



HAL
open science

Étude des couches minces et superficielles par les rayons X : utilisation des méthodes par réflexion

Ch. Legrand

► **To cite this version:**

Ch. Legrand. Étude des couches minces et superficielles par les rayons X : utilisation des méthodes par réflexion. *Journal de Physique et le Radium*, 1947, 8 (12), pp.361-368. 10.1051/jphys-rad:01947008012036101 . jpa-00234076

HAL Id: jpa-00234076

<https://hal.science/jpa-00234076>

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.

ÉTUDE DES COUCHES MINCES ET SUPERFICIELLES PAR LES RAYONS X : UTILISATION DES MÉTHODES PAR RÉFLEXION

Par CH. LEGRAND.

Assistant à la Faculté des Sciences de Lyon,

Détaché au Laboratoire de Rayons X du Centre National de la Recherche Scientifique à Bellevue.

Sommaire. — Après avoir rappelé diverses techniques fondées sur les travaux de Y. Cauchois, A. Guinier, J. C. M. Brentano, propres à fournir des diagrammes « en retour », on s'est proposé d'utiliser la méthode de Brentano en rayonnement monochromatique. L'application en a été faite aux couches cristallines minces déposées sur support amorphe. Le cas plus complexe de l'exploration des zones superficielles d'un échantillon d'épaisseur quelconque a été envisagé après avoir précisé la notion d'« épaisseur diffractante utile ». Deux exemples ont été fournis par une étude d'écroûissage superficiel d'aciers inoxydables et par la mise en évidence de différences d'orientation dans les régions voisines des deux faces d'une feuille d'aluminium de 40μ d'épaisseur.

Introduction. — Les méthodes d'obtention de diagrammes de rayons X au moyen de montages « à focalisation » sont intéressantes à plusieurs points de vue :

1° Elles s'appliquent à l'étude des surfaces solides et constituent un procédé non destructif qui évite la préparation d'un échantillon mince;

2° Elles permettent l'emploi de faisceaux d'ouverture appréciable — plusieurs degrés — donc d'une énergie plus considérable que celle utilisée dans la méthode classique de Debye et Scherrer, d'où diminution notable des temps de pose;

3° Au prix de quelques précautions, elles fournissent des raies très fines, se prêtant à des mesures précises.

Pour mémoire, citons la méthode de Seeman-Bohlin. Une chambre cylindrique comporte une fente qui constitue la source du faisceau; la surface de l'échantillon est tangentielle à la surface de la chambre, qui est aussi celle du film; celui-ci coïncide donc avec la circonférence de focalisation, lieu de toutes les images de la fente pour des angles de Bragg quelconques. L'ouverture du faisceau incident ne dépend que des dimensions du foyer et de sa distance à la fente. Il est inutile d'insister sur les

avantages de la méthode aux grands angles, sur ses inconvénients aux petits angles.

La méthode de Guinier (1) dans le cas de la réflexion, a une très grande similitude avec la précédente. Ce qui l'en distingue c'est la façon

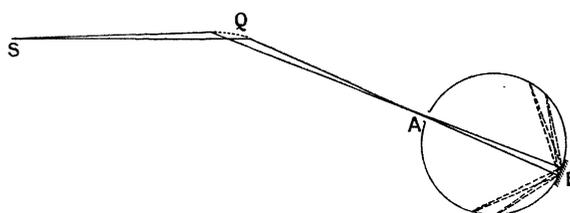


Fig. 1.

d'obtenir le faisceau divergent utile. Celui-ci provient de la focalisation, à l'entrée de la chambre, d'un faisceau monochromatique obtenu par réflexion d'un faisceau primaire sur un quartz taillé et courbé. Cette méthode découle des travaux de nombreux auteurs, en particulier de ceux de M^{lle} Cauchois (2)

(1) A. GUINIER, Voir *Traité de Radiocristallographie*, 1945 (Dunod), Chap. VI, p. 136 et suiv.

(2) Y. CAUCHOIS, *J. de Physique*, 1932, 7, p. 320; 1933, 4, p. 61.

sur la spectrographie des rayons X à l'aide des cristaux courbés. A. Guinier a montré⁽³⁾ le parti que l'on pouvait tirer de cette technique pour obtenir des diagrammes de Debye et Scherrer très purs et pour étudier la diffusion aux petits angles.

La figure 1 schématise ce montage. Du foyer S part un faisceau dont la divergence (2 à 3°) est fixée au moyen d'une fente d'entrée non représentée. Ce faisceau tombe sur la lame de quartz Q taillée parallèlement aux plans $(10\bar{1}1)$ de fort pouvoir réflecteur et appliquée sur une surface cylindrique. La focalisation du faisceau monochromatique obtenu est améliorée si la lame est taillée suivant une surface cylindrique de rayon $2R$ avant d'être courbée avec le rayon R ⁽³⁾. Le rayonnement $K\alpha_1\alpha_2$ est focalisé en A sur la surface de la chambre. La droite focale, dont A est la trace dans le plan équatorial, joue le rôle de la fente dans la méthode Seeman. La focalisation est exacte et simultanée pour tous les rayons diffractés, mais, comme dans la précédente méthode, seul un domaine angulaire limité peut être exploré avec profit.

Il a paru intéressant de chercher à concilier les avantages du rayonnement strictement monochromatique, avec ceux d'une méthode de focalisation fournissant aussi des distances entre raies proportionnelles aux distances angulaires et telle qu'un seul enregistrement couvre un domaine angulaire étendu. C'est pourquoi il convient de rappeler une méthode à laquelle J. C. M. Brentano a consacré une série d'études⁽⁴⁾.

Méthode de Brentano. — Soit un faisceau de rayons X issus de A et tombant sur une masse cristalline pulvérulente B (fig. 2). Les plans réticu-

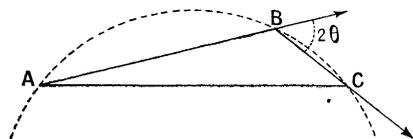


Fig. 2.

lares qui diffractent ces rayons sous un angle 2θ vers un même point C sont situés sur une surface à double courbure engendrée par la rotation de l'arc \widehat{ABC} , segment capable de $\pi - 2\theta$, autour de la corde AC. Pour distinguer cet effet de la focalisation vraie observée par Bragg pour les cristaux uniques, Brentano le dénomme effet de parafofocalisation; la surface à double courbure, toroïdale, est la surface parafofocalisante.

⁽³⁾ A. GUINIER, *Ann. de Phys.*, 1939, **12**, p. 161.

⁽⁴⁾ J. C. M. BRENTANO, *Proc. Physic. Soc.*, London, 1925, **37**, p. 184; 1935, **47**, p. 932; 1937, **49**, p. 61; *J. applied Physics*, 1946, p. 420.

Une discussion des aberrations permet de remplacer cet élément de surface courbe au voisinage de B par un élément du plan tangent en B, à la condition qu'il soit de faible étendue par rapport à AB, qu'on observe les raies dans le plan équatorial et que l'ouverture du faisceau issu de A demeure relativement faible (2 à 3°). Pour simplifier, envisageons seulement les rayons se propageant dans le plan ABC (fig. 3). Soient α l'angle de la

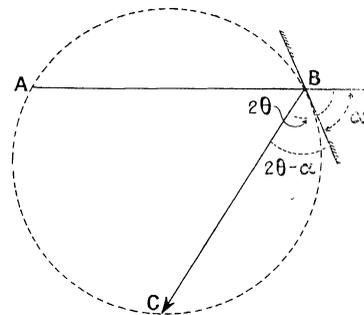


Fig. 3.

direction moyenne du faisceau incident avec le plan de la couche polycristalline considérée : a la distance AB, b la distance BC. Ces éléments sont liés par la relation

$$\frac{\sin \alpha}{\sin(2\theta - \alpha)} = \frac{a}{b}. \quad (1)$$

Considérons maintenant le montage représenté par la figure 4 : l'échantillon présente une petite surface plane contenant l'axe de la chambre en B. Le film F est circulaire. Le faisceau incident provient du point A situé sur la surface cylindrique de la chambre. La circonférence de focalisation passe par A, est tangente à l'élément plan B et coupe le film en C. La focalisation ne peut donc être obtenue simultanément pour toutes les raies, mais seulement pour celles qui coïncident avec l'intersection du film et du cercle de focalisation, c'est-à-dire en C. Le dispositif particulier de la figure 4 correspond au cas simple où $AB = BC$, c'est-à-dire $a = b$; la relation (1) montre alors que $\theta = \alpha$. C'est donc pour cette position bien déterminée du plan B que l'on observe une raie fine correspondant à un angle de diffraction donné. Les autres rayons diffractés fournissent des raies d'autant moins bonnes que l'on s'éloigne davantage de C. Il existe même entendu, autour de C, un domaine angulaire où la focalisation est satisfaisante.

Brentano s'affranchit de cette difficulté en plaçant devant le film un diaphragme qui découvre successivement une aire étroite du film pour laquelle la relation (1) se vérifie. Dans le cas de la figure 4

où $a = b$, si la préparation tourne avec la vitesse angulaire ω , le diaphragme devra se mouvoir avec la vitesse 2ω . Il est donc possible d'enregistrer un très grand domaine angulaire et d'utiliser des rayons diffractés normaux au film.

Emploi de la méthode de Brentano en rayonnement strictement monochromatique. — Au lieu d'user d'un collimateur, comme le fait Brentano, il a paru intéressant de s'adresser au rayonnement monochromatique fourni par une lame cristalline

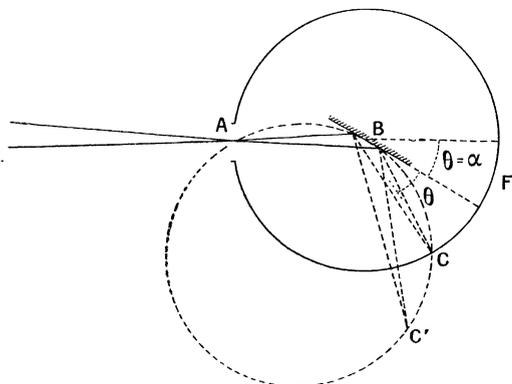


Fig. 4.

taillée et courbée comme dans la méthode Johansson-Guinier. En effet, il suffira de focaliser en A (fig. 4) le rayonnement monochromatique, pour obtenir un faisceau de divergence facilement réglable. Il est inutile de revenir longuement sur les avantages du rayonnement monochromatique⁽⁵⁾. Retenons surtout le fait que le point A peut être déterminé avec précision. Ce dispositif a déjà été indiqué par A. Guinier⁽⁶⁾ pour les diagrammes de cristal tournant et plus récemment par R. Brill et H. Krebs⁽⁷⁾ dans une courte note.

Nous avons expérimenté un certain nombre d'applications résultant de l'adaptation de l'emploi d'un rayonnement monochromatique à la méthode de Brentano. Nous nous proposons d'en examiner ici quelques-unes.

Applications générales. — Dans le cas d'un cristal unique tournant, dont une face plane contient l'axe de rotation, il y a focalisation vraie en ce sens, que, toutes les fois que la réflexion particulière définie par la relation de Bragg se produit, le rayon réfléchi passe par le même point du film. Des raies

très fines sont obtenues. Bien entendu, il n'est pas nécessaire d'user de l'artifice du diaphragme tournant.

J. Barraud⁽⁸⁾ a utilisé récemment ce montage pour mesurer avec précision l'intervalle réticulaire (001) du mica muscovite en utilisant comme étalon une lame de quartz parallèle à (10 $\bar{1}1$). Les pointés sur les bords des raies pouvaient être exécutés à 1/100^e de millimètre près et la précision des mesures a atteint 2/10 000^e.

La méthode s'applique aussi aux *couches pulvé-rulentes polycristallines*. Dans ce cas, comme il est montré plus haut, il est indispensable de n'admettre sur le film que les rayons diffractés correspondant à une focalisation exacte, donc d'employer le diaphragme tournant, imaginé par Brentano, si l'on veut enregistrer tout le diagramme. Si l'on se contente d'explorer un domaine restreint (soit 15 à 20° pour θ), on peut se passer de ce dispositif; il convient alors de choisir une valeur convenable de l'angle α , afin que la focalisation exacte se produise au centre de la région intéressante sur le film. A titre d'exemple, la figure 1 de la planche hors texte représente un diagramme d'aluminium correspondant aux conditions suivantes :

Anticathode de cuivre : 12 mA, 26 kV, 2 h.
Rayonnement monochromatique par cristal de quartz taillé et courbé ($2R = 500$ mm). Distance, QA = 115 mm. Chambre cylindrique de rayon, 36 mm. Echantillon : plaquette d'aluminium épaisse de 2 mm examinée par réflexion au centre de la chambre $\alpha = 22^\circ$, ouverture du faisceau issu de A : 2° .

La valeur de α correspond à une bonne focalisation pour les deux premières raies (111) et (200); les raies suivantes s'élargissent à mesure que l'on s'éloigne vers les grands angles. Toutefois, malgré une focalisation défectueuse, la raie (311) manifeste le dédoublement dû à la présence du doublet $\alpha_1\alpha_2$. L'échantillon dans une position fixe ne permet souvent de n'enregistrer qu'une moitié du diagramme; c'est un inconvénient majeur pour l'identification de phases cristallines. Mais, souvent, le problème est plus particulier; pour les recherches de textures, l'identification de composés superficiels ou interfaciaux, les raies du métal de base servent de référence.

Étude des couches superficielles. — Après avoir rappelé l'intérêt de la méthode de Brentano et montré qu'elle pouvait s'appliquer avantageusement en rayonnement monochromatique, il nous a paru utile de chercher à l'adapter à l'étude des *couches superficielles*. Il est nécessaire de distinguer deux cas :

⁽⁵⁾ A. GUINIER, *Traité de Radiocristallographie* (Dunod), Paris, 1946, p. 147.

⁽⁶⁾ A. GUINIER, *Loc. cit.*, p. 147.

⁽⁷⁾ R. BRILL et H. KREBS, *Kurze Original mitteilungen*, février-mars 1946, Heft 5, p. 75.

⁽⁸⁾ J. BARRAUD, *C. R. Acad. Sc.*, 1947, 225, p. 310.

A. Celui des couches cristallines minces déposées sur un support amorphe.

B. Celui, plus complexe, de l'exploration des parties superficielles d'un échantillon d'épaisseur quelconque.

A. Étude de couches minces cristallines déposées sur support amorphe. — De tels dépôts diffractent dans toute leur épaisseur, aussi, en rayonnement parallèle, le volume diffractant diminue-t-il très vite quand l'épaisseur devient très faible. Avec les méthodes de focalisation, et en particulier avec celle qui vient d'être décrite, une surface importante de l'échantillon est irradiée; le volume diffractant est ainsi ramené à une valeur telle que les temps de pose soient acceptables (quelques heures).

Nous avons expérimenté sur des dépôts cathodiques d'or et de palladium sur verre, obligeamment préparés par M. Andant. Le dispositif expérimental est schématisé par la figure 4. Sur la planche hors texte, la figure 2 reproduit le diagramme d'une couche d'or dont l'épaisseur mesurée optiquement était de 750 \AA (soit $0,075 \mu$).

Les conditions d'exécution de ce diagramme étaient les suivantes :

Anticathode de cuivre : 12 mA, 28 kV, 2 h. Rayonnement monochromatique par cristal de quartz taillé et courbé ($2R = 500 \text{ mm}$), chambre cylindrique de rayon de 36 mm. Échantillon au centre $\alpha = 22^{\circ},5$, ouverture du faisceau issu de $A = 2^{\circ}$.

L'angle α étant $22^{\circ},5$, la focalisation est bonne pour les raies (111) et (200), satisfaisante pour (220) correspondant respectivement à des angles de Bragg : $19^{\circ},6'$, $22^{\circ},12'$, $32^{\circ},15'$. La largeur de ces raies tient à la petite taille des cristaux, mais l'élargissement des raies (311) ou (420) est imputable à une focalisation insuffisante. Pour le palladium, l'épaisseur du dépôt ne pouvait être estimée, car on connaît mal sa relation avec la densité optique. Un échantillon de très grande transparence (densité optique 0,25) a fourni, après un recuit de 3 h à 270° , les raies caractéristiques de ce métal, bien que son épaisseur soit très faible et en tous cas inférieure à $0,1 \mu$.

Il est donc possible d'obtenir ainsi le diagramme de films extrêmement minces et l'exemple de l'or permet d'affirmer que, pour des éléments dont le pouvoir de diffraction est suffisant, des couches de quelques centaines d'angströms peuvent être décelées. On rejoint ainsi presque le domaine de la diffraction des électrons (100 \AA environ).

B. Étude des zones superficielles d'un solide. — Lorsqu'un dépôt cristallin mince est effectué sur un support amorphe, la substance déposée est

employée dans toute son épaisseur pour diffracter les rayons X, et l'on obtient seulement le diagramme de cette substance. Si au contraire, le dépôt est effectué sur un corps cristallisé, un métal par exemple, dans le cas général le rayonnement pénétrera au delà du dépôt et l'on obtiendra à la fois le diagramme de la substance déposée et celui du métal qui sert de base. Ceci a été vérifié avec des dépôts d'or réalisés sur cuivre dans les mêmes conditions expérimentales que ceux qui ont été effectués sur verre, donc de même épaisseur. On obtient les raies caractéristiques de l'or à côté des raies très intenses du cuivre. Au même ordre d'idées se rattache l'expérience suivante : Une petite lame de cuivre décapée est chauffée pendant un temps très court dans la flamme d'un bec Bunsen (1 à 2 s). La surface est ternie superficiellement par formation d'une pellicule mince d'oxydes de cuivre. L'aspect de la lame (couleurs d'interférence) permet d'apprécier un ordre de grandeur pour cette épaisseur : quelques dixièmes de μ à 1μ . La figure 3 (Pl. H. T.) reproduit le diagramme qui a été exécuté dans les mêmes conditions que les précédents. Les raies ponctuées sont celles du cuivre sous-jacent; en effet, les couches superficielles ont subi un recuit qui a augmenté la taille des cristallites. Le dépouillement du diagramme montre que les raies homogènes non granuleuses sont relatives à CuO et Cu_2O .

Il serait d'un grand intérêt d'étudier seulement la zone superficielle d'une surface polycristalline et pour cela, de localiser la diffraction le plus près possible de la surface, donc de limiter la pénétration du rayonnement incident. L'idée vient immédiatement de s'adresser à un rayonnement mou aisément absorbable. Mais au delà de $\text{Cr K}\alpha$, on est vite arrêté par diverses difficultés techniques et aussi par le fait que le plus petit espacement réticulaire décelable est $d = \frac{\lambda}{2}$. Il est intéressant de chercher si la zone diffractante utile peut être réduite par un choix judicieux de l'incidence du faisceau primaire pour une raie de diffraction déterminée. Il est nécessaire, pour y parvenir, d'analyser le rôle de l'absorption dans le phénomène de diffraction.

Calcul de l'épaisseur de matière intervenant pour l'obtention d'une raie de diffraction donnée.

— Le rayon incident OA (fig. 5) et la face plane OB de l'échantillon font l'angle α . Soient x le trajet OA du rayon incident dans la matière de coefficient d'absorption global μ pour la radiation employée, y le chemin AB d'un diffracté correspondant à l'angle de Bragg θ et issu de A situé à une profondeur $AA' = x \sin \alpha$. L'énergie réfléchie correspondant à l'absorption dans un parcours dx est

$$dI = I_0 e^{-\mu(x+y)} dx,$$

si I_0 est l'intensité de la radiation incidente.

L'énergie diffractée pour le parcours du rayon incident est

$$I_x = I_0 \int_0^x e^{-\mu(x+y)} dx.$$

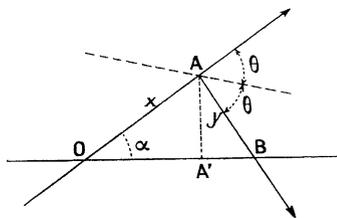


Fig. 5.

La figure 5 montre que

$$AA' = OA \sin \alpha = AB \sin (2\theta - \alpha),$$

d'où

$$x + y = x \left[1 + \frac{\sin \alpha}{\sin (2\theta - \alpha)} \right],$$

$$I_x = \frac{I_0}{\mu \left[1 + \frac{\sin \alpha}{\sin (2\theta - \alpha)} \right]} \left[1 - e^{-\mu x \left(1 + \frac{\sin \alpha}{\sin (2\theta - \alpha)} \right)} \right].$$

Posons

$$k = 1 + \frac{\sin \alpha}{\sin (2\theta - \alpha)}.$$

Nous utiliserons l'expression finale

$$I_x = \frac{I_0}{\mu k} (1 - e^{-\mu k x}). \quad (2)$$

A la limite pour $x = \infty$, l'intensité diffractée dans la direction 2θ est

$$I_\infty = \frac{I_0}{\mu k}, \quad \text{d'où} \quad \frac{I_x}{I_\infty} = 1 - e^{-\mu k x}. \quad (3)$$

La figure 6 représente la variation de cette fonction par rapport à x ; on pourra calculer x caractérisant un chemin suffisant pour que l'intensité

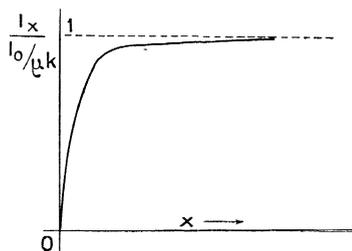


Fig. 6.

diffractée le long de ce parcours corresponde à une valeur donnée de $\frac{I_x}{I_\infty}$.

On obtiendra ainsi l'épaisseur responsable de telle fraction — à choisir arbitrairement — de l'intensité diffractée totale

$$x = \frac{\text{const.}}{\mu k},$$

$$\text{d'où l'épaisseur « utile » } e = \frac{\text{const.} \sin \alpha}{\mu k}. \quad (4)$$

Discussion. — On voit que si A est sur la surface du film (fig. 4) et si l'on désire une focalisation exacte $\alpha = \theta$ entraîne $k = 2$. Pour que l'on puisse, dans ce cas, obtenir des raies nettement focalisées et provenant d'une faible épaisseur de l'échantillon, il faut, d'après (4) que $\theta = \alpha$ soit petit; d'après la relation de Bragg $\sin \theta = \frac{\lambda}{2d}$, la substance devrait présenter de très grands espacements réticulaires, ce qui est assez rare.

Dans le cas général, il faut pour diminuer e , rendre dans l'expression (3) $\sin \alpha$ très petit ou k le plus grand possible. Ces deux conditions ne sont pas réalisables simultanément car une faible valeur de α entraîne pour $\sin (2\theta - \alpha)$ une valeur proche de $\sin 2\theta$, donc généralement pas très petite. Il y a donc deux solutions à considérer :

a. Soit α petit, ce qui signifie que le faisceau incident arrive presque rasant sur l'échantillon.

La relation

$$\frac{\alpha}{b} = \frac{\sin \alpha}{\sin (2\theta - \alpha)}$$

montre alors que le rapport $\frac{\alpha}{b}$ est < 1 . Le point A de la figure 4 devra être rapproché de l'échantillon; il sera à l'intérieur de la chambre.

b. Pour accroître k , il faut choisir $\sin (2\theta - \alpha)$ petit. Nous donnerons donc à α une valeur aussi proche que possible de 2θ avec la condition $\alpha < 2\theta$. Cette fois, ce sera le faisceau diffracté qui sortira de la matière sous un petit angle. La même relation (1) montre que $\frac{\alpha}{b} > 1$. La distance AB sera plus grande que le rayon de la chambre. A sera à l'extérieur.

Un exemple illustrera cette discussion : soit à étudier un échantillon de fer α avec la radiation $\text{CrK}\alpha$.

Choisissons d'abord $\alpha = 2^\circ$ et considérons les raies

$$(110) \quad \theta_{110} = 34^\circ 30', \quad (211) \quad \theta_{211} = 78^\circ 30'.$$

Pour (110),

$$\frac{\alpha}{b} = \frac{0,035}{0,921} = 0,038, \quad e = \frac{\text{const.}}{\mu} \times 0,035,$$

k étant peu différent de 1

Pour (211),

$$\frac{\alpha}{b} = \frac{0,035}{0,423} = 0,082, \quad e = \frac{\text{const.}}{\mu} \times 0,035.$$

k étant peu différent de 1.

Pour les chambres usuelles, α serait de l'ordre de quelques millimètres, donc A très près de l'échantillon.

Inversement, la seconde solution qui s'appuie sur une valeur de $2\theta - \alpha$ très petite, conduit à des valeurs de $\alpha > b$, donc à une position de A extérieure à la chambre.

En effet, avec $2\theta - \alpha = 2^\circ$:

Pour (110),

$$\alpha = 67^\circ, \quad \frac{\alpha}{b} = \frac{0,92}{0,035} = 26.$$

Pour (211),

$$\alpha = 155^\circ, \quad \frac{\alpha}{b} = \frac{0,423}{0,035} = 12.$$

Il serait indiqué d'employer des chambres de petit rayon afin de ne pas trop éloigner l'échantillon du point A. Les épaisseurs utiles seraient pour cet exemple.

Pour (110)

$$e = \frac{\text{const.}}{\mu} \times \frac{0,92}{27} = \frac{\text{const.}}{\mu} \times 0,034.$$

Pour (211)

$$e = \frac{\text{const.}}{\mu} \times \frac{0,423}{13} = \frac{\text{const.}}{\mu} \times 0,033,$$

donc tout à fait comparables à celles trouvées dans le cas de l'incidence rasante. Pour préciser cette notion d'épaisseur utile, choisissons pour $\frac{I_x}{I_\infty}$ la valeur $\frac{4}{5}$ c'est-à-dire que nous considérons *par convention*, comme épaisseur responsable de la diffraction, celle qui contribue aux $4/5^\circ$ de l'énergie reçue sur le film pour la raie considérée.

Donc

$$e = \frac{\text{Log } 5}{\mu k} \sin \alpha = \frac{1,6 \sin \alpha}{\mu k} \quad (\text{en cm}).$$

Ainsi pour la raie (211) $e = 0,65 \mu$ pour les conditions expérimentales imaginées.

Il apparaît que, l'échantillon étant immobile, on ne peut obtenir qu'une seule raie correspondant à une focalisation exacte et à une diffraction superficielle. Dans nombre de cas, cette possibilité est déjà intéressante, lorsqu'on s'attache à la structure de la raie. Le coefficient d'absorption de l'échantillon fonction de la longueur d'onde du rayonnement incident, a une grande influence sur l'évaluation de l'épaisseur utile. Approximativement cette épaisseur de la zone effectivement diffractante varie de quelques dixièmes de micron à quelques microns

pour les métaux usuels et les longueurs d'onde ordinairement employées.

Exemples étudiés. — *a. Echantillon d'acier inoxyidable.* — Trois échantillons d'acier inoxyidable présentant une face bien dressée ont été soumis aux traitements suivants, par les soins du Laboratoire central de l'Armement :

Échantillon I : meulage.

Échantillon II : meulage suivi de rodage au corindon

Échantillon III : meulage suivi de rodage au vert de chrome.

Examinés par la méthode classique en retour, ces échantillons n'ont montré aucune différence sensible. Le montage de la figure 4 a été utilisé avec la radiation $\text{Fe } K\alpha$ monochromatique et divers angles d'incidence.

Pour l'incidence $\alpha = 30^\circ$, angle correspondant à une bonne focalisation pour (110), on obtient des diagrammes identiques pour les trois échantillons. Les diagrammes obtenus respectivement avec les aciers I et III, sont reproduits par les figures 4 et 5 de la planche hors texte.

Dans ce cas l'épaisseur utile varie de 6μ pour (110) à 9μ pour (211) en gardant notre convention $\frac{I_x}{I_\infty} = \frac{4}{5}$.

Une série de diagrammes furent exécutés en laissant le point A sur la surface du film (montage de la figure 4), mais en faisant varier l'incidence d'une série d'essais à l'autre.

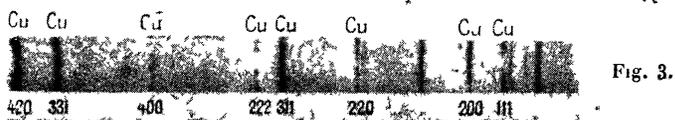
Pour l'incidence $\alpha = 3^\circ$, les figures 6, 7 et 8 de la planche reproduisent les diagrammes obtenus; les raies obtenues situées assez loin de l'intersection du cercle de focalisation et du film présentent des aberrations géométriques considérables. Toutefois, de nettes différences de structure pour ces différentes raies apparaissent. Pour l'échantillon I (*fig. 6*) de la planche, la raie (110) montre un bord net et un noircissement diminuant graduellement vers l'autre bord, ce qui s'explique par l'irradiation non uniforme de la surface plane très inclinée sur le faisceau incident.

Pour l'échantillon II (*fig. 7*), la même structure de raie se retrouve, mais moins nette, accusant un léger écouvissage; quant à l'échantillon III (*fig. 8*), il manifeste une raie floue d'apparence beaucoup plus symétrique, comme le montrent d'ailleurs les microphotographies.

Par l'emploi de l'incidence de 3° , l'épaisseur utile, avec notre convention, est d'environ $1,5 \mu$. On peut donc mettre en évidence pour l'échantillon III un écouvissage très superficiel provoqué par le polissage.

b. Orientations diverses dans une feuille d'aluminium mince. — Des feuilles d'aluminium laminé

PLANCHE.



d'épaisseurs variables (6μ à 60μ) présentent une nette différence d'aspect pour les deux faces : une face très réfléchissante, une face mate. Ce phénomène provient du fait que les feuilles sont laminées par paires, ce qui entraîne une différence de traitement thermique pour chacune des faces; le côté réfléchissant était en contact avec le rouleau du laminoir. Des séries de diagrammes ont été exécutées par réflexion avec le montage déjà décrit (*fig. 4*).

Les diagrammes reproduits par les figures 9 et 10 de la planche correspondent aux conditions suivantes : rayonnement du Cu monochromatisé par un quartz taillé et courbé ($2R = 500 \text{ mm}$). Focalisation en A sur la surface de la chambre $\alpha = 15^\circ$. Chambre cylindrique de rayon $r = 36 \text{ mm}$, 12 mA, 26 kV, 2 h.

L'échantillon correspondant à ces deux diagrammes est une feuille d'aluminium d'épaisseur 40μ appliquée sur une lame de verre. Après l'obtention du diagramme caractéristique d'une des deux faces, l'échantillon était retourné en évitant toute rotation dans son plan et le second diagramme exécuté dans les mêmes conditions.

La face mate fournit le diagramme complet (*fig. 9*), tandis que le diagramme, obtenu en présentant au rayonnement la face opposée, brillante, révèle en particulier l'absence des raies (222) et (400) (*fig. 10*). L'épaisseur responsable de la diffraction dans la direction correspondante à la raie (222) ($\theta = 41^\circ, 12'$) est de l'ordre de 20μ . On peut donc mettre en évidence, par la comparaison de ces deux diagrammes, une *différence d'orientation* entre les régions voisines de chaque face.

Il n'est pas possible ici de préciser davantage ces orientations; il eût fallu, pour le faire, exécuter une série de diagrammes en faisant tourner chaque fois la feuille dans son plan, d'un certain angle connu, afin de reconstituer le diagramme de fibre que l'on obtient d'un seul coup en rayonnement parallèle. Cette étude dépassait notre but, qui était d'explorer les possibilités de la méthode.

Conclusion. — La méthode imaginée par Brentano, et améliorée par l'emploi d'un rayonnement monochromatique, s'applique particulièrement bien aux études par réflexion. Elle semble aussi spécialement intéressante pour l'étude des dépôts minces ou des états de surfaces. De la considération de l'épaisseur utile à la diffraction, dans une direction donnée, d'une fraction définie de l'énergie diffractée totale dans cette direction, on peut déduire diverses modalités d'application de la méthode. Le champ très large des applications à divers problèmes physico-chimiques (chromage, oxydation, etc.) rend nécessaire des investigations plus poussées dans cette voie, en les combinant si nécessaire avec la méthode de diffraction des électrons.

Ce travail a été entrepris sur la suggestion du Professeur J.-J. Trillat, que nous remercions de ses conseils; il a été effectué au Laboratoire de rayons X du Centre national de la Recherche scientifique. Nous remercions également M. Gervais, mécanicien de ce Laboratoire, qui a réalisé pour nous les divers montages mécaniques nécessités par cette étude.

Manuscrit reçu le 8 décembre 1947.