Helvetica Physica Acta
10 (1937)
VI
Réflexions simultanées des rayons X et excitation indirecte
Blanc, Madeleine / Weigle, Jean

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften auf E-Periodica. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Zeitschriften und ist nicht verantwortlich für deren Inhalte. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern beziehungsweise den externen Rechteinhabern. Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen sowie auf Social Media-Kanälen oder Webseiten ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. <u>Mehr erfahren</u>

Conditions d'utilisation

L'ETH Library est le fournisseur des revues numérisées. Elle ne détient aucun droit d'auteur sur les revues et n'est pas responsable de leur contenu. En règle générale, les droits sont détenus par les éditeurs ou les détenteurs de droits externes. La reproduction d'images dans des publications imprimées ou en ligne ainsi que sur des canaux de médias sociaux ou des sites web n'est autorisée qu'avec l'accord préalable des détenteurs des droits. <u>En savoir plus</u>

Terms of use

The ETH Library is the provider of the digitised journals. It does not own any copyrights to the journals and is not responsible for their content. The rights usually lie with the publishers or the external rights holders. Publishing images in print and online publications, as well as on social media channels or websites, is only permitted with the prior consent of the rights holders. <u>Find out more</u>

Download PDF: 15.07.2025

ETH-Bibliothek Zürich, E-Periodica, https://www.e-periodica.ch

Réflexions simultanées des rayons X et excitation indirecte par Madeleine Blanc et Jean Weigle.

(24. XI. 37.)

Les réflexions simultanées des rayons X par plusieurs plans réticulaires d'un cristal ont été étudiées récemment¹) ²) ³) et elles ont mis en évidence un phénomène qui jusqu'ici n'avait pas été imaginé, et auquel EWALD a donné le nom d'excitation détournée ou indirecte.

Le principe de ce phénomène concerne la transmission d'énergie d'une onde à une autre parmi les ondes possibles se propageant dans le cristal. La théorie dynamique d'Ewald montre très clairement que lorsque deux ondes seulement peuvent se propager dans un cristal (réflexion simple), il y a un échange d'énergie continuel entre elles. Les deux ondes sont couplées et la transmission d'énergie se fait par réflexion sur un plan réticulaire du cristal. Si l'excitation des ondes est produite par une onde extérieure tombant sur le cristal, on pourra décrire le phénomène en disant que l'onde incidente de vecteur \tilde{k}_0 se réfléchit sur le plan réticulaire que nous appellerons m pour donner l'onde \overline{k}_m . Celle-ci se réfléchissant à son tour sur le plan -m redonne de l'énergie à $\tilde{k_0}$. Il y a donc continuellement passage d'énergie d'une onde à l'autre. Lorsque le cristal absorbe les rayons X, les facteurs de structure des plans m et -m ne sont plus égaux, ce qui fait qu'un équilibre ne peut plus s'établir entre les énergies des deux ondes.

Les échanges sont plus compliqués lors des réflexions simultanées et pour la suite nous ne considérerons que le cas le plus simple de ces réflexions, en admettant que trois ondes seulement se propagent dans le cristal. Lorsque deux plans d'indices de Miller $m(m_1m_2m_3)$ et $p(p_1p_2p_3)$ réfléchissent simultanément les rayons X la géométrie du cristal introduit automatiquement un troisième plan d'indices m - p sur lequel la réflexion des ondes $\vec{k_p}$ et $\vec{k_m}$ peut avoir lieu pour la longueur d'onde considérée. Les

¹) RENNINGER, Zeit. f. Phys. 106, 141, 1937.

²) WEIGLE et MÜHSAM, Helv. Phys. Acta 10, 139, 1937.

³) CAUCHOIS, HULUBEI et WEIGLE, Helv. Phys. Acta 10, 218, 1937.







Fig. 1b.

échanges d'énergie se font alors de la façon suivante (figure 1a). L'onde $\vec{k_0}$ donne, se réfléchissant sur les plans m et p, les ondes \vec{k}_m et \vec{k}_p . \vec{k}_m se réfléchissant sur -m redonne de l'énergie à $\vec{k_0}$ et sur (p-m) donne une onde \vec{k}_p se propageant comme si elle provenait directement de $\vec{k_0}$ par réflexion sur p. L'onde \vec{k}_p elle, se réfléchissant sur -p, redonne de l'énergie à $\vec{k_0}$, tandis que se réfléchissant sur (m-p) elle en donne à \vec{k}_m .

On voit donc que l'énergie s'écoulant dans les trois directions \tilde{k}_0 , \tilde{k}_m et \tilde{k}_p a en partie passé par des chemins indirects. Cette excitation indirecte a comme effet de changer le pouvoir réflecteur apparent des différents plans réticulaires entrant en jeu. Dans certains cas, ce pouvoir devient plus petit lors de la réflexion simultanée produisant dans un spectre continu l'apparition de raies blanches que nous appellerons des raies de soustraction. Ce sont ces raies qui ont été considérées spécialement dans le travail de WEIGLE et MÜHSAM (loc. cit.). Dans d'autres cas, au contraire, le pouvoir de réflexion apparent est augmenté par la réflexion simultanée et il apparaît dans le spectre continu des raies noires, raies d'addition que RENNINGER (loc. cit.) et CAUCHOIS, HULUBEI et WEIGLE (loc. cit.) ont décrites.

Nous nous sommes proposé, dans ce travail, d'étudier théoriquement un cas particulièrement typique de la réflexion simultanée mettant bien en évidence le phénomène de l'excitation indirecte. Nous avons supposé que le facteur de structure du plan pétait nul et que, par conséquent, il ne se produisait pas de réflexion soit sur p soit sur -p. L'écoulement de l'énergie se fait alors par le chemin schématisé dans la figure 1 b. Comme on le voit, il y a malgré cela une onde \tilde{k}_p se propageant comme si elle était née de la réflexion directe de \tilde{k}_0 sur le plan p, alors qu'en réalité elle est produite par l'excitation indirecte de \tilde{k}_m se réfléchissant sur le plan (p-m). Le pouvoir réflecteur de p, qui était nul en l'absence de la réflexion simultanée sur m, prend alors une valeur qui peut être grande. Une raie d'addition sera donc produite.

Nous étudions dans ce qui suit l'intensité et la largeur de cette raie lorsque son énergie est empruntée au spectre continu tombant sur le cristal sous différents angles d'incidence.

Supposons pour simplifier les calculs

1) que la réflexion simultanée est coplanaire, c'est-à-dire que les vecteurs des ondes \tilde{k}_0 , \tilde{k}_m et \tilde{k}_p sont dans un même plan,

2) que le cristal n'est pas absorbant.

497

32

On sait que les équations générales¹) du problème sont les suivantes:

Le champ d'ondes possibles à l'intérieur du cristal est donné par le vecteur \tilde{D} du déplacement électrique

$$\tilde{D} = e^{-2\pi i v t} \sum_{j} \tilde{D}_{j} e^{2\pi i (\tilde{k}_{j} \cdot \tilde{r})}$$
(1)

v étant la fréquence des ondes considérées et

$$\vec{k}_j = \vec{k}_0 + \vec{b}_j \tag{2}$$

étant le vecteur d'onde de l'onde j, \overline{b}_j étant un vecteur du réseau réciproque.

Si la constante diélectrique du cristal est η , on peut écrire:

$$\psi = 1 - \frac{1}{\eta} = \sum_{m} \psi_m e^{2\pi i (\widetilde{b}_m \cdot \widetilde{r})} \quad \psi_m = \psi_{-m}^* \quad (\text{cristal non absorbant}).$$

Car ψ est comme η périodique avec les périodicités du réseau. On sait que ψ_m est alors le facteur de structure du plan m. Pour que (1) soit une solution des équations de Maxwell, il faut que les \tilde{D}_j satisfassent aux équations de récurrence

$$\frac{k_j^2 - k^2}{k_j^2} \tilde{D}_j = \sum_l \psi_{j-l} \tilde{D}_{l\perp k_j}.$$
(3)

Dans le cas que nous considérons ici, nous admettront que seules trois ondes D_0 , D_p et D_m ont une intensité non négligeable et nous poserons en plus

$$k_j = k (1 + \varepsilon_j)$$
 $k = -\frac{\nu}{c}$ $\varepsilon_j \ll 1$ (4)

c étant la vitesse de la lumière dans le vide.

D'autre part, nous décomposerons les ondes en deux polarisations, l'une D'' dans le plan des vecteurs $\tilde{k}_0 \tilde{k}_m \tilde{k}_p$, l'autre D' perpendiculaire à ce plan. Les équations (3) se décomposent à leur tour en deux systèmes d'équations:

$$\left. \begin{array}{c} \left(\psi_{\mathbf{0}} - 2 \,\varepsilon_{\mathbf{0}} \right) \, D_{\mathbf{0}}' + \psi_{-p} \, D_{p}' + \psi_{-m} \, D_{m}' = 0 \\ \psi_{p} \, D_{\mathbf{0}}' + \left(\psi_{\mathbf{0}} - 2 \,\varepsilon_{p} \right) \, D_{p}' + \psi_{p-m} \, D_{m}' = 0 \\ \psi_{m} \, D_{\mathbf{0}}' + \psi_{m-p} \, D_{p}' + \left(\psi_{\mathbf{0}} - 2 \,\varepsilon_{m} \right) \, D_{m}' = 0 \end{array} \right\}$$
(5)

et

 $\begin{array}{l} \left(\psi_{0}-2 \varepsilon_{0}\right) D_{0}^{\prime\prime}+\psi_{-p} \cos 2 \Theta_{p} D_{p}^{\prime\prime}+\psi_{-m} \cos 2 \Theta_{m} D_{m}^{\prime\prime}=0\\ \psi_{p} \cos 2 \Theta_{p} D_{0}^{\prime\prime}+(\psi_{0}-2 \varepsilon_{p}) D_{p}^{\prime\prime}+\psi_{p-m} \cos 2 (\Theta_{p}+\Theta_{m}) D_{m}^{\prime\prime}=0\\ \psi_{m} \cos 2 \Theta_{m} D_{0}^{\prime\prime}+\psi_{m-p} \cos 2 (\Theta_{p}+\Theta_{m}) D_{p}^{\prime\prime}+(\psi_{0}-2 \varepsilon_{m}) D_{m}^{\prime\prime}=0 \end{array} \right)$ (6)

¹) LAUE, Ergeb. der Exakt. Naturw., p. 133, 1931.

où Θ_p et Θ_m sont les angles de Bragg pour les plans p et m respectivement. On voit dans ces équations s'introduire les facteurs de structure de tous les plans prenant part au phénomène que nous avons décrit de façon détaillée ci-dessus.

Posons maintenant que la réflexion ne peut se faire sur le plan p, et supposons en plus que le facteur de structure est le même pour tous les autres plans et égal à ψ_0 . On a donc

$$\psi_{p} = 0$$
 $|\psi_{m}| = |\psi_{p-\hat{m}}| = \psi_{0} = \psi$

Puis, pour simplifier les calculs, choissisons $2 \Theta_p = 45^{\circ}$ et $2 \Theta_m = 90^{\circ}$. Les équations (5) et (6) deviennent alors, en écrivant $\omega_j = \varepsilon_j/\psi$:

$$\begin{array}{l} (1-2 \ \omega_{0}) \ D_{0}' + D_{m}' = 0 \\ (1-2 \ \omega_{p}) \ D_{p}' + D_{m}' = 0 \\ D_{0}' + D_{p}' + (1-2 \ \omega_{m}) \ D_{m}' = 0 \end{array} \right\}$$
(7)

et

$$\begin{array}{l} (1-2 \ \omega_{0}) \ D_{0}^{\,\prime\prime} &= 0 \\ (1-2 \ \omega_{p}) \ D_{p}^{\,\prime\prime} - \frac{\sqrt{2}}{2} \ D_{m}^{\,\prime\prime} &= 0 \\ - \frac{\sqrt{2}}{2} \ D_{p}^{\,\prime\prime} + (1-2 \ \omega_{m}) \ D_{m}^{\,\prime\prime} &= 0 \end{array} \right\}$$

$$(8)$$

Nous étudierons alors séparément les deux polarisations.

A. Polarisation normale (équations (7)).

Pour que les équations (7) linéaires et homogènes pour les D soient compatibles, il faut que le déterminant des coefficients soit nul:

$$\begin{vmatrix} 1 - 2 \omega_0 & 0 & 1 \\ 0 & 1 - 2 \omega_p & 1 \\ 1 & 1 & 1 - 2 \omega_m \end{vmatrix} = 0$$

ce qui donne:

$$8 \omega_0 \omega_m \omega_p - 4 (\omega_0 \omega_p + \omega_0 \omega_m + \omega_m \omega_p) + 2 \omega_m + 1 = 0.$$
 (9)

On peut montrer facilement que ω_m et ω_p sont des fonctions linéaires de ω_0 et par conséquent (9) est une équation du troisième degré en ω_0 donnant trois solutions et donc, pour une orientation donnée, trois valeurs de k_0 , que nous écrirons $k_0^1 k_0^2$ et k_0^3 . Grâce à (2), les vecteurs d'ondes k_m et k_p (triples eux aussi) sont alors connus. Lorsque l'orientation de k_0 varie légèrement, les vecteurs $k_0^1 k_0^2 k_0^3$ décrivent une surface à trois nappes à laquelle EWALD a donné le nom de surface de dispersion.





Courbes de dispersion pour quelques fréquences $\mu' = \frac{\mu}{k\psi} (1 + \cot g \Theta_p)$ μ étant l'angle qu'il faut ajouter à Θ_p pour que la nouvelle longueur d'onde satisfasse à la relation 2 $d_p \sin(\Theta_p + \mu) = \lambda$. Les trois branches correspondent aux trois racines de l'équation (9); elles ont pour asymptotes les cercles de rayon k $(1 + \psi_0/2)$ tracés à partir des points O, P et M du réseau réciproque. (Ces cercles dans la figure ont dégénéré en droites). Pour les fréquences voisines de $\mu' = 0$, la présence du plan m écarte des courbes de dispersion de leurs asymptotes dans la région de réflexion sur p. A mesure que $|\mu'|$ augmente, les courbes de dispersion se rapprochent de leurs asymptotes et l'intensité dans la direction p tombe à zéro. Au lieu de résoudre algébriquement l'équation (9), nous procéderons graphiquement en traçant dans le plan $k_0 k_m k_p$ qui seul nous intéresse ici les intersections des surfaces de dispersion avec ce plan. Nous pourrons alors mesurer directement sur les courbes



Fig. 2b.

les valeurs de $\omega_0 \omega_m$ et ω_p en fonction de l'orientation d'une onde incidente extérieure au cristal et plaçant ces valeurs dans les équations (7) tirer de celles-ci les amplitudes D_j des différentes ondes.

Comme nous étudierons la réflexion simultanée pour tout un petit domaine de fréquences (car elle ne se produit pas seulement pour une fréquence unique), il sera nécessaire, pour chaque fréquence, de tracer les surfaces de dispersion. C'est ce que nous avons fait dans les figures 2.

Les conditions aux limites déterminent d'un côté les points des trois branches des courbes de dispersion qu'il faut associer



et de l'autre les relations d'amplitude et de phase entre les trois systèmes d'ondes provenant chacun d'une des branches.

Nous avons supposé dans ce qui va suivre que la surface du cristal (plaque parallèle) était placée de façon que sa trace dans le plan des figures 2 forme un angle de 60° avec l'onde \bar{k}_0 . Les ondes réfléchies sortent alors du cristal par la face opposée à celle d'incidence (cas de Laue).

Réflexions simultanées des rayons X et excitation indirecte.

Nous avons pu alors mesurer directement les quantités

 $\omega_0^1, \, \omega_m^1, \, \omega_p^1 \qquad \omega_0^2, \, \omega_m^2, \, \omega_p^2 \qquad \omega_0^3, \, \omega_m^3, \, \omega_p^3.$ En résolvant alors les équations (7), on trouve:

 $\alpha^{j} = \frac{D_{p}^{i}}{D_{0}^{i}} = \frac{1 - 2 \,\,\omega_{0}^{i}}{1 - 2 \,\,\omega_{p}^{i}} \quad \text{et} \quad \beta^{i} = \frac{D_{m}^{i}}{D_{0}^{i}} = 2 \,\,\omega_{0}^{i} - 1 \,.$ (10)*ll*'=4

Fig. 2d.

Les α^i et β^i sont donc les amplitudes relatives à l'onde k_0 des ondes k_m et k_p pour le système d'ondes provenant de la branche *i* des courbes de dispersion. Pour chaque direction d'incidence de l'onde incidente, on obtient ainsi une série de valeurs. Comme la constante diélectrique du cristal diffère très peu de l'unité, on peut alors écrire les conditions aux limites sur la face d'entrée, sous la forme

$$\left.\begin{array}{c}
D_{0}^{1} + D_{0}^{2} + D_{0}^{3} = D_{0}^{e} \\
D_{m}^{1} + D_{m}^{2} + D_{m}^{3} = 0 \\
D_{p}^{1} + D_{p}^{2} + D_{p}^{3} = 0
\end{array}\right\}$$
(11)

 D_0^e étant l'amplitude de l'onde incidente à l'extérieur du cristal. En introduisant (10) dans (11), on obtient alors

$$\frac{D_0^1}{D_0^2} = \frac{\alpha^2\beta^3 - \alpha^3\beta^2}{\alpha^2\beta^3 - \alpha^3\beta^2 + \alpha^3\beta' - \alpha'\beta^3 + \alpha'\beta^2 - \alpha^2\beta'}$$

et deux expressions semblables pour

$$rac{D_0^2}{D_0^e} \ \, {
m et} \ \, rac{D_0^3}{D_0^e} \ \, ,$$

qui permettent, grâce à (10), de calculer toutes les amplitudes relatives à D_{0}^{e} .

Pour calculer l'intensité des ondes sortantes, nous avons pris la moyenne de l'intensité en fonction de l'épaisseur du cristal. On obtient ainsi

$$I_{p} = \left(\frac{D_{p}^{1}}{D_{0}^{e}}\right)^{2} + \left(\frac{D_{p}^{2}}{D_{0}^{e}}\right)^{2} + \left(\frac{D_{p}^{3}}{D_{0}^{e}}\right)^{2}.$$

Pour les différentes longueurs d'onde, il faudrait intégrer des expressions comme celle-ci, ce que nous avons fait graphiquement. La figure 3 donne le résultat de ces calculs.

B. Polarisation dans le plan de réflexion (équations 8).

Les équations (8) montrent que, pour cette polarisation, l'onde \bar{k}_0 est indépendante des deux autres et que l'énergie ne peut passer que de \bar{k}_m à \bar{k}_p et inversément. Si donc l'onde incidente est \bar{k}_0 , les deux autres « modes de vibration » ne seront pas excités et il n'y aura pas de réflexion. Cela s'explique facilement: l'onde \bar{k}_m se propageant dans une direction perpendiculaire à \bar{k}_0 , ne peut pas avoir de composante de vibration dans le plan ($\bar{k}_0 \bar{k}_m$) puisqu'elle est produite par \bar{k}_0 par réflexion sur le plan m. Or, comme l'énergie ne peut arriver dans l'onde \bar{k}_p que par l'intermédiaire de l'onde \bar{k}_m (puisque le facteur de structure ψ_p est nul), l'onde \bar{k}_p ne contiendra pas non plus de vibration dans le plan de réflexion. Remarquons que si \tilde{k}_{p} était née de la réflexion directe de \tilde{k}_{0} sur le plan p, cette onde aurait eu une composante de vibration dans le plan (k_{0}, k_{p}) .

Cet effet de polarisation est en quelque sorte une démonstration de l'existence de l'excitation indirecte puisque c'est seulement lorsque l'onde \bar{k}_p est due à \bar{k}_m et non pas directement à \bar{k}_0 que cette polarisation peut se produire.





Intensité et largeur de la raie d'addition en fonction de l'angle d'incidence. Le trait plein représente l'intensité empruntée au fond continu tandis que le trait pointillé donne l'intensité qui aurait été réfléchie sur le plan p pour une seule longueur d'onde en l'absence de réflexion simultanée sur le plan m (nous avons supposé $|\psi_p| = \psi_0$ pour faire ce calcul).

On voit facilement aussi qu'un effet inverse peut se produire. Si nous supposons que le facteur de structure ψ_m du plan m soit nul alors que ψ_p ne l'est plus, les équations fondamentales prennent la forme (2 $\Theta_m = 90^{\circ}$):

$$\begin{array}{l} \left(\psi_{\mathbf{0}} - 2 \varepsilon_{\mathbf{0}} \right) D_{\mathbf{0}}^{\prime \prime} + \psi_{-p} \cos 2 \Theta_{p} D_{p}^{\prime \prime} &= 0 \\ \psi_{p} \cos 2 \Theta_{p} D_{\mathbf{0}}^{\prime \prime} + \left(\psi_{\mathbf{0}} - 2 \varepsilon_{p} \right) D_{p}^{\prime \prime} - \psi_{p-m} \sin 2 \Theta_{p} D_{m}^{\prime \prime} = 0 \\ - \psi_{m-p} \sin 2 \Theta_{p} D_{p}^{\prime \prime} + \left(\psi_{\mathbf{0}} - 2 \varepsilon_{m} \right) D_{m}^{\prime \prime} = 0 \end{array} \right\}$$

On voit donc que l'onde \overline{k}_m aura une composante D_m'' de vibration dans le plan $(k_0 k_m)$ alors que, si elle était née directement de k_0 par réflexion sur le plan m, elle n'aurait pu en avoir En résumé, nous avons montré théoriquement qu'un plan réticulaire dont le facteur de structure est zéro peut apparemment réfléchir les rayons X lorsqu'il y a réflexion simultanée sur un autre plan. Nous avons aussi étudié la largeur du domaine de réflexion dans un cas particulier et nous avons ainsi pu prouver que la « raie d'addition » a une largeur de l'ordre de grandeur des raies qui se formeraient par simple réflexion, largeur qui ne dépend que des propriétés du cristal. L'intensité de la raie d'addition dépend des valeurs relatives des facteurs de structure des plans jouant un rôle dans le phénomène; nous n'avons pas pu donner une expression explicite de sa valeur. On peut dire cependant que lorsque le facteur de structure du plan considéré est nul, l'intensité de la raie d'addition peut être aussi grande que si la réflexion avait eu lieu sur un des plans prenant part au phénomène (plan mou p - m).

Ces raies d'addition pour des plans de facteur nul ont été étudiées expérimentalement dans le beau travail de RENNINGER (loc. cit.). Cependant, l'énergie de ses raies était empruntée à une raie spectrale d'émission, tandis que la théorie ci-dessus supposait l'énergie empruntée au fond continu. La comparaison entre la forme des raies observées par RENNINGER et la forme de celles provenant du spectre continu permettrait de tirer des conclusions intéressantes sur la forme vraie des raies spectrales d'émission et sur leur largeur.

Des raies d'addition provenant du fond continu ont été observées par CAUCHOIS, HULUBEI et WEIGLE dans le travail déjà cité. Celles-ci toutefois étaient formées sur un plan dont le facteur de structure était relativement petit sans être nul.

Institut de Physique, Université de Genève.

Ergänzung zum Bericht der Tagung der Schweizerischen Physikalischen Gesellschaft in Genf.

M. WOLFKE, Warschau:

Über die adiabatische Magnetostriktion des flüssigen Sauerstoffes.

(Erscheint ausführlich in den Acta Physica Polonica.)