

Progrès Réalisés dans la Construction des Tubes à Rayons X pour Cristallographie*

PAR STANISLAS GOLDSZTAUB

Laboratoire de Minéralogie, Strasbourg, France

(Reçu le 23 mai 1955)

A review is given of crystallographic X-ray tubes recently designed with the object of reducing exposure times. For this purpose a source of high brilliance, rather than of high power, is required so that research has been directed to reducing the size of the focal spot. There is, however, an optimum size of focus and no advantage is gained in using smaller foci than this optimum size.

Introduction

Depuis la dernière réunion de Londres où on avait fait le point de la question des sources de rayons X destinées aux recherches cristallographiques (Riley, 1950), de nombreux travaux ont été faits dans différents pays montrant ainsi l'intérêt grandissant du problème. Un accroissement de la brillance (quotient de la puissance dépensée dans le tube par la surface du foyer) présente en effet les avantages suivants: 1°. Il permet de réduire le temps de pose et par conséquent d'étudier des corps instables et d'aborder par exemple la cinétique des transformations. 2°. Il permet l'examen de cristaux de plus en plus petits. 3°. Il permet un emploi plus judicieux de monochromateurs.

Le principal obstacle que l'on rencontre lorsqu'on augmente la puissance d'un tube à rayons X consiste dans l'évacuation de la chaleur qui représente la presque totalité de l'énergie fournie.

Une étude détaillée de cette question a fait l'objet de plusieurs articles de Oosterkamp (1948). Il examine d'abord le cas où le régime permanent n'est pas atteint (tubes de radiographie médicale) car le temps de fonctionnement est très bref. Les anticathodes tournantes présentent alors un avantage considérable car elles permettent de décupler les brillances pendant un temps de l'ordre du dixième de seconde. Le cas du régime permanent comporte une étude détaillée de l'évacuation de la chaleur produite dans des foyers de différentes formes: linéaire, circulaire ou elliptique. L'auteur n'insiste cependant pas sur l'intérêt qu'il y a à réduire les dimensions linéaires du foyer pour augmenter sa brillance; par contre, il met en évidence le rôle de l'épaisseur de l'anticathode. Cette épaisseur doit être du même ordre que la dimension linéaire du foyer mais ne peut, pour des raisons de sécurité, être inférieure à 0,5 mm.

En U.R.S.S., Pines (1952) insiste sur l'augmentation de la brillance admissible lorsqu'on réduit la dimen-

sion du foyer, résultat qui avait été indiqué précédemment par Guinier & Devaux (1943), Goldsztaub (1947) et Castaing (1951).

Les réalisations pratiques de tubes à brillance élevée fonctionnant en régime continu ont été assez nombreuses: elles sont basées: 1° sur l'emploi d'anticathodes tournantes; 2° sur la réalisation de foyers fins; ou bien 3° sur l'utilisation des deux procédés précédents réunis.

Tubes à anticathode tournante

1°. Taylor (1949) a construit un tel tube. L'étanchéité est assurée par des joints en caoutchouc, le foyer est linéaire et mesure 10×0,5 mm. L'intensité peut atteindre une centaine de milliampères sous 45 kV. ce qui correspond à une brillance de 900 W. mm.⁻².

2°. Owen (1953) a adapté au tube à gaz du type Shearer modifié une anticathode tournante. Aucune donnée quantitative n'a été publiée par cet auteur qui indique seulement que d'excellents diagrammes de métaux purs ont été obtenus en trois minutes.

Tubes à foyer fin et anticathode fixe

Des essais ont été faits en particulier en France pour réduire économiquement les dimensions de la tache focale en polarisant négativement le Wehnelt comme l'avait indiqué Guinier & Devaux (1943) et Legrand (1951) ou bien en réduisant les dimensions de l'anticathode elle même (Barraud (1952); Drenck & Pepinsky (1951)).

Cependant les travaux de Thorp (1950, 1951) ont montré que le système du Wehnelt polarisé tout en permettant de réduire considérablement la tache focale, donnait une distribution des électrons non uniforme sur l'anticathode. La brillance effectivement réalisée se trouve ainsi nettement inférieure à celle qu'on pouvait escompter dans le cas d'un foyer uniformément chargé.

La raison essentielle de ce défaut réside dans la dispersion des vitesses thermiques des électrons à la sortie du filament ainsi que dans la mauvaise définition du champ électrique au voisinage du filament. L'em-

* Ce travail de mise au point a été fait à l'instigation de la Commission des Appareils de l'Union Internationale de Cristallographie.

ploi de cathodes équipotentiellles permettrait de supprimer presque complètement ce défaut comme cela a été réalisé dans les oscillographes utilisant des cathodes à chauffage indirect. Les tensions élevées utilisées dans les tubes à rayons X ainsi que la contamination rapide inévitable dans les tubes démontables ne permet pas à l'heure actuelle leur utilisation. Les cathodes en ruban de tungstène bien que moins parfaites, ont été essayées par Thorp qui a constaté une répartition bien plus uniforme des électrons dans la tache focale. Un dispositif de ce type a été utilisé par Gay, Hirsch, Thorp & Kellar (1951) dans un tube à anticathode tournante.

Une réalisation particulièrement intéressante à cause de sa simplicité et de son efficacité est celle d'Ehrenberg & Spear (1951). Une électrode cylindrique munie d'un diaphragme centré sur un filament en épingle à cheveux très pointue forme la cathode. Une polarisation du diaphragme permet de réaliser une source d'électrons sensiblement équipotentielle. L'anticathode cylindrique constitue l'anode portée à 50 kV. par rapport à la terre à laquelle se trouve reliée la cathode, contrairement à la disposition habituelle. L'anticathode est refroidie par la circulation d'un liquide non conducteur tel le tétrachlorure de carbone. Ce dispositif permet d'obtenir des foyer de 40μ de diamètre avec des intensités de 0,3 à 0,5 mA. ce qui correspond à une brillance de 8 kW. mm.⁻².

Des travaux intéressants dans ce domaine ont également été poursuivis en U.R.S.S. où Kogan & Pines (1952) ont réalisé un tube à foyer fin de construction différente. La cathode et l'anode ont la forme de cônes de révolution coaxiaux avec un demi-angle au sommet de $67,5^\circ$. Le filament de 0,15 mm. de diamètre est disposé devant un orifice de 0,5 mm. percé au sommet du cône cathodique. Les rayons X issus du foyer qui se trouve au sommet du cône anodique sortent suivant l'axe des cônes, à travers la cathode et une fenêtre située derrière le filament dans la partie cathodique du tube. L'anticathode est portée à un potentiel positif par rapport à la terre à laquelle se trouve réunie la cathode. Le fait que les rayons X utilisés sortent presque normalement à la surface de la tache focale semble avantageux dans le cas de formation d'un cratère dont les bords arrêtent rapidement tout rayonnement dans une direction oblique. Le foyer obtenu dans ces tubes est de l'ordre de 0,005 mm.² avec une intensité de 0,5 mA. sous 50 kV., ce qui correspond à une brillance de 5 kW. mm.⁻² pour une puissance totale de 25 W. Ce tube permet d'obtenir en quelques minutes un diagramme de Debye & Scherrer avec une chambre de 57,4 mm. et une préparation de 0,1 mm. de diamètre. Le doublet $K\alpha$ est résolu dans tous les ordres.

Tubes à foyer fin et anticathode tournante

Le canon à électrons étudié par Thorp (1950) a été utilisé dans un tube à anticathode tournante mis au

point par Gay *et al.* (1951). Le foyer obtenu a $1,5 \times 0,5$ mm. avec une intensité de 20 mA. sous 40 kV. ce qui donne une brillance de 4,4 kW. mm.⁻². Le temps de pose se trouve réduit vingt fois.

L'étude des faisceaux électroniques dans les tubes à rayons X présente deux difficultés: (1°) étant donné la densité du faisceau électronique il est indispensable de tenir compte de la charge d'espace, et (2°) le champ au voisinage du filament est en général mal défini. Aussi les résultats obtenus à partir des tracés classiques des équipotentiellles sont très souvent en désaccord avec ceux de l'expérience.

Il existe cependant une méthode mise au point par Pierce (1940) pour la construction de klystrons qui devrait permettre d'obtenir une solution plus correcte. Drenk & Pepinsky (1951) l'ont utilisée dans la construction du tube à microfoyer dont la source d'électrons est équipotentielle car elle est chauffée par bombardement électronique et les électrodes se rapprochent aussi près que les moyens de réalisation le permettent de la forme indiquée par Pierce pour obtenir un faisceau conique d'électrons.

Il semble que les constructeurs russes aient également utilisé les travaux de Pierce en donnant aux électrodes une forme conique avec un demi-angle au sommet de $67,5^\circ$ angle indiqué par cet auteur.

L'emploi des canons électroniques permet de réaliser des taches focales de 50μ environ. Toutefois pour atteindre ces dimensions de foyer, leur exécution doit être très soignée. Pour obtenir des foyers beaucoup plus petits ou simplement éviter les difficultés de construction de canons à électrons donnant des foyers très fins, on peut utiliser un système de lentilles électroniques donnant une image réduite du 'cross-over' du canon électronique. Ils ont obtenu ainsi un foyer de 30μ avec une brillance de 15 kW. mm.⁻² sous 35 kV.

Cosslet (1953), en utilisant un système à deux lentilles, a réalisé des foyers de 1μ destinés au microscope à ombre, la brillance théorique est alors de 680 kW. mm.⁻².

Signalons aussi un dispositif de focalisation électrostatique construit par Mihailović & Rimsky (1954).

Choix de la dimension du foyer

Nous voyons d'après ce qui précède qu'au prix de certains efforts on arrive à réaliser des sources de rayons X extrêmement petites. Il faut se poser à présent la question du choix de la dimension optimum de la source suivant les applications. Le problème n'est pas simple car les facteurs qui interviennent diffèrent suivant les cas. C'est ainsi que Huxley (1953) fait les hypothèses suivantes:

(1) Le maximum d'intensité se trouve au centre de l'image diffractée par le cristal, sa position ne dépend pas de la distribution de l'intensité dans l'image.

(2) L'absorption du cristal est négligé.

(3) L'image de diffraction donnée par le cristal est l'image géométrique qu'en donnerait un foyer ponctuel.

(4) Le cristal est isométrique (mêmes dimensions dans toutes les directions de l'espace).

(5) La résolution au centre du diagramme est suffisamment faible pour pouvoir négliger la diffusion par le collimateur.

En plus de ces hypothèses, l'auteur admet que la brillance d'un tube varie comme $1/f$ dans le cas d'une anticathode fixe et comme $1/\sqrt{f}$ pour une anticathode tournante, f étant le diamètre de la tache focale. Il démontre alors que les conditions optima sont réalisées dans le cas d'un cristal de dimension donnée pour un tube à anticathode fixe ayant un foyer trois fois plus grand que le cristal, le foyer est cinq fois plus grand dans le cas d'une anticathode tournante. La distance foyer-cristal doit être le double de la distance cristal-film.

Ces résultats assez surprenants montrent l'importance des hypothèses admises.

Un problème analogue a été examiné par Guinier. Il considère un échantillon constitué par une feuille mince placée au centre d'une chambre circulaire et cherche la dimension optimum du foyer pour que l'intensité des raies de diffraction soient maximum. C'est ainsi qu'un foyer de 50μ correspond à une chambre de rayon $R = 1,6$ mm. et une distance échantillon-foyer de 2,8 mm., solution irréalisable principalement à cause du grain du film. Une solution possible consisterait à prendre une chambre de 10 mm. de rayon, un échantillon placé à 18 mm. du foyer, dont le foyer devrait avoir dans ces conditions un diamètre de 0,34 mm.

La méthode de Debye & Scherrer ne nécessite donc pas de foyers très petits, inférieurs à quelques dixièmes de millimètres. On peut considérer que la dimension optimum du foyer est telle que sa longueur apparente soit de même ordre que celle de l'échantillon.

L'influence de la largeur spectrale des raies de rayons X utilisées a été examinée par Pines. C'est elle qui limite la largeur des raies de diffraction dans le cas d'un foyer ponctuel et d'un cristal parfait. En admettant que $\Delta\lambda/\lambda = 10^{-4}$ la largeur angulaire d'une raie Debye & Scherrer est $\Delta\theta = (\Delta\lambda/\lambda) \operatorname{tg} \theta$, soit $10^{-4} \operatorname{tg} \theta$. Une raie de 0,05 mm. obtenue avec une chambre de 28,7 mm. de rayon correspond à une largeur angulaire $\Delta\theta = 2 \times 10^{-3}$, égale par conséquent à la largeur spectrale pour $\operatorname{tg} \theta = 5$ ($\theta = 78^\circ 40'$). Si la préparation se trouve à égale distance du foyer et du film, la largeur de la raie est de même ordre que la dimension du foyer. Il n'est donc pas nécessaire de

le réduire au delà de la largeur limite de la raie déterminée par sa largeur spectrale soit 0,05 mm.

Les conclusions qu'on peut tirer de ces travaux sont: on a intérêt à réduire le plus possible la distance cristal-film. C'est la dispersion du cristal, c'est à dire la dimension de la maille, qui limite ce rayon. Ce rayon une fois fixé, on doit se servir d'un tube dont le foyer soit défini par la largeur spectrale de la raie qu'il émet.

Tubes à décharge

Avant de terminer, je voudrais mentionner les tubes à rayons X à décharge qui ont été mis au point pour obtenir des radiographies ultrarapides (10^{-6} seconde). Ces tubes doivent pouvoir être utilisés pour la radiocristallographie. Quelques essais ont déjà été faits. Schall (1950) a obtenu des diagrammes de mica courbe en 0,5 microsecondes.

Boublik & Pines (1952) en Russie ont obtenu des diagrammes de Debye & Scherrer avec des décharges de 0,03 et 0,05 secondes. Bien que ces études soient à leur début, elles sont fort encourageantes.

Bibliographie

- BARRAUD, J. (1952). *C. R. Acad. Sci., Paris*, **234**, 614.
BOUBLIK, A. & PINES, B. (1952). *Izv. Akad. Nauk. SSSR. Ser. Fiz.* **16**, 350.
CASTAING, R. (1951). Thèse Sciences, Paris.
COSSLETT, V. E. (1953). *J. Appl. Phys.* **24**, 616.
DRENCK, K. & PEPINSKY, R. (1951). *Rev. Sci. Instrum.* **22**, 539.
EHRENBERG, W. & SPEAR, W. E. (1951). *Proc. Phys. Soc.* **64**, 67.
GAY, P., HIRSCH, P. B., THORP, J. S. & KELLAR, J. N. (1951). *Proc. Phys. Soc.* **64**, 374.
GOLDSZTAUB, S. (1947). *C. R. Acad. Sci., Paris*, **224**, 458.
GUINIER, A. & DEVAUX, J. (1943). *C. R. Acad. Sci., Paris*, **217**, 682.
HUXLEY, H. E. (1953). *Acta Cryst.* **6**, 457.
KOGAN, V. & PINES, B. (1952). *Izv. Akad. Nauk, SSSR. Ser. Fiz.* **16**, 339.
LEGRAND, C. (1951). *J. Rech. Cent. Nat. Rech. Sci.* **16**, 31.
MIHALOVIĆ, Z. & RIMSKY, A. (1954). *Brevet français P. V.* **670**, 209.
OOSTERKAMP, W. J. (1948). *Philips Research Reports*, **3**, 303.
OWEN, E. A. (1953). *J. Sci. Instrum.* **30**, 393.
PIERCE, J. R. (1940). *J. Appl. Phys.* **11**, 548.
PINES, B. (1952). *Izv. Akad. Nauk, SSSR. Ser. Fiz.* **16**, 333.
RILEY, D. P. (1950). *Nature, Lond.* **165**, 870.
SCHALL, R. (1950). *Z. angew. Phys.* **2**, 83.
TAYLOR, A. (1949). *J. Sci. Instrum.* **26**, 225.
THORP, J. S. (1949). *J. Sci. Instrum.* **26**, 201.
THORP, J. S. (1950). *Brit. J. Appl. Phys.* **1**, 144.
THORP, J. S. (1951). *J. Sci. Instrum.* **28**, 239.