

Cryostat compatible avec le diffractomètre à géométrie Kappa et à détecteur CCD

(Dr Pierre Fertey)

Les études de diffraction aux basses températures ($T \sim 4 \text{ K}$) nécessitent la conception et la réalisation d'un cryostat optique compatible avec le diffractomètre hôte (i.e. diffractomètre 4 cercles équipé d'un détecteur bidimensionnel, tel que le diffractomètre Nonius Kappa-CCD). Aucun dispositif « de laboratoire » ne permet actuellement de réaliser des expériences de diffraction avec de telles contraintes à un coût raisonnable. Les difficultés principales proviennent de la recherche du compromis entre les différentes limitations apportées par le dispositif cryogénique, les nouvelles possibilités d'analyse offertes par l'emploi d'un détecteur bidimensionnel et le prix de réalisation qui doit rester « raisonnable » pour un équipement de laboratoire.

Nous avons ainsi établi une collaboration avec le Laboratoire de Cristallographie de Grenoble (CNRS UPR 5031) dont l'objectif est la conception, l'étude, la réalisation et les tests d'un tel d'un cryostat à hélium, fonctionnant sur diffractomètres à monocristaux équipés de détecteurs CCD (2D). Le budget initial a été évalué à 61 k€, entièrement financé par le CNRS, le diffractomètre ayant été financé par le Ministère de la Recherche (DS2), l'Université Henri Poincaré - Nancy I et le Conseil Régional de Lorraine.

Le dispositif complet comprend trois parties principales :

- a) le support de l'échantillon permettant d'orienter ce dernier afin de collecter l'information « cristallographique »,
- b) le cryostat optique,
- c) le support du cryostat permettant un positionnement précis (à 0.005 mm près) du cryostat sur le diffractomètre.

Un bref descriptif est donné ci-dessous.

a) Support de l'échantillon (figure 1)

Le cristal est placé à l'intérieur du cryostat optique sur un support permettant son orientation. L'orientation de l'échantillon dans le faisceau de rayons X incidents (deux rotations ω et φ) est réalisée par l'intermédiaire d'un couplage magnétique entre deux aimants : l'aimant "esclave" est solidaire du support de l'échantillon tandis que l'aimant "maître" est fixé sur le bras K du goniomètre, à la place de la tête goniométrique usuelle. Afin de limiter les sources de blocage des mouvements de l'échantillon lors du refroidissement, nous avons opté pour une solution où les contacts mécaniques entre les axes de rotation et leur support sont très réduits (paliers magnétiques).

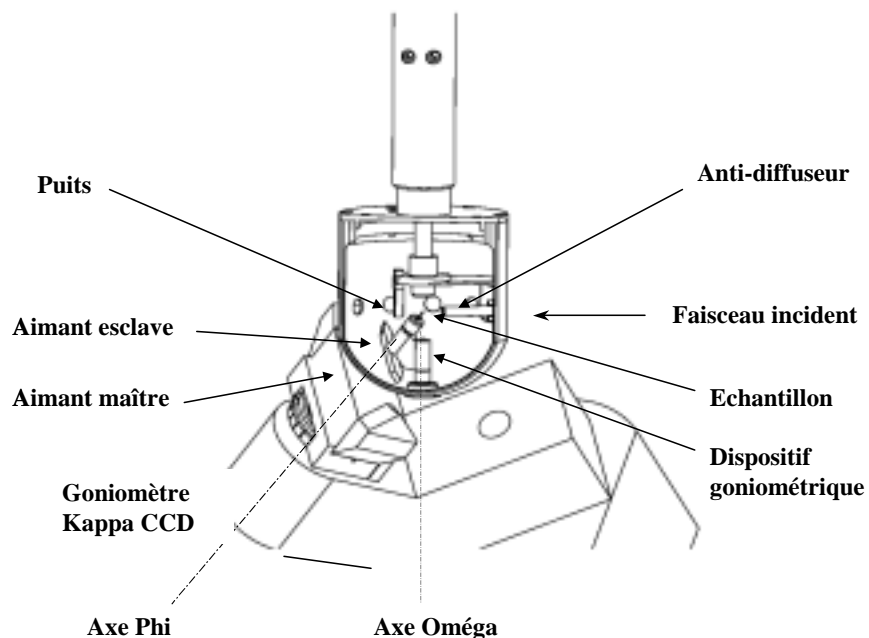


Figure 1 : Schéma de principe du dispositif permettant l'orientation du cristal dans le faisceau de rayons X

b) Cryostat (figure 2)

Un cryostat à bain d'Hélium a été retenu (Cryostat Orange de AS Scientific Products Ltd). Outre l'accès aux basses températures ($T \sim 4$ K), le cryostat présente en particulier une fenêtre optique de grande dimension compatible avec l'angle solide imposé par la surface active du détecteur bidimensionnel (65 mm*65 mm) lorsque ce dernier est placé à la distance minimale de l'échantillon (35 mm). Cette contrainte a notamment impliqué la conception et la réalisation de « queues » adaptées.

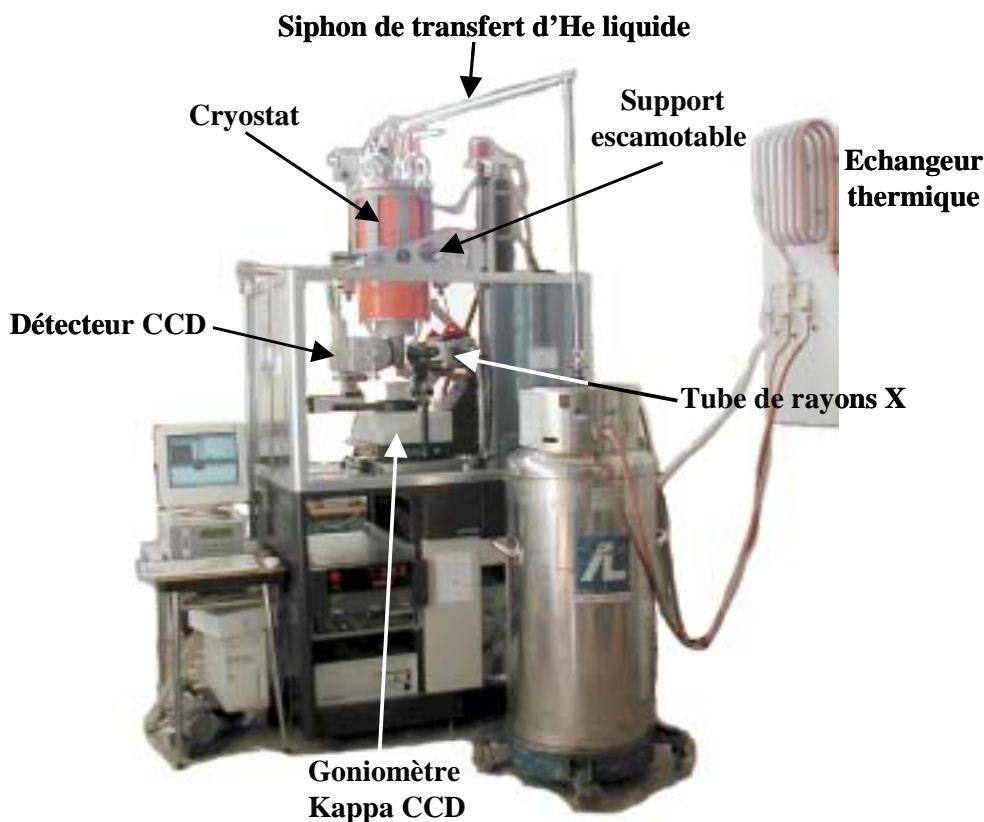


Figure 2 : Dispositif de diffraction des Rayons X à très basse température.

c) Support du cryostat (figure 3)

Un support mécanique permettant le chargement du cristal dans le cryostat, la mise en place du dispositif sur le diffractomètre et un centrage précis de l'échantillon a été conçu. Il comporte des mouvements motorisés permettant le centrage précis de l'échantillon sur le diffractomètre (à 0.005 mm près). Des mouvements supplémentaires ont été prévus :

Rotation du cryostat sur lui-même afin d'avoir accès à la diffraction «haute résolution» (cf. figure 3),

Rotation et translation verticales de l'ensemble du dispositif pour la mise en place de l'échantillon dans le cryostat (cryostat « top-load ») et le « stockage » du dispositif.

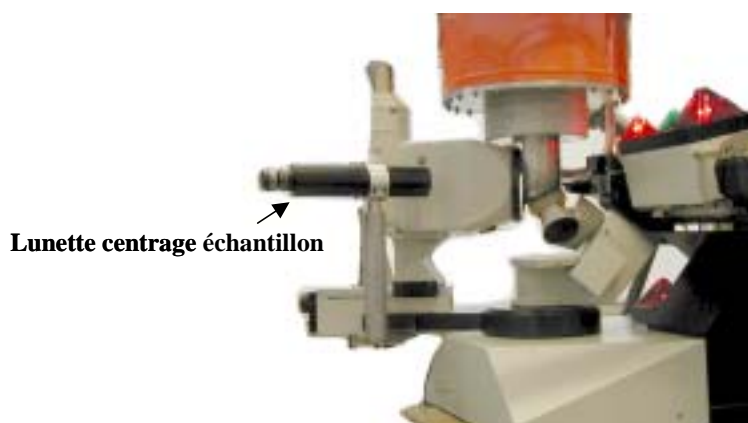


Figure 3 : Configuration pour une expérience dans laquelle le détecteur 2D n'est pas perpendiculaire au faisceau de rayons X incidents.

La première phase de tests a permis de valider le dispositif d'orientation du cristal par couplage magnétique. Les résultats, présentés à l'occasion du 19^{ème} congrès de l'Association Européenne de Cristallographie (Nancy, Août 2000), ont été obtenus sur un dispositif simplifié (i.e. adaptation du cryostat à flux d'hélium du laboratoire de Cristallographie de Grenoble). La structure de la L-cystéine a été déterminée à 30 K et comparée à celle obtenue avec le dispositif de refroidissement Helix Oxford Cryosystem : l'écart entre les paramètres structuraux (positions atomiques, paramètres d'agitation thermique anisotrope) obtenus avec les deux série de mesures est excellent ($< 2 \sigma$).

Fort de ces résultats très encourageants, le cahier des charges du cryostat à bain d'hélium a été défini afin que, à la température d'étude souhaitée, la position du cristal reste inchangée lorsque le niveau des fluides cryogéniques des réservoirs du cryostat (hélium et azote liquides) diminue. Enfin, le support mécanique du cryostat et le dispositif de centrage de l'échantillon ont été réalisés.

Les premiers tests du dispositif final ont été effectués sur un cristal de DyVO_4 . Ce composé est bien connu pour sa transition orthorhombique-quadratique autour de 14 K. La figure 4 présente les variations de la largeur de la raie 6 6 0 au passage de la transition. L'ensemble de données mesurées (20 K et 3.3 K) sont en cours de traitement.

Raie 6 6 0

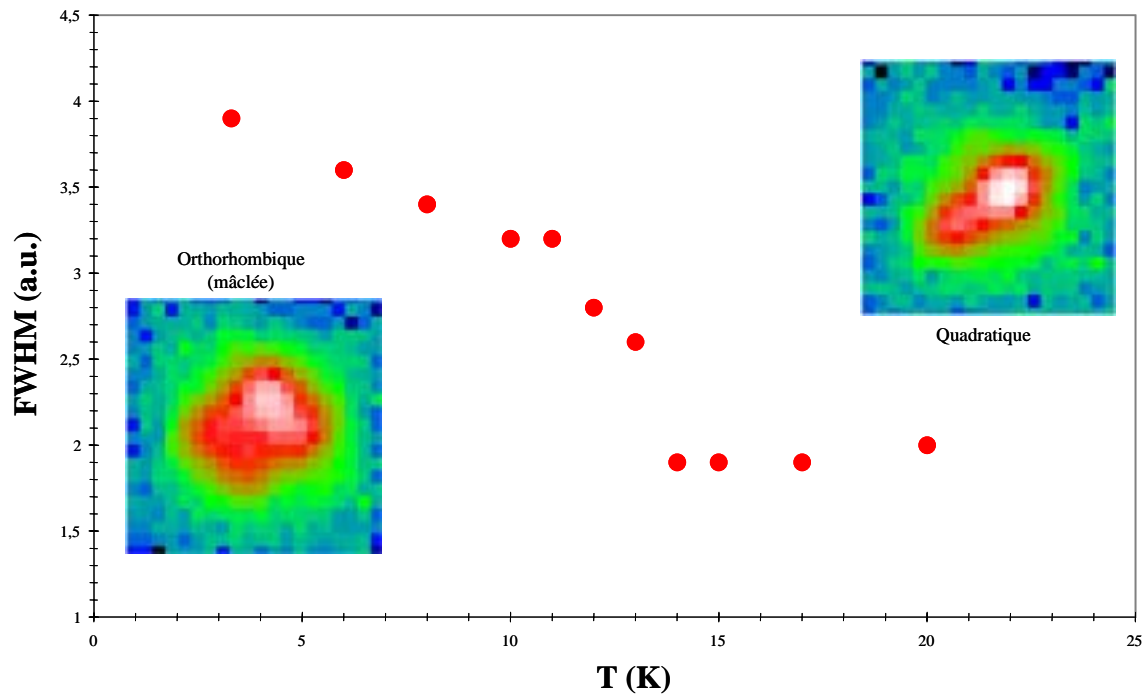


Figure 4 : Evolution de la largeur de la réflexion 6 6 0 de DyVO4 en fonction de la température, au passage de la transition quadratique-orthorhombique. A basse température, l'élargissement reflète la maillage de la structure.

Une deuxième expérience a été réalisée sur le composé supraconducteur MgB_2 ($T_c = 39$ K). Trois séries de mesures ont été effectuées de part et d'autre de la transition (30K, 40K et 50K). L'objectif de cette étude (en cours de traitement) est de mettre en évidence une éventuelle variation de la densité électronique lors du passage de la transition.