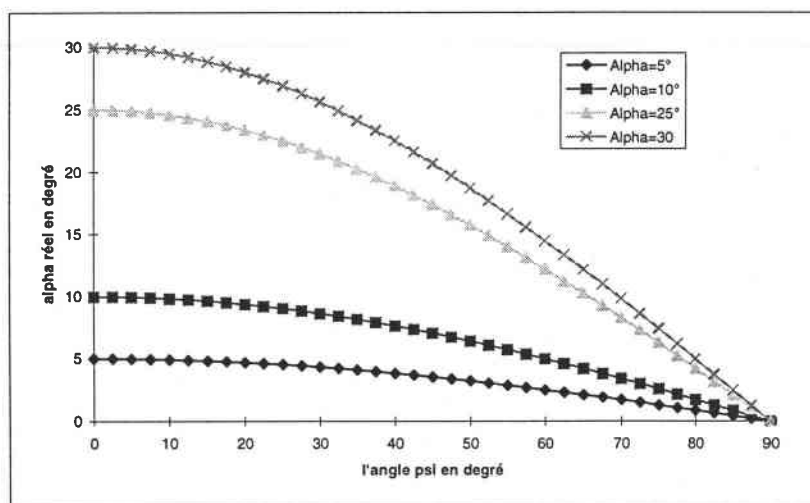


Figure-II-7: variation de l'angle d'incidence réel en fonction de l'angle de déclinaison, pour différentes valeurs de l'angle d'incidence.

2.2.2. Elargissement du faisceau diffracté:

En géométrie de faible incidence, plusieurs phénomènes élargissent le faisceau diffracté.

Parmi ceux-ci, on peut citer:

- L'augmentation de la surface irradiée.
- L'utilisation d'une géométrie qui focalise le faisceau en arrière du détecteur.
- La défocalisation due à la déclinaison (également présente en géométrie de Schulz).

Bien qu'il y ait un accroissement d'intensité diffractée, l'élargissement important dû à l'emploi de la faible incidence reste limité dans le cas de la texture. En effet les temps de

comptage sont faibles et quand le pic de diffraction devient trop large, le rapport signal/bruit s'amenuise très rapidement.

Dans le chapitre-IV, nous utiliserons la forte incidence bien qu'il y ait une diminution d'intensité. Cette méthode devient avantageuse car elle a pour mérite de ne pas élargir le pic de diffraction. Sur la figure-II-8, sont présentées trois pics de diffraction d'un échantillon isotrope en utilisant trois incidences différentes (Heizmann et al [8]).

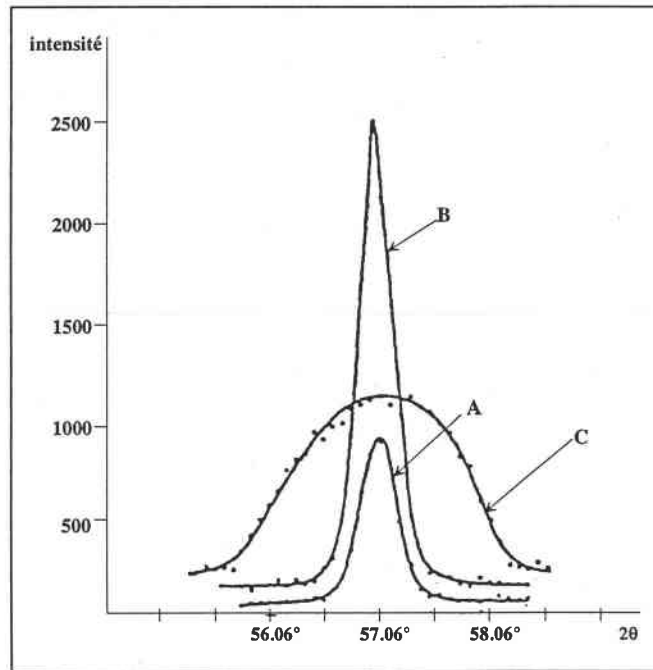


Figure-II-8: Elargissement de la raie de diffraction. Plan (110) d'un échantillon de fer isotrope, mesuré en effectuant un balayage autour de 2θ à $\psi_g=0$, lorsque l'échantillon est fixe.

(A): Forte incidence $\alpha=47.06^\circ$

(B): Schulz $\alpha=28.53^\circ$

(C): faible incidence $\alpha=10^\circ$

2.3.CONCLUSION:

La faible ou la forte incidence diminue la profondeur de pénétration des rayons X par rapport à la méthode de Schulz, tout comme cette dernière cette profondeur de pénétration varie au cours du mouvement de l'échantillon.

3.GEOMETRIE DE DIFFRACTION A EPAISSEUR CONSTANTE:

Lors de la mesure d'une figure de pôles par la méthode de Schulz ou par les géométries de faible ou de forte incidence, l'information obtenue sur la figure de pôles ne provient pas de la même profondeur de l'échantillon quand l'angle de déclinaison change. Cette variation de l'information n'a aucune conséquence sur l'analyse de la texture si l'échantillon ne présente pas

une variation de texture dans son épaisseur. Dans le cas contraire, ce phénomène peut conduire à des études qualitatives et quantitatives difficiles et erronées. En effet, dans ces deux techniques de mesure, le volume diffractant varie au cours de la mesure en fonction de l'angle d'incidence vraie que fait le faisceau incident X avec la surface de l'échantillon. Il n'est alors possible d'atteindre qu'une texture moyenne de l'échantillon, en effectuant au préalable des corrections du volume diffractant (ce qui implique que la texture soit supposée homogène).

Nous allons présenter une nouvelle géométrie de mesure, développée au laboratoire par Jolly et al [9], permettant d'acquérir des figures de pôles, dont l'information provient de la même profondeur de l'échantillon quelques soient les angles utilisés pour balayer la sphère des pôles. Nous avons légèrement modifié cette méthode pour pouvoir détecter les variations de texture dans l'épaisseur (chapitre III). Nous tenons compte de ces modifications pour expliquer cette méthode.

3.1.ASPECT GEOMETRIQUE:

Soit un échantillon irradié sous un angle d'incidence α (quand $\psi_g=0$) par un faisceau parallèle de rayons X , de longueur d'onde λ et de section S_0 (figure-II-9).

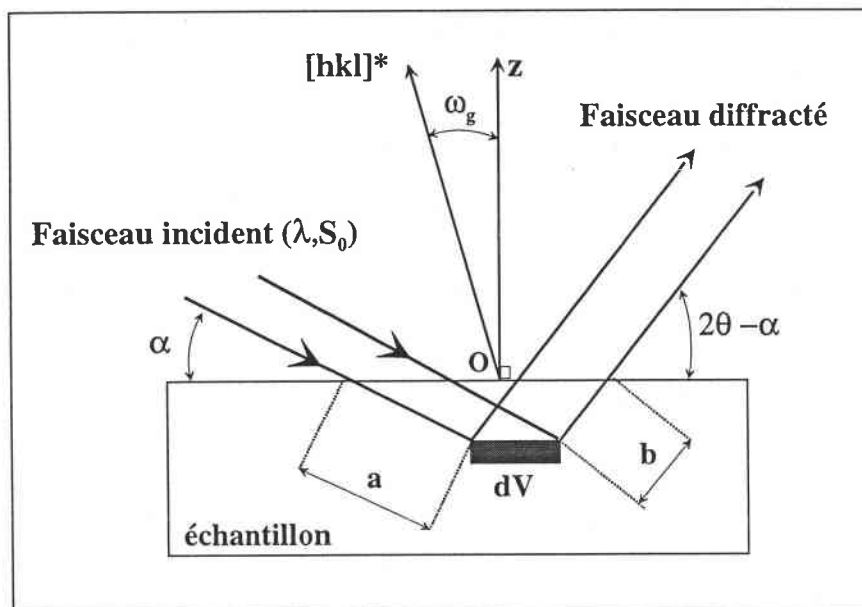


Figure-II-9: principe de la diffraction X par la géométrie à épaisseur constante.

L'intensité diffractée $I_{\psi_g, \varphi_g, \omega_g, t}$ par une couche d'épaisseur t de texture homogène dans les conditions de mesure ($\psi_g, \varphi_g, \omega_g$) est donnée par la relation suivante:

$$I_{\psi_g, \varphi_g, \omega_g, t} = iK_{\psi_m, \varphi_m} V_d$$

avec :

$$V_d = V_d^\infty \left(1 - \frac{\tan \omega_g}{\tan \theta}\right) \left[1 - \exp\left(-\frac{\mu t}{\cos \psi_g} \left(\frac{1}{\sin(\theta - \omega_g)} + \frac{1}{\sin(\theta + \omega_g)}\right)\right)\right] \text{ le volume diffractant}$$

de la couche mince pour un angle d'incidence différent de celui de Bragg.

Pour une épaisseur donnée, le terme $P(\psi_g, \omega_g, t)$ tel que:

$$P(\psi_g, \omega_g, t) = 1 - \exp\left(-\frac{\mu t}{\cos \psi_g} \left(\frac{1}{\sin(\theta - \omega_g)} + \frac{1}{\sin(\theta + \omega_g)}\right)\right) \quad [\text{II-20}]$$

représente le volume diffractant de la couche mince d'épaisseur t par rapport à celui d'un échantillon d'épaisseur infinie mesuré dans les mêmes conditions, ou encore, représente la proportion d'intensité provenant d'une épaisseur t par rapport à celle d'un échantillon d'épaisseur infinie. Le principe de cette nouvelle géométrie est d'ajuster la valeur de ω_g lorsque ψ_g varie de sorte que la proportion $P(\psi_g, \omega_g, t)$ provienne d'une épaisseur constante t . En effet, de la relation précédente, on obtient la valeur de t :

$$t = - \underbrace{\frac{\ln(1 - P(\psi_g, \omega_g, t))}{2\mu}}_1 \underbrace{\frac{\sin^2 \theta \cos^2 \omega_g - \sin^2 \omega_g \cos^2 \theta}{\sin \theta \cos \omega_g}}_2 \cos \psi_g \quad [\text{II-21}]$$

Le premier terme (1) pour une proportion $P(\psi_g, \omega_g, t)$ donnée est constant et à les dimensions d'une épaisseur notée T_W .

Le deuxième terme (2) dépend des conditions de mesure uniquement

La relation [II-21] devient :

$$t = T_W \frac{\sin^2 \theta \cos^2 \omega_g - \sin^2 \omega_g \cos^2 \theta}{\sin \theta \cos \omega_g} \cos \psi_g \quad [\text{II-22}]$$

Cette équation peut s'écrire sous la forme d'une équation du 2^{ème} degré avec pour inconnue $\cos \omega_g$:

$$\cos^2 \omega_g - \frac{t}{T_W} \frac{\sin \theta}{\cos \psi_g} \cos \omega_g - \cos^2 \theta = 0 \quad [\text{II-23}]$$

Pour une épaisseur constante donnée, cette équation admet deux solutions dont l'une est acceptable ($\omega_g < \pi/2$) :

$$\cos \omega_g = \frac{t \sin \theta}{2 T_W \cos \psi_g} + \sqrt{\frac{t^2 \sin^2 \theta}{4 T_W^2 \cos^2 \psi_g} + \cos^2 \theta} \quad [\text{II-24}]$$

Ainsi, pour chaque déclinaison ψ_g , il existe une valeur $|\omega_g|$ pour laquelle la proportion $P(\psi_g, \omega_g, t)$ provient d'une épaisseur constante t . Donc, en plus des rotations (ψ_g, ϕ_g) du

goniomètre, il faut appliquer à l'échantillon une rotation supplémentaire d'axes $\vec{\omega}$ perpendiculaire au plan d'incidence. Le signe de ω_g dépend de l'appareillage dont on dispose (ω_g négatif correspond à la géométrie en faible incidence).

Quand la mesure est effectuée hors Bragg-Brentano, les plans réticulaires dont la normale est repérée par les angles (ψ_m, ϕ_m) dans le repère de l'échantillon, sont mesurés avec les angles du goniomètre $(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$. Les relations qui lient ces différents angles sont les mêmes que celles de la faible et/ou de la forte incidence:

$$\cos \psi_m = \cos \psi_g \cos \omega_g$$

$$\phi_m = \phi_g + \Delta\phi \quad \text{avec} \quad \sin \Delta\phi = \frac{\sin \omega_g}{\sin \psi_m}$$

La courbe de la figure-II-10 montre que pour une valeur de $\frac{t}{T_W} = -\frac{2\mu t}{\ln(1 - P(\psi_g, \omega_g, t))}$,

ψ_g et ω_g varient dans le sens contraire. Il existe une zone limitée par $(\psi_m^{\min}, \psi_m^{\max})$ dans laquelle la mesure conservant une épaisseur constante est possible. On aura ainsi une figure de pôles balayée entre $\psi_m^{\min} = \omega_{g \max} (\psi_g = 0)$ et $\psi_m^{\max} = \psi_{g \max} (\omega_g = 0)$, définis par les relations suivantes:

$$\cos \psi_m^{\min} = \frac{t \sin \theta}{2T_W} + \sqrt{\frac{t^2 \sin^2 \theta}{4T_W^2} + \cos^2 \theta} \quad [\text{II-25}]$$

$$\cos \psi_m^{\max} = \frac{t}{T_W \sin \theta} \quad [\text{II-26}]$$

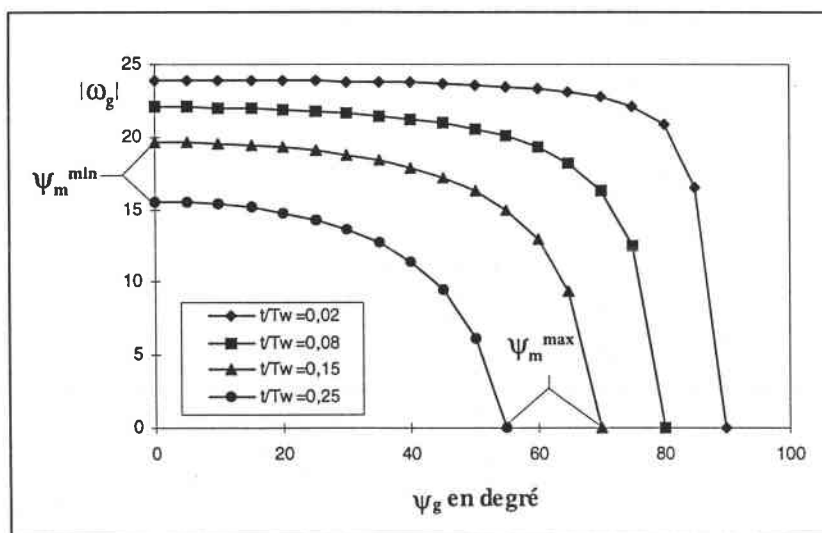


Figure-II-10: l'évolution de $|\omega_g|$ en fonction de $(\psi_g, t/T_W)$ pour le plan (111) d'Al ($\theta = 24.48^\circ$).

Ces deux valeurs limites dépendent de l'angle de Bragg et de l'épaisseur t . Cette variation est représentée par la figure-II-11. A titre d'exemple : si $t/T_w=0.1$ et $\theta=30^\circ$, $\psi_m^{\min}=27^\circ$ et $\psi_m^{\max}=79^\circ$.

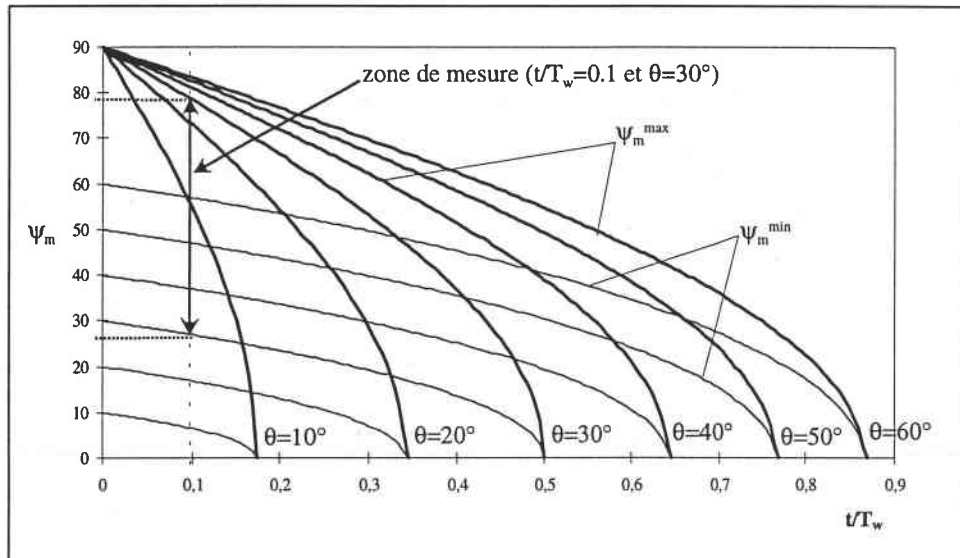


Figure-II-11: variation de la zone de mesure de la figure de pôles en fonction des paramètres de mesure.

3.2. ETUDE DE LA ZONE DE MESURE EN FONCTION DU CHOIX DE $P(\psi_g, \omega_g, t)$ ET t :

Les deux paramètres $P(\psi_g, \omega_g, t)$ et t sont liés, ils influent nécessairement sur la zone de mesure.

Nous allons traiter ce problème sur l'exemple suivant:

Soit un échantillon d'aluminium d'épaisseur infinie (longueur d'onde utilisée $\lambda = 1.937\text{\AA}$, coefficient d'absorption $\mu_{Al} = 263.358\text{ cm}^{-1}$ et $\theta_{111} = 24.48^\circ$).

Nous désirons avoir une information ne provenant en majorité que des 9 premiers microns de l'échantillon. Pour cela, on ne peut jouer que sur la valeur $P(\psi_g, \omega_g, t)$ pour déterminer les valeurs de $\psi_m^{\min}$ et $\psi_m^{\max}$ de la figure de pôles. La figure-II-12 représente la variation de $\psi_m^{\max}$ et $\psi_m^{\min}$ en fonction de $P(\psi_g, \omega_g, t)$ pour une épaisseur de $9\mu\text{m}$.

On remarque que la zone de mesure $\Delta\psi_m = \psi_m^{\max} - \psi_m^{\min}$ augmente avec $P(\psi_g, \omega_g, t)$ pour une épaisseur donnée et se décale sur la figure de pôles (figure-II-12).

De même si l'on fixe la proportion de l'intensité $P(\psi_g, \omega_g, t)$, l'épaisseur de la couche influe sur cette zone de mesure (figure-II-13).

En effet, pour le même échantillon d'aluminium, pour une valeur de $P(\psi_g, \omega_g, t)$ donnée, plus l'épaisseur de la couche est faible plus la zone de mesure augmente.

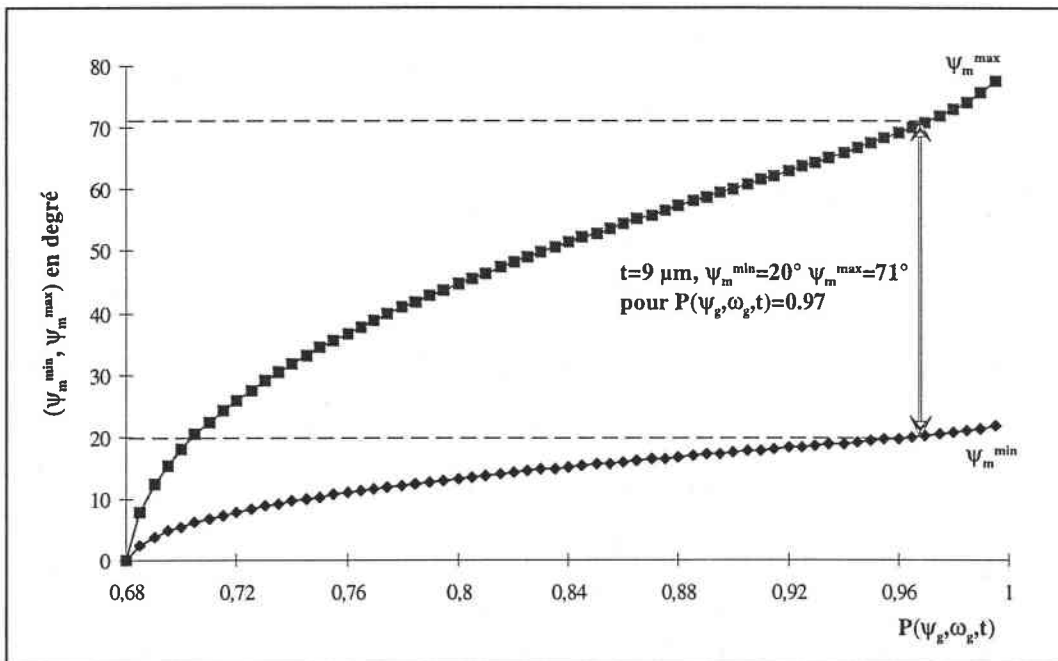


Figure-II-12: variation de la zone de mesure en fonction de $P(\psi_g, \omega_g, t)$ pour une épaisseur $9 \mu\text{m}$.

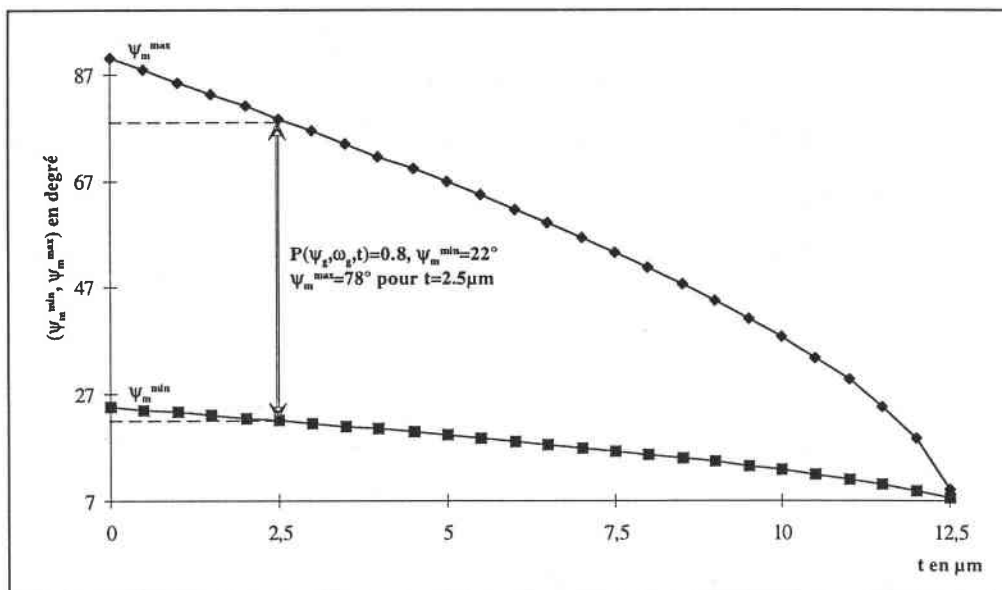


Figure-II-13: variation de la zone de mesure en fonction de l'épaisseur de la couche pour une valeur de $P(\psi_g, \omega_g, t) = 0.8$.

4. CORRECTIONS APPORTEES AUX FIGURES DE POLES ($\omega_g \neq 0$):

4.1. STANDARDISATION:

En plus des corrections du bruit de fond et du volume diffractant que nous avons traitées dans le chapitre-I, une troisième correction est nécessaire pour les figures de pôles qui ont été

mesurées avec un angle d'incidence différent de l'angle de Bragg. Cette correction est géométrique.

Avec une géométrie différente de celle de Schulz ($\omega_g \neq 0$), à la position $(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$ du goniomètre, les coordonnées des normales $[hkl]^*$ détectées sont (ψ_m, ϕ_m) par rapport au repère de l'échantillon.

En projection stéréographique sur le repère de l'échantillon (**OX,OY**), nous avons tracé les deux géométries de mesure que nous employons. La figure-II-14 relative à la forte incidence et la figure-II-15 relative à l'épaisseur constante, montrent la position du lieux des normales aux plans diffractants et les différentes relations angulaires entre les angles du goniomètre et les angles définissant la position des normales.

Comme l'axe (**OZ**) est l'axe de rotation azimuthale une rotation, autour du centre de la figure de pôles, des lieux des normales définissent l'étendue de la zone de mesure. Nous remarquons en particulier, la présence d'une zone aveugle centrale de rayon $|\omega_g|$ dans le premier cas et de rayon $|\omega_{gmax}|$ dans le deuxième cas.

Le principe de cette correction, que l'on appelle du laboratoire "standardisation", est de ramener les intensités mesurées avec les angles $(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$ à leurs vraies positions (ψ_m, ϕ_m) , dans le repère de l'échantillon. On obtient donc, une figure de pôles virtuelle qui aurait été mesurée avec la géométrie de Schulz ($\omega_g=0$) mais pour laquelle les intensités correspondent aux conditions de mesures utilisées.

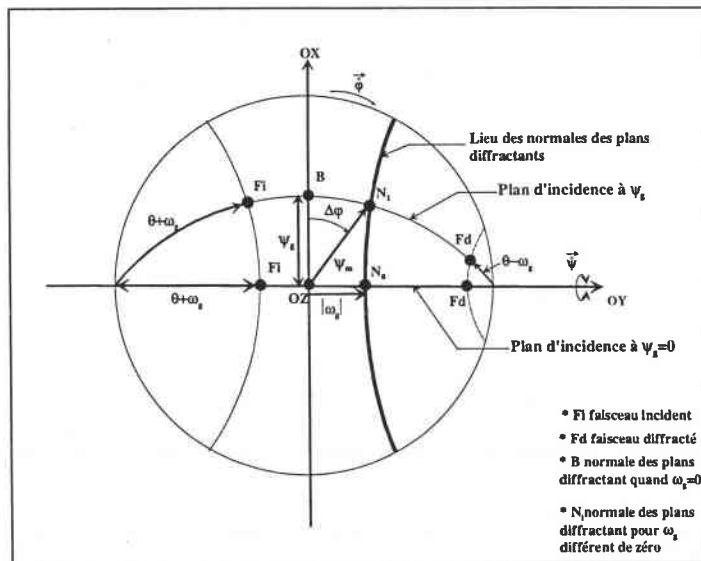


Figure-II-14: projection stéréographique sur le plan de l'échantillon montrant les lieux des normales des plans diffractants en forte incidence.

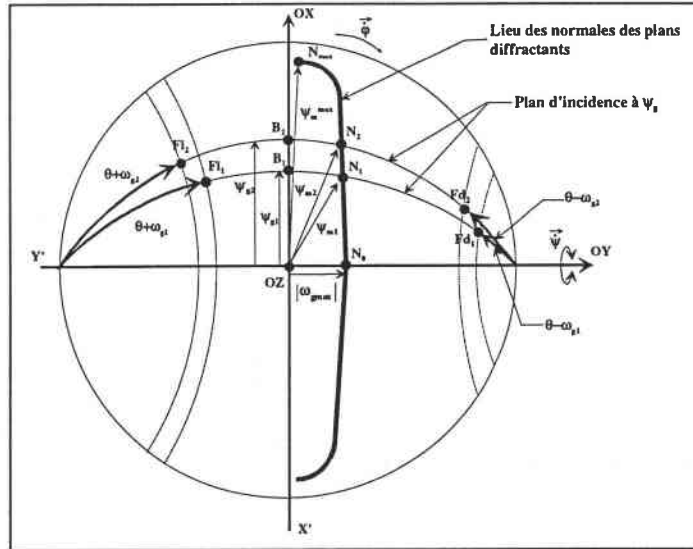


Figure-II-15: projection stéréographique sur le plan de l'échantillon montrant les lieux des normales des plans diffractants à épaisseur constante.

4.2.NORMALISATION:

La dernière correction à apporter à la figure de pôles, est la normalisation. Une figure de pôle normalisée représente le facteur d'orientation K_{ψ_m, φ_m} qui est la densité des normales des plans diffractants à la position (ψ_m, φ_m) par rapport à l'échantillon isotrope. La confection d'un témoin isotrope est extrêmement délicate, voire impossible, pour effectuer cette correction. Nous calculons donc cette intensité isotrope à partir de l'intensité globale diffractée par l'ensemble des cristallites dont les normales sont réparties sur la demi sphère des pôles de rayon unitaire. En effet:

$$I_{\text{totale}} = \int_0^{\pi/2} \int_0^{2\pi} I_{\psi_g, \varphi_g, \omega_g, t} \sin \psi_m d\psi_m d\varphi_m \quad [\text{II- 27}]$$

Par unité d'aire de la demi sphère nous obtenons:

$$I_{\text{isotrope}} = \frac{\int_0^{\pi/2} \int_0^{2\pi} I_{\psi_g, \varphi_g, \omega_g, t} \sin \psi_m d\psi_m d\varphi_m}{\int_0^{\pi/2} \int_0^{2\pi} \sin \psi_m d\psi_m d\varphi_m} = \frac{1}{2\pi} \int_0^{\pi/2} \int_0^{2\pi} I_{\psi_g, \varphi_g, \omega_g, t} \sin \psi_m d\psi_m d\varphi_m \quad [\text{II- 28}]$$

Quand la figure de pôles est incomplète, nous effectuons une normalisation partielle en effectuant les intégrales sur les zones effectivement mesurées:

$$I_{\text{isotrope}} = \frac{\int_{\psi_m^{\min}}^{\psi_m^{\max}} \int_0^{2\pi} I_{\psi_g, \phi_g, \omega_g, t} \sin \psi_m d\psi_m d\phi_m}{\int_{\psi_m^{\min}}^{\psi_m^{\max}} \int_0^{2\pi} \sin \psi_m d\psi_m d\phi_m} \quad [\text{II-29}]$$

Donc, une fois I_{isotrope} calculée, le rapport $\frac{I_{\psi_g, \phi_g, \omega_g, t}}{I_{\text{isotrope}}}$ nous donne directement le facteur

d'orientation K_{ψ_m, ϕ_m} .

4.3. CHRONOLOGIE DES CORRECTIONS POUR LES COUCHES MINCES

Pour une couche mince supposée de texture homogène, les opérations de corrections ne sont pas commutatives.

- 1) La première correction est celle du bruit de fond que l'on retranche du signal de diffraction quand celui-ci est mesuré c'est-à-dire à la position ψ_g, ϕ_g, ω_g du goniomètre.
- 2) La correction suivante est celle du volume diffractant (variable au cours de la mesure) qui ramène ce dernier à un volume constant ($\frac{S_0}{2\mu}$). La correction d'intensité s'effectue par la prise en compte du volume qui a effectivement pris part à la diffraction c'est-à-dire le volume défini aux angles ψ_g, ϕ_g, ω_g .

- 3) Standardisation et Normalisation: les intensités corrigées sont localisées et normalisées dans le repère de l'échantillon comme nous l'avons expliqué précédemment.

Les corrections (2) et (3) pourraient être inversées à condition de considérer les bons volumes diffractants, ce qui complique cette étape de correction des intensités.

5. EXEMPLE D'APPLICATION EXPERIMENTALE:

Nous avons appliqué la méthode de mesure à "épaisseur" constante, qui est la plus complexe, à un échantillon constitué d'une plaque d'aluminium sur laquelle nous avons déposé une feuille d'aluminium d'épaisseur $12\mu\text{m}$, de façon à ce que leurs directions de laminage soient croisées.

La figure de pôles de la plaque seule, mesurée selon Schulz, est représentée par la figure-II-16 (b). Cette figure est corrigée du bruit de fond.

La figure de pôles de la feuille seule, mesurée selon Schulz, corrigée du bruit de fond et de l'épaisseur, est représentée par la figure-II-16 (a). Rappelons que cette dernière correction ramène

les intensités provenant d'un volume diffractant variable à des intensités provenant d'un volume constant ($\frac{S_0}{2\mu}$).

Nous avons choisis ce type d'échantillon car les maxima de la feuille seront situés à 90° en azimut de ceux de la plaque et seront par conséquent facilement repérables. Ainsi sur l'échantillon "composite", quatre maxima apparaissent sur la figure de pôles mesurée en Schulz (figure-II-18 (b)).

Si l'on mesure la figure de pôles de cet échantillon en limitant l'épaisseur à 12μm (pour $P(\psi_g, \omega_g, t)=99\%$); seule doit apparaître la figure de pôles de la feuille de 12μm. Cette figure de pôles mesurée avec les mêmes conditions du faisceau que les autres figures, est représentée par la figure-II-17 , elle est "distordue" car elle est mesurée avec les angles du goniomètre (ψ_g, ψ_g, ω_g).

Après correction du volume diffractant et standardisation, on doit retrouver une figure de pôles qui représente les intensités dont 99% proviennent des 12 premiers microns de l'échantillon "composite". Les intensités ainsi corrigées se réfèrent également au volume diffractant $\frac{S_0}{2\mu}$ (figure-II-18 (a)).

Cette figure comporte une zone aveugle centrale et est limitée aux grands angles de déclinaison. Les maxima correspondant à la plaque ne sont plus visibles.

Nous remarquons que la figure-II-16(a) et la figure-II-18(a) sont identiques y compris les valeurs des intensités.

Cette méthode permet effectivement de sélectionner l'intensité diffractée provenant d'une couche superficielle d'épaisseur souhaiter.

Néanmoins, comme nous l'avons vu précédemment, cette méthode a des limites qui sont principalement l'étendue de la zone que l'on peut observer sur la sphère des pôles (ou on ne peut pas choisir n'importe quelle épaisseur!).

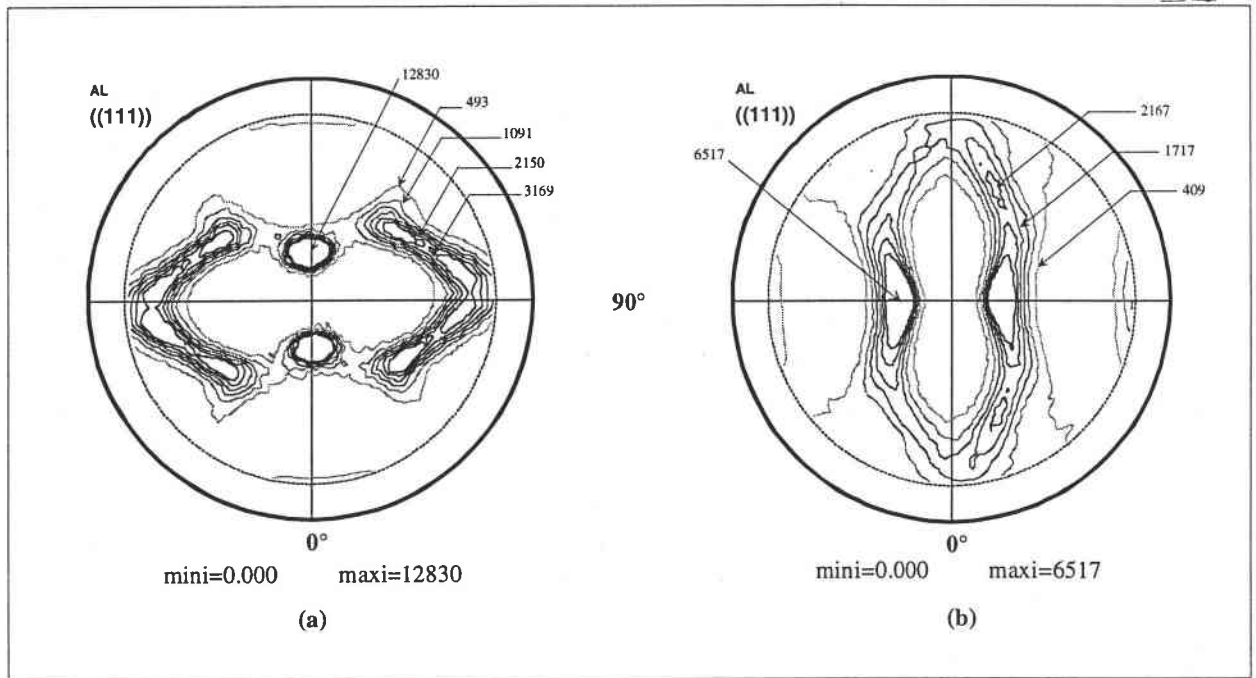


Figure-II-16: figures de pôles (111) mesurées en Schulz: (a) feuille d'Al toute seule, (b) plaque d'Al toute seule

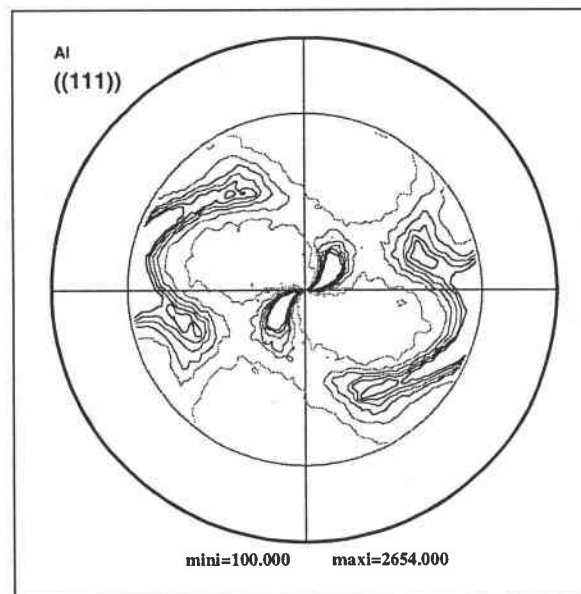


Figure-II-17: figure de pôles (111) brute à épaisseur constante de l'échantillon tel que: 99% de l'intensité provient des 12 premiers microns.

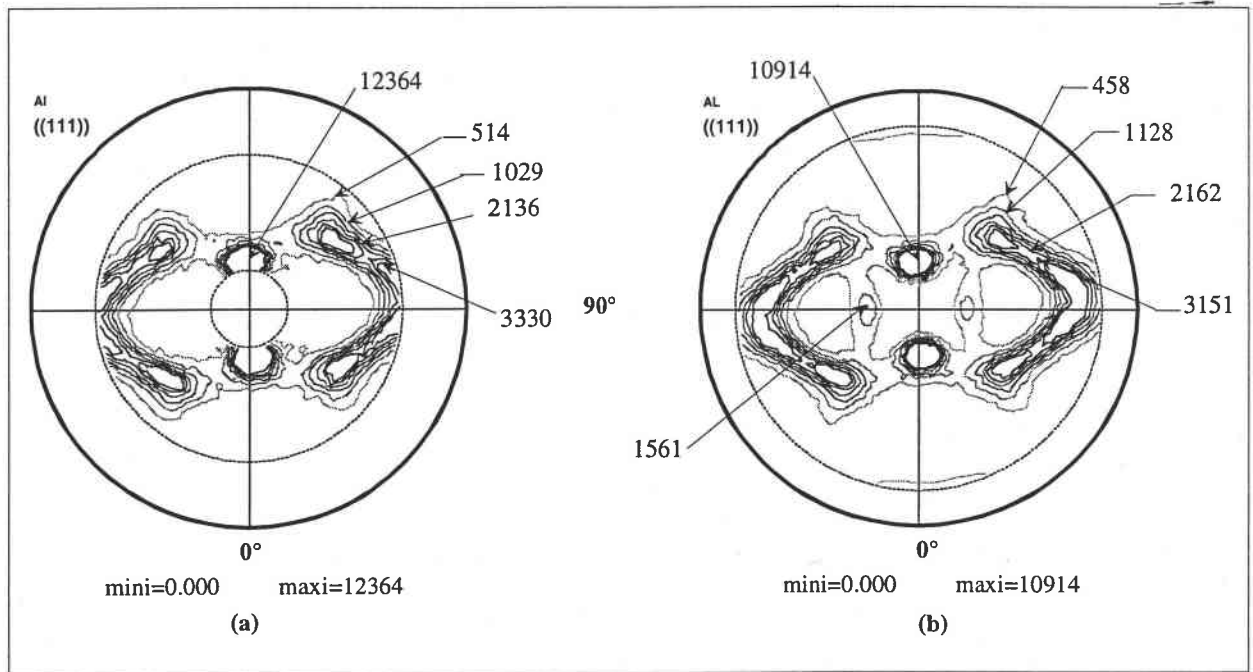


Figure-II-18: (a) figure de pôles (111) à épaisseur constante, (b) figure de pôles (111) de l'échantillon en Schulz.

6.CONCLUSION:

Ces différentes techniques de mesure permettent de déterminer la texture d'une couche mince possédant une texture homogène.

Dans le cas contraire, on ne peut atteindre qu'une texture moyenne.

Dans le cas de la méthode de Schulz, faible ou forte incidence, cette moyenne est établie sur une épaisseur "équivalente" de couche variable pendant la mesure. Ce qui devient très gênant lorsqu'il existe une variation importante de texture en fonction de l'épaisseur car nous ne sommes plus sûr des résultats.

Avec la méthode à épaisseur constante, la moyenne de la texture est établie pour une même épaisseur sur toute la figure de pôles. Cette texture moyenne est un résultat fiable, mais en aucun cas nous pouvons savoir comment la texture peut varier en fonction de l'épaisseur. Cette méthode qui paraît prometteuse est cependant limitée par une zone de mesure qui risque d'être faible en fonction de l'épaisseur choisie.

Pour ces méthodes, des épaisseurs "équivalentes" différentes (bien que variables dans les deux premières) peuvent être observées selon le choix des conditions expérimentales. Nous pouvons donc atteindre différents niveaux dans l'épaisseur de la couche mince.

Nous mettons à profit, dans les prochains chapitres, ce fait pour essayer de déterminer des variations de texture dans l'épaisseur de la couche.

Références Bibliographiques:

- [1]: J. J. Heizmann, C. Laruelle, A. Vadon ; J. Appl. Cryst. ; volume (19) ; 467-472 ;1986.
- [2]: L. G. Schulz ; J. Appl. Phys. ; volume (20) ; 1030-1036 ; 1949.
- [3]: Field and Merchant ; J. Appl. Phys. ; volume (20) ; 741 ; 1949.
- [4]: Y. Arnaud, M. Brunel, A. M. Becdelievre, P. Thevenard ; Journal de Chimie Physique ; volume (2) ; 84 ; 1987.
- [5]: M. Brunel ; Acta Cryst. ; A42 ; 304-309 ; 1986.
- [6]:A. Segmuller ; Thin Solid Films ; volume (154) ; 33-42 ; 1987.
- [7]: A. Tizliouine ; Thèse à l'Université de METZ ; 1994.
- [8]: J. J. Heizmann, A. Vadon, J. Schlatter, D. Bessièrès ; Advances in X-ray Analysis ; volume(32) ; 285-292 ; 1989.
- [9]: L. Jolly, B. Bolle, C. Valot, C. Laruelle and J.J. Heizmann ; Textures of materials ; ICOTOM-11 ; China 1996 ; Volume 1 ; 116-121.

Chapitre III:

Etude des textures hétérogènes dans les couches minces par diffraction X

1.INTRODUCTION: EXEMPLES DE TEXTURE HETEROGENE

Nous venons de voir dans le chapitre précédent la difficulté à mesurer la texture d'un échantillon lorsque celle-ci varie avec la profondeur.

1) Echantillon d'épaisseur supérieure à la profondeur de pénétration des rayons X:

De nombreux auteurs ont noté l'existence d'une variation de la texture entre la surface et le cœur des matériaux dans le cas de produits déformés. Cette variation de texture a été observée sur des métaux de structure cubique ayant été laminés ou tréfilés (Montesin et Heizmann [1], Engler [2], Duggan [3], Raabe [4] et Diot [5]).

Cette différence de texture entre la surface et le cœur de l'échantillon peut être due à l'hétérogénéité de la déformation de cisaillement à travers l'épaisseur du matériau. En effet, le laminage a transformé la texture initiale du métal en une texture de déformation particulière. De plus, suivant les conditions de frottement, il apparaît une texture superficielle, différente de la texture du cœur, qui peut intéresser un volume important du métal.

Dans la plupart des cas, ce problème est généralement résolu par une réduction de l'épaisseur. Une fois l'échantillon aminci par polissage ou amincissement chimique, on mesure les figures de pôles par la géométrie de Schulz [6].

La figure-III-1 montre la figure de pôles (002) d'un alliage de zinc qui a subi une déformation plastique par laminage (Diot [5]). La répartition des axes C sur la figure de pôles et leurs intensités permettent de rendre compte de l'évolution de la texture du matériau au fur et à mesure de l'amincissement. On remarque qu'il y a une différence importante d'intensité des deux pics A et B entre la surface et le cœur de l'échantillon: le rapport des intensités maximales $\frac{I_A}{I_B}$ vaut 18.6 pour l'échantillon brut (sans amincissement), vaut 2.64 après une réduction de 50 μ m et 1.21 après une réduction de 330 μ m.

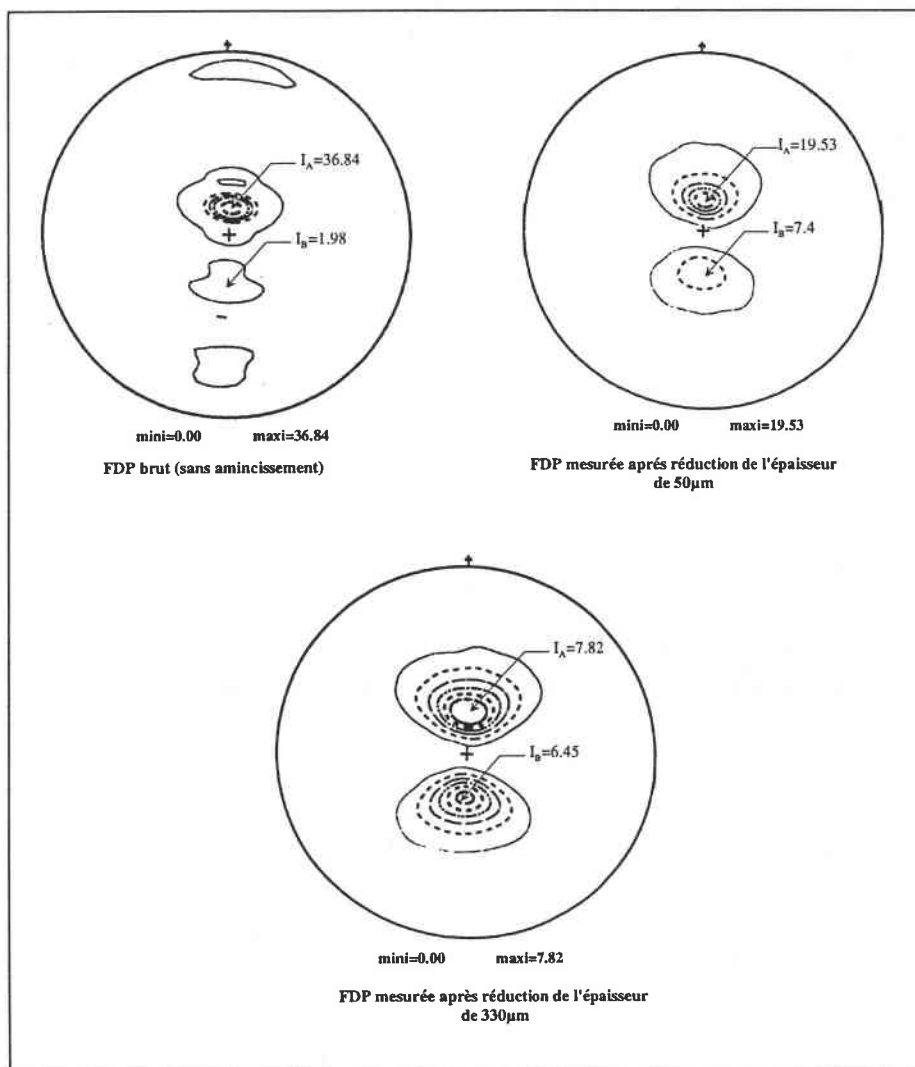


Figure-III-1: figures de pôles (002) mesurées, d'un alliage de Zinc, avant et après amincissement.

2) Echantillon d'épaisseur inférieure à la profondeur de pénétration des rayons X:

Dans le cas des couches minces dont l'épaisseur est de quelques microns, on n'arrive pas à maîtriser la réduction de l'épaisseur par la méthode d'amincissement. Nous présentons dans ce chapitre une méthode, basée sur la profondeur de pénétration des rayons X, capable de déterminer les variations de texture sur de faibles épaisseurs.

Lors de travaux récents, sur l'oxydation du Zirconium en Zircone, Valot [7] a remarqué que la texture de la couche d'oxyde est hétérogène dans l'épaisseur. En mesurant la figure de pôles (-111) avec deux géométries de mesure différentes: l'une en Schulz ($\omega_g=0$) (figure-III-2 (a)) et l'autre à faible incidence ($\omega_g=-10^\circ$) (figure-III-2 (b)), il a remarqué que la texture de la zircone varie avec l'angle d'incidence. La texture de la couche d'oxyde n'est pas la même sur toute l'épaisseur de l'oxyde. Les deux pôles, symétriques par rapport à la direction transverse

(DT), tournent autour de la normale à l'échantillon. D'après Valot, ces différences de texture s'expliqueraient par la présence de contraintes mécaniques dans l'oxyde.

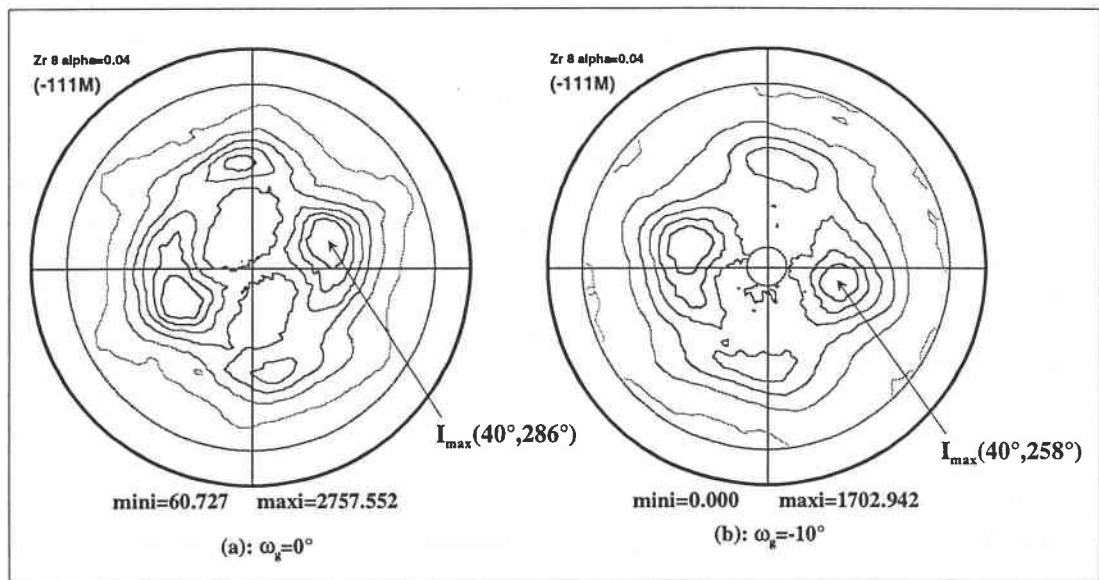


Figure-III-2: figures de pôles (-111) de la couche d'oxyde mesurées avec deux géométries de mesure:

- (a) géométrie de Schulz
- (b) géométrie de faible incidence.

2. NOUVELLE METHODE DE DETERMINATION DE TEXTURE HETEROGENE:

Pour étudier la variation de texture dans une couche mince, nous allons utiliser une méthode qui emploie des techniques expérimentales de mesures permettant d'accéder à des profondeurs de pénétration différentes. Ces mesures donnent des informations différentes qui seront traitées numériquement pour pouvoir atteindre les variations de texture dans l'épaisseur.

2.1.RAPPEL DES AUTRES METHODES:

Récemment différents auteurs ont essayé de résoudre le problème de variation de texture, en utilisant les variations de la profondeur de pénétration des rayons X ou des neutrons. L'un des premiers est Choi [8] qui traite le problème en diffraction neutronique en utilisant plusieurs ordres successifs de diffraction sur les plans {hkl}: c'est-à-dire les plans {nh nk nl}. Cette technique qui permet d'observer différentes profondeurs est vraiment particulière aux neutrons et de plus, il faut connaître avec précision les pouvoirs réfléchissants des différents ordres. Son emploi aux rayons X est limité par la possibilité d'atteindre plusieurs ordres de diffraction. En effet, même si la longueur d'onde est assez faible pour avoir les ordres supérieurs, ceux-ci ont

généralement des intensités trop faibles pour pouvoir faire des mesures avec précision en texture.

La méthode de Morawiec ([9], [10] et [11]) est basée sur la mesure de plusieurs figures de pôles différentes, en réflexion, par la géométrie de Shulz.

Etant donné que les angles de Bragg des différentes réflexions (111, 200, 220 par exemple) sont différents, cette méthode permet d'atteindre des profondeurs variables mais différentes pour chacune des réflexions.

L'échantillon est subdivisé en **N sous couches** parallèles à la surface, chacune de ces **sous couches i** ayant par hypothèse une **texture homogène** représentée par une fonction de texture $f^i(g)$.

La figure de pôles globale est:

$$P_h(y) = \sum_{i=1}^N \rho_i(h, y) P_h^i(y)$$

où

$$P_h^i(y) = \int_g dg f^i(g) \delta(h \pm gy)$$

serait la figure de pôles de la $i^{\text{ème}}$ couche

$\rho_i(h)$ un facteur dépendant de l'absorption, de la réflectivité.....

La figure de pôles globale s'écrit donc:

$$P_h(y) = \sum_{i=1}^N \rho_i(h, y) \int_g dg f^i(g) \delta(h \pm gy)$$

Il est déjà difficile de connaître la fonction de distribution $f(g)$ à partir d'un nombre réduit de figure de pôles (Ruer et Baro [12], Matthies [13]). Ce problème se complique d'autant plus si l'on augmente le nombre d'inconnues de N fois (nombre de sous couches). Morawiec traite ce problème par des routines d'itérations analogues à celles employées par Ruer et Baro [12], Imhof [14] et Pawlik [15] pour résoudre un système qui possède plus d'inconnues que d'équations.

Nous donnons sur la figure suivante (figure-III-3), les résultats présentés par cet auteur:

L'échantillon est formé par une feuille d'aluminium de 14 μ m d'épaisseur superposée à un échantillon massif d'aluminium.

Les textures de la feuille et de l'échantillon massif ont été mesurées isolément pour être comparées à celles déduites par sa méthode de séparation où trois figures de pôles mesurées sur l'échantillon global ont été utilisées.

2.2. PRINCIPE DE LA METHODE:

Comme dans les méthodes précédentes, une couche mince de texture hétérogène, peut être divisée en plusieurs *sous-couches de textures homogènes*.

Contrairement à ces auteurs nous utilisons *la même réflexion hkl*.

Actuellement, on sait construire une figure de pôles d'un échantillon formé de plusieurs couches de textures différentes. En effet, il suffit d'ajouter l'intensité diffractée par chacune des couches pondérées par les volumes diffractants et les effets d'absorption (filtres des couches supérieures) (figure-III-4). Mais l'opération en sens inverse paraît quasiment impossible, car l'intensité diffractée par l'échantillon provient d'éléments de volume dont la localisation en profondeur est inconnue. En utilisant des géométries différentes capables d'atteindre des profondeurs de pénétration différentes, cette localisation devient possible.

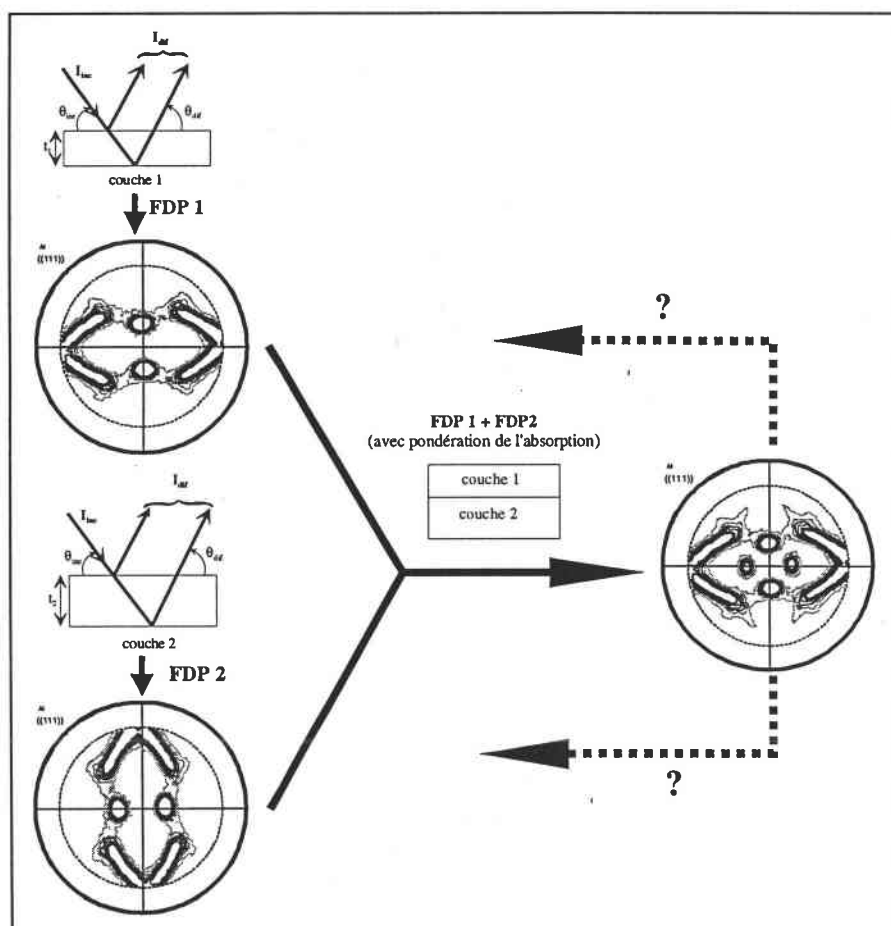


Figure-III-4: formation d'une figure de pôles d'une bicouche d'aluminium à partir des figures de pôles de chacune des couches prises séparément.

Lorsqu'une couche mince présente une évolution de texture dans son épaisseur, du fait de l'absorption des rayons X, les rapports des intensités diffractées entre les zones supérieures et les zones inférieures de la couche seront différents.

Ce rapport sera différent si l'on utilise des conditions de mesures différentes.

Pour simplifier l'explication de cette méthode, nous considérons un échantillon constitué par deux couches de texture homogène d'épaisseurs t_1 et t_2 et de facteur de texture K^1 et K^2 .

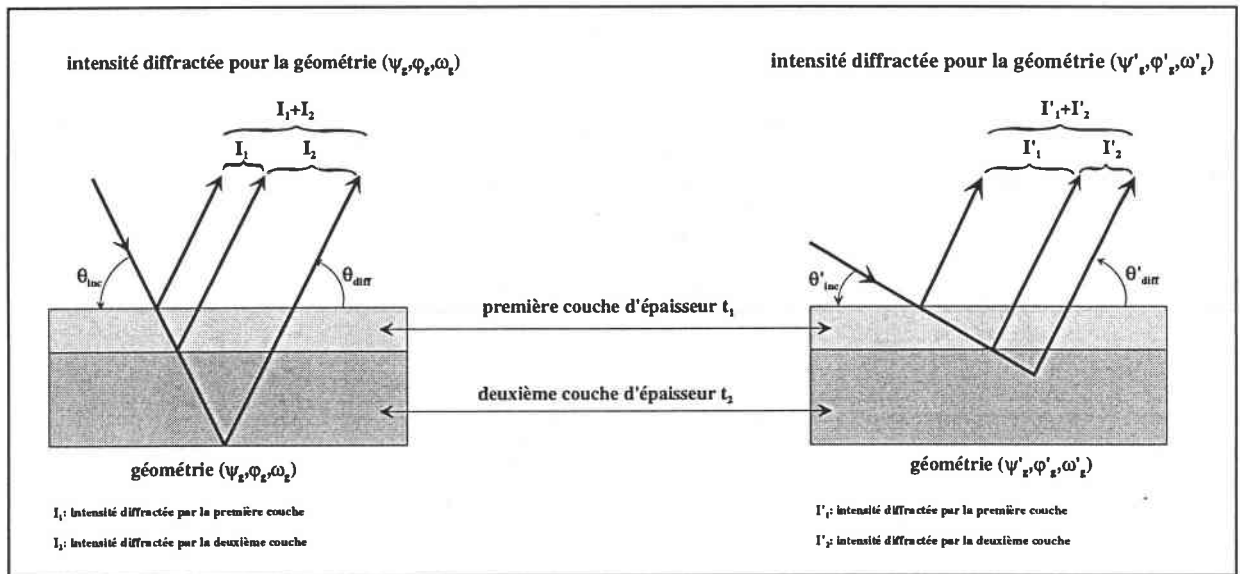


Figure-III-5: intensités diffractées par deux géométries de mesure différentes.

Pour deux géométries de mesure différentes $(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$ et $(\psi'_g, \phi'_g, \omega'_g)$ (figure-III-5), les intensités mesurées s'écrivent:

$$\begin{cases} I_{\psi_g, \phi_g, \omega_g} = i(K_{\psi_m \phi_m}^1 V_d^1 + K_{\psi_m \phi_m}^2 V_d^2 F^1) = I_1 + I_2 \\ I'_{\psi'_g, \phi'_g, \omega'_g} = i(K_{\psi'_m \phi'_m}^1 V'^1_d + K_{\psi'_m \phi'_m}^2 V'^2_d F'^1) = I'_1 + I'_2 \end{cases} \quad [\text{III- 1}]$$

où:

V_d^1 et V_d^2 sont respectivement les volumes diffractants de la première couche et la deuxième couches (voir définition chapitre-II).

V_d^1 et V_d^2 peuvent également se mettre sous la forme suivante:

$$V_d^j = \frac{S_0}{2\mu} \left(1 - \frac{\tan \omega_g}{\tan \theta}\right) P(\psi_g, \omega_g, t_j) \quad \text{avec } j=1 \text{ ou } 2 \quad [\text{III-1 bis}]$$

$F^1 = \exp\left(-\frac{\mu t_1}{\cos \psi_g} \left(\frac{1}{\sin(\theta - \omega_g)} + \frac{1}{\sin(\theta + \omega_g)}\right)\right)$ est l'effet de filtre de la première couche

sur l'intensité diffractée par la deuxième.

Ces volume diffractants et ces filtres sont fonction de la géométrie utilisée pour la mesure de la figure de pôles.

Nous obtenons donc, un système de deux équations linéaires à quatre inconnues qui sont:

$$K_{\psi_m \varphi_m}^1, K_{\psi_m \varphi_m}^2, K_{\psi'_m \varphi'_m}^1, K_{\psi'_m \varphi'_m}^2.$$

2.3.RESOLUTION DU SYSTEME:

D'une façon générale, si on effectue q figures de pôles dans des conditions de mesure différentes pour connaître la texture de N couches, nous obtenons q équations à $q \times N$ inconnues. Pour réduire ce nombre d'inconnues à N , nous effectuons une correction de localisation, c'est-à-dire que:

les intensités mesurées de chaque figure de pôles *sont reportées dans un même repère qui est celui de l'échantillon.*

Les équations précédentes (III-1) pour deux sous couches donnent après localisation, les intensités de deux figures de pôles "virtuelles", qui aurait été mesurées avec la géométrie de Schulz ($\omega_g=0$) mais pour lesquelles les intensités correspondent aux conditions de mesure utilisées. Ces deux figures de pôles possèdent donc des intensités différentes dans leurs cases de coordonnées identiques ψ_m et φ_m . Le schéma de la figure (III-6) explique cette localisation.

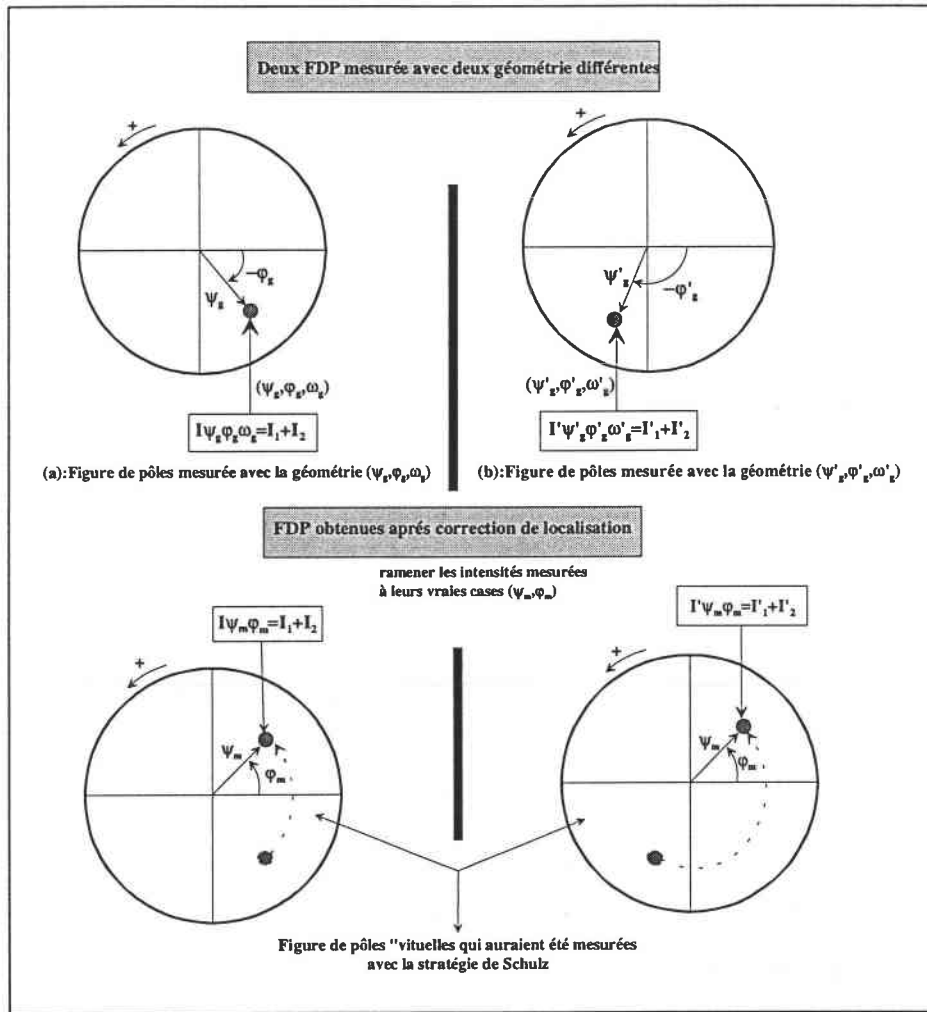


Figure-III-6: principe de la correction de localisation d'une figure de pôles.

Les équations (III-1) peuvent alors s'écrire:

$$\begin{cases} I_{\psi_m \phi_m} = i(K_{\psi_m \phi_m}^1 V_d^1 + K_{\psi_m \phi_m}^2 V_d^2 F^1) \\ I'_{\psi_m \phi_m} = i(K_{\psi_m \phi_m}^1 V'^1_d + K_{\psi_m \phi_m}^2 V'^2_d F^1) \end{cases} \quad [\text{III-2}]$$

En fait, pour une figure de pôles (hkl) possédant p cases (ou points de mesure) définies par les angles ψ_m et ϕ_m , nous avons un système de $2p$ équations linéaires à $2p$ inconnues. Théoriquement ce système n'admet qu'une seule solution.

Le coefficient "i" est un facteur commun pour les deux équations du système (pas le cas de Morawiec), il n'aura aucune influence sur les solutions $K_{\psi_m \phi_m}^1$ et $K_{\psi_m \phi_m}^2$.

Ces solutions vont dépendre seulement des valeurs des volumes diffractants de chacune des couches pour chaque cases ψ_m, ϕ_m . Cette dépendance se traduit donc par le choix des géométries de mesures utilisées.

Pour qu'un système d'équations linéaires admette une solution unique, il faut que son déterminant soit non nul. C'est-à-dire:

$$V_d^1 V_d'^2 F'^1 - V_d'^1 V_d^2 F^1 \neq 0 \quad [\text{III-3}]$$

Une fois les géométries de mesure choisies et après correction de localisation pour les figures de pôles mesurées, les solutions des équations [III-2] sont:

$$K_{\psi_m \varphi_m}^1 = \frac{I_{\psi_m \varphi_m} V_d'^2 F'^1 - I'_{\psi_m \varphi_m} V_d^2 F^1}{V_d^1 V_d'^2 F'^1 - V_d'^1 V_d^2 F^1} \quad [\text{III-4}]$$

$$K_{\psi_m \varphi_m}^2 = \frac{I'_{\psi_m \varphi_m} V_d^1 - I_{\psi_m \varphi_m} V_d'^1}{V_d^1 V_d'^2 F'^1 - V_d'^1 V_d^2 F^1} \quad [\text{III-5}]$$

Ces solutions [III-4] et [III-5] représentent les figures de pôles normalisées et qui se réfèrent au volume constant $\frac{S_0}{2\mu}$, de chacune des sous couches, obtenues après séparation.

2.4. EXAMEN DE LA VALIDITE DES SOLUTIONS:

Ces solutions pour être physiquement acceptables doivent être nécessairement positives ou nulles. Examinons les cas possibles:

- 1) le déterminant est nul quelque soit ψ_m et φ_m : ce cas ne se présente que si on utilise deux fois la même géométrie et n'offre donc aucun intérêt.
- 2) le déterminant est nul pour une case (ψ_m, φ_m) quelconque: dans ce cas le système n'admet pas de solution pour cette même case.
- 3) le déterminant est non nul quelques soient les valeurs de (ψ_m, φ_m) :

On note:

$$R = \frac{V_d^1}{V_d^2 F^1} \text{ pour la première géométrie } (\psi_g, \varphi_g, \omega_g)$$

$$R' = \frac{V_d'^1}{V_d'^2 F'^1} \text{ pour la deuxième géométrie } (\psi'_g, \varphi'_g, \omega'_g)$$

$$V_d^1 V_d'^2 F'^1 - V_d'^1 V_d^2 F^1 = (R - R') V_d'^2 F'^1 V_d^2 F^1 \quad [\text{III-6}]$$

Le terme $V_d'^2 F'^1 V_d^2 F^1$ est positif quelques soient les valeurs de (ψ_m, φ_m) . Le déterminant a le signe de $(R - R')$.

Le signe du déterminant dépend donc de la géométrie.

Si on suppose que la première géométrie $(\psi_g, \phi_g, \omega_g)$ est plus favorable à l'observation de la première couche que la deuxième géométrie $(\psi'_g, \phi'_g, \omega'_g)$, c'est-à-dire:

$$\frac{I_1}{I_2} > \frac{I'_1}{I'_2} \Leftrightarrow \frac{K^1_{\psi_m \phi_m} V_d^1}{K^2_{\psi_m \phi_m} V_d^2 F^1} > \frac{K^1_{\psi_m \phi_m} V_d^1}{K^2_{\psi_m \phi_m} V_d^2 F^1} \quad [\text{III- 7}]$$

En simplifiant la relation [III-7] par les facteurs de textures, on aura:

$$\frac{V_d^1}{V_d^2 F^1} > \frac{V_d^1}{V_d^2 F^1} \text{ dans ce cas } R - R' > 0 \text{ et le déterminant est positif}$$

la relation $\frac{V_d^1}{V_d^2 F^1} > \frac{V_d^1}{V_d^2 F^1}$ est équivalente à:

$$\frac{V_d^1}{V_d^1} < \frac{V_d^2 F^1}{V_d^2 F^1} \Leftrightarrow \frac{V_d^1}{V_d^1} < \frac{V_d^1 + V_d^2 F^1}{V_d^1 + V_d^2 F^1} < \frac{V_d^2 F^1}{V_d^2 F^1} \quad [\text{III- 8}]$$

Soit $V_d = V_d^1 + V_d^2 F^1$ volume diffractant total de l'échantillon pour la première géométrie. L'intensité diffracté I_{ψ_m, ϕ_m} est proportionnelle à ce volume: $I_{\psi_m, \phi_m} = a \times V_d$.

Il en est de même pour la deuxième géométrie.

La relation [III-8] devient:

$$\frac{V_d^1}{V_d^1} < \frac{V_d^1}{V_d} = b \times \frac{I'_{\psi_m, \phi_m}}{I_{\psi_m, \phi_m}} < \frac{V_d^2 F^1}{V_d^2 F^1} \quad [\text{III- 9}]$$

a et b sont des coefficients de proportionnalité.

Les solutions $K^1_{\psi_m \phi_m}$ et $K^2_{\psi_m \phi_m}$ doivent être positives. Comme le déterminant est positif,

$K^1_{\psi_m \phi_m}$ et $K^2_{\psi_m \phi_m}$ doivent remplir les conditions suivantes:

$$K_{\psi_m \varphi_m}^1 > 0 \Leftrightarrow \frac{I'_{\psi_m, \varphi_m}}{I_{\psi_m, \varphi_m}} < \frac{V_d'^2 F^1}{V_d^2 F^1} \quad [\text{III- 10}]$$

$$K_{\psi_m \varphi_m}^2 > 0 \Leftrightarrow \frac{V_d^1}{V_d^1} < \frac{I'_{\psi_m, \varphi_m}}{I_{\psi_m, \varphi_m}} \quad [\text{III- 11}]$$

donc:

$$\frac{V_d^1}{V_d^1} < \frac{I'_{\psi_m, \varphi_m}}{I_{\psi_m, \varphi_m}} < \frac{V_d'^2 F^1}{V_d^2 F^1} \quad [\text{III- 12}]$$

Cette dernière relation est accord avec la relation [III-9].

Il en résulte que si le déterminant est positif, les solutions $K_{\psi_m \varphi_m}^1$ et $K_{\psi_m \varphi_m}^2$ sont également positives.

Si le déterminant est négatif, il suffit d'inverser les deux géométries (c'est-à-dire les deux équations) pour se ramener au cas précédent.

Nous pouvons donc dire que ce système, quelque soit le signe du déterminant, *admet des solutions uniques et positives*.

2.5. TEST DE LA METHODE ET DES PROGRAMMES DE CALCULS:

La validité de la méthode des calculs s'effectue sur une couche mince isotope.

Cet échantillon isotrope théorique ($K_{\psi_m \varphi_m} = 1$) a une épaisseur t . L'intensité diffractée pour un tel échantillon, lors de la mesure de la figure de pôles avec une géométrie de mesure $(\psi_g, \varphi_g, \omega_g)$, s'écrit sous la forme suivante:

$$I_{\psi_g, \varphi_g, \omega_g} = i V_d \quad [\text{III- 13}]$$

Supposons l'échantillon formé par deux sous couches d'épaisseurs t_1 et t_2 tel que: $t = t_1 + t_2$.

A la position $(\psi_g, \varphi_g, \omega_g)$, la première couche a un facteur de texture $K_{\psi_m \varphi_m}^1$, la couche inférieure a un facteur de texture $K_{\psi_m \varphi_m}^2$ ($K_{\psi_m \varphi_m}^1$ et $K_{\psi_m \varphi_m}^2$ pouvant être quelconques).

Rappelons que l'intensité diffractée par cet échantillon est:

$$I_{\psi_g \varphi_g \omega_g} = i(K_{\psi_m \varphi_m}^1 V_d^1 + K_{\psi_m \varphi_m}^2 V_d^2 F^1) = iV_d \quad [\text{III-14}]$$

où V_d est le volume diffractant total de l'échantillon.

Nous aurons le même type d'équation pour la deuxième géométrie.

Les intensités mesurées avec deux géométries de mesure différentes $(\psi_g, \varphi_g, \omega_g)$ et $(\psi'_g, \varphi'_g, \omega'_g)$ et après correction de localisation sont:

$$\begin{cases} I_{\psi_m \varphi_m} = i(K_{\psi_m \varphi_m}^1 V_d^1 + K_{\psi_m \varphi_m}^2 V_d^2 F^1) = iV_d \\ I'_{\psi_m \varphi_m} = i(K_{\psi_m \varphi_m}^1 V_d'^1 + K_{\psi_m \varphi_m}^2 V_d'^2 F'^1) = iV'_d \end{cases} \quad [\text{III-15}]$$

Pour tester nos programmes de séparation, on suppose que la couche est en aluminium de $9\mu\text{m}$ d'épaisseur, qu'elle est subdivisée en 2 sous couches d'épaisseurs $t_1=3\mu\text{m}$ et $t_2=6\mu\text{m}$. Les plans (111) ont été visés avec une longueur d'onde de Fer ($\lambda_{\text{Fe}}=1.9793\text{\AA}$, $\theta_{111}=24.48^\circ$ et $\mu_{\text{Al}}=263.358\text{ cm}^{-1}$)

Après séparation, les coefficients de texture $K_{\psi_m \varphi_m}^1$ et $K_{\psi_m \varphi_m}^2$ de chacune des sous couches devraient être égaux à l'unité quelques soient les angles ψ_m et φ_m .

Parmi ces tests de séparations effectués, nous allons montrer deux exemples qui sont représentatifs des résultats et permettent de choisir les conditions de mesure.

2.5.1. EXEMPLE 1: COMBINAISON ENTRE LA GEOMETRIE DE SCHULZ ET LA GEOMETRIE A EPAISSEUR CONSTANTE :

Pour simplifier les calculs, on suppose que la valeur de "i" est égale à l'unité. Un programme informatique permet de construire les figures de pôles (111) supposées mesurées dans les mêmes conditions de faisceau avec la géométrie de Schulz ($\omega_g=0$) et la géométrie à épaisseur constante ($\omega_g \neq 0$ et variable). Ces figures de pôles sont représentées par la figure-III-7.

- La figure de pôles (111), mesurée par la géométrie de Schulz (figure-III-7(a)), représente la variation de l'intensité diffractée totale en fonction de la déclinaison.
- La figure de pôles mesurée avec la géométrie à épaisseur constante (figure-III-7(b)) possède une intensité constante égale à 0.99, car nous avons imposé dans le programme de construction de cette figure que 99% de l'intensité (facteur $P(\psi_g, \omega_g, t)$ chapitre II) provient des $9\mu\text{m}$ de la couche. Avec ces conditions de mesure choisies, la figure de pôles sera mesurée dans une zone de mesure définie par $\psi_m^{\min}=21^\circ$ et $\psi_m^{\max}=75^\circ$.

Afin de déterminer la différence d'intensité diffractée par chacune des sous couches dans les deux figures de pôles, on étudie le rapport $\frac{V_d^1(3\mu\text{m})}{V_d^2(6\mu\text{m})F^1(3\mu\text{m})}$ en fonction de la déclinaison ψ_m pour les deux géométries de mesure. Ce rapport est représenté par la figure-III-8

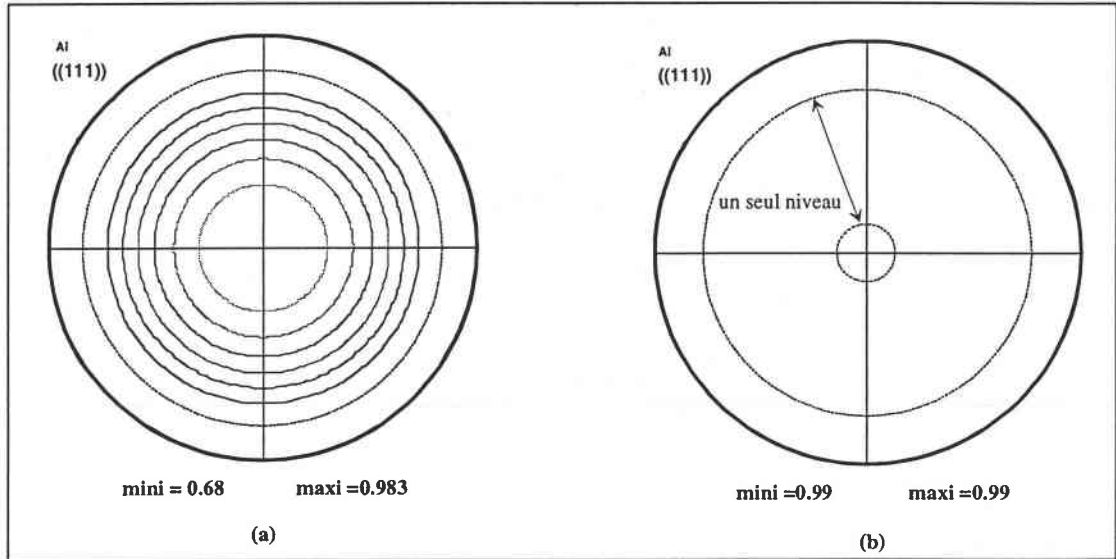


Figure-III-7: figures de pôles (111) supposées mesurées d'une couche d'Al isotrope d'épaisseur $9\mu\text{m}$

- (a): géométrie de Schulz ($\omega_g=0$)
- (b): géométrie à épaisseur constante (ω_g variable).

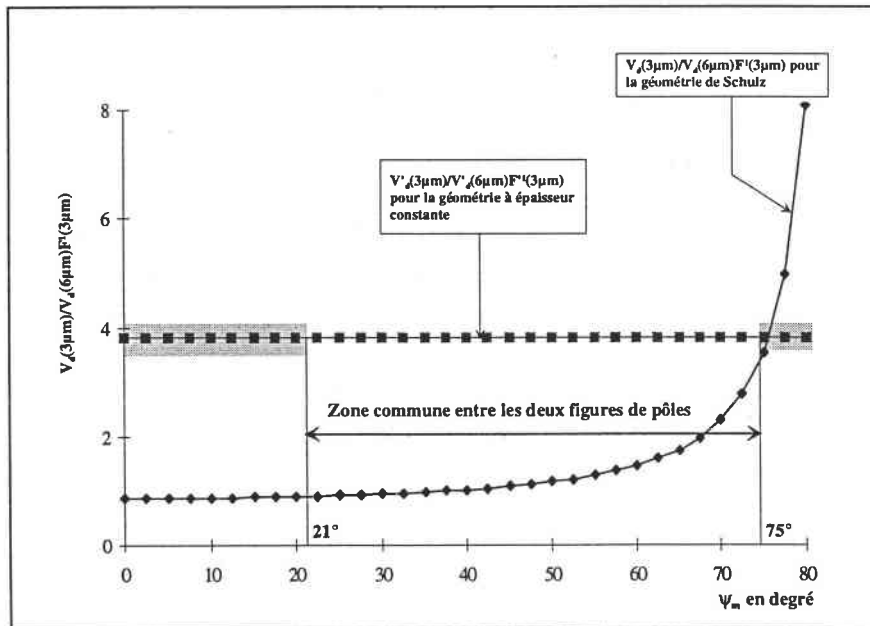


Figure-III-8: étude du rapport $\frac{V_d^1(3\mu\text{m})}{V_d^2(6\mu\text{m})F^1(3\mu\text{m})}$ en fonction de la déclinaison pour les deux géométries de mesures.

On remarque qu'il existe une grande différence d'intensité diffractée entre les deux figures de pôles mesurées avec les deux géométries choisies. Cette différence se traduit donc par un déterminant non nul du système d'équation (figure-III-9), sauf à $\psi_m=75^\circ$ où il tend vers zéro.

On détermine ainsi les figures de pôles normalisées (111) de chacune des sous couches en résolvant les équations [III-15]. Ces figures de pôles (figure-III-10) représentent la valeur du facteur de texture de chacune des sous couches; on obtient $K_{\psi_m\varphi_m}^1 = K_{\psi_m\varphi_m}^2 = 1$. Donc, les deux sous couches sont isotropes comme prévu.

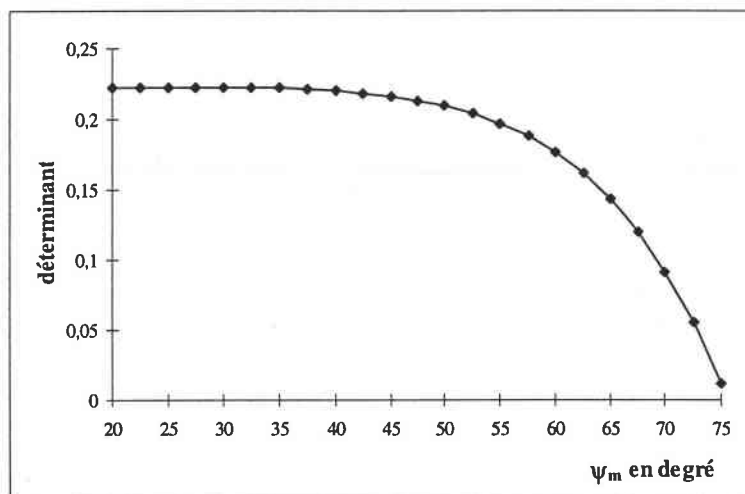


Figure-III-9: variation de déterminant en fonction de la déclinaison.

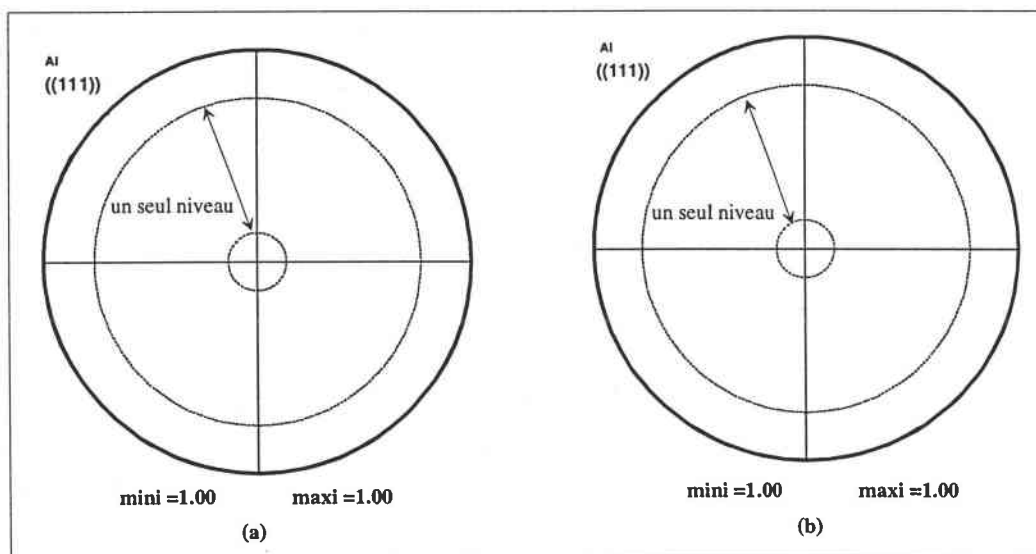


Figure-III-10: figures de pôles (111) normalisées de chacune des sous couches obtenues après séparation;

(a): couche de $3\mu\text{m}$

(b): couche de $6\mu\text{m}$.

2.5.2. EXEMPLE 2: COMBINAISON ENTRE LA GEOMETRIE DE SCHULZ ET LA GEOMETRIE A FORTE INCIDENCE:

On suppose toujours que la valeur de "i" est égale à l'unité. A partir des figures de pôles (111) supposées mesurées avec la géométrie de Schulz ($\omega_g=0$) et la géométrie à forte incidence ($\omega_g \neq 0$ et constant), on devrait retrouver les mêmes résultats que précédemment. Nous présentons deux simulations avec deux angles de forte incidence différents:

1) $\omega_g=10^\circ$

2) $\omega_g=20^\circ$

2.5.2.1. $\omega_g=10^\circ$:

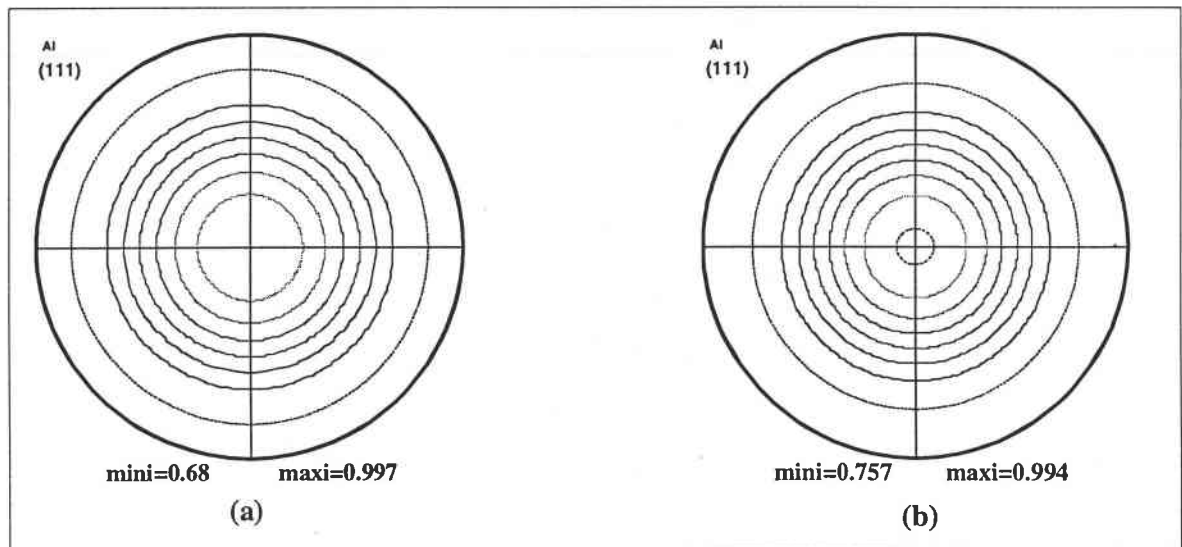


Figure-III-11: figures de pôles (111) d'une couche d'Al isotrope d'épaisseur $9\mu\text{m}$ supposées mesurées avec:

(a): géométrie de Schulz

(b): géométrie à forte incidence $\omega_g=10^\circ$.

Ces figures de pôles (figure-III-11) représentent les variation d'intensité en fonction de la déclinaison.

De la même façon, on va étudier la variation du rapport $\frac{V_d^1(3\mu\text{m})}{V_d^2(6\mu\text{m})F^1(3\mu\text{m})}$ en fonction de la déclinaison (figure-III-12), afin de déterminer la différence entre les intensités diffractées par chacune des sous couches pour chacune des géométries de mesure.

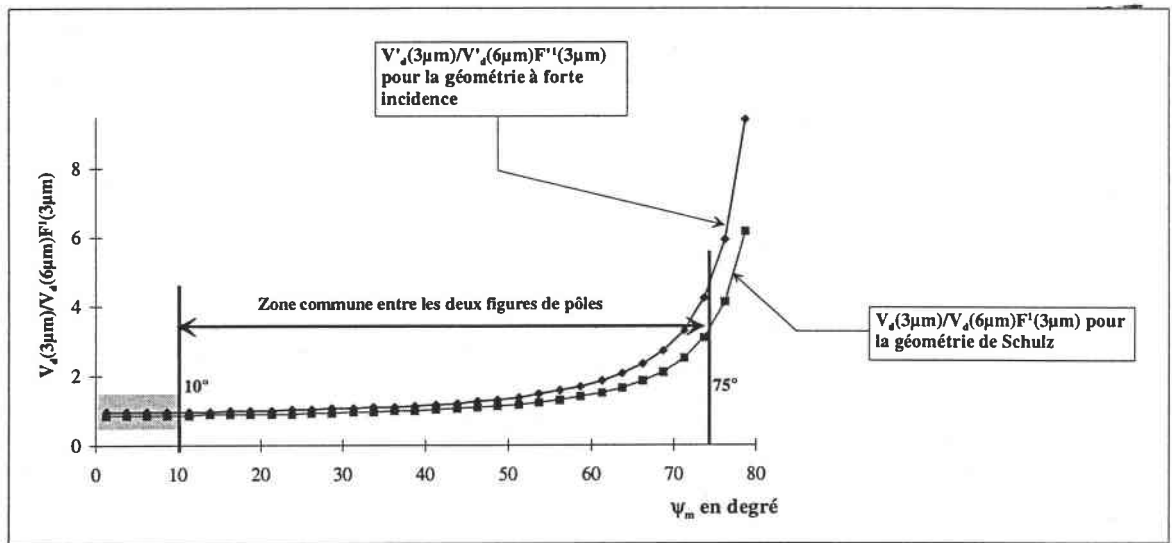


Figure-III-12: étude du rapport $\frac{V_d^1(3\mu m)}{V_d^2(6\mu m)F^1(3\mu m)}$ en fonction de la déclinaison pour la géométrie de Schulz ($\omega_g=0$) et la géométrie à forte incidence ($\omega_g=10^\circ$).

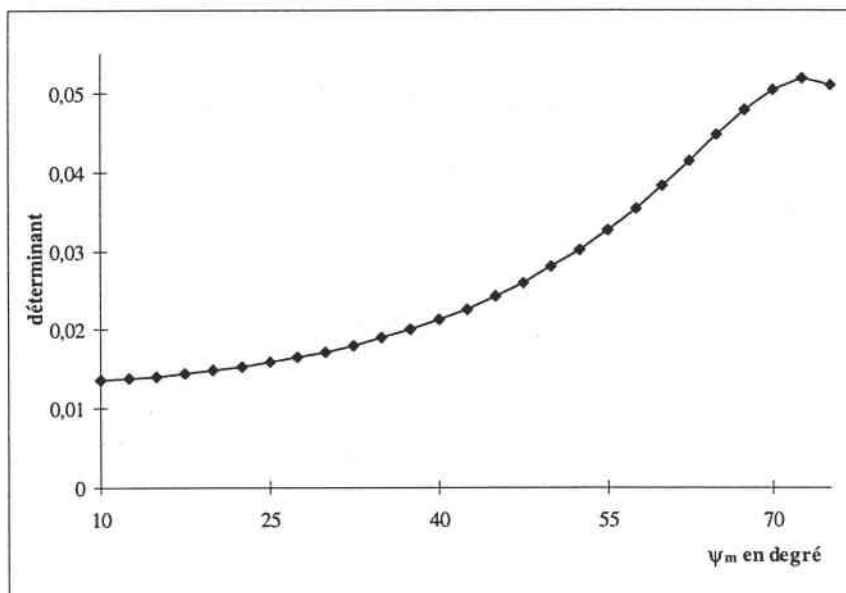


Figure-III-13: variation du déterminant en fonction de la déclinaison.

On remarque que ce rapport est presque le même pour les deux géométries, c'est-à-dire que la proportion de l'information provenant de chacune des sous couches est presque identique. Cette différence étant faible, la valeur du déterminant dans la zone commune entre les deux figures de pôles (figure-III-13) sera voisine de zéro. On remarque qu'il n'est pas nul, mais varie entre 0.01 et 0.05. Ainsi, on peut déterminer les figures de pôles (111) normalisées de chacune des sous couches après résolution des équations [III-15], elle sont représentées par la figure-III-14.

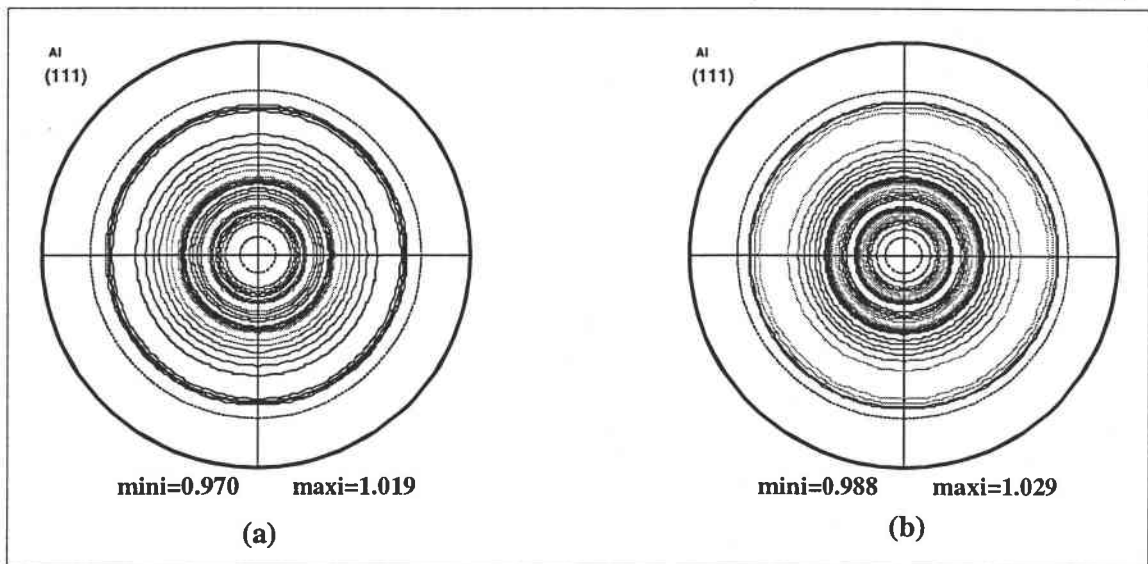


Figure-III-14: figures de pôles (111) normalisées de chacune des sous couches obtenues après séparation

(a): couche de 3μm

(b): couche de 6μm.

On note que $K_{\psi_m \varphi_m}^1$ et $K_{\psi_m \varphi_m}^2$ oscillent autour de l'unité ($0.97 < K_{\psi_m \varphi_m}^1 < 1.019$ et $0.988 < K_{\psi_m \varphi_m}^2 < 1.029$). Cette légère variation est due aux erreurs d'arrondis du programme de correction de localisation pour lequel les valeurs de l'intensité transférée d'une case (ψ_g, φ_g) à une case (ψ_m, φ_m) est à $\pm 1\%$ de sa valeur réelle. Il y a répercussion d'autant plus importante sur la solution que le déterminant est faible.

2.5.2.2. $\omega_g = 20^\circ$:

Nous minimiserons ce phénomène en utilisant une combinaison entre une géométrie de Schulz ($\omega_g = 0$) et une géométrie à forte incidence dont l'angle $\omega_g = 20^\circ$ (figure-III-15).

Dans la zone commune entre les deux figures de pôles, la variation des valeurs de

$\frac{V_d^1(3\mu m)}{V_d^2(6\mu m)F^1(3\mu m)}$ est importante, du simple fait d'accroissement de l'angle ω_g (figure-III-16).

On obtiendra un déterminant variant entre 0.17 et 0.27 (figure-III-17). Ces valeurs du déterminant sont à peu près dix fois plus importantes que dans le cas précédent et conduisent à une solution précise du système [III-15] : $K_{\psi_m \varphi_m}^1 = K_{\psi_m \varphi_m}^2 = 1$. Ces résultats sont représentées par la figure-III-18.

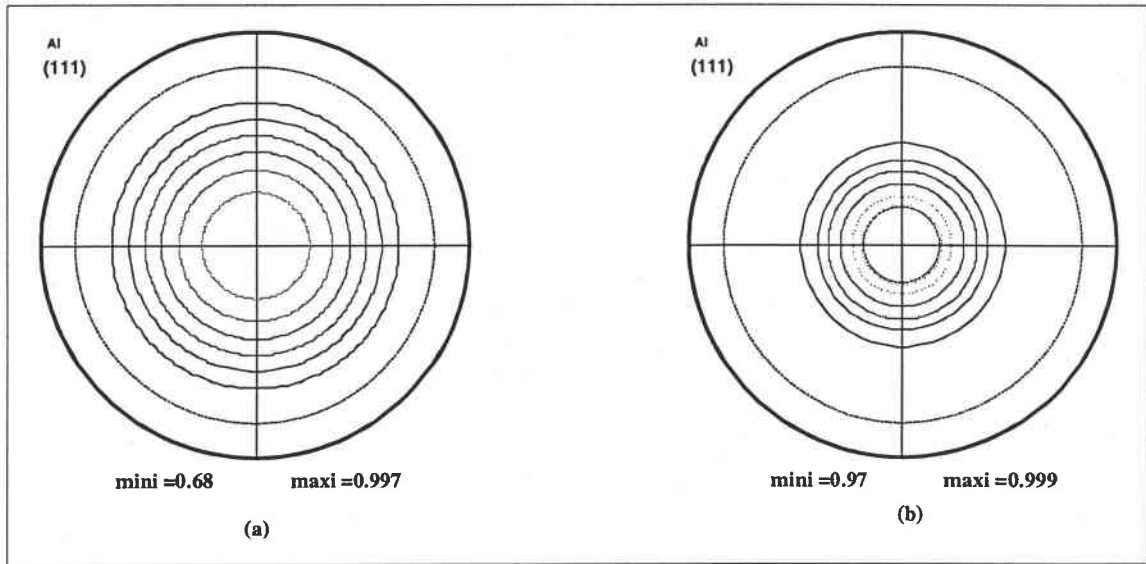


Figure-III-15: figures de pôles (111) d'une couche d'Al isotrope d'épaisseur 9μm

(a): géométrie de Schulz

(b): géométrie à forte incidence $\omega_g=20^\circ$.

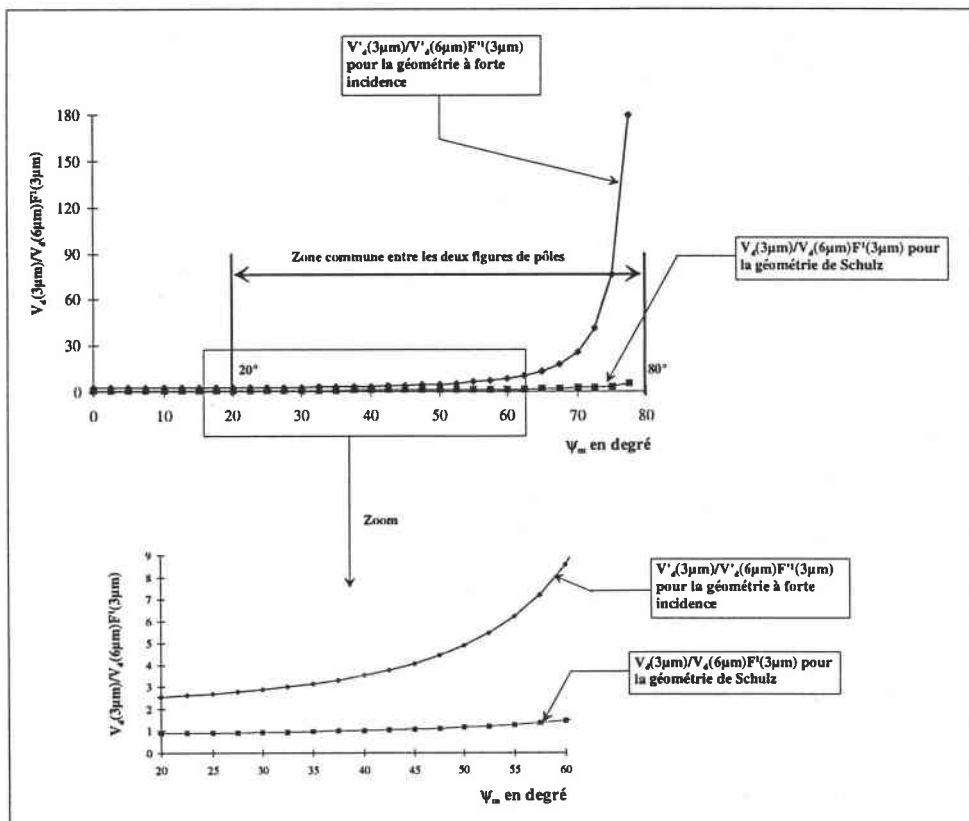


Figure-III-16: variation du rapport $\frac{V_d^1(3\mu m)}{V_d^2(6\mu m)F^1(3\mu m)}$ en fonction de la déclinaison pour la géométrie de Schulz ($\omega_g=0$) et la géométrie à forte incidence ($\omega_g=20^\circ$).

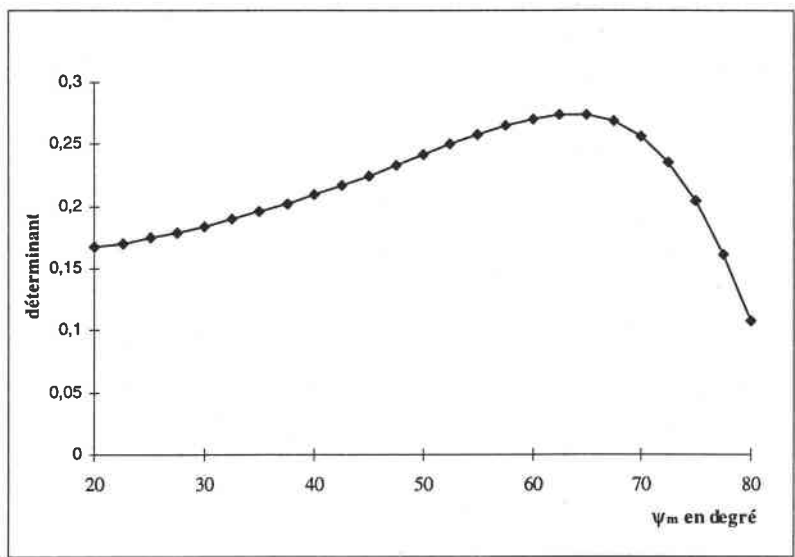


Figure-III-17: variation du déterminant en fonction de la déclinaison.

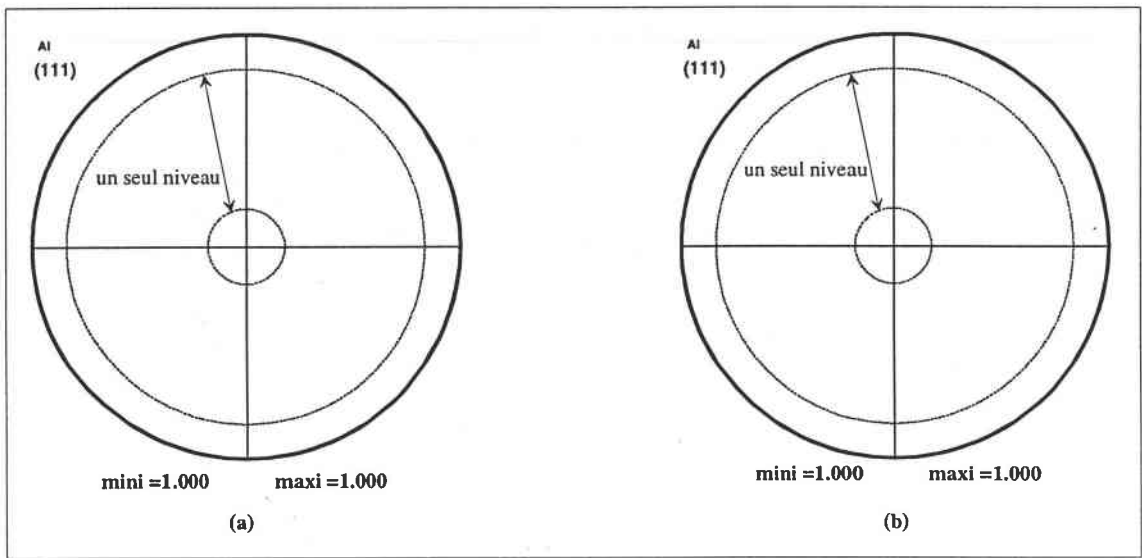


Figure-III-18: figures de pôles (111) normalisées de chacune des sous couches obtenues après séparation;
(a): couche de 3μm
(b): couche de 6μm.

On remarque d'après ces deux exemples que le choix des géométries de mesure s'avère très important pour avoir des solutions précises.

Ce choix doit être effectué en fonction de la valeur du déterminant qui doit être grand, ce qui revient à dire:

$$V_d^1 V_d'^2 F'^1 \gg V_d'^1 V_d^2 F^1$$

ou encore

$$\frac{V_d^1}{V_d^2 F^1} \gg \frac{V_d'^1}{V_d'^2 F'^1} \Leftrightarrow \frac{I_1}{I_2} \gg \frac{I'_1}{I'_2}$$

Cette relation nous montre que l'intensité diffractée provenant de la première couche par rapport à celle provenant de la deuxième couche pour la première géométrie doit être très différent du rapport de ces deux intensités pour la deuxième géométrie.

3.CONCLUSION:

Nous venons de développer une méthode, qui combine des géométries de diffraction différentes, pour séparer des zones de textures différentes dans une couche mince, dont la texture varie en fonction de l'épaisseur.

Cette méthode utilise la même raie de diffraction hkl , ce qui élimine le problème de la réflectivité, de différents plans (hkl) ou des ordres supérieurs de diffraction.

Cette méthode conduit à une solution unique, dont les coefficients de texture des sous couches sont toujours positifs. Néanmoins, le choix des géométries de mesure risque d'influencer la précision des résultats.

Nous verrons cette précision dans le chapitre suivant sur des cas réels, où la cause principale d'erreur provient essentiellement du manque de définition précise du matériau et des erreurs commise sur les intensités.

Références Bibliographies:

- [1]: T. Montesin, J.J. Heizmann ; Textures and Microstructures ; volume (14-18) ; 573-578 ; 1991.
- [2]: O. Engler, J. Hirsch, K. Karhausen and Gottstein ; Proceedings of ICOTOM 10, 673.
- [3]: B. J. Duggan, C. S. Lee and R. E. Smallman ; Proceedings of ICOTOM 10, 659.
- [4]: D. Raabe ; Acta Metallurgica et materialia ; volume (43), n°3 ; 1023 ; 1995.
- [5]: M. Diot ; Thèse à l'Université de METZ, 17 mai 1996.
- [6]: L. G. Schulz ; J. Appl. Phys. ; Volume (20) ; 1030-1036 ; 1949.
- [7]: C. Valot ; Thèse à l'université de BOURGOGNE ; 06 juillet 1995.
- [8]: C. S. Choi, H. J. Prask, S. F. Trevino ; J. Appl. Cryst. ; volume (12) ; 327 ; 1979.
- [9]: A. Morawiec ; Archives of Metallurgy ; volume (35) ; 395-400 ; 1990.
- [10]: A. Morawiec ; J. Phys.: Condens. Matter ; volume (4) ; 339-349 ; 1992.
- [11]: J. Bonarski, A. Morawiec ; J. Appl. Cryst. ; volume (25) ; 624-627 ; 1992.
- [12]: D. Ruer, R. Baro ; J. Appl. Cryst. ; volume (10) ; 458-464 ; 1977.
- [13]: S. Matthies ; Textures Micostruct. ; volume (14-18) ; 1-12 ; 1991.
- [14]: J. Imhof ; Phys. Status Solidi ; volume (b119) ; 693 ; 1983.
- [15]: K. Pawlik ; Phys. Status Solidi ; volume (b134) ; 477 ; 1986.

Chapitre IV:

Applications expérimentales

Pour valider cette méthode, nous allons l'appliquer à deux échantillons différents :

- le premier est formé par une superposition de deux feuilles d'aluminium d'épaisseurs et de textures connues. Il présente donc un gradient de texture artificiel.
- le deuxième est un échantillon de Zirconium qui a subi une oxydation. La texture de la couche d'oxyde varie en fonction de la profondeur de pénétration des rayons X. C'est un échantillon qui a été préparé par Valot [1] et déjà présenté dans le chapitre III.

1. GRADIENT DE TEXTURE ARTIFICIEL :

Considérons la couche formée par deux feuilles d'aluminium superposées et orientées l'une par rapport à l'autre avec un angle déterminé β (figure-IV-1). Ainsi, on obtient une variation artificielle de texture dans l'épaisseur.

La première sous couche a une épaisseur $t_1=3\mu\text{m}$.

La deuxième sous couche a une épaisseur $t_2=6\mu\text{m}$.

Ces deux feuilles d'aluminium pur proviennent de la société GoodFellow. Elles sont issues de laminage, leurs épaisseurs sont définies à 20% près pour la feuille de $3\mu\text{m}$ et 10% près pour la feuille de $6\mu\text{m}$.

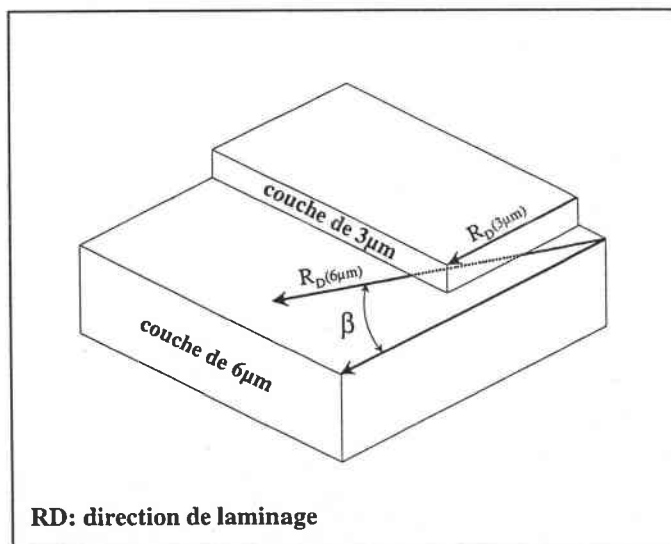


Figure-IV-1 : échantillon formé de deux couches d'Al de direction de laminage différentes

Supposons que les deux sous couches aient des textures inconnues. Pour déterminer les figures de pôles relatives à chacune d'elles, deux figures de pôles de l'ensemble de la couche doivent être effectuées dans des conditions de mesures différentes. Pour cela, on a choisi la combinaison qui comprend la géométrie de Schulz [2] ($\omega_g=0^\circ$) et la géométrie à forte incidence ($\omega_g \neq 0^\circ$).

Pour ces deux géométries, les mesures sont effectuées dans les mêmes conditions expérimentales, c'est à dire même source de rayons X, même taille du faisceau et même réglage de l'échantillon.

Avec ces mesures, les figures de pôles relatives à chacune des sous couches sont déterminées par notre méthode de séparation, on les comparera qualitativement et quantitativement aux figures de pôles mesurées de chacune des sous couches prises séparément.

1.1.FIGURES DE POLES MESUREES DE LA BICOUCHE:

Les mesures sont réalisées avec un goniomètre de texture à quatre cercles, équipé d'un détecteur courbe (INEL CPS 120°). La source est une anode tournante: (Fer RIGAKU). Le coefficient d'absorption μ_{Al} est égale à 263.358 cm^{-1} . Les directions de laminage font un angle $\beta=90^\circ$

Les plans choisis pour la diffraction sont (111) dont l'angle de Bragg est : $\theta_{111}=24.48^\circ$. Les deux mesures sont effectuées avec $\omega_g=0^\circ$ (figure-IV-2(a)) et avec $\omega_g=20^\circ$ (figure-IV-2(b)).

Deux autres mesures ont également été effectuées en choisissant les plans (200) ($\theta_{200}=28.58^\circ$) avec $\omega_g=0^\circ$ (figure-IV-3(a)) et avec $\omega_g=25^\circ$ (figure-IV-3(b)).

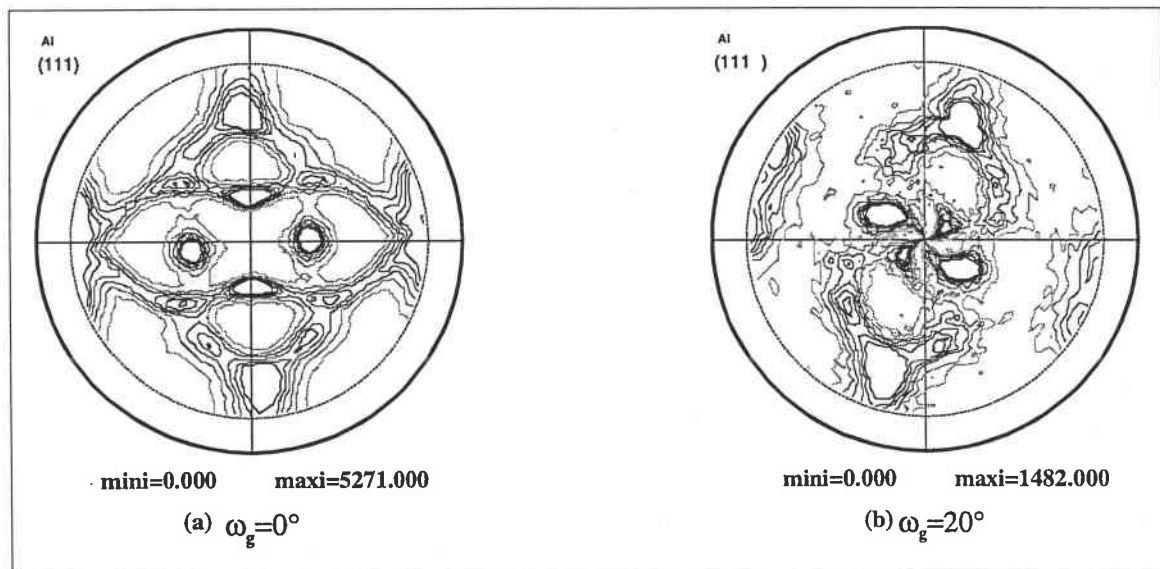


Figure-IV-2: (a) figure de pôles (111) mesurée avec la géométrie de Schulz ($\omega_g=0^\circ$) et corrigée du bruit de fond.
(b) figure de pôles (111) mesurée avec la géométrie à forte incidence ($\omega_g=20^\circ$).

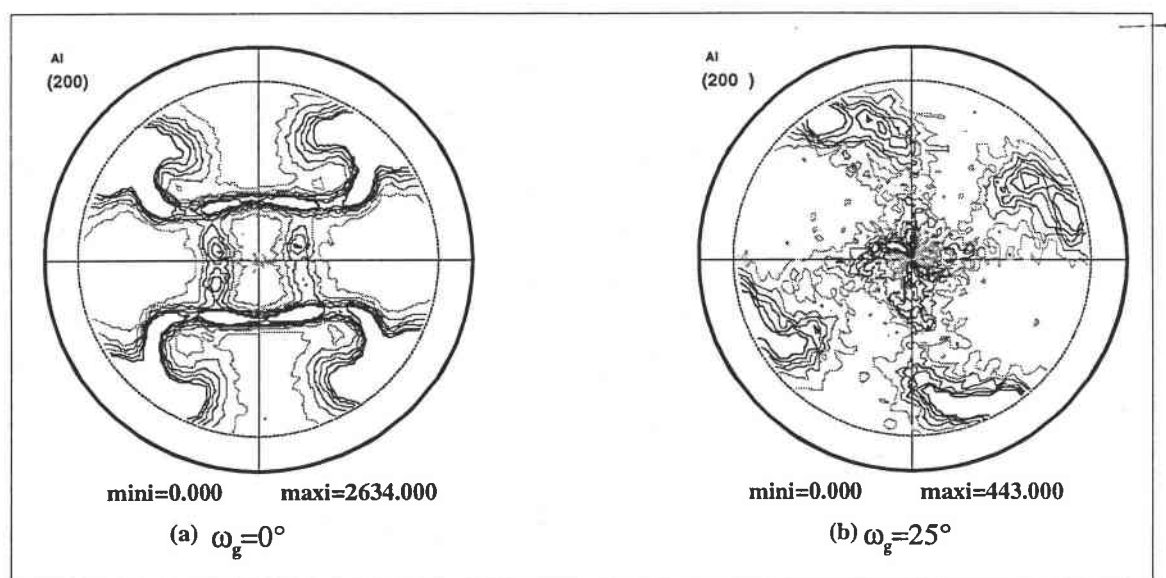


Figure-IV-3: (a) figure de pôles (200) mesurée avec la géométrie de Schulz ($\omega_g=0^\circ$) et corrigée du bruit de fond.
(b) figure de pôles (200) brutes mesurée avec la géométrie à forte incidence ($\omega_g=25^\circ$).

Les figures de pôles en géométrie de Schulz ($\omega_g=0$) ne nécessitent pas une correction de localisation car les intensités mesurées se trouvent dans leurs vraies cases (ψ_m, ϕ_m).

Par contre celles qui ont été mesurées avec $\omega_g \neq 0$ doivent être transformées en figures de pôles virtuelles par une opération de localisation. Rappelons que ces figures de pôles virtuelles représentent des figures de pôles qui auraient été mesurées avec la géométrie de Schulz ($\omega_g=0$) dont les intensités sont celles qui ont été mesurées par la géométrie à forte incidence.

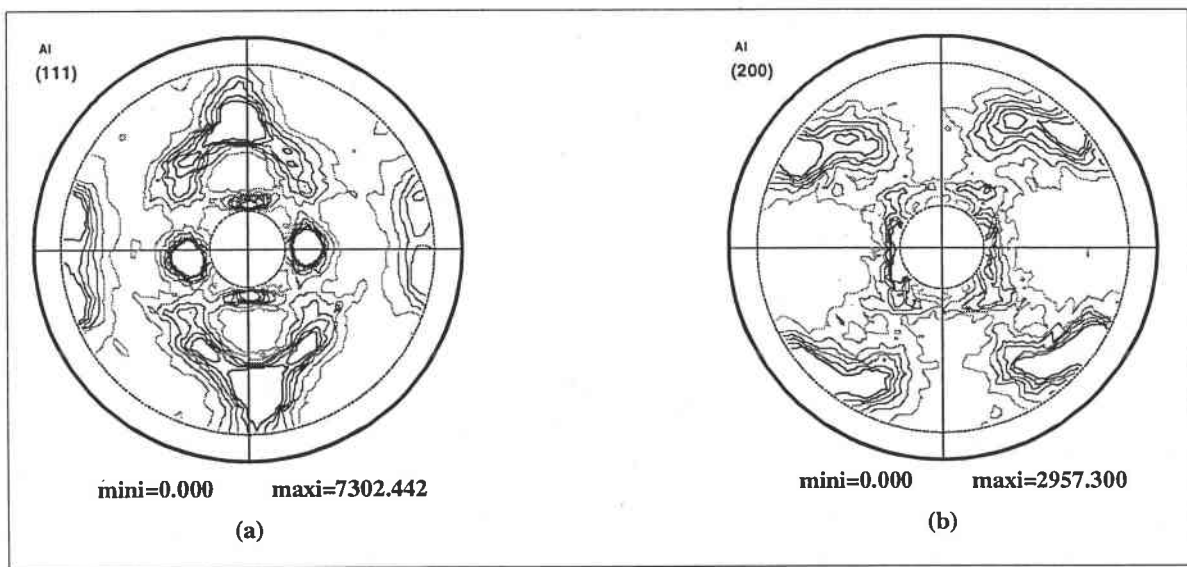


Figure-IV-4: figures de pôles virtuelles (111) et (200) obtenues après correction de localisation.

Notons que les valeurs des intensités entre la figure de pôles brute et la figure de pôles virtuelle auraient dû être égales puisqu'il n'y a eu qu'un transfert d'information.

Elles diffèrent sur les figures de pôles présentées du facteur $1 - \frac{\tan \omega_g}{\tan \theta}$ qui, dans la géométrie de forte incidence, est constant. Pour des commodités de calcul, ce facteur commun à toute la mesure est mis en facteur dans les équation du système (relations [II-18] et [III-1 bis]). Il en résulte de ce fait que l'intensité de la figure de pôles virtuelle est
$$\frac{I_{\psi_m \varphi_m}}{(1 - \frac{\tan \omega_g}{\tan \theta})}$$

1.2.DETERMINATION DES FIGURES DE POLES RELATIVES A CHACUNE DES SOUS COUCHES:

1.2.1.Figures de pôles (111):

Dans la zone commune entre les deux figures de pôles, on remarque que:

- Pour la figure de pôles mesurée avec la géométrie de Schulz ($\omega_g=0$) (figure-IV-5(a)), l'intensité diffractée provenant de la couche inférieure (6 μ m) est presque la même que celle provenant de la première couche (3 μ m)
- Par contre, pour celle qui a été mesurée avec la géométrie à forte incidence $\omega_g=20^\circ$ (figure-IV-5(b)), l'intensité globale provient en majorité que de la première couche (3 μ m)

Il y a une grande différence du rapport d'intensité des deux sous couches pour chacune des géométries, qui se traduit donc par un déterminant grand et positif comme on l'a vu dans le chapitre précédent (Chapitre-III). On déduit alors, les figures de pôles (111) normalisées relatives à chacune des sous couches (figure-IV-6).

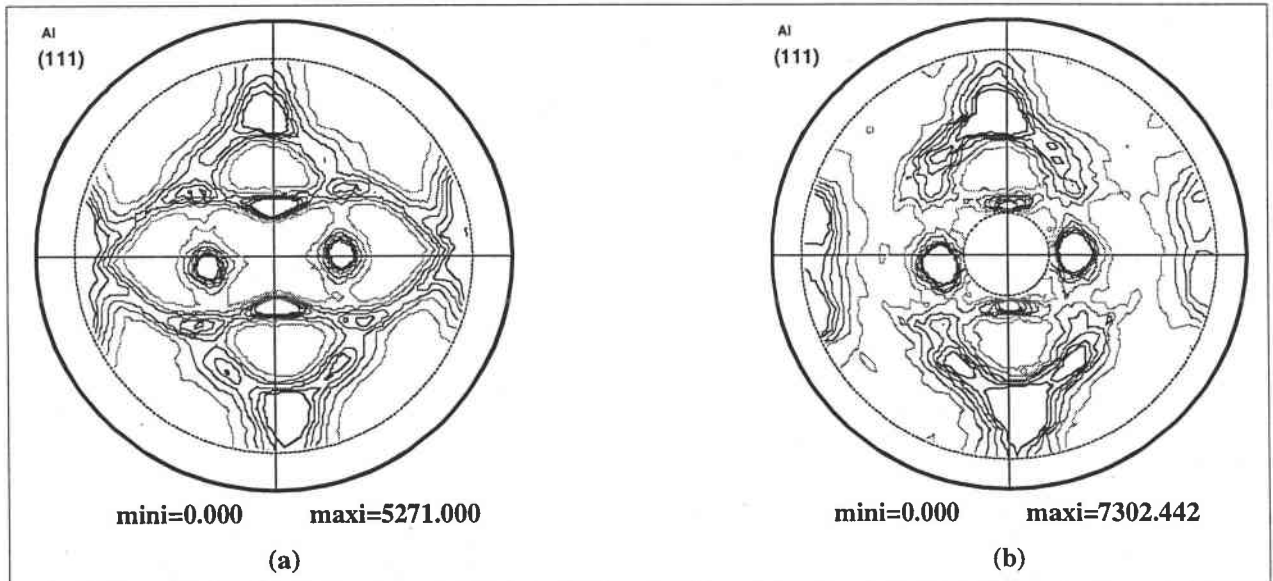


Figure-IV-5: (a) figure de pôles (111) mesurée avec la géométrie de Schulz, (b): figure de pôles virtuelle (111).

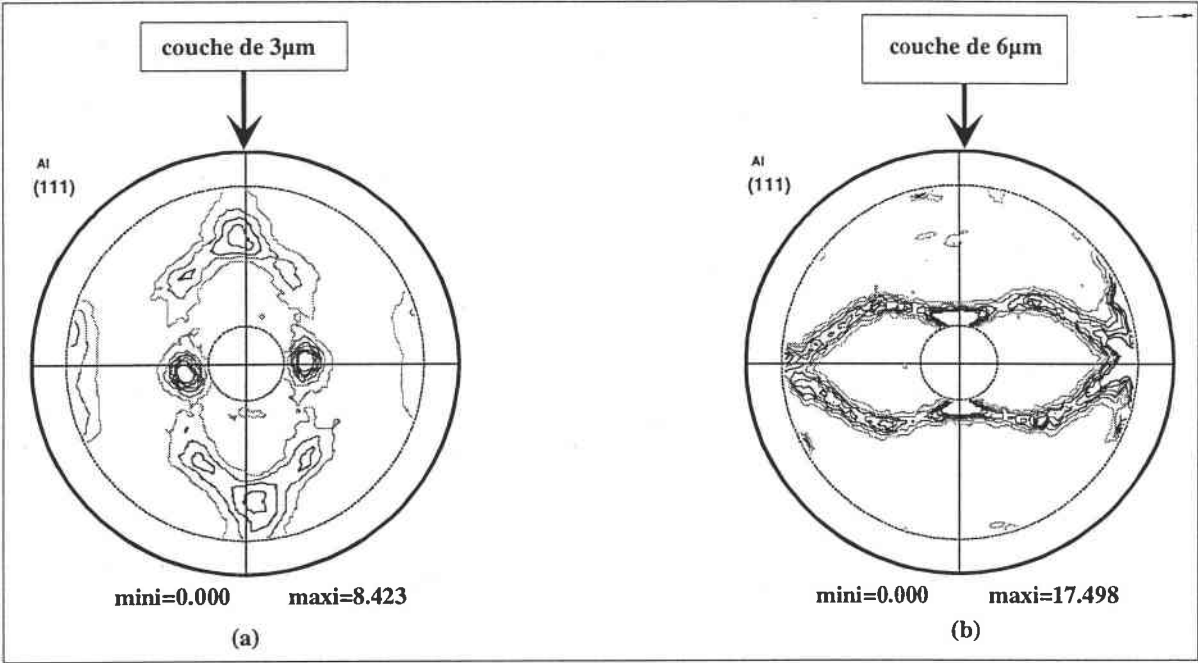


Figure-IV-6: figures de pôles (111) normalisées relatives à chacune des sous couches obtenues après séparation

1.2.2.Figures de pôles (200):

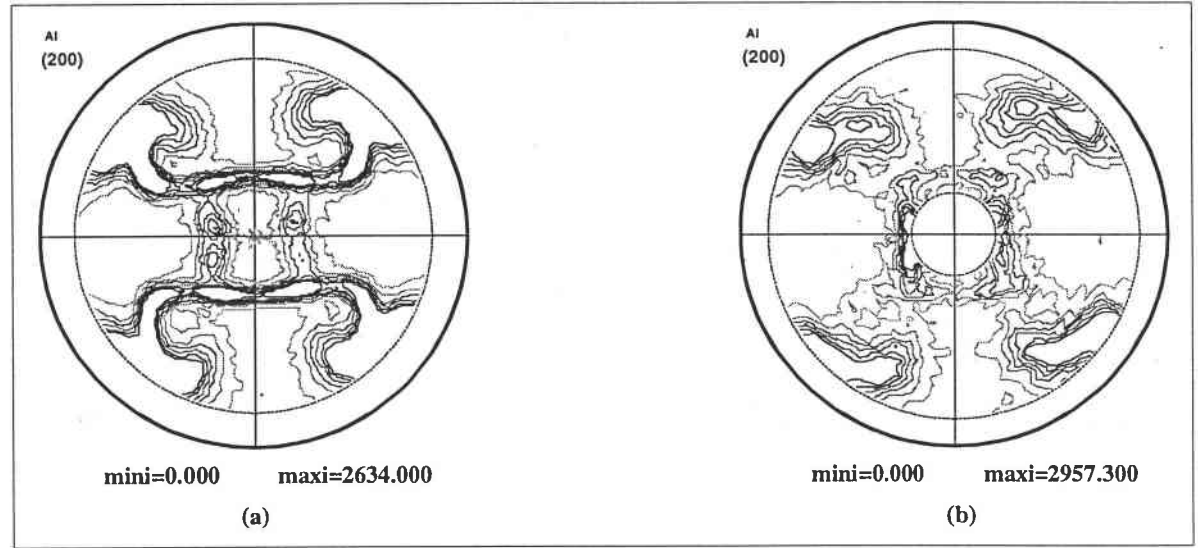


Figure-IV-7: (a) figure de pôles (200) mesurée avec la géométrie de Schulz, (b) figure de pôles virtuelle (200).

On remarque la même chose que précédemment: les intensités mesurées provenant de chacune des sous couches, pour les deux géométries de mesures, sont différentes. Cette différence se traduit par un déterminant non nul et positif dans la zone commune entre les deux figures de pôles.

Ainsi, on en déduit les figures de pôles (200) normalisées relatives à chacune des sous couches (figures-IV-8).

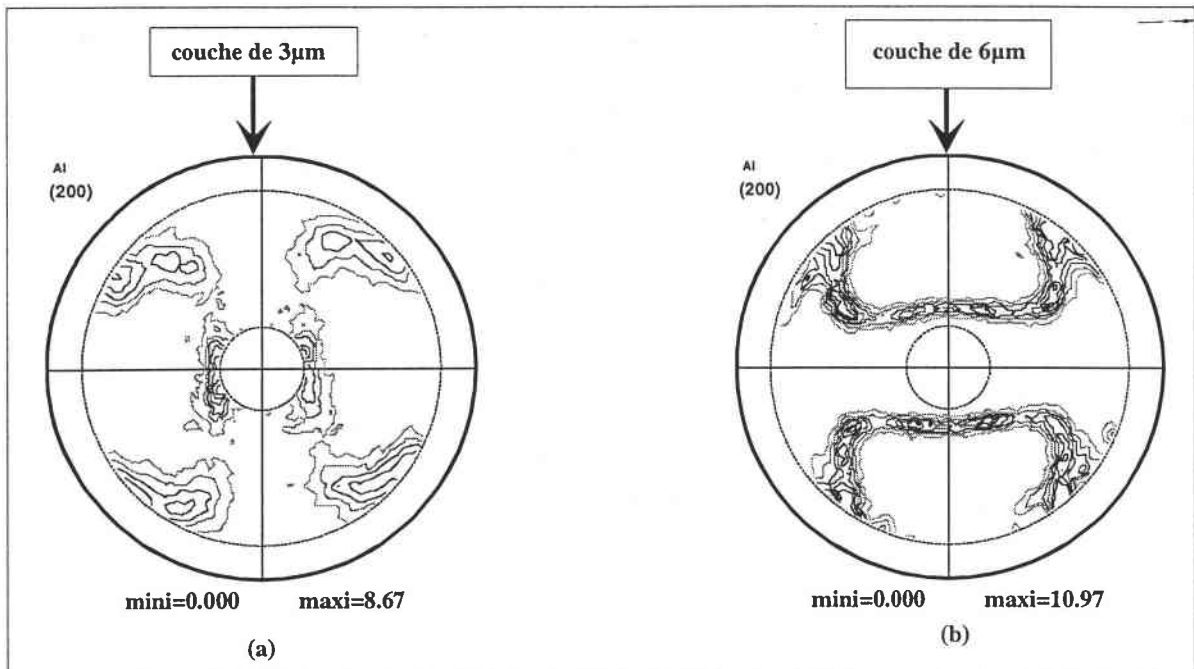


Figure-IV-8: figures de pôles (200) normalisées relatives à chacune des sous couches obtenues après séparation.

1.2.3.Comparaison qualitative:

Pour cela, on a mesuré les figures de pôles (111) et (200) de chacune des sous couches prises isolement par la géométrie des multi-figures de pôles [3]. Ces figures de pôles sont corrigées du bruit de fond, des variations du volume diffractant et normalisées. Elles sont représentées par les figures-IV-9(A) pour la couche de 3μm et par les figures-IV-10(A) pour la couche de 6μm.

On remarque que les figures de pôles normalisées relatives à chacune des sous couches (figure-IV-9(B) et 10(B)), obtenues après séparation, sont similaires aux figures de pôles mesurées (figure-IV-9(A) et 10(A)).

La différence des valeurs des maxima, qui existe entre les figures de pôles mesurées et séparées dont les zones de mesures ne sont pas les mêmes, doit provenir de la normalisation dite partielle.

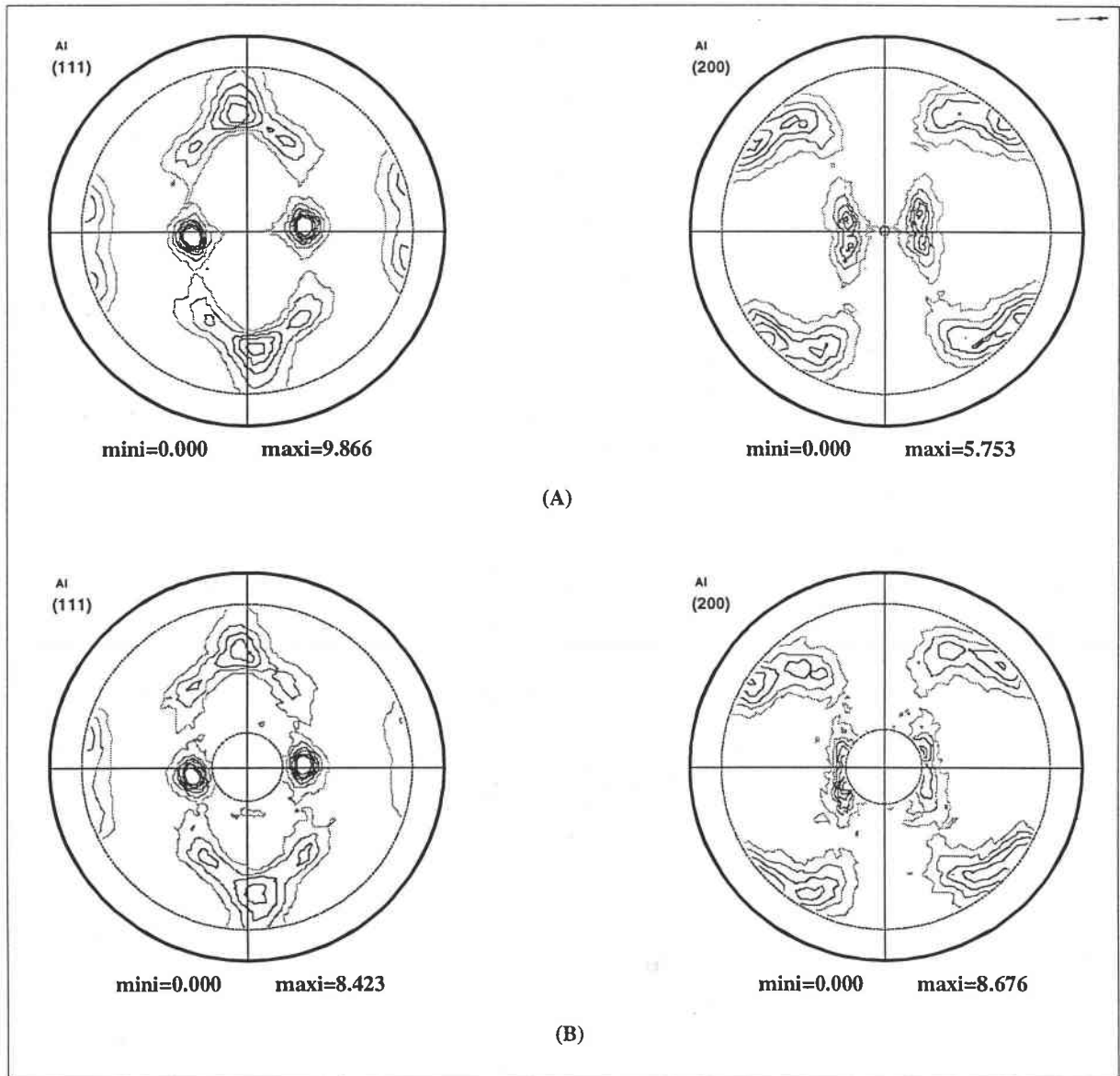


Figure-IV-9: (A) figures de pôles (111) et (200) expérimentales corrigées de la couche de $3\mu\text{m}$

(B) figures de pôles (111) et (200) relatives à la couche de $3\mu\text{m}$, obtenues après séparation.

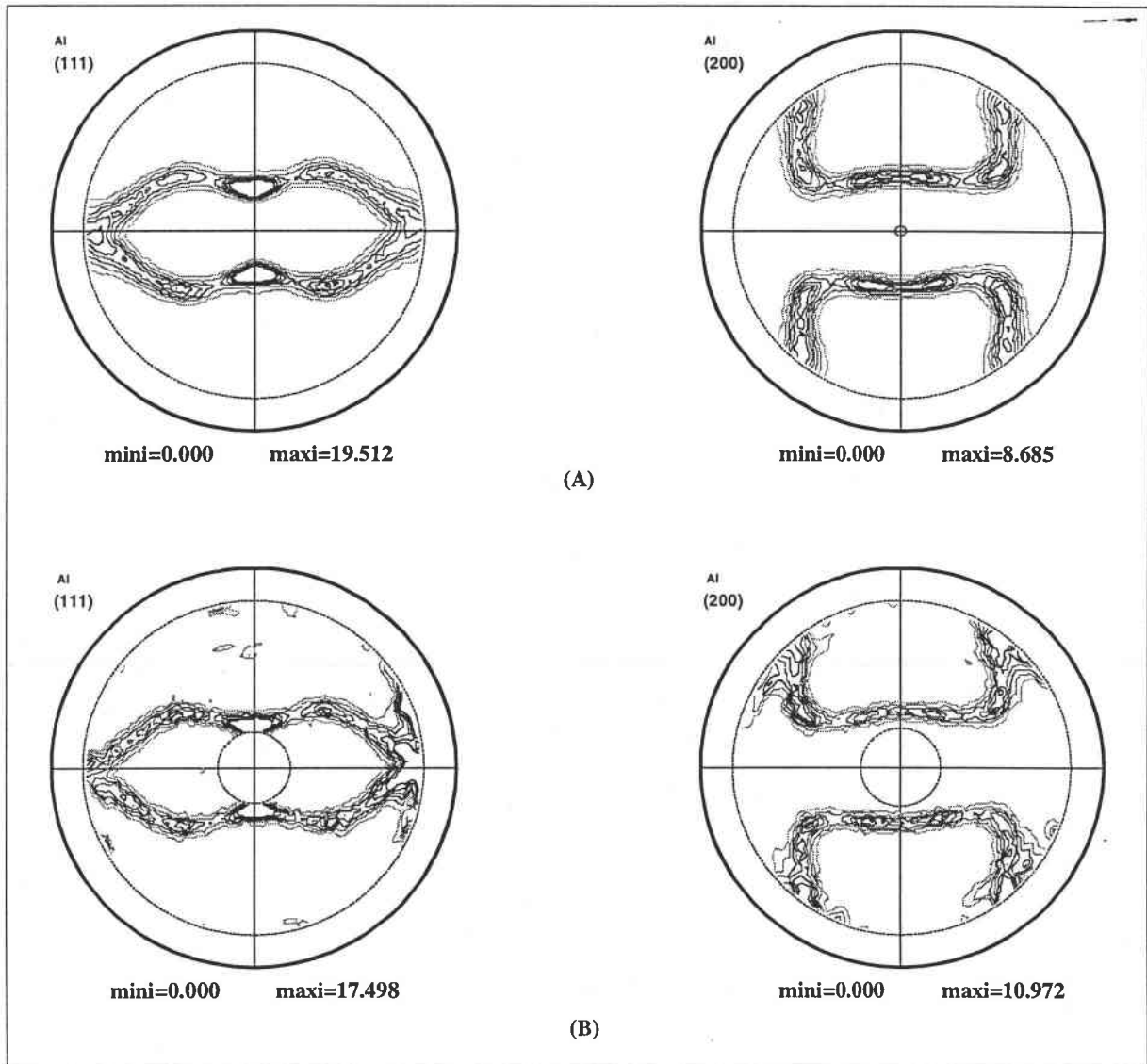


Figure-IV-10: (A) figures de pôles (111) et (200) expérimentales corrigées de la couche de $6\mu\text{m}$
 (B) figures de pôles (111) et (200) relatives à la couche de $6\mu\text{m}$, obtenues après séparation.

1.2.4. Comparaison quantitative:

Pour cela, nous effectuons une analyse quantitative de la texture de chacune des sous couches, par la méthode vectorielle (Ruer [4] et Vadon [5]) décrite dans le chapitre I.

- à partir des deux figures de pôles incomplètes (111) et (200) obtenues après séparation, ceci pour chacune des sous couches.
- à partir des deux figures de pôles incomplètes (111) et (200) mesurées sur chacune des feuilles prises isolément.

Ces analyses par la méthode vectorielle nous permettent, à partir des figures de pôles incomplètes (111) et (200), d'avoir la fonction de distribution des orientations (FDO). Elles sont

représentées par des spectres appelés vecteur de texture (fraction volumique en fonction des numéros de cases, en tenant compte de la symétrie macroscopique).

Les FDO étant calculées, il est donc possible de recalculer les figures de pôles complètes de chacune des sous couches et de comparer celles obtenues après séparation à celles obtenues par mesure directe des sous couches.

Nous présentons les résultats de la façon suivante: en premier la couche de 3 μ m, puis la couche de 6 μ m.

1.2.4.1. Analyse vectorielle des figures de pôles de la couche de 3 microns:

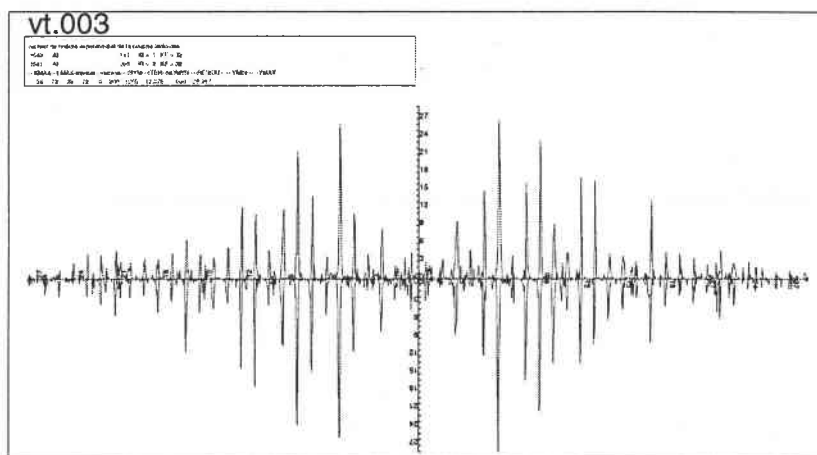


Figure-IV-11: spectre du vecteur de texture obtenu après analyse vectorielle des figures de pôles (111) et (200) de la feuille de 3 μ m mesurée seule.

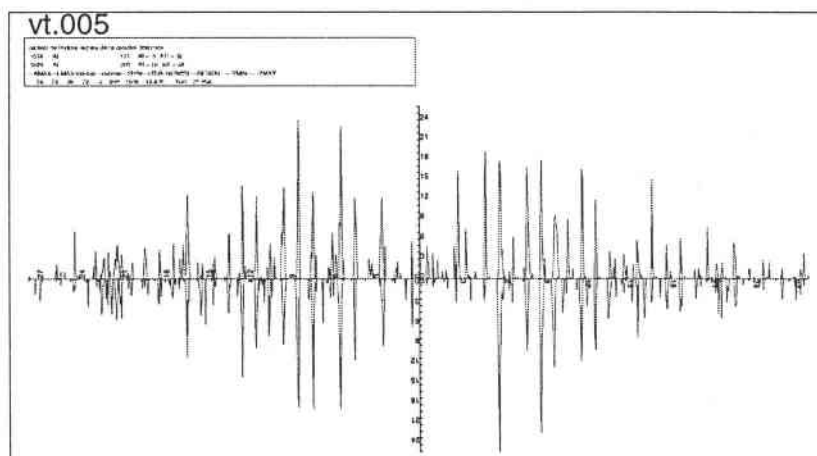


Figure-IV-12: spectre du vecteur de texture obtenu après analyse vectorielle des figures de pôles (111) et (200) obtenues après séparation de la feuille de 3 μ m.

On remarque qu'il y a un accord très satisfaisant entre ces deux vecteurs de texture. Les maxima (25 au lieu de 28) sont bien reproduits et leurs localisation est excellente.

Les figures de pôles complètes recalculées à partir des FDO précédentes sont représentées par la figure-IV-13. Elles sont analogues, les intensités sont bien reproduites, il y a cependant de légères différences dans la valeur des maxima qui sont inhérentes aux calculs des FDO.

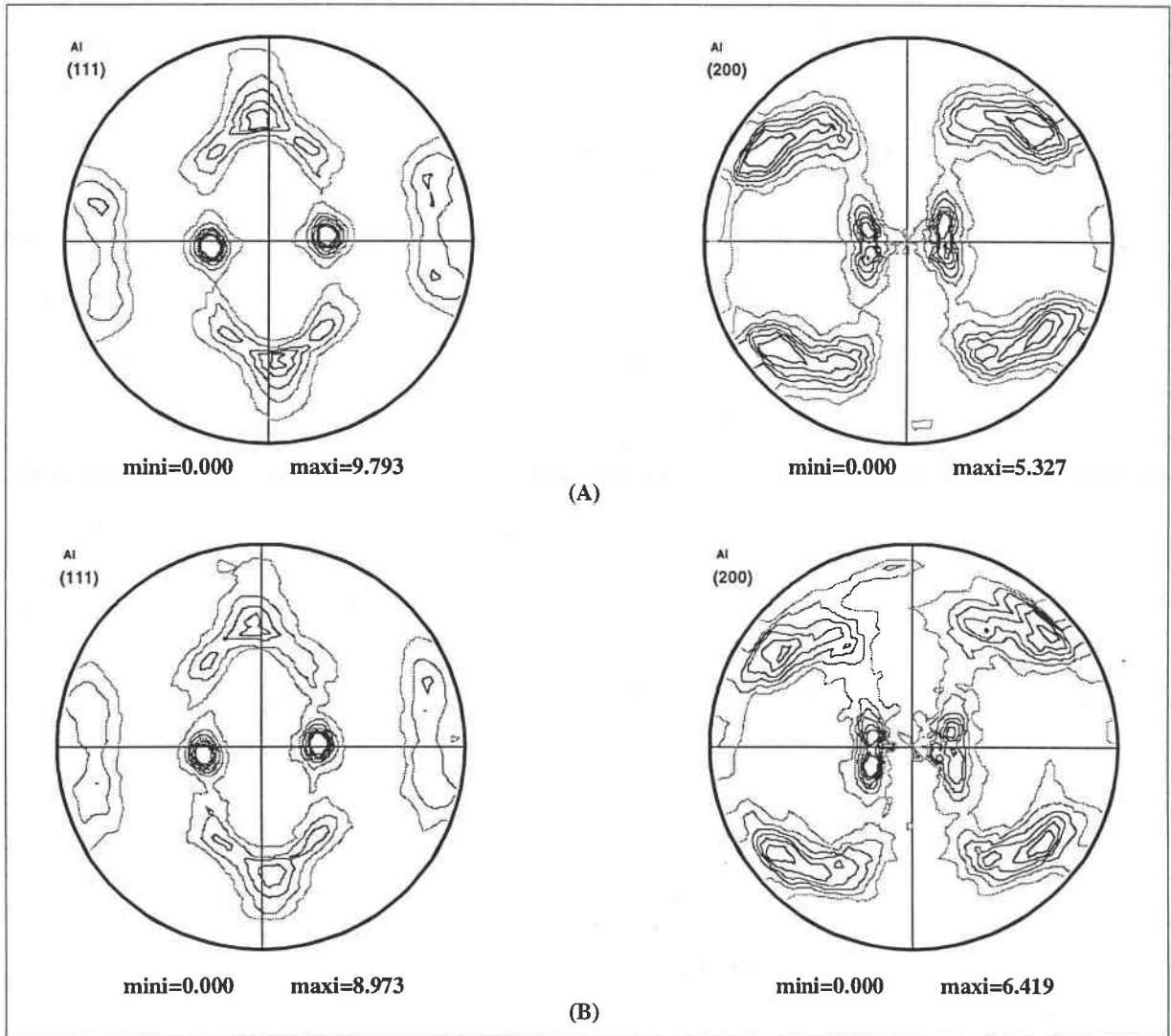


Figure-IV-13: figures de pôles complètes de la feuille de 3μm.

(A): figures de pôles (111) et (200) recalculées à partir de la FDO calculée après analyse vectorielle des figures de pôles mesurées de la feuille de 3μm.

(B): figures de pôles (111) et (200) recalculées à partir de la FDO calculée après analyse vectorielle des figures de pôles séparées de la feuille de 3μm.

Pour les écarts des mesures, nous avons calculé la différence entre les figures de pôles obtenues après séparation et celles mesurées de la couche prise isolément, que l'on appelle figure de pôles différences $\text{Diff} = |\text{FDP}_{\text{exp}} - \text{FDP}_{\text{sép}}|$ (figure-IV-14). Cette différence est de 17% entre les figures de pôles (111) et de 24% entre celles (200). Ces erreurs sont surtout localisées aux maxima d'intensité des figures de pôles.

Il faut noter qu'à l'erreur due à la méthode de séparation s'ajoute l'erreur engendrée par le calcul de la FDO qui était la méthode vectorielle dans notre cas.

Nous étudierons exclusivement l'erreur due à la méthode de séparation. Cette erreur pourrait provenir des mesures expérimentales des intensités et de la précision de l'épaisseur.

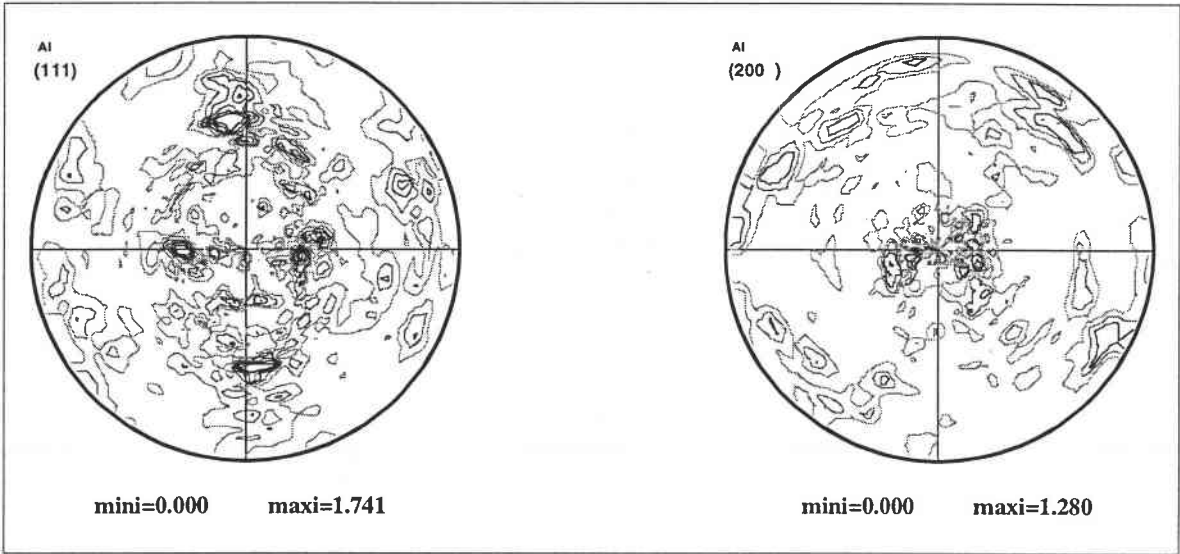


Figure-IV-14: figure de pôles différences (111) et (200) de la feuille de 3µm: $\text{Diff} = |\text{FDP}_{\text{exp}} - \text{FDP}_{\text{sép}}|$.

1.2.4.2.Analyse vectorielle des figures de pôles de la couche de 6µm:

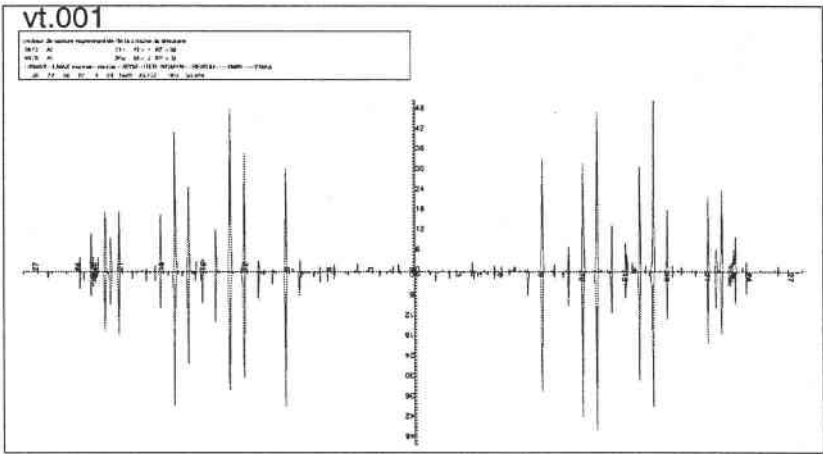


Figure-IV-15: spectre du vecteur de texture obtenu après analyse vectorielle des figures de pôles (111) et (200) de la feuille de 6µm mesurée seule.

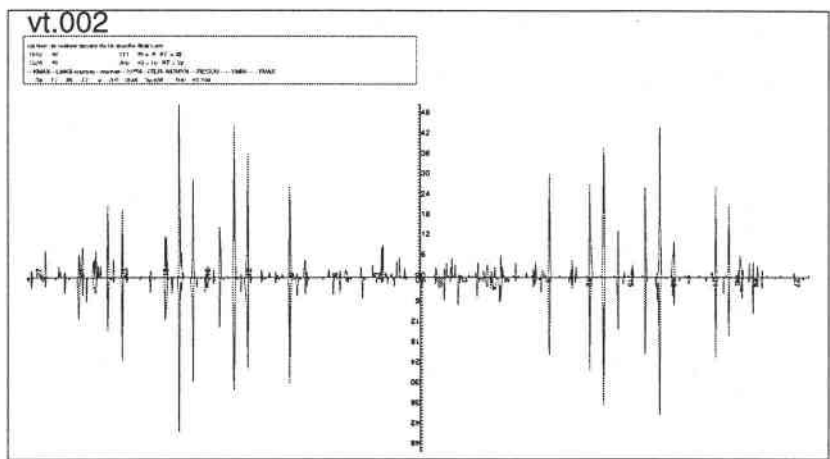


Figure-IV-16: spectre du vecteur de texture obtenu après analyse vectorielle des figures de pôles (111) et (200) obtenues après séparation de la feuille de 6 μ m.

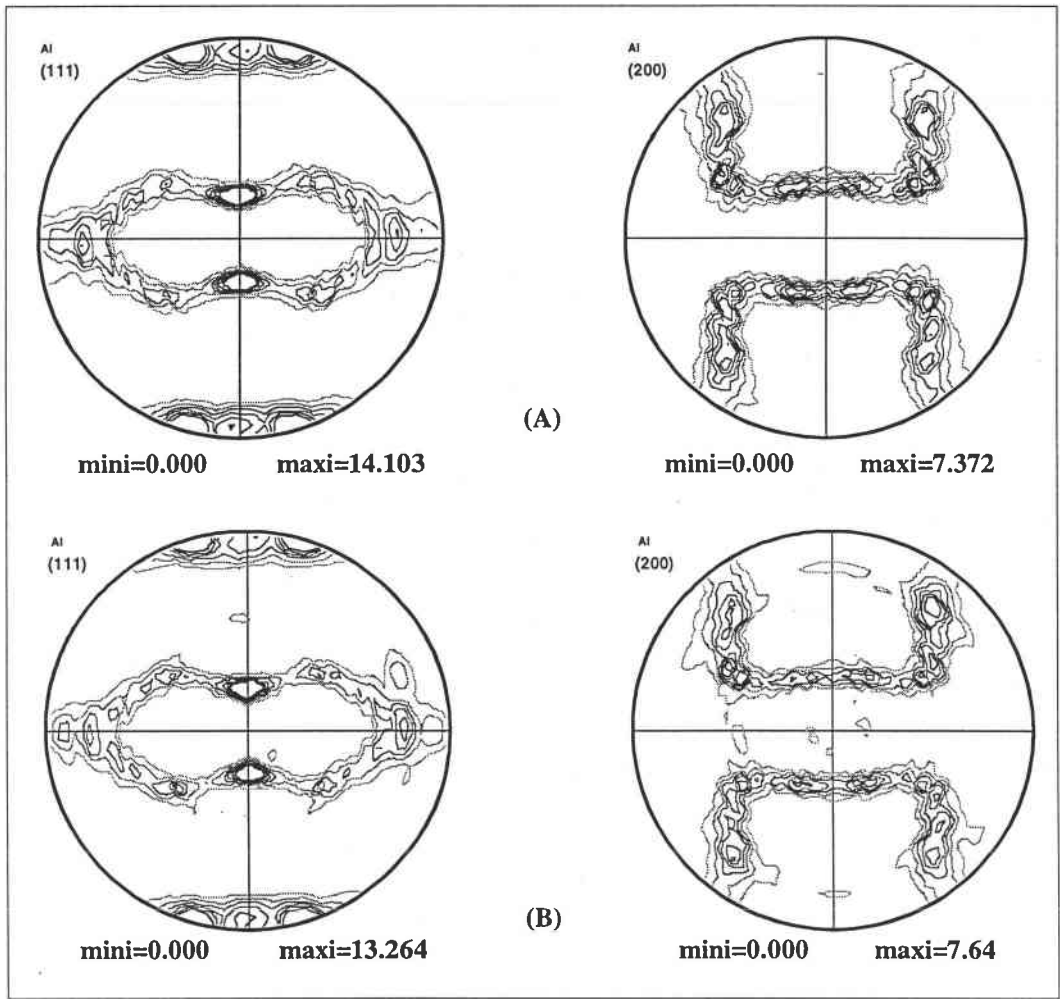


Figure-IV-17: figures de pôles complètes de la feuille de 6 μ m.

(A): figures de pôles (111) et (200) recalculées à partir de la FDO calculée après analyse vectorielle des figures de pôles mesurées de la feuille de 6 μ m.

(B): figures de pôles (111) et (200) recalculées à partir de la FDO calculée après analyse vectorielle des figures de pôles séparées de la feuille de 6 μ m.

On constate que la couche sous-jacente est bien reproduite (localisation et valeur des maxima), ceci peut s'expliquer par le fait que la texture de la deuxième sous couche est très marquée.

De la même façon que précédemment, nous allons calculer la figure de pôles différence afin d'avoir une notion sur l'erreur commise par la méthode de séparation et sur le calcul de la FDO. Ces figures de pôles différences: $\text{Diff} = |\text{FDP}_{\text{exp}} - \text{FDP}_{\text{sép}}|$ sont représentées par la figure-IV-18. On obtient une différence de 18% entre les figures de pôles (111) et de 26% entre celles (200) (séparées et mesurées de la feuille).

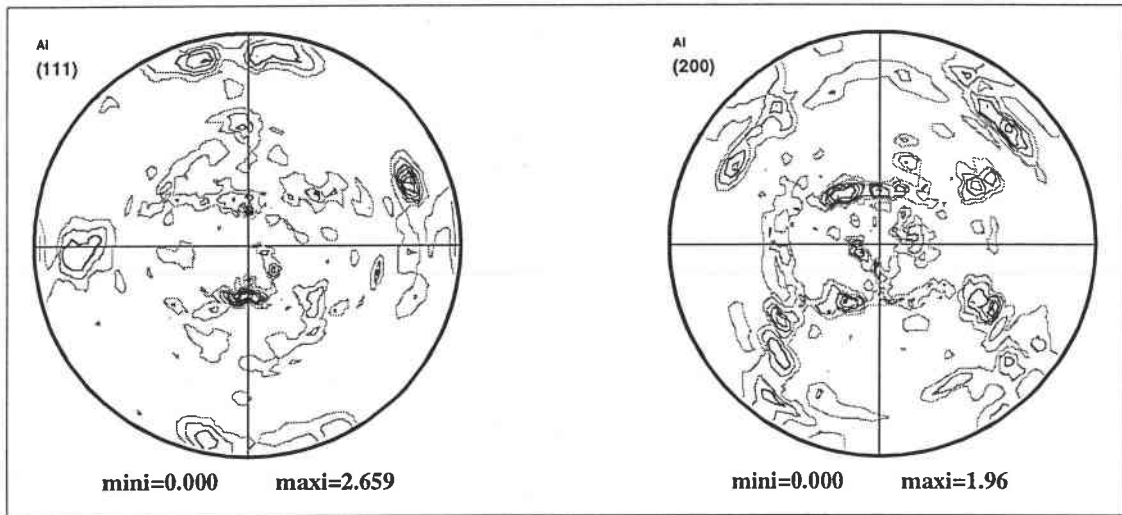


Figure-IV-18: figure de pôles différences (111) et (200) de la feuille de 6 μm : $\text{Diff} = |\text{FDP}_{\text{exp}} - \text{FDP}_{\text{sép}}|$.

1.3.CALCUL D'ERREUR COMMISE SUR LES FIGURES DE POLES DE CHACUNE DES SOUS COUCHES LORS DE LA SEPARATION:

Rappelons les solutions du système [III-2] (chapitre III):

$$K_{\psi_m \varphi_m}^1 = \frac{I_{\psi_m \varphi_m} V_d'^2 F^1 - I'_{\psi_m \varphi_m} V_d^2 F^1}{V_d^1 V_d'^2 F^1 - V_d'^1 V_d^2 F^1} \quad \text{et} \quad K_{\psi_m \varphi_m}^2 = \frac{I'_{\psi_m \varphi_m} V_d^1 - I_{\psi_m \varphi_m} V_d'^1}{V_d^1 V_d'^2 F^1 - V_d'^1 V_d^2 F^2}$$

$K_{\psi_m \varphi_m}^1$ et $K_{\psi_m \varphi_m}^2$ sont respectivement les facteurs de texture de la feuille de 3 μm et de la feuille de 6 μm .

Nous remarquons d'après ces résultats que:

- les erreurs dues aux mesures des intensités influent de façon non négligeable sur les valeurs de $K_{\psi_m \varphi_m}^1$ et $K_{\psi_m \varphi_m}^2$.
- les erreurs sur les valeurs des épaisseurs de chacune des feuilles, vont influencer également sur les valeurs des volumes diffractants et des filtres et faussent de même les valeurs de $K_{\psi_m \varphi_m}^1$ et $K_{\psi_m \varphi_m}^2$.

Etudions l'évolution de cette erreur en fonction du choix des géométries de mesure, c'est-à-dire en fonction de l'angle ω_g .

Nous savons que si H est fonction réelle de n variables $(x_1, x_2, \dots, x_n)$ et $\Delta x_1, \Delta x_2, \dots$ et Δx_n les erreurs absolues sur les valeurs de $x_1, x_2, \dots$ et x_n , l'erreur absolue sur la valeur de $H(x_1, x_2, \dots, x_n)$ est donnée par la relation suivante:

$$\Delta H(x_1, x_2, \dots, x_n) = \sum_{j=1}^n \left| \frac{\partial H(x_1, x_2, \dots, x_n)}{\partial x_j} \right| \Delta x_j$$

Nous utiliserons cette relation pour calculer $\Delta K_{\psi_m \varphi_m}^1$ et $\Delta K_{\psi_m \varphi_m}^2$ en fonction de $\Delta I_{\psi_m \varphi_m}$, $\Delta I'_{\psi_m \varphi_m}$, Δt_1 et Δt_2 .

Les erreurs absolues $\Delta I_{\psi_m \varphi_m}$ et $\Delta I'_{\psi_m \varphi_m}$ sont données par les relations suivantes:

$$\Delta I_{\psi_m \varphi_m} = \sqrt{I_{\psi_m \varphi_m}} \quad \text{et} \quad \Delta I'_{\psi_m \varphi_m} = \sqrt{I'_{\psi_m \varphi_m}}$$

Les feuilles ont été achetées chez GoodFellow qui donne l'épaisseur à 20% près pour la première feuille et 10% pour la deuxième feuille:

$$\Delta t_1 = 0.6 \mu\text{m} \quad \text{et} \quad \Delta t_2 = 0.6 \mu\text{m}.$$

Lorsqu'une figure de pôles (111) est mesurée avec la géométrie de Schulz et l'autre avec un angle $\omega_g \neq 0^\circ$, les courbes présentées par les figures-IV-19 et 20, donnent les variations de $\Delta K_{\psi_m \varphi_m}^1$ et $\Delta K_{\psi_m \varphi_m}^2$ en fonction de ω_g . Ces erreurs sont calculées pour un point localisé à l'angle $\psi_m = 45^\circ$ sur les deux figures de pôles et pour différentes valeurs des intensités.

On constate que:

- 1) l'erreur est d'autant moins importante que l'intensité diffractée est élevée, ce qui est conforme à toute expérience de diffraction.
- 2) l'erreur est d'autant plus faible que l'angle ω_g est grand, ce qui revient à dire que la différence angulaire entre la géométrie de forte incidence et celle de Schulz doit être la plus grande possible.

Pour ces deux feuilles d'aluminium l'erreur n'est acceptable ($< 20\%$) que si on utilise des valeurs de ω_g supérieures à 20° .

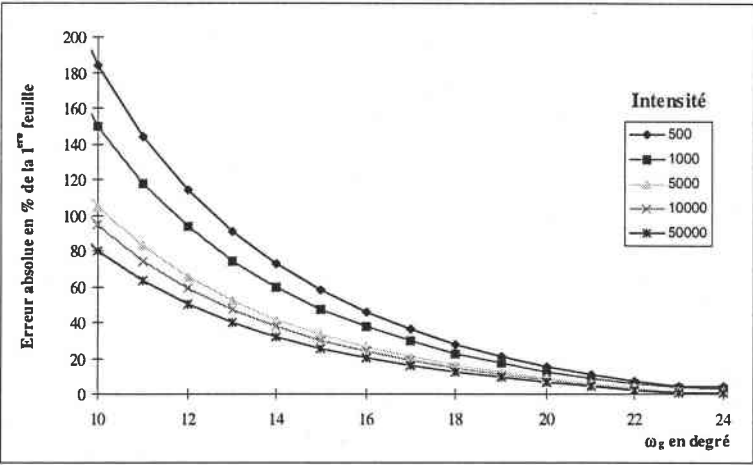


Figure-IV-19: variation de $\Delta K^1_{\psi_m \varphi_m}$ en fonction de ω_g .

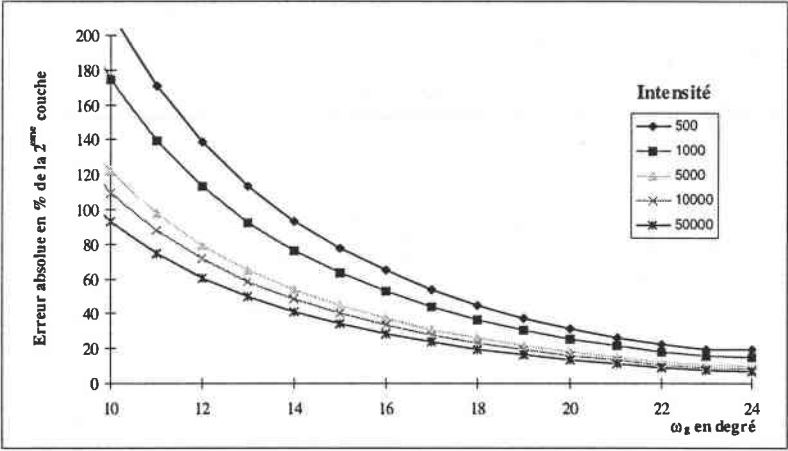


Figure-IV-20: variation de $\Delta K^2_{\psi_m \varphi_m}$ en fonction de ω_g .

Nous donnons à titre d'exemple une séparation des textures de la bicouche d'aluminium déjà présentées, lorsque la première géométrie est celle de Schulz et la deuxième est en forte incidence avec $\omega_g=10^\circ$.

Les résultats des mesures sont données par la figure-IV-21.

La séparation des deux sous couches est présentée par les figures-IV-22(B) et IV-23(B).

Ces résultats peuvent être comparées à ceux que l'on avait obtenues avec $\omega_g=20^\circ$ (figure-IV-9(B) et IV-10(B)).

Nous remarquons que le choix des deux géométries est primordial.

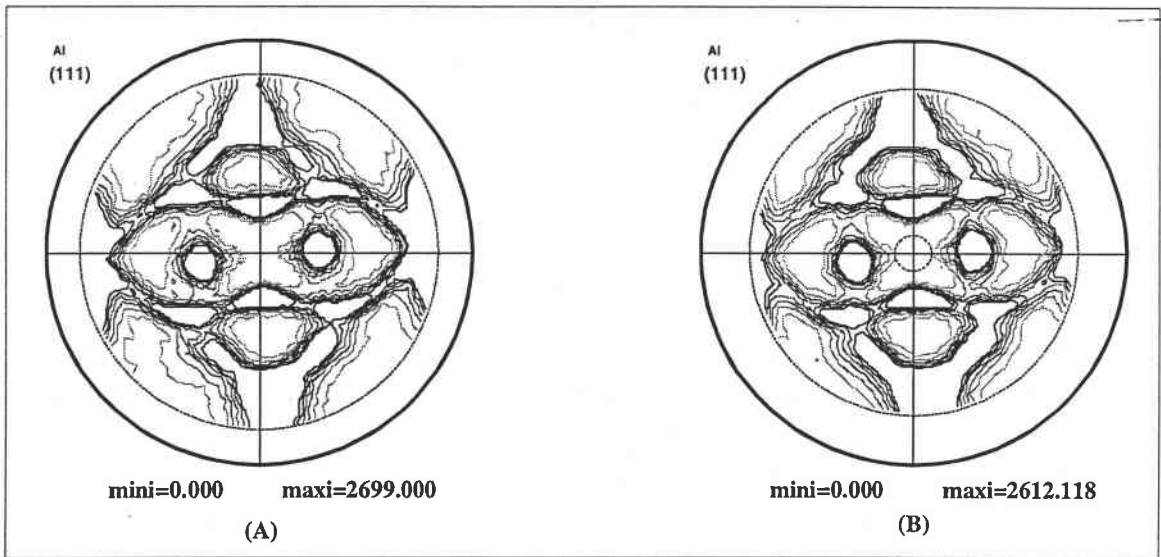


Figure-IV-21: (A): figure de pôles (111) mesurée et corrigée du bruit de fond avec la géométrie de Schulz ($\omega_g=0^\circ$)
 (B): figure de pôles (111) mesurée, corrigée du bruit de fond et de la localisation, avec la géométrie de forte incidence d'angle $\omega_g=10^\circ$.

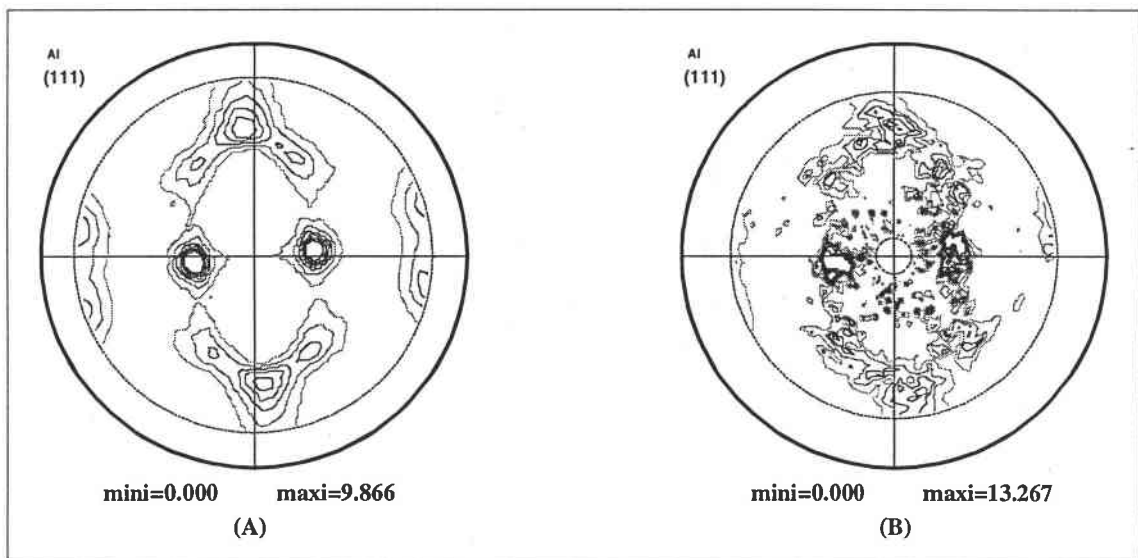


Figure-IV-22: (A): figure de pôles (111) de la première sous couche ($3\mu\text{m}$) prise isolement
 (B): figure de pôles (111) obtenue après séparation de la première sous couche ($3\mu\text{m}$).

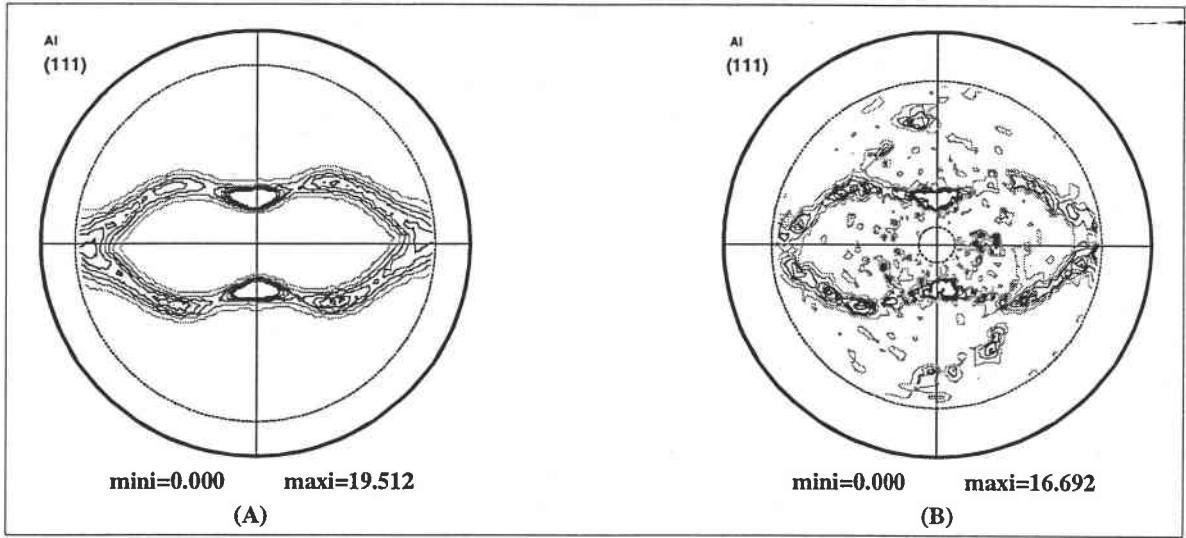


Figure-IV-23: (A): figure de pôles (111) de la deuxième sous couche (6μm) prise isolément
(B): figure de pôles (111) obtenue après séparation de la deuxième sous couche (6μm)

Cette erreur subit une diminution importante si nous connaissons avec précision les valeurs des épaisseur ou de μt . Les figures-IV-24 et IV-25 représentent les erreurs sur $K^1_{\psi_m\phi_m}$ et $K^2_{\psi_m\phi_m}$ lorsque $\Delta t_1=\Delta t_2=0$.

Il est donc nécessaire de bien connaître les caractéristiques du matériau à analyser et en particulier la valeur du coefficient d'absorption μ , ou du produit $\mu \times t$

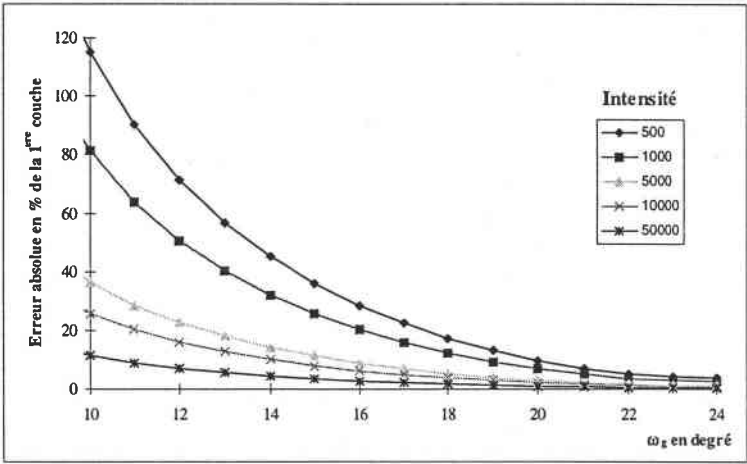


Figure-IV-24: variation de $\Delta K^1_{\psi_m\phi_m}$ en fonction de ω_g lorsque les erreurs sur les épaisseur sont nulles.

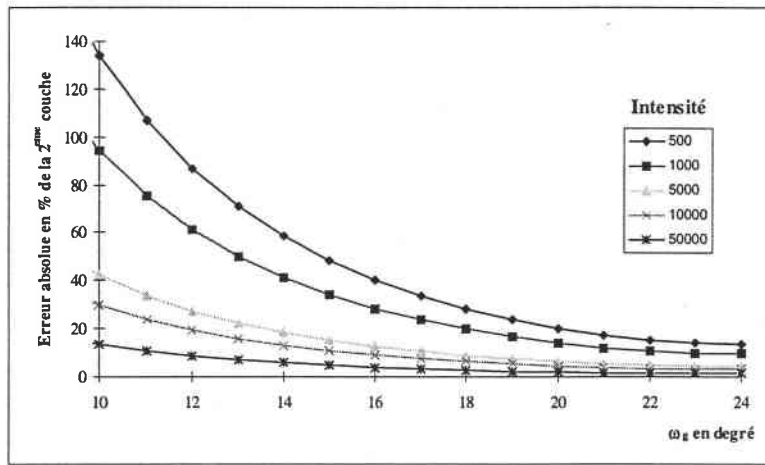


Figure-IV-25: variation de $\Delta K_{\psi_m \varphi_m}^2$ en fonction de ω_g lorsque les erreurs sur les épaisseur sont nulles.

1.4.DETERMINATION DE LA FRONTIERE ENTRE LES DEUX SOUS COUCHES:

Nous avons vu que cette nouvelle méthode de séparation nous permet de maîtriser les erreurs commises sur les textures obtenues de chacune des sous couches.

Dans ce paragraphe, nous allons étudier le cas où l'on ne connaît pas *la frontière entre les deux textures*.

Pour cela, il suffit de faire varier les volumes diffractants et les filtres, ce qui revient à faire varier les épaisseurs de chaque zone où la texture est supposée homogène, pendant la séparation. Ainsi, nous pouvons suivre l'évolution de la texture de chaque zone pour différentes épaisseurs.

L'échantillon utilisé est composé des mêmes feuilles d'aluminium que précédemment, mais cette fois-ci les directions de laminage font entre elles un angle de 35° . Nous utiliserons la combinaison entre la géométrie de Schulz et la géométrie à épaisseur constante [6] et nous ne choisissons que le plan (111) pour effectuer les deux figures de pôles.

La mesure de la figure de pôles à épaisseur constante est effectuée de sorte que 96% du volume diffractant correspondent aux 7 premiers microns de la bicouche.

A partir de ces deux figures de pôles uniquement (figure-IV-26), nous allons déterminer la frontière entre les deux textures. Nous utiliserons plusieurs séparations en faisant varier l'épaisseur de la première sous couche de façon croissante et celle de la deuxième sous couche de façon décroissante. Une fois obtenues les figures de pôles séparées de chacune des sous couches, on peut suivre l'évolution des valeurs de $K_{\psi_m \varphi_m}^1$ et de $K_{\psi_m \varphi_m}^2$ pour deux points particuliers de ces deux figures de pôles.

Ces deux points correspondent au maximum d'intensité respectif de chacune des sous couches.

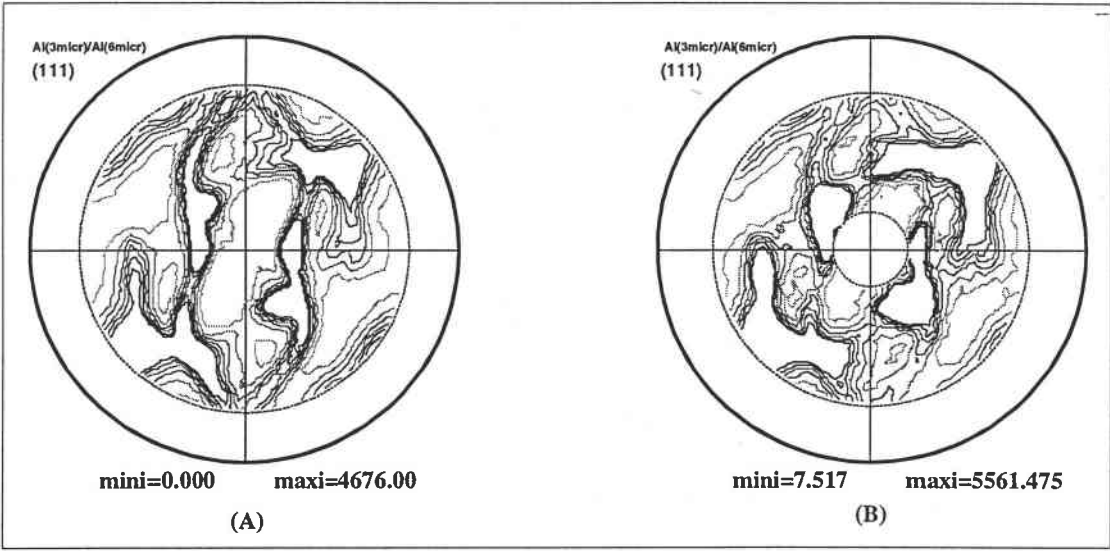


Figure-IV-26: (A): figure de pôles (111) mesurée et corrigée du bruit de fond la bicouche d'Al avec la géométrie de Schulz.
(B): figure de pôles (111) mesurée et corrigée du bruit de fond et de la localisation de la bicouche d'Al avec la géométrie à épaisseur constante tel que: 96% provient d'une épaisseur constante de 7µm.

Dans le cas où l'épaisseur de la première sous couche est égale à 1µm et celle de la deuxième sous est de 8µm, la première figure de pôles (figure-IV-17 (A)) correspond à la figure de pôles de la couche de 1µm seule, tandis que la figure de pôles de la deuxième sous couche contient des informations relatives à la première sous couche d'aluminium puisqu'elle a une épaisseur voisine de 3µm.

Au fur et à mesure que l'on fait varier l'épaisseur de la première couche par rapport à la deuxième, la première couche disparaît progressivement de la figure de pôles de la deuxième couche. A partir d'une épaisseur comprise entre 3µm et 3.25µm, la deuxième couche commence à apparaître sur la figure de pôles de la première couche (figure-IV-27).

Les courbes (figure-IV-28) représentent l'évolution $K_{\psi_m\varphi_m}^1$ ou de $K_{\psi_m\varphi_m}^2$ pour les coordonnées (33°;215°) et (25°;270°) correspondant respectivement aux maxima de chacune des sous couches.

L'intersection de ces deux courbes donne la position de l'interface entre les deux couches, qui est située entre 3 et 3.25µm. Ce qui confirme la marge d'erreur fournie par le fabricant:

$t_1=3\mu\text{m}\pm0.6\mu\text{m}$ et $t_2=6\mu\text{m}\pm0.6\mu\text{m}$.

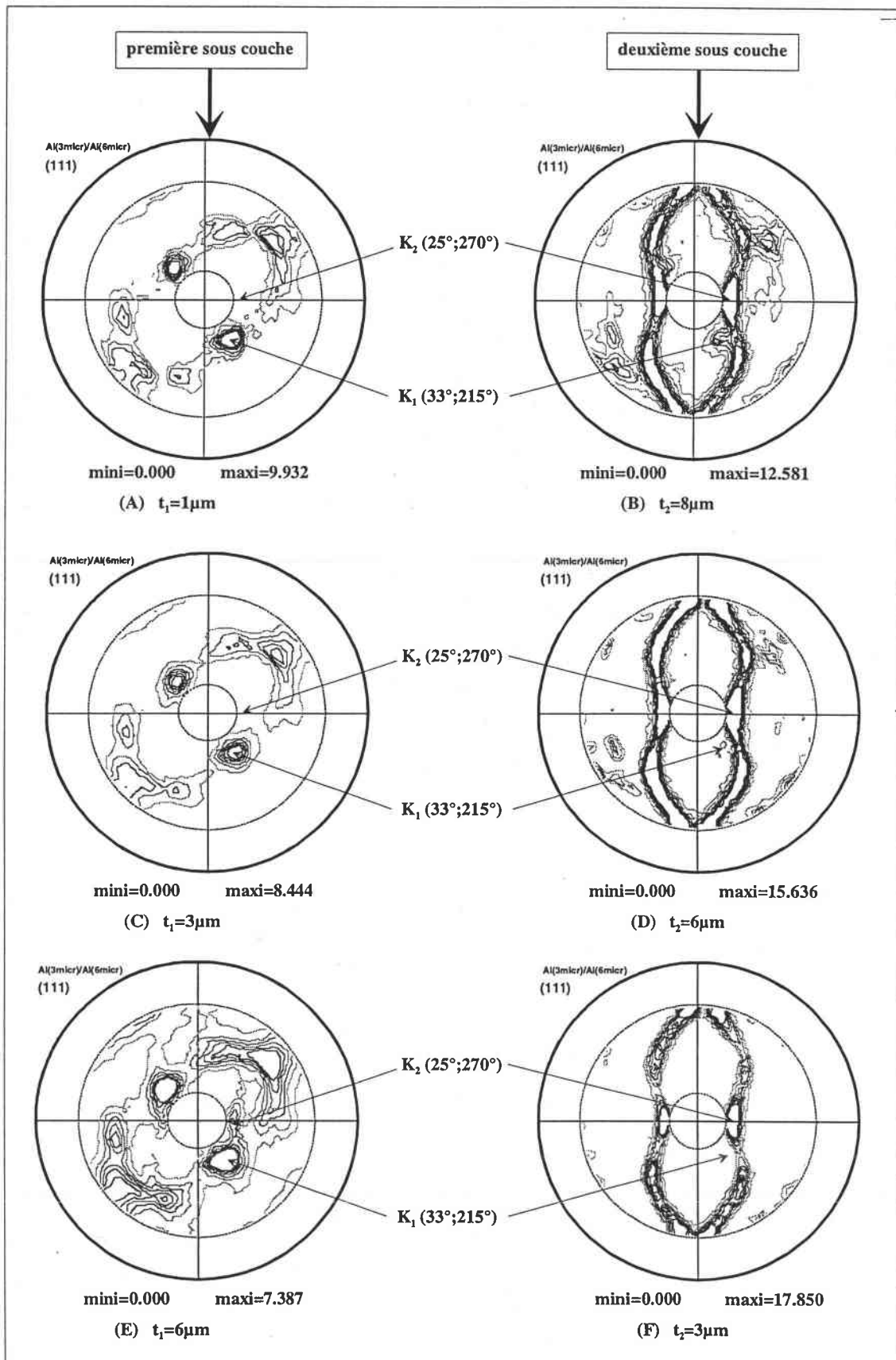


Figure-IV-27: évolution des figures de pôles de chacune des sous couches obtenues après séparation pour différentes valeurs d'épaisseurs.

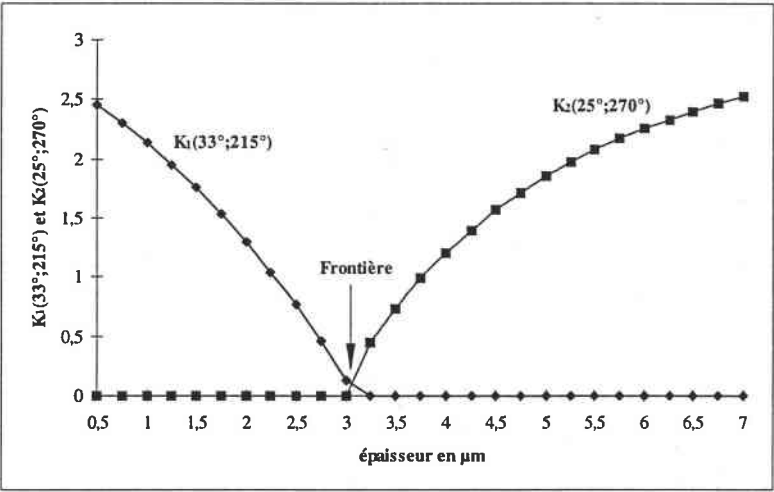


Figure-IV-28: variation de $K_1(33^\circ;215^\circ)$ et $K_2(25^\circ;270^\circ)$ en fonction de l'épaisseur.

2. GRADIENT DE TEXTURE REEL:

Nous allons appliquer la méthode de séparation sur un cas réel dans lequel des expériences préliminaires effectuées par Valot laisse prévoir qu'il y a une variation continue de la texture en fonction de l'épaisseur de la couche.

L'échantillon est une plaque de Zirconium qui a subi une oxydation en Zircrone monoclinique.

Sur cet échantillon, Valot a remarqué que la texture de la couche d'oxyde (Zircrone) varie en fonction de l'épaisseur en mesurant la figure de pôles (-111) avec deux incidences différentes: la première en Schulz (figure-IV-30 (a)) et la deuxième à faible incidence d'angle $\omega_g=-10^\circ$ (figure-IV-30 (b)).

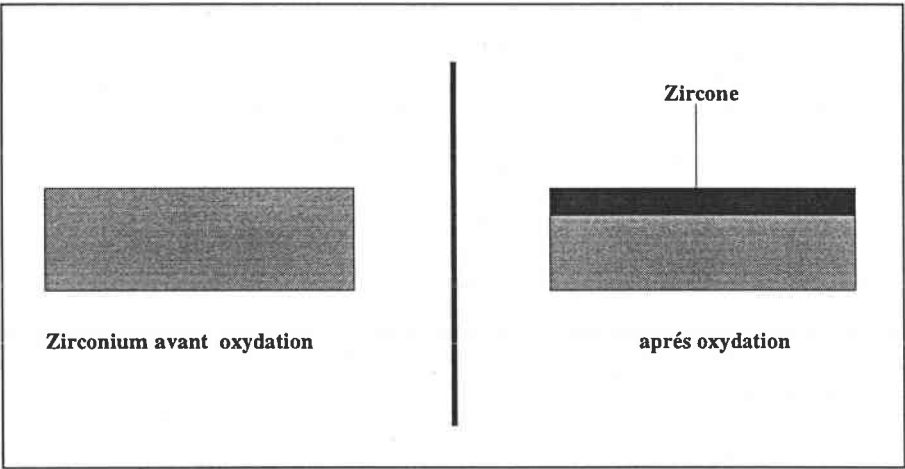


Figure-IV-29: Zirconium avant et après oxydation.

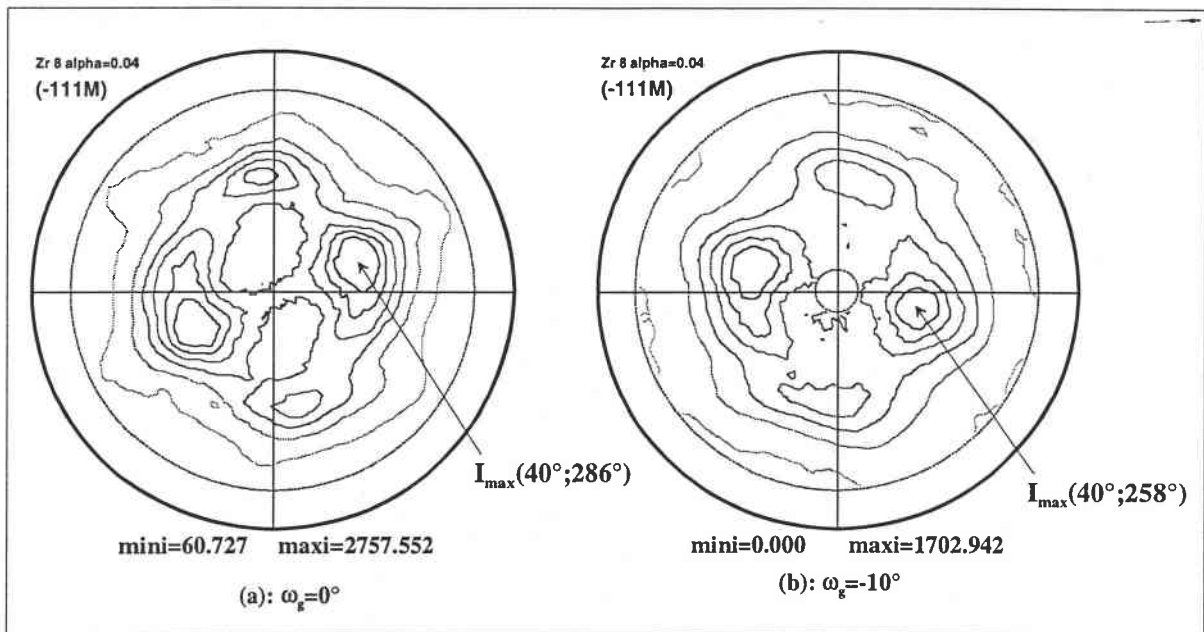


Figure-IV-30: figures de pôles (-111) de la Zircone mesurées avec deux géométries de mesure différentes.

L'expérience effectuée avec $\omega_g = -10^\circ$ favorise beaucoup plus les informations provenant de la surface que celles provenant de l'ensemble de l'échantillon.

D'après les données de Valot, le taux de conversion α de Zirconium en Zircone est égal à 0.04, la surface de l'échantillon est $S=1\text{cm}^2$ et la masse volumique ρ de la Zircone varie entre 5.4 et 6.02 g.cm^{-3} . Après calcul, l'épaisseur estimée de la couche d'oxyde est $t=7\mu\text{m}$ en prenant comme masse volumique $\rho=6.02\text{ g.cm}^{-3}$.

Connaissant l'épaisseur de cette couche et son coefficient d'absorption $\mu=1184\text{cm}^{-1}$ pour la raie K_α du Fer, nous pouvons avec notre méthode de séparation connaître l'évolution grossière de la texture de cette couche.

Comme précédemment, nous subdivisons cette couche d'oxyde en deux sous couche supposées homogènes dont on fait varier les épaisseurs t_1 et t_2 .

Les résultats obtenus, après séparation, sont présentés par la figure-IV-31.

Les figures de pôles obtenues nous montrent bien une évolution des intensités et un déplacement des maxima en fonction de l'épaisseur.

Pour évaluer le déplacement des intensités maximales correspondant à la couche superficielle et à la couche interne, nous traçons leurs positions sur une projection stéréographique de rayon égal à 50° (figure-IV-32).

Nous remarquons qu'il y a un déplacement progressif de ces maxima du centre vers le bord de la figure de pôles lorsque l'épaisseur de la couche superficielle augmente.

Est ce bien une rotation autour de la normale comme le supposait Valot?

D'autres expériences et études complémentaires seraient nécessaires pour bien expliquer cette variation de texture dans la couche d'oxyde.

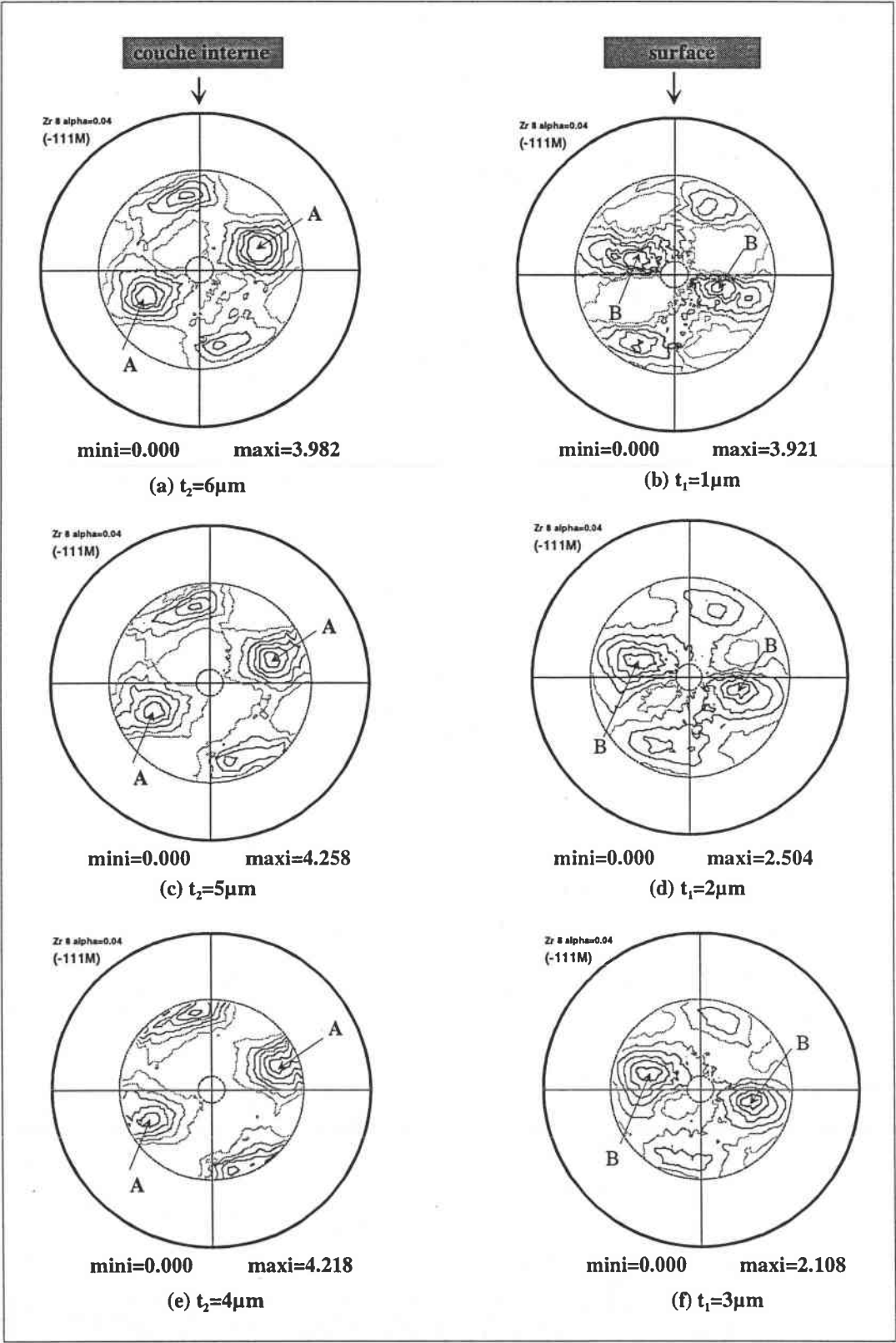


Figure-IV-31: figures de pôles obtenues après séparation de la surface et de la couche interne pour différentes épaisseurs.

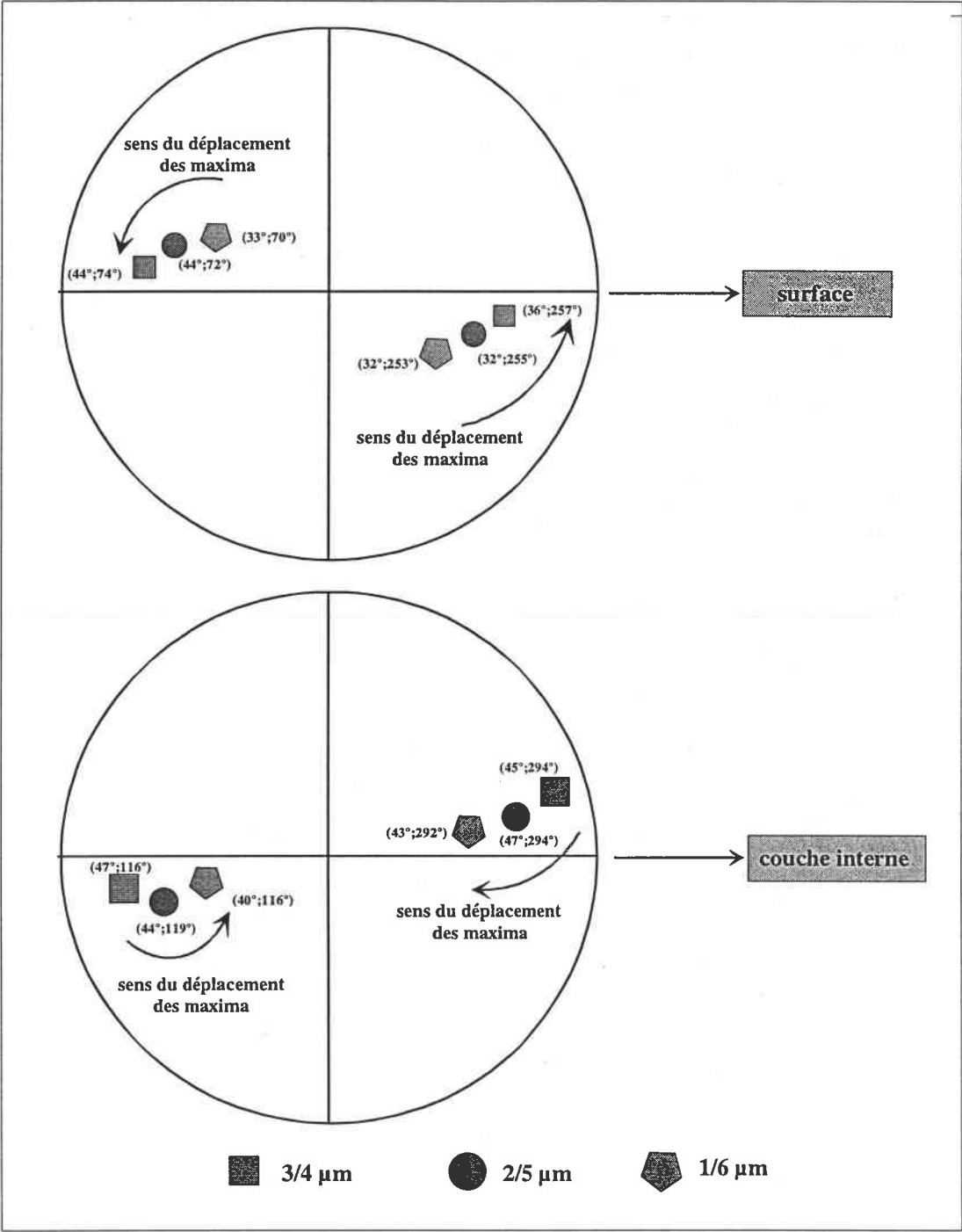


Figure-IV-32: l'évolution de la position des intensités maximales de la surface et de la couche interne pour différentes épaisseurs.

3. CONCLUSION:

Cette méthode d'évaluation des variations de textures dans des couches minces donne des résultats très satisfaisants.

Dans le cas de la bicouche d'aluminium dont on connaît parfaitement les textures de chaque couche, celles ci ont bien été reproduites.

Avec cette méthode, il est possible de maîtriser les erreurs commises sur la séparation des textures en choisissant des conditions de mesures adéquates.

Nous avons pu également montrer qu'une adaptation de méthode permet d'affiner l'étude de l'évolution de la texture dans les épaisseurs des couches minces. Cette adaptation utilise une "*frontière*" ayant une position variable.

Les résultats concernant une couche mince possédant un gradient de texture réel paraissent très prometteurs.

Références Bibliographiques:

- [1]: C. Valot ; Thèse à l'Université de BOURGOGNE ; 06 juillet 1995.
- [2]: L. G. Schulz ; J. Appl. Phys. ; volume (20) ; 1030-1036 ; 1949.
- [3]: J. J. Heizmann, C. Laruelle, A. Vadon ; J. Appl. Cryst. ; volume (19) ; 467-472 ; 1986.
- [4]: D. Ruer ; Thèse d'état ; Institut Universitaire De Technologie De Metz ; 1979.
- [5]: A. Vadon ; Thèse d'état ; Université De Metz ; 1981.
- [6]: L. Jolly, B. Bolle, C. Valot, C. Laruelle and J.J. Heizmann ; Textures o

CONCLUSION GENERALE

Dans ce travail, nous avons développé une méthode d'évaluation des variations de textures dans les épaisseurs des couches minces. Le principe de cette méthode réside dans la combinaison de différentes géométries de mesure, permettant d'accéder à des profondeurs de pénétration variables, pour pouvoir évaluer ces variations de textures.

Les caractéristiques de cette méthode sont qu'elle:

- Utilise la même raie de diffraction hkl , ce qui élimine le problème de la réflectivité, des différents plans (hkl) ou des ordres supérieurs de diffraction.
- Conduit à une solution unique, dont les coefficients de texture des sous couches sont toujours positifs quelques soient les conditions de mesure.
- Nous permet de maîtriser les erreurs commises lors de la séparation en choisissant des géométries de mesures adéquates. Nous pouvons obtenir de bons résultats si l'on connaît avec précision les propriétés physiques du matériau en particulier le produit $\mu \times t$.
- S'adapte parfaitement à la méthode vectorielle, malgré les zones aveugles centrales sur les figures de pôles obtenues après séparation. Cette présence n'est pas un handicap, à condition que les informations contenues dans la zone effectivement mesurée soit suffisante (MPDS Vadon). Les résultats d'analyse, par la méthode vectorielle, des textures séparées permettent de connaître la fonction de distribution des orientations (FDO) et de déduire les informations contenues dans les zones aveugles.
- Permet également d'évaluer une variation continue de la texture dans l'épaisseur.

Cette méthode pourrait se généraliser en considérant que la couche mince de texture hétérogène peut se décomposer en plusieurs sous couches de texture homogène. En effet, nous pouvons toujours avoir un système d'équations linéaires dans lequel le nombre d'inconnues est égal au nombre d'équations. Mais ceci impose que le nombre de mesures effectuées dans des conditions géométriques différentes soit égal au nombre de sous couches.

Nous voyons donc que ce nombre des sous couches ne peut pas excéder un nombre relativement faible.

Ce nombre est fonction du matériau ($\mu \times t$) et des différences entre les volumes diffractants observés par les différentes géométries. Il est raisonnable de penser que ce nombre ne pourra pas excéder **quatre** sous couches.

Dans le cas où les sous couches sont constituées de matériaux différents ayant des raies de diffraction qui se superposent (par exemple une couche d'aluminium superposée sur du fer où toutes les raies de diffraction de fer coïncident avec celles de l'aluminium), nous pouvons appliquer cette méthode pour séparer la texture de chacun des deux matériaux même si leurs coefficients d'absorption sont différents.

Dans le cas où les maxima d'intensité sont au centre de la figure de pôles, cette méthode ne pourrait pas être appliquée, il suffirait alors de choisir un autre plan réticulaire.

Il apparaît que cette nouvelle méthode pourra résoudre de nombreux problèmes de texture qui apparaissent dans les couches minces.

Elle pourrait être appliquée dans les domaines de l'électronique, des revêtements de matériaux, dans la recherche des mécanismes d'interfaces pour lesquels le rôle de l'orientation cristalline est important pour déterminer soit les propriétés de la couche mince soit ses conditions d'élaborations.

Résumé:

Une méthode adoptant des stratégies de mesures différentes qui combine soit les techniques de Schulz et de faible incidence, soit des mesures goniométriques à épaisseur constante de pénétration des rayons X, est décrite pour déterminer les gradients de texture dans les couches minces. Cette nouvelle méthode, qui utilise une seule raie hkl de diffraction, est testée sur des échantillons possédant un gradient de texture artificiel connu: elle est appliquée à l'étude d'un gradient réel de texture d'une couche de la Zircone. Les résultats d'analyse quantitative de la texture par la méthode vectorielle sont présentés.

Abstract:

A method using different strategies of measurement which combines the Schulz technique and the small incidence one, or measurement with a constant penetration depth of rays X, is described to determine the texture gradients in thin films. This method which uses only one réflexion line (hkl), is tested on samples possessing an artificiel texture gradient. Its applied to know the real texture gradient in a thin film of Zirconia. Quantitative texture analysis results made with the vectoriel method are presented.