Description d'un appareil de diffusion centrale des rayons X utilisable à basse température

A. Naudon, M. Jaulin

► To cite this version:

A. Naudon, M. Jaulin. Description d'un appareil de diffusion centrale des rayons X utilisable à basse température. *Revue de Physique Appliquée*, 1968, 3 (2), pp.152-156. 10.1051/rphysap:0196800302015200 . jpa-00242839

HAL Id: jpa-00242839

<https://hal.science/jpa-00242839>

Submitted on 1 Jan 1968

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.

DESCRIPTION D'UN APPAREIL DE DIFFUSION CENTRALE DES RAYONS X UTILISABLE A BASSE TEMPÉRATURE

Par A. NAUDON et M. JAULIN,

Laboratoire de Métallurgie Physique, Faculté des Sciences, 86-Poitiers.

(Reçu le 27 décembre 1967, révisé le 5 février 1968.)

Résumé. — Nous décrivons un montage, pour l'étude de la diffusion centrale des rayons X en rayonnement monochromatique, utilisant un goniomètre de précision et un compteur proportionnel. On peut mesurer sur une échelle absolue la diffusion donnée par des échantillons métalliques vieillis à basses températures.

L'originalité de ce dispositif est la facilité de ses réglages mécaniques et le système de refroidissement des échantillons par conduction sous vide : une circulation de méthanol commandée par une vanne à quatre voies, raccordée à deux cryostats, permet de faire les vieillissements sans toucher à l'échantillon.

Abstract. — An apparatus for measuring small angle X-ray scattering using monochromatic radiation using a precise goniometer and a proportional counter is described. Scattering given by low temperature ageing of metallic samples can be measured on an absolute scale.

The originalities of this apparatus are the facility for mechanical regulation and the system of sample-cooling by vacuum conduction. Circulation of methanol controlled by a four way gate connected on two cryostats permits the ageing without removing the sample.

Introduction. — La diffusion centrale des rayons X est un moyen d'étudier les hétérogénéités de la matière. Le principe d'une mesure consiste à déterminer la distribution angulaire de l'intensité diffusée autour du faisceau direct, ce qui permet d'atteindre certains paramètres géométriques des hétérogénéités. La mesure de l'intensité diffusée, en fonction de l'intensité totale du faisceau incident, donne alors des renseignements sur la distribution de la densité électronique.

Dans le but d'étudier la cinétique de formation et de croissance des zones Guinier-Preston dans des alliages à base d'aluminium, il faut, après trempe rapide, suivre l'évolution de ces alliages à basse température. Dans ce cas, les zones G.P. sont petites et la diffusion est faible. On a donc intérêt à travailler dans l'approximation du « faisceau infini » [1], en utilisant un tube à microfoyer linéaire de bonne puissance.

Pour réduire le moins possible l'intensité diffusée, nous opérons sous vide et l'échantillon est refroidi par conduction. Il existe en effet deux méthodes pour refroidir l'échantillon : la circulation gazeuse ou la conduction à l'aide d'un barreau de cuivre [2].

1. LE CAS DE L'ÉCHANTILLON REFROIDI PAR JET GAZEUX donne satisfaction pour un faisceau de faible hauteur [3], mais si le faisceau est haut, il faut enfermer l'échantillon dans une chambre à double paroi, ce qui atténue la diffusion déjà faible et rend difficiles les changements de températures sur place. Il est

en effet important de faire les vieillissements sur place pour un échantillon métallique (une manipulation risquant d'entraîner un écrouissage, et par conséquent une modification de son état structural). D'autre part, la régulation en température du gaz froid, en général de l'azote, nécessite une alimentation à niveau constant assez compliquée.

2. LE REFROIDISSEMENT PAR CONDUCTION suppose l'emploi d'un cryostat et il faut éviter la formation de givre, soit en faisant le vide, soit en isolant avec des doubles fenêtres. Voulant éviter cette deuxième solution, nous avons choisi le refroidissement par conduction sous vide de façon à n'avoir que deux fenêtres en mylar très peu absorbantes; nous décrirons plus loin cette réalisation.

Description du montage de diffusion centrale. — Notre dispositif utilise un faisceau convergent, monochromatique, bien défini géométriquement, et permet de mesurer l'intensité sur une échelle absolue.

Nous avons tenu compte de trois réalisations assez récentes d'appareils de diffusion centrale :

— Luzzati, Witz et Baro [4], en 1963, ont décrit la mesure des intensités sur une échelle absolue à l'aide de filtres de nickel.

— Bonfiglioli [5], en 1964, a étudié en particulier la diffusion parasite et la pureté spectrale du faisceau pour les mesures absolues.

— Renouprez [6], en 1965, a surtout insisté sur la rigidité de l'ensemble et ses différents réglages mécaniques.

Nous avons apporté des modifications, par rapport à ce dernier appareil, sur l'ensemble tube-monochromateur pour le rendre plus maniable et sur l'ensemble porte-échantillon afin d'effectuer nos vieillissements à basse température. Et si nous avons entraîné le bas du goniomètre par vis micrométrique, c'est pour avoir une lecture directe de la déviation angulaire et aussi pour faire des mesures point par point à l'aide d'une minuterie à réarmement automatique commandant le moteur d'entraînement (à deux sens de marche et arrêt instantané) de la vis micrométrique.

1. ÉLÉMENTS DE BASE. — Tube microfoyer linéaire C.G.R. à anticathode de cuivre de puissance 600 watts, dont l'alimentation est stabilisée; le foyer, de dimensions réelles $5 \times 0,1 \text{ mm}^2$, a, sous 6° , une largeur apparente de $0,01 \text{ mm}$.

— Monochromateur du type Guinier fabriqué par la C.G.R. dont nous avons changé la fente de sortie.

Presse de rayon $1\,400 \text{ mm}$, lame de quartz d'angle de taille 8° par rapport aux plans $10\bar{1}1$, ce qui donne pour distances focales 131 et 510 mm .

2. MONTAGE ET RÉGLAGES (voir schéma, *fig. 1*). — L'élément de référence est la platine porte-cristal (D) du monochromateur sur laquelle est centré un bras (C) portant le tube à rayons X (A). Une vis à pas fin (F) permet, par rotation de ce bras, de centrer très facilement le faisceau réfléchi sur le récepteur (S). De plus, on modifie la distance source-monochromateur par translation du tube à rayons X sur une glissière (B) parallèle à l'axe du bras et solidaire de ce dernier. On peut donc tester assez rapidement plusieurs lames de quartz en recherchant leurs distances focales de façon à obtenir un bon faisceau monochromatique, problème essentiel en diffusion centrale.

La fente de sortie (E) du monochromateur comprend deux lèvres en tantale indépendantes mues par vis micrométriques; elle est munie d'un mouvement de rotation autour de l'axe de la platine permettant de placer le plan des lèvres perpendiculairement à l'axe du faisceau. Une bonne séparation du doublet $K\alpha_1\text{-}\alpha_2$

FIG. 1. — Schéma d'ensemble du montage de diffusion centrale.

du cuivre justifie les commandes indépendantes des lèvres de la fente.

Le porte-échantillon (K) et la fente anti-diffusante (J) se trouvent à l'intérieur d'une cuve à vide primaire (I) fixée sur l'axe de rotation du goniomètre. La fente (J) peut être translatée indépendamment sous vide à l'aide de la vis micrométrique (H) de façon à détecter les bords du faisceau. Enfin, un guidage (L) assure la mise en place du porte-échantillon.

La cuve (I) est prolongée en amont et en aval par deux canaux, le premier cylindrique (G) vers le monochromateur et le second évasé (M) du côté du récepteur. Le trajet de 30 cm sous vide des rayons X augmente ainsi de près de 50 % le rendement de la diffusion mesurée par rapport au même trajet dans l'air, pour le rayonnement du cuivre.

Enfin, un puits escamotable (N) permet d'atténuer le faisceau direct, et une cassette amovible (R) fixée sur la fente de réception (Q) contient les filtres de nickel pour faire les mesures absolues d'intensité selon la méthode décrite par Luzzati [4].

Notons que la fente de réception est munie d'un réglage d'orientation par rotation dans le plan vertical.

Nous n'insisterons pas sur les différents réglages mécaniques à effectuer pour aligner les fentes et leur donner des ouvertures convenables pour éliminer la diffusion sur les bords, ces réglages ayant été fort bien décrits par Renouprez [6].

Système de refroidissement. — 1. DESCRIPTION. —

Le système de refroidissement est représenté par le schéma de la figure 2 montrant le porte-échantillon en position « sortie » (après translation sur les deux tiges (L) de guidage et rotation autour de l'axe XX', le porte-échantillon se trouve en position verticale).

L'échantillon est placé dans un évidement de surface égale à celle de l'échantillon ($25 \times 10 \text{ mm}^2$) à l'intérieur d'un bloc de cuivre (I) creusé en son centre pour le passage du faisceau de rayons X et dont le refroidissement est assuré par une circulation de méthanol arrivant par le tube (U) et sortant par le tube (V) (voir coupe a). Ainsi, la surface de contact cuivre-échantillon est suffisamment grande pour assurer la mise en température de ce dernier avec le minimum de pertes.

Les deux tubes de cuivre (U) et (V) sont reliés à la vanne de commande par deux soufflets en acier

FIG. 2. — Schéma du système de refroidissement.

inoxydable souples à basse température. Le liquide réfrigérant provient de deux cryostats munis de circulations, l'un à -80°C servant à faire la mesure et l'autre donnant des températures jusqu'à -50°C pour effectuer les vieillissements. On choisit l'une ou l'autre des circulations à l'aide d'une double vanne à boisseaux. Le débit des circulations est de 20 litres par minute et rend faible l'inertie du système.

2. MISE EN PLACE DE L'ÉCHANTILLON. — Les échantillons de 5/100 de mm d'épaisseur, après homogénéisation et trempe dans une solution de chlorure de calcium de composition eutectique à -54°C , sont nettoyés et stockés dans la cuve du cryostat à -80°C ; les courbes de résistivité montrent que les alliages métalliques n'évoluent pas à cette température [7].

Le porte-échantillon étant amené en position verticale après basculement et la circulation du cryostat à -80°C en marche, on amène l'échantillon dans un bécier rempli du méthanol froid sous le porte-échantillon de telle sorte que le bloc (K) soit immergé dans le liquide à -80°C ; puis, à l'aide de pinces, on met en place l'échantillon.

Il ne reste plus qu'à basculer le porte-échantillon autour de l'axe xx' , de le faire glisser sur les deux tiges de guidage (L) et de l'engager dans la cuve (I); à ce moment-là, le contacteur (T) met en marche la pompe à vide primaire.

3. MESURES ET PERFORMANCES. — Notons que l'ensemble des canalisations de circulation et la vanne sont calorifugées, mais qu'il se forme du givre sur les

permet cette observation). C'est pourquoi, avant de faire la mesure, nous attendons quelques minutes pour avoir un vide inférieur à la pression de vapeur saturante du méthanol à -80°C ($\sim 10^{-1}$ mm Hg).

Pour faire un vieillissement, il suffit d'actionner la commande de la vanne : c'est alors le méthanol de l'autre cryostat qui circule dans le porte-échantillon.

La température est mesurée à l'aide d'un thermocouple fer-constantan (W) arrivant au contact de l'échantillon, mais en fait il mesure la température du porte-échantillon. Nous avons alors installé un autre thermocouple soudé au centre d'un échantillon témoin et relevé les températures obtenues. Appelons T_P et T_E les températures mesurées respectivement sur le porte-échantillon (K) et au centre de l'échantillon. On constate que T_P est égale à la température du méthanol dans la cuve du cryostat, par contre T_E se stabilise au bout de quelques minutes à une température supérieure à T_P . La différence $T_P - T_E$ est égale à 7°C , 4°C et 3°C si l'on prend successivement $T_P = -80^{\circ}\text{C}$, -40°C et -20°C . La figure 3 montre ce que l'on obtient au cours d'un vieillissement.

Il suffit alors de faire la correction sur la température du cryostat pour obtenir la température de vieillissement désirée et de prendre des temps de vieillissement supérieurs à quelques minutes pour rendre négligeables les variations de températures observées au début et à la fin d'un traitement thermique.

Conclusion. — Cet appareil de diffusion centrale comprend deux éléments originaux importants par rapport à celui de Renouprez : le montage de l'ensemble tube-monochromateur et le système de refroidissement par conduction sous vide à l'aide d'une circulation de méthanol. Il se révèle d'un emploi simple, peut déceler des intensités diffusées, même très faibles, mesurables sur une échelle absolue.

Il nous sert actuellement à suivre les vieillissements à basse température d'échantillons d'aluminium-zinc et d'aluminium-argent afin d'étudier la cinétique de formation et de croissance des zones Guinier-Preston. Il faut donc suivre l'évolution de ces zones obtenues après une trempe la plus rapide possible dans un liquide froid pour observer les tout premiers stades du vieillissement des alliages afin de savoir si l'on a une décomposition spinodale avec fluctuations de composition selon le modèle de Cahn [8] comme le disent Rundman et Hilliard [9], ou bien une séparation immédiate en deux phases dont les compositions sont données par une lacune de miscibilité métastable selon Gerold et Merz [10-11], ou bien encore si l'on peut observer des états transitoires comme le montrent Bonfiglioli et Guinier [12].

Notons enfin que nous suivons à l'aide de mesures de diffusion à la température ambiante la transformation ordre-désordre dans les zones Guinier-Preston de l'aluminium-argent.

FIG. 3. — Évolution des températures au cours d'un vieillissement.

tubes U et V qui ne le sont pas; sous vide, ce givre disparaît rapidement; par contre, sur le bloc M, il reste du méthanol (un hublot en plexiglas sur la cuve (I)

BIBLIOGRAPHIE

- [1] GUINIER (A.) et FOURNET (G.), *Small Angle Scattering of X-Rays*, Wiley, New York, 1955.
  - [2] GERVAIS (H.), SELLA (C.) et SPRITZER (C.), *Bull. Soc. Franc. Miner. Crist.*, 1966, **89**, 2, 237.
  - [3] BONFIGLIOLI (A. F.) et TESTARD (O.), *Acta Cryst.*, 1964, **17**, 668.
  - [4] LUZZATI (V.), WITZ (J.) et BARO (R.), *J. Physique Rad.*, Suppl. 10, 1963, **24**, 141 A.
  - [5] BONFIGLIOLI (A. F.), *Comision Nacional de Energia Atomica*, Informe n° 111, Buenos Aires (Argentina), 1964.
  - [6] RENOUPEZ (A. J.), *J. Chim. Phys.*, 1965, **62**, 2, 131.
  - [7] TURNBULL (D.), ROSENBAUM (H. S.) et TREATFIS (H. N.), *Acta Met.*, 1960, **8**, 5, 277.
  - [8] CAHN (J. W.), *Acta Met.*, 1961, **9**, 795.
  - [9] RUNDMAN (K. B.) et HILLIARD (J. E.), *Acta Met.*, 1967, **15**, 6, 1025.
  - [10] MERZ (W.) et GEROLD (V.), *Z. Metallkunde*, 1966, **57**, 607 et 669.
  - [11] GEROLD (V.) et MERZ (W.), *Scripta Met.*, 1967, **1**, 1, 33.
  - [12] BONFIGLIOLI (A. F.) et GUINIER (A.), *Acta Met.*, 1966, **14**, 10, 1213.
-