



**HAL**  
open science

# Formalisme rationnel le la méthode de détermination des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X: application aux couches minces et multicouches

K. Badawi, C. Kahloun, J. Grilhé

► **To cite this version:**

K. Badawi, C. Kahloun, J. Grilhé. Formalisme rationnel le la méthode de détermination des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X: application aux couches minces et multicouches. *Journal de Physique III*, 1993, 3 (6), pp.1183-1188. 10.1051/jp3:1993108 . jpa-00248991

**HAL Id: jpa-00248991**

**<https://hal.science/jpa-00248991v1>**

Submitted on 4 Feb 2008

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Classification  
Physics Abstracts  
62.20 — 68.25

## Formalisme rationnel de la méthode de détermination des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X : application aux couches minces et multicouches

K. F. Badawi <sup>(1)</sup>, C. Kahloun <sup>(2)</sup> et J. Grilhé <sup>(1)</sup>

<sup>(1)</sup> Laboratoire de métallurgie physique, 86022 Poitiers, France

<sup>(2)</sup> L.P.M.T.M., 93430 Villetaneuse, France

*(Reçu le 22 décembre 1992, accepté le 19 mars 1993)*

**Résumé.** — L'utilisation du formalisme rationnel dans la méthode de détermination des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X améliore la rigueur, la précision et l'élégance mathématique de la méthode. Elle permet d'éviter les approximations faites dans le formalisme conventionnel, et apporte des corrections qui dépassent 15 % dans certains cas de couches minces et de multicouches.

**Abstract.** — The use of the rational formalism in the residual stress determination method by X-ray diffraction improves the precision and the mathematical elegance of this method. It eliminates the approximations made in the conventional formalism, and corrects the results by more than 15 % in certain case of thin films and multilayers.

### Introduction.

Dans des travaux antérieurs [1, 3] nous avons présenté le formalisme rationnel de la méthode de détermination des contraintes par diffraction des rayons X et ses applications aux matériaux massifs. Nous avons démontré que ce formalisme permet de supprimer toutes les approximations faites dans la méthode conventionnelle sur le facteur  $\cot \theta_0$ , où  $\theta_0$  est l'angle de diffraction du matériau sans contraintes relatif à la famille diffractante utilisée. Il permet en outre de calculer la valeur précise de cet angle, améliorant ainsi la précision de toute la méthode. Dans cet article, nous rappelons le formalisme utilisé et nous montrons ses implications dans le cas des couches minces et des multicouches.

### Formalisme rationnel.

La méthode de détermination des contraintes par diffraction des rayons X est fondée sur la mesure de la déformation  $\varepsilon_{\phi\psi}$  suivant la direction caractérisée par les angles d'Euler  $\phi, \psi$  (Fig. 1) ;

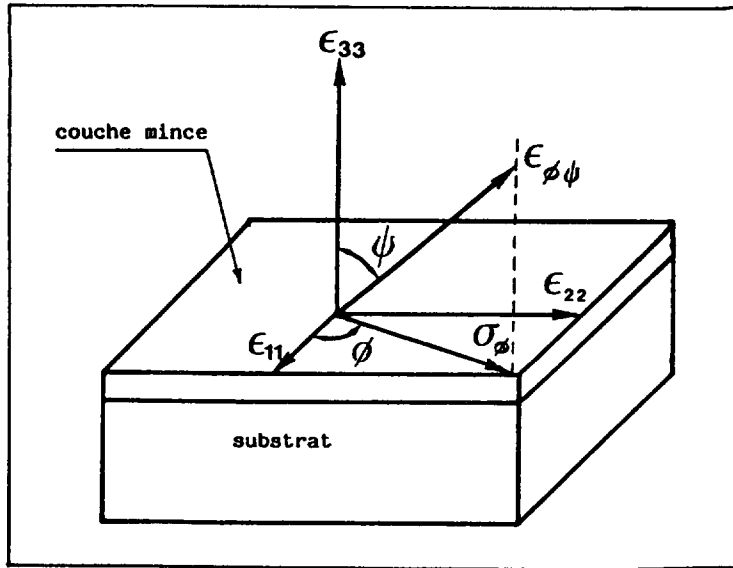


Fig. 1. — Référenciel utilisé.  
[Reference system.]

Dans le référentiel de la pièce  $\{X_1, X_2, X_3\}$ ,  $\varepsilon_{\phi\psi}$  est reliée au tenseur des déformations  $\bar{\varepsilon}$  par la relation :

$$\varepsilon_{\phi\psi} = \mathbf{e}_{\phi\psi} \bar{\varepsilon} \mathbf{e}_{\phi\psi} \quad (1)$$

où  $\mathbf{e}_{\phi\psi}$  est le vecteur unitaire suivant la direction  $(\phi, \psi, \text{Fig. 1})$ . Il est donné par la relation :

$$\mathbf{e}_{\phi\psi} = \sin \psi \cdot \cos \phi \cdot \mathbf{X}_1 + \sin \psi \cdot \sin \phi \mathbf{X}_2 + \cos \psi \mathbf{X}_3 \quad (2)$$

en reportant (2) dans (1) on obtient :

$$\varepsilon_{\phi\psi} = (\varepsilon_{\phi} - \varepsilon_{33} + \varepsilon_{12} \sin 2\phi) \sin^2 \psi + (\varepsilon_{13} \cos \phi + \varepsilon_{23} \sin \phi) \sin 2\psi + \varepsilon_{33} \quad (3)$$

où

$$\varepsilon_{\phi} = \varepsilon_{11} \cos^2 \phi + \varepsilon_{22} \sin^2 \phi. \quad (4)$$

L'équation (3) est l'équation de base de la méthode considérée. Elle montre que pour déterminer les six  $\varepsilon_{ij}$ , il faut effectuer six mesures de  $\varepsilon_{\phi}$ , correspondant à deux  $\psi$  et trois  $\phi$ . En pratique, le nombre de mesures est beaucoup plus important afin d'améliorer la précision des résultats.

MESURE DE  $\varepsilon_{\phi\psi}$ . — Elle est basée sur la mesure précise de l'angle de diffraction  $\theta_{hkl}$  correspondant à une famille  $\{hkl\}$  donnée de plans cristallographiques. En effet, la loi de Bragg s'écrit dans ce cas :

$$2 d_{hkl} \sin \theta_{hkl} = \lambda. \quad (5)$$

La déformation  $\varepsilon_{\phi}$  est reliée à  $d_{hkl}$  (Fig. 2) par l'une ou l'autre des équations suivantes :

$$\varepsilon_{\phi\psi} = \delta d/d_0 = -\cot \theta_0 \delta \theta \quad (6)$$

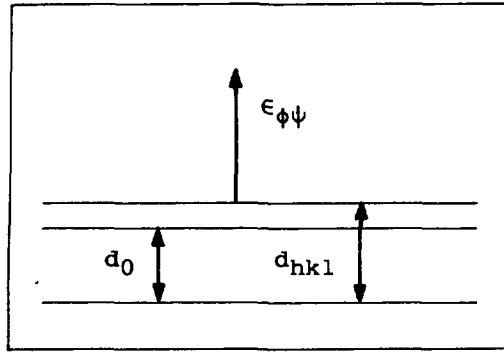


Fig. 2. — Principe de la mesure.  
[Measurement principal.]

obtenue en différenciant l'équation (1). C'est la définition conventionnelle des déformations qui est une approximation de la définition exacte ou rationnelle donnée par :

$$\varepsilon_{\phi\psi} = \text{Ln} (d_{hkl}/d_0) = \text{Ln} (\sin \theta_0/\sin \theta_{hkl}) \quad (7)$$

où  $d_0$  est la distance interréticulaire de la famille  $\{hkl\}$  du matériau sans contraintes, et  $\theta_0$  l'angle de diffraction correspondant.

Le formalisme rationnel est fondé sur l'équation (7) alors que le formalisme conventionnel est fondé sur l'équation (6). Ceci entraîne quelques conséquences importantes. En effet, posons dans l'équation (3), en suivant Dölle [4, 5] :

$$\varepsilon^+ = \varepsilon_{\phi\psi} \quad \text{pour} \quad > 0 \quad (8)$$

$$\text{et} \quad \varepsilon^- = \varepsilon_{\phi\psi} \quad \text{pour} \quad < 0 \quad (9)$$

et formons les quantités :

$$\begin{aligned} A^+ &= (\varepsilon^+ + \varepsilon^-)/2 = (\varepsilon_{\phi} - \varepsilon_{33} + \varepsilon_{12} \sin 2\phi) \sin^2 \psi + \varepsilon_{33} \\ &= M \sin^2 \psi + \varepsilon_{33} \end{aligned} \quad (10)$$

et

$$\begin{aligned} A^- &= (\varepsilon^+ - \varepsilon^-)/2 = (\varepsilon_{13} \cos \phi + \varepsilon_{23} \sin \phi) \sin |2\psi| \\ &= N \sin |2\psi|. \end{aligned} \quad (11)$$

En combinant les équations (6) (7) (10) et (11), on obtient :

$$\begin{aligned} a^+ &= (1/2) \text{Ln} (1/\sin \theta^- \sin \theta^+) \\ &= M \sin^2 \psi + \varepsilon_{33} + \text{Ln} (1/\sin \theta_0) \end{aligned} \quad (12)$$

$$a^- = (1/2) \text{Ln} (\sin \theta^-/\sin \theta^+) = N \sin |2\psi| \quad (13)$$

$$b^+ = (\theta^+ + \theta^-)/2 = - (M/\cot \theta_0) \sin^2 \psi - \varepsilon_{33}/\cot \theta_0 + \theta_0 \quad (14)$$

et

$$b^- = (\theta^+ - \theta^-)/2 = - (N/\cot \theta_0) \sin |2\psi| \quad (15)$$

où  $\theta^+$  et  $\theta^-$  sont les angles de diffraction correspondant au même  $\phi$  et à des angles égaux en valeur absolue et opposés en signes.

Dans ces équations les quantités à déterminer sont  $M$  et  $N$ . Le formalisme rationnel les donne directement par les pentes de (12) et (13) en fonction de  $\sin^2 \psi$  et  $\sin |2 \psi|$ , alors que le formalisme conventionnel ne permet de les obtenir que si on connaît  $\theta_0$ . C'est le premier avantage de la méthode proposée, car  $\theta_0$  est généralement inconnu, et qu'en pratique on recourt à des approximations de ce terme [6, 7 par exemple] ; ce sont ces approximations que le formalisme rationnel permet de supprimer. Dans nos travaux antérieurs [2, 3], nous avons montré que les erreurs résultant de ces approximations peuvent atteindre 4 % dans les matériaux massifs. Dans ce qui suit nous donnerons l'expression formelle de ces erreurs et nous les calculerons dans le cas des couches minces et des multicouches.

**CALCUL DE  $\theta_0$ .** — Le formalisme rationnel permet également de calculer avec précision  $\theta_0$ . En effet l'ordonnée à l'origine de l'équation (12) donne cet angle dès que le terme  $\varepsilon_{33}$  est connu. Ceci est obtenu quand la pente de la même équation a été déterminée pour au moins deux angles  $\psi$ . Des informations précieuses sur la microstructure du matériau sont ainsi obtenues.

### Calcul de l'erreur produite par les approximations de $\theta_0$ .

Les approximations les plus couramment utilisées dans la méthode conventionnelle sont les suivantes :

$$\begin{aligned}\cot \theta_0 &\approx \cot \theta_{\perp} \\ \cot \theta_0 &\approx \cot \theta^*\end{aligned}$$

où  $\theta_{\perp}$  est l'angle de diffraction correspondant à  $\psi$  zéro, et  $\theta^*$  le même angle pour le matériau recuit. Ces approximations sont souvent justifiées dans des matériaux contenant de faibles déformations, en revanche dans les couches minces et les multicouches où les déformations dépassent souvent 5 % [8 à 13 par exemple], elles conduisent à des erreurs relatives qui peuvent dépasser 10 %.

En effet, l'équation (6) montre qu'une erreur sur  $\cot \theta_0$  entraîne une erreur équivalente sur  $\varepsilon_{\phi\psi}$  donnée par :

$$\delta \cot \theta_0 / \cot \theta_0 = \delta \varepsilon / \varepsilon \quad (16)$$

avec

$$\delta \cot \theta_0 = \cot \theta_1 - \cot \theta_0 \quad (17)$$

où  $\theta_1$  est l'approximation de  $\theta_0$  ( $\theta_{\perp}$  ou  $\theta^*$ ). Un développement limité de cette expression au voisinage de  $\theta_0$  donne :

$$\delta \cot \theta_0 = (\theta_1 - \theta_0) (-1/\sin^2 \theta_0). \quad (18)$$

A partir de l'équation (18) il faut distinguer chacune des deux approximations considérées séparément.

**CAS DE L'APPROXIMATION  $\cot \theta_0 \approx \cot \theta_{\perp}$ .** — L'équation (14) donne pour  $\psi$  égal à zéro :

$$\theta_{\perp} - \theta_0 = - (\varepsilon_{33} / \cot \theta_0) \quad (19)$$

d'où :

$$\delta \varepsilon / \varepsilon = 2 \varepsilon_{33} \sin^2 \theta_0. \quad (20)$$

L'équation (20) montre que cette erreur est proportionnelle à  $\varepsilon_{33}$  (à  $\theta_0$  constant), et qu'elle est maximale pour  $\theta_0 = \pi/2$ . Le passage de l'erreur sur les déformations aux erreurs sur les

contraintes dépend de la nature des relations entre ces deux tenseurs. Pour des déformations importantes cette relation n'est pas linéaire. Dans le cas contraire, elle est donnée par la loi de Hook généralisée.

D'autre part, l'erreur donnée par (20) se repercute grâce aux équations (10) et (11) sur tous les  $\varepsilon_{ij}$  du tenseur.

La figure 3 montre la variation de  $\delta\varepsilon/\varepsilon$  en fonction de  $\varepsilon_{33}$  pour  $\theta_0 \approx 80$  deg., valeur souvent utilisée dans cette méthode. On y remarque que l'erreur dépasse 10 % dès que les déformations dépassent 5,15 %, et qu'elle atteint 19,4 % pour  $\varepsilon_{33} = 10$  % !

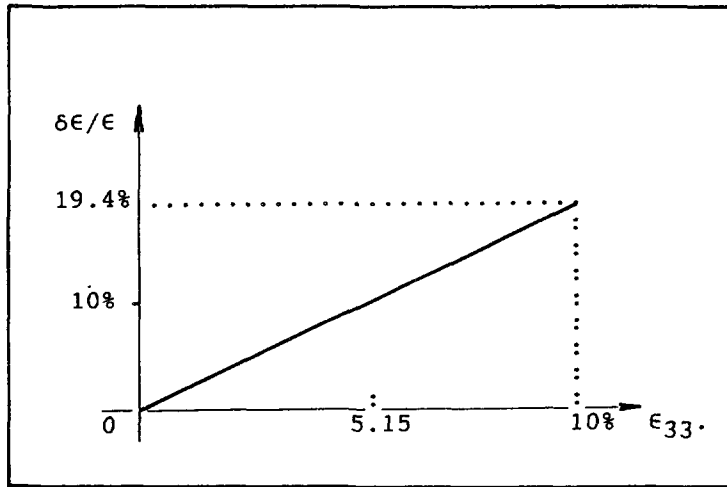


Fig. 3. — Erreur introduite par l'approximation  $\cot \theta_0 \approx \cot \theta$ .  
[Error produced by the approximation  $\cot \theta_0 \approx \cot \theta$ .]

CAS DE L'APPROXIMATION  $\theta_0 \approx \theta_*$ . — En fonction de la microstructure du matériau (densité des défauts ponctuels, des impuretés, des dislocations...)  $\theta_0$  peut s'écarter notablement de  $\theta_*$ . La méthode rationnelle permet de calculer avec précision  $\theta_0$  et de le comparer avec  $\theta_*$ . Le tableau suivant donne les différentes valeurs obtenues dans le cas de multicouches Cu/W de 75 Å de période après différents bombardements ioniques au  $Kr^{++}$  [14]. Nous avons présenté sur le même tableau l'erreur résultante par application de l'équation (16).

Tableau I. — Erreurs introduites par l'approximation  $\theta_0 \approx \theta_*$ .

[Error produced by the approximation  $\theta_0 \approx \theta_*$ .]

Dose (cm <sup>-2</sup> )	0	10 <sup>13</sup>	2 × 10 <sup>14</sup>	10 <sup>15</sup>
$\theta_0$ (deg.)	65,43	65,99	66,32	66,65
$\theta_*$ (deg.)	65,54	65,54	65,54	65,54
$\delta \cot \theta_0$ (10 <sup>-3</sup> )	2,44	- 9,32	- 16,2	- 23
$\delta\varepsilon/\varepsilon$ %	0,54	2,05	3,56	5,06

Ce tableau montre que l'erreur commise par cette approximation peut dépasser 5 %. Elle est moins importante que la précédente mais demeure non négligeable.

### Erreurs introduites par la définition même des déformations.

En plus de l'erreur présentée plus haut, il y a une autre source d'erreur (moins importante) due à la définition même des déformations dans le formalisme conventionnel. En effet, la relation entre les définitions conventionnelle et rationnelle données par les équations (6) et (7), s'obtient par le développement limité de  $\text{Ln}(d_{\text{hkl}}/d_0)$  au voisinage de 1. On obtient ainsi :

$$\varepsilon_r = \varepsilon_c - \varepsilon_c^2/2 + \dots \quad (21)$$

où  $\varepsilon_r$  et  $\varepsilon_c$  sont respectivement la déformation rationnelle et conventionnelle.

L'erreur relative introduite par l'utilisation de la déformation conventionnelle est donnée par :

$$(\varepsilon_c - \varepsilon_r)/\varepsilon_r \approx \varepsilon_c/2. \quad (22)$$

Cette équation montre que l'erreur est proportionnelle à  $\varepsilon_c$ . Pour de faibles déformations elle est négligeable. En revanche, dans les couches minces et les multicouches où les déformations atteignent parfois 10 %, elle n'est plus négligeable puisqu'elle atteint 5 %. Elle s'ajoute donc aux erreurs dues aux approximations de la cotangente calculées précédemment. L'erreur globale commise à cause du formalisme conventionnel atteindra pour  $\varepsilon = 10\%$  par exemple,  $19,4 + 5 = 24,4\%$ !. Elle est loin d'être négligeable et est d'autant plus regrettable qu'elle est introduite artificiellement par le formalisme même.

### Conclusion.

Dans cet article, nous avons démontré que le formalisme rationnel de la méthode de détermination des contraintes par diffraction des rayons X permet d'améliorer la précision et la rigueur de la méthode en supprimant les approximations habituellement faites dans la méthode conventionnelle. Nous avons analysé les erreurs introduites par ces approximations et avons montré qu'elles peuvent dépasser 20 % dans le cas des couches minces et multicouches des matériaux à faible module d'Young. Par conséquent, l'utilisation du formalisme rationnel est indispensable dans ce cas, et est avantageux dans tous les autres cas.

### Bibliographie

- [1] BADAWI K. F., CASTEX L., SPRAUDEL J. M., Proc. of the 34th annual conference on application of X-ray analysis (Colorado USA, 1985) p. 59.
- [2] BADAWI K. F., Thèse de Doctorat d'Etat, Université de Reims (1986).
- [3] BADAWI K. F., CASTEX L., SPRAUDEL J. M., Matériaux et Structures (Editions Hermes, Paris, 1987) p. 295.
- [4] DOLLE H., HAUKE V., *J. Metallk.* **70** (1979) 682.
- [5] DOLLE H., *J. Appl. Cryst.* **12** (1979) 489.
- [6] DOLLE H., COHEN J. B., *Met. Trans.* **11A** (1980) 159.
- [7] CASTEX L., LEBRUN J. L., MAEDER G., SPRAUDEL J. M., *Pub. Sci. Tech.* (ENSAM, Paris, 1981).
- [8] BADAWI K. F., DECLÉMY A., NAUDON A., GOUDEAU Ph., *J. Phys. III France* **2** (1992) 1741.
- [9] BADAWI K. F., NAUDON A., GOUDEAU Ph., *Appl. Surf. Sci.*, à paraître.
- [10] GOUDEAU Ph., BADAWI K. F., NAUDON A., GLADYSZEWSKI G., *Appl. Phys. Lett.*, à paraître.
- [11] THURNER G., ABERMANN R., *Thin Solid Films* **192** (1990) 277.
- [12] HOFFMAN D. W., *Thin Solid Films* **112** (1984) 219.
- [13] VINK T. J., SOMERS M. A. J., DAAMS J. L. C., DIRKS A. G., *J. Appl. Phys.* **70** (1991) 4301.
- [14] BADAWI K. F., GOUDEAU Ph., PACAUD J., JAUEN C., NAUDON A., GLADYSZEWSKI G., *Nucl. Inst. Meth. B*, à paraître.