Les termes d'ordre supérieur dans la diffraction des rayons X par les cristaux

Lise Bonnelance et **Konrad Bleuler.** — *Les termes d'ordre supérieur dans la diffraction des rayons X par les cristaux.*

La façon la plus simple de calculer la diffraction des rayons X par un cristal consiste à calculer le réseau de Fourier correspondant à la densité électronique, c'est-à-dire la transformée de Fourier de celle-ci. Dans le cas du cristal non perturbé, cette intensité est différente de zéro seulement dans les points $\mathbf{b}_h$ du réseau réciproque (taches d'interférences dans le diagramme de Laue), tandis que la perturbation thermique donne lieu à une répartition continue supplémentaire (fond continu dans le diagramme de Laue).

Nous nous proposons de calculer approximativement cette répartition selon la formule générale, qui a été donnée récemment [1]. Dans ce but, nous introduisons les simplifications suivantes (dans la notation de l'article cité):

$$^{i}v(\mathbf{k}) = v_0 \,, \qquad i = 1,\, 2,\, 3 \qquad (a)$$

(v_0 signifie la vitesse moyenne des trois ondes acoustiques);

$$^{i}\xi^{0}(\mathbf{k}) \perp {}^{k}\xi^{0}(\mathbf{k}) \,, \qquad i \neq k \qquad (b)$$

(on suppose que les trois directions de polarisation sont orthogonales les unes aux autres);

$$\varphi(\mathbf{b}_h + \mathbf{k}) = \varphi(\mathbf{b}_h) \qquad (c)$$

$$f_n(\mathbf{b}_h + \mathbf{k},\, \mathbf{k}) = f_n(\mathbf{b}_h,\, \mathbf{k}) \,.$$

On définit une température relative par

$$t = \frac{T}{T_0} \,, \qquad T_0 = 2 m v_0^2 \,. \qquad \text{(cas classique)}$$

Nous trouvons alors, pour la répartition continue, $i^2(b_h + k)$, où $\mathbf{b}_h + \mathbf{k}$ signifie l'endroit dans l'espace réciproque, une série

[1] K. Bleuler et J. Weigle, *Théorie de l'influence thermique sur la réflexion des rayons X par les cristaux.* Helv. Phys. Acta, *15*, 553.

dont les termes supérieurs sont déterminés par une itération:

$$i^2(\mathbf{b}_h + \mathbf{k}) = \text{const.}\, e^{-2M} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{t^n}{n\,!} 2^n f_n(\mathbf{b}_h, \mathbf{k}) \ ,$$

$$f_n(\mathbf{b}_h, \mathbf{k}) = \int_{|\mathbf{k}'| \leq d} \frac{|\mathbf{b}_h|^2}{|\mathbf{k} - \mathbf{k}'|^2} f_{n-1}(\mathbf{b}_h, \mathbf{k}') \frac{dv_k}{v_b} \ ,$$

$$f_1(\mathbf{b}_h, \mathbf{k}) = \frac{|\mathbf{b}_h|^2}{|\mathbf{k}|^2} \ , \qquad M = t \int_{|\mathbf{k}'| \leq d} \frac{|\mathbf{b}_h|^2}{|\mathbf{k}|^2} \frac{dv_k}{v_b} = t \frac{4\pi d}{v_b} |\mathbf{b}_h|^2$$

dv_k = élément de volume dans l'espace réciproque,
v_b = volume de la maille du réseau réciproque,
d = rayon de la sphère dont le volume est égal à v_b.

Pour effectuer ces intégrations, nous nous sommes servis des coordonnées polaires et d'un développement en puissances de $\frac{|\mathbf{k}|}{d}$. Ainsi nous trouvons:

$$f_2(\mathbf{b}_h, \mathbf{k}) = \frac{4\pi |\mathbf{b}_h|^4}{d\, v_b} \left[\frac{\pi^2}{4} \frac{d}{|\mathbf{k}|} - 1 + c_2 \frac{|\mathbf{k}|^2}{d^2} + \ldots \right]$$

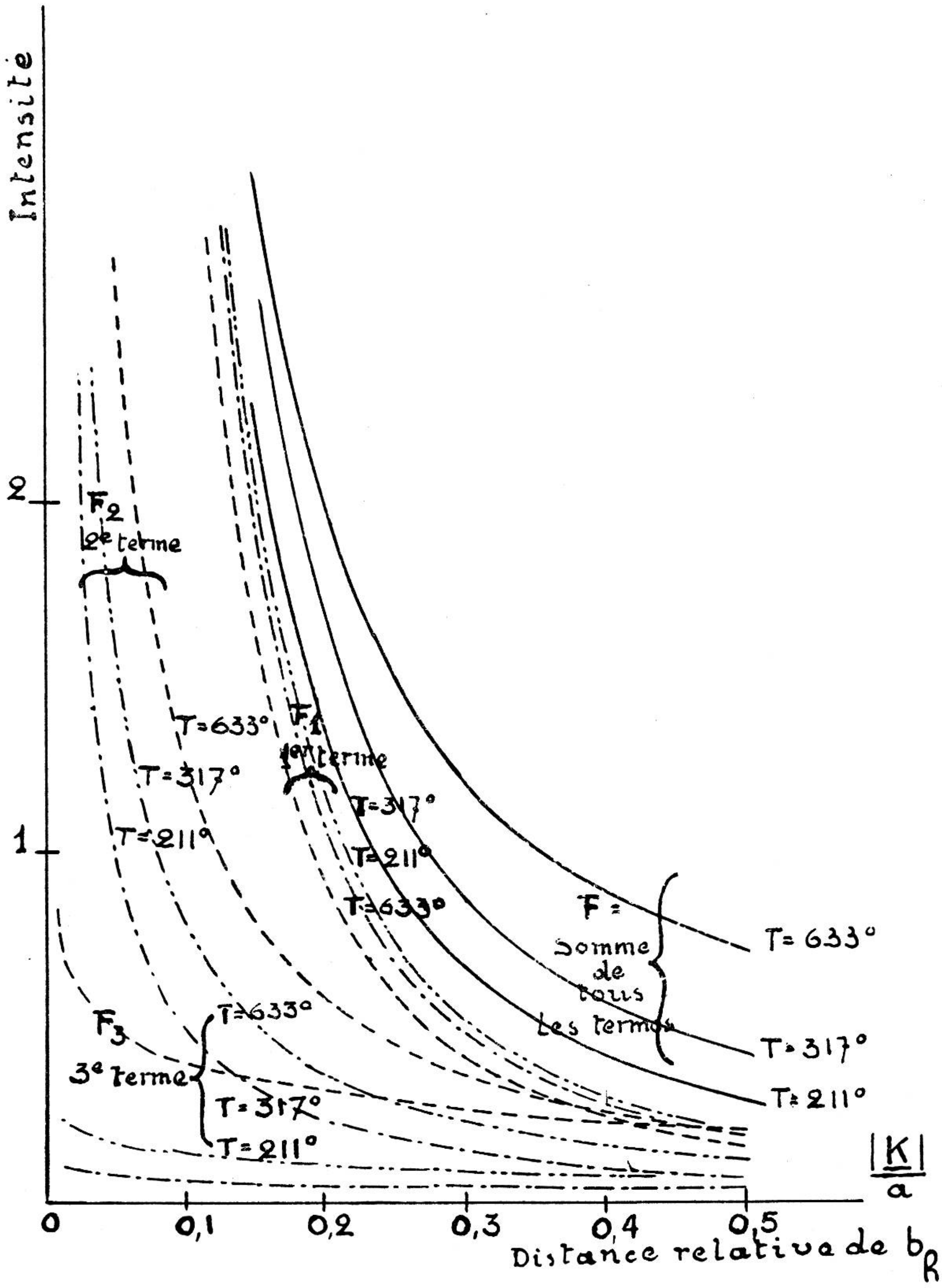
$$f_3(\mathbf{b}_h, \mathbf{k}) = \frac{(4\pi)^2 |\mathbf{b}_h|^6}{v_b^2} \left[\frac{\pi^2}{4} \lg \frac{d}{|\mathbf{k}|} + \frac{\pi^2}{4} - 1 + C_2 \frac{|\mathbf{k}|^2}{d^2} + \ldots \right] \cdot$$

On voit que l'itération par le noyau singulier, mais intégrable, revient à prendre une certaine moyenne sur la fonction précédente. Elle a comme effet de diminuer les singularités:

$$f_1 \sim \frac{1}{|\mathbf{k}|^2} \ , \qquad f_2 \sim \frac{1}{|\mathbf{k}|} \ , \qquad f_3 \sim \lg |\mathbf{k}|$$

A partir de f_4, les singularités disparaissent et les termes deviennent de plus en plus constants. Comme les termes singuliers sont les plus importants (ils représentent les maxima au voisinage des points de Laue, qui sont expérimentalement mesurables), il nous suffit de calculer la valeur moyenne de la somme de tous les termes à partir du quatrième. Selon une formule donnée dans le travail mentionné, nous trouvons, pour la valeur moyenne de la somme de tous les termes:

$$\overline{i^2(\mathbf{b}_h + \mathbf{k})} \cong \text{const}\left[1 - e^{-2M}\right] \ .$$


Intensité
2
1
0
0,1
0,2
0,3
0,4
0,5
F2
2e terme
T=633°
T=317°
T=211°
F1
1er terme
T=317°
T=211°
T=633°
F3
3e terme
T=633°
T=317°
T=211°
F =
Somme
de
tous
les termes
T= 633°
T= 317°
T= 211°
|K|/a
Distance relative de bR

Pour terminer, nous donnons une application de nos formules dans le cas du cristal NaCl, que nous avons idéalisé par un réseau cubique simple, dont le poids atomique moyen est 29,25. v_0 sera la vitesse acoustique:

$$v_0 = 3 \cdot 10^5 \frac{\mathrm{cm}}{\mathrm{sec}} \cdot$$

Nous avons représenté, dans la figure, les trois premiers termes, ainsi que la somme pour le cas:

$$(h) = h_1 , h_2 , h_3 = 2 , 2 , 2$$

et pour les températures absolues:

$$T_1 = 211° \ , \quad T_2 = 317° \ , \quad T_3 = 633° \ .$$

Nos courbes représentent les expressions sans dimensions:

$$F_n\left(T , \frac{|\mathbf{k}|}{a}\right) = e^{-2M} \frac{t^n}{n!} 2^n f_n(\mathbf{b}_h , \mathbf{k})$$

$$F\left(T , \frac{|\mathbf{k}|}{a}\right) = \sum_{n=1}^{\infty} F_n$$

où nous introduisons, comme argument, la grandeur relative $\frac{|k|}{a}$, a étant la constante du réseau réciproque.

Les résultats condensés dans la figure sont intéressants pour plusieurs raisons. Tout d'abord, comme on peut le voir d'après cette note, les calculs relatifs aux termes supérieurs sont très compliqués et il est remarquable de noter que, dans la région immédiatement voisine du point de Laue, seul le premier terme (facile à calculer) détermine la diffraction. Si la diffraction sur le plan considéré se fait sous un angle de 45°, on peut dire que, jusqu'à environ 5° du point de Laue, le premier terme seul intervient. Ainsi la dispersion des ondes thermiques, les vibrations optiques, etc. ne jouent alors aucun rôle. Ensuite, on voit que le premier terme possède dans l'intervalle de température considéré un maximum. Ainsi la démonstration est faite que la diffusion thermique en dehors de l'angle de Bragg peut diminuer avec l'augmentation de température. C'est là un effet nouveau, dont il faudra tenir compte dans l'interprétation des résultats expérimentaux.

Université de Genève.
Institut de Physique.