

Zeitschrift: Helvetica Physica Acta
Band: 28 (1955)
Heft: V-VI

Artikel: Etude des oscillations piézoélectriques du quartz par la diffraction des rayons X
Autor: Mermod, R.
DOI: <https://doi.org/10.5169/seals-112623>

Nutzungsbedingungen

Die ETH-Bibliothek ist die Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. 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. [Siehe Rechtliche Hinweise.](#)

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. [Voir Informations légales.](#)

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. [See Legal notice.](#)

Download PDF: 06.01.2025

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

Etude des oscillations piézoélectriques du quartz par la diffraction des rayons X

par R. Mermod (Genève).

(28. VIII. 1955).

Résumé: Les courbes d'intensité des rayons X, diffractés par une lame de quartz (*x*-cut), ont été relevées. Ces courbes présentent lorsque le quartz oscille, une forte augmentation d'intensité d'une part, et un élargissement asymétrique d'autre part.

L'élargissement asymétrique permet de conclure à une nonlinéarité des déformations élastiques en fonction des tensions. Une nouvelle interprétation de l'augmentation d'intensité confirmée quantitativement par l'expérience est proposée. Cette interprétation implique que l'état de mosaïque du cristal augmente considérablement lorsque le quartz oscille.

Introduction.

L'effet des oscillations piézoélectriques sur la diffraction des rayons X se rapproche beaucoup de l'effet dû à l'agitation thermique. Du point de vue théorique il en constitue un cas particulier, où l'on a affaire à une seule onde dans le cristal. Toutefois l'amplitude de l'onde d'une oscillation piézoélectrique est beaucoup plus grande que celle qu'on rencontre dans les oscillations thermiques et ne permet pas les mêmes approximations.

L'effet de deux ondes ultra-sonores parcourant le cristal en sens inverse pour former une onde stationnaire, comme c'est le cas lorsque une lame de quartz taillée perpendiculairement à l'axe *x* oscille à sa fréquence de résonance, a été calculé par la méthode du réseau de Fourier¹).

Cette méthode consiste à décomposer la densité électronique du cristal en séries de Fourier. Cette densité ayant pour période la maille du cristal dans les trois dimensions, les coefficients de Fourier sont la transformée de la densité électronique dans l'espace de Fourier aux points $\vec{b}_{h,k,l}$ où

$$\vec{b}_{h,k,l} = h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3$$

h, k, l entiers

et

$$\vec{b}_i \cdot \vec{a}_k = \delta_{i,k}$$

i, k = 1, 2, 3.

Les \vec{a}_k étant les vecteurs de base de la maille du cristal et $\delta_{i,k}$ le symbole de Kronecker.

L'espace de Fourier n'est autre que l'espace réciproque tel que l'a introduit EWALD, et les points $\vec{b}_{h,k,l}$ correspondent aux familles des plans d'indices de MILLER h, k, l .

On démontre alors que le coefficient de Fourier d'indice h, k, l est égal au facteur de structure du cristal pour les plans h, k, l .

En résumé, la décomposition en série de Fourier de la densité électronique nous donne le réseau réciproque en attachant à chacun de ces points la valeur du facteur de structure des plans correspondants.

Si l'on suppose maintenant que le cristal est le siège d'une onde élastique stationnaire de vecteur d'onde \vec{k} , on introduit une nouvelle périodicité de la densité électronique du cristal; ce qui ajoute au réseau de Fourier de nouveaux points ayant pour vecteur:

$$\vec{b}_{h,k,l} - n\vec{k}$$

$$n = \pm (0, 1, 2 \dots)$$

Chaque point du réseau de Fourier est donc entouré de points supplémentaires dans la direction du vecteur \vec{k} . A chacun de ces points numérotés h, k, l, n est associé un facteur de structure. Ces facteurs de structure diminuent très rapidement lorsque n croît, et deviennent négligeables pour $n > 4 \pi \vec{b}_{h,k,l} \cdot \vec{\xi}$; où $\vec{\xi}$ représente l'amplitude maximum du déplacement des atomes dû à l'onde stationnaire.

La somme de tous les facteurs de structure entourant un point h, k, l est égale au facteur du point correspondant, du réseau non perturbé par une onde élastique.

D'autre part, le vecteur \vec{k} étant très petit par rapport aux vecteurs \vec{b}_i , les points supplémentaires entourant le point $\vec{b}_{h,k,l}$ sont très serrés et très nombreux, si bien que l'on peut considérer que chaque point du réseau réciproque s'étale en un segment de droite ayant la direction de \vec{k} . Ce segment se réduit à un point lorsque le produit $\vec{b}_{h,k,l} \cdot \vec{\xi}$ s'annule, c'est-à-dire lorsque le déplacement des atomes se fait parallèlement au plan réticulaire réfléchissant.

La répartition angulaire de l'intensité X diffractée par une famille de plans h, k, l présentera donc un élargissement correspondant à l'étalement du point h, k, l du réseau réciproque (fig. 1).

Toutefois cette méthode de calcul suppose implicitement que les rayons X utilisés sont suffisamment pénétrants pour traverser plu-

sieurs ondes stationnaires, et trouver ainsi une périodicité de la densité électronique due à l'onde élastique.

Ceci est réalisé lorsque le cristal est une lame mince, oscillant à une harmonique supérieure de sa fréquence de résonance, mais ceci n'est plus le cas lorsque la lame oscille à sa fréquence fondamentale, puisqu'elle ne contient qu'une demi-longueur d'onde de l'oscillation élastique.

Il faut alors renoncer à cette méthode de calcul et partir de l'équation de Bragg :

$$\sin \Theta = \frac{n \lambda}{2 d}$$

où d , la constante réticulaire des plans réfléchissants, est modifiée par l'onde élastique.

Mais avant de poursuivre nous devons encore préciser les conditions expérimentales. Nous supposons que le cristal est taillé en une

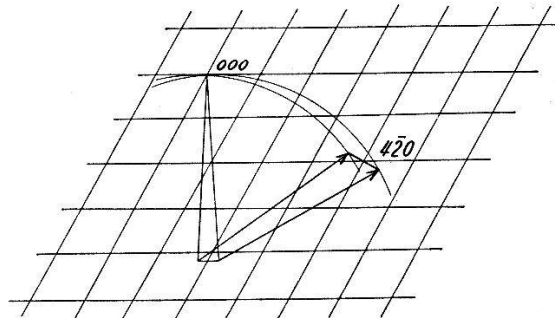


Fig. 1.

Etalement des points du réseau réciproque dû à une onde élastique.
Sphères d'Ewald pour une réflexion $4 \bar{2} 0$.

lame parallèle aux plans réfléchissants et que l'onde élastique est plane, stationnaire, de plans d'onde parallèles aux plans réfléchissants. La lame oscille donc dans le sens de l'épaisseur à sa fréquence de résonance fondamentale. Les plans réticulaires subissent une déformation, maximum au centre de la lame et nulle sur les deux faces, tandis que leur déplacement est maximum sur les deux faces et nulle au centre.

La constante réticulaire a donc pour expression :

$$d(x, t) = d_0 \left(1 + \delta \sin \frac{\pi x}{b} \cos \omega t \right)$$

d_0 étant la constante réticulaire non perturbée, x la profondeur à l'intérieur de la lame d'épaisseur b , et δ la variation relative maximum de d_0 .

Divisons, à un instant donné, la lame en tranches d'épaisseur δx parallèles aux plans diffractants, chacune de ces tranches donne

une raie de diffraction. Toutes ces raies sont déplacées les unes par rapport aux autres suivant la valeur de la constante réticulaire de la couche considérée à la profondeur x .

Il faut toutefois tenir compte de l'absorption des rayons X dans le cristal: les couches situées près de la face irradiée par les rayons X (où $x = 0$) reçoivent plus d'intensité que les couches intérieures.

L'intensité diffractée par une couche d'épaisseur δx doit donc être multipliée par un facteur $e^{-\mu x}$ tenant compte de la décroissance de l'intensité incidente à l'intérieur du cristal.

Si nous admettons que la courbe de l'intensité diffractée par une couche, en fonction de l'angle de diffraction, a la forme d'une courbe de Gauss, nous obtenons pour la courbe de l'intensité diffractée à un instant donné, par toute la lame sous l'angle φ , l'expression suivante:

$$I(\varphi, t) = \int_0^b e^{-\mu x} e^{-\left(\varphi - \varphi_0 \sin \frac{\pi x}{b} \cos \omega t\right)^2} \delta x$$

où φ est compté à partir de l'angle de Bragg pour les plans non perturbés. φ_0 est la variation de l'angle de Bragg pour la perturbation maximum de la constante réticulaire.

Pour obtenir l'expression de l'intensité diffractée par une lame oscillante, il faut encore prendre la moyenne sur le temps, pendant une période T de l'oscillation, en intégrant.

$$I(\varphi) = \int_0^b \int_0^T e^{-\mu x} e^{-\left(\varphi - \varphi_0 \sin \frac{\pi x}{b} \cos \omega t\right)^2} \delta x \delta t.$$

Cette expression donnant l'intensité relative, nous n'avons pas fait figurer les termes constants devant l'intégrale.

L'intégration ne peut malheureusement être effectuée que si φ_0 est petit par rapport à φ , en développant l'exponentielle en série, mais ceci n'est évidemment pas le cas pour toute valeur de φ , d'autant plus que φ_0 est de l'ordre de la largeur de la courbe de Gauss.

Méthode expérimentale.

1. Description générale.

Pour relever les courbes d'intensité des rayons X diffractés en fonction de l'angle de diffraction, nous avons utilisé un spectromètre du type de BRAGG (fig. 2).

Le rayonnement d'un tube à rayons X à anticathode de molybdène, était limité par une première fente et dirigé sur une lame de quartz disposée sur l'axe du spectromètre. Un compteur Geiger-Müller, précédé d'une deuxième fente, mesurait l'intensité X diffractée par le cristal en fonction de sa position angulaire. La vitesse de rotation du compteur était double de celle du cristal de manière à conserver les conditions de réflexion.

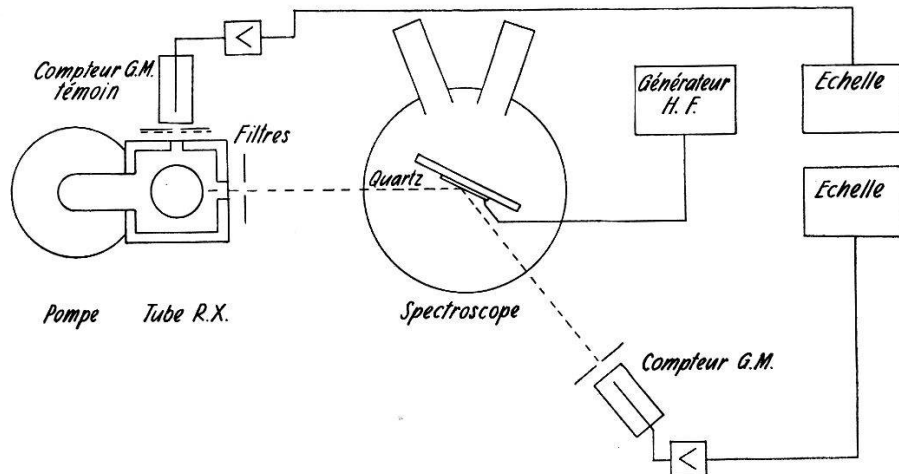


Fig. 2.
Plan général de l'installation.

Un autre compteur Geiger-Müller, servant de témoin, mesurait l'intensité X émise par le tube et évitait ainsi toute déformation de la courbe de diffraction, due aux variations de l'émission du tube.

Le cristal métallisé sur ses deux faces était disposé sur une platine verticale, à la terre du point de vue électrique. La tension haute fréquence, entraînant l'oscillation de la lame de quartz, était appliquée entre la terre et la face libre de la lame.

2. Rayonnement X.

Le rayonnement X utilisé était la raie K_{α_1} du molybdène ($0,708 \text{ \AA}$), car il est nécessaire que les rayons X pénètrent suffisamment à l'intérieur de la lame pour atteindre les couches où la constante réticulaire varie fortement lors de l'oscillation. Nous avons vu en effet que le maximum de déformation a lieu au milieu de l'épaisseur de la lame.

Les mesures faites avec la raie K_{α_1} du cuivre ($1,537 \text{ \AA}$) n'ont montré aucun effet des oscillations piézoélectriques du quartz sur les courbes de diffraction. Ces mesures ont été faites sur des lames de 2 mm d'épaisseur (fréquence d'oscillation $1,4 \text{ Mc}$) et de $0,4 \text{ mm}$ (7 Mc). Même dans le deuxième cas la pénétration n'était pas suffisante.

Le tube à rayons X utilisé était démontable, à anticathode interchangeable. La cathode était en forme de cylindre creux et focalisait les électrons sur l'anticathode selon un rectangle très allongé, parallèle à la première fente. Le tube était évacué par une pompe à diffusion d'huile; il était alimenté par un générateur de haute tension de 100 kV continus au maximum, à redresseurs au sélénium. Le filament du tube était au potentiel de la haute tension et alimenté par un transformateur isolé compris dans le groupe haute tension.

Pour une anticathode de molybdène la tension de fonctionnement était de 35 kV environ pour 7 mA de courant électronique.

3. *Le spectromètre.*

La lame de quartz et le compteur mesurant l'intensité diffractée étaient montés sur un spectromètre permettant de déterminer leur position angulaire avec une précision de $\frac{1}{2}$ seconde. La première fente était solidaire du spectromètre et un déplacement de l'ensemble de l'appareil permettait de l'amener en face du foyer de l'anticathode sans modifier le réglage du spectromètre.

Un système d'engrenage permettait d'entraîner simultanément le compteur et le cristal avec une forte démultiplication. Les déplacements pouvaient ainsi être inférieurs à la seconde tout en maintenant les conditions de réflexion.

Les deux fentes étaient disposées à égale distance de l'axe du spectromètre de manière à satisfaire la condition de focalisation, ce qui facilitait le réglage de la position angulaire du cristal, par rapport au compteur.

Le réglage de la position de la lame de quartz par rapport à l'axe de rotation se faisait en mesurant l'angle entre deux réflexions symétriques par rapport à un plan vertical passant par l'axe et la première fente. Il fallait évidemment pour cela opérer une rotation de 180 degrés sur le support du cristal de manière à retrouver la face libre du quartz pour la deuxième réflexion.

L'angle mesuré devant être égal à 4 fois l'angle de Bragg, il était facile d'après la différence avec les valeurs des tables, de calculer le déplacement à donner à la lame pour amener les plans réfléchissants à passer par l'axe. Cette méthode a l'avantage de tenir compte de la pénétration des rayons X dans le cristal.

Les autres réglages des divers éléments du spectromètre se faisaient par les méthodes classiques.

4. *Mesure de l'intensité X.*

Les compteurs utilisés pour mesurer l'intensité des rayons X furent soit des compteurs Philips à fenêtre de verre de Lindemann, soit des compteurs Tracerlab à fenêtre de mica. Les deux types donnèrent satisfaction.

Les deux compteurs étaient suivis d'un étage d'amplification conservant au système de comptage un bon pouvoir de résolution. Les impulsions étaient ensuite transmises à deux échelles de 32 permettant l'enregistrement d'une intensité suffisamment élevée. Le compteur témoin mesurant l'intensité émise par le tube devait en effet compter un nombre de coups suffisamment grand pour ne pas ajouter d'erreur de statistique à la mesure de l'intensité diffractée.

D'autre part le compteur témoin ne devait mesurer que l'intensité de la raie K_{α_1} émise, et non pas le spectre entier; car les variations d'émission dues aux instabilités de la haute tension ne sont pas les mêmes pour les différentes longueurs d'onde. Nous avons obtenu une bonne proportionnalité entre les intensités mesurées par le compteur témoin et le compteur mobile, en interposant entre l'anticathode et le compteur témoin un filtre d'oxyde de zirconium ($0,2 \text{ g/cm}^2$ de Zr) éliminant les petites longueurs d'onde, et un filtre d'aluminium absorbant le reste du spectre continu. Le compteur témoin était placé en face d'une fenêtre latérale du tube, une fente permettait de limiter et de régler l'intensité reçue.

L'emploi d'un intégrateur en place des échelles n'était pas justifié, car l'intensité diffractée était relativement faible. La largeur des fentes était en effet limitée à quelques centièmes de millimètre (à 24 cm de l'axe) pour ne pas élargir les courbes de diffraction.

5. *La lame de quartz.*

Le quartz était taillé en une lame de 2 mm d'épaisseur par 53 sur 44 mm de côté, perpendiculairement à l'axe x . Les plans réticulaires parallèles aux faces étaient donc des plans $2, \bar{1}, 0$, de distance inter-réticulaire de $2,445 \text{ \AA}$.

Les deux faces du quartz étaient métallisées par évaporation sous vide, d'une couche d'or de $0,5 \text{ mg/cm}^2$, n'absorbant pas trop les rayons X tout en étant suffisamment épaisse pour supporter le courant haute fréquence. La surface métallisée s'étendait jusqu'à 3 mm du bord du quartz pour éviter les décharges.

Avant de procéder aux évaporations sous vide, nous avons nettoyé la lame de quartz au mélange chromique chaud, puis à la potasse caustique, et enfin à l'acide fluorhydrique à 50% pendant 20 minutes environ. Un lavage à l'eau chaude courante pendant

$\frac{1}{2}$ heure au moins éliminait toute trace d'acide, et un dernier rinçage à l'eau distillée bouillante évitait les dépôts calcaires.

L'attaque du quartz à l'acide fluorhydrique éliminait les couches perturbées par le rodage et évitait l'augmentation d'intensité qui en résulte^{2) 3)}.

La lame de quartz était maintenue contre la platine servant de support par quatre lamelles élastiques en bronze disposées aux quatre angles; ces lamelles permettaient en même temps d'appliquer la tension haute fréquence au quartz. La platine était parcourue dans sa masse par un courant d'eau circulant dans des canaux percés à cet effet pour éviter l'échauffement du quartz lorsqu'il oscillait. Cet échauffement devient en effet considérable aux puissances haute fréquence utilisées.

Le générateur à haute fréquence variable était constitué par un oscillateur et un étage d'amplification en push-pull utilisant une

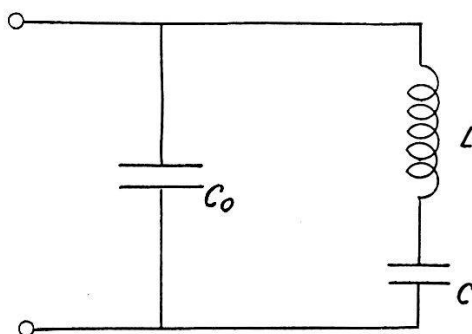


Fig. 3.

Circuit électrique équivalent d'un quartz.

815 comme lampe de sortie. Étant alimenté par des tensions stabilisées, le générateur avait une fréquence suffisamment constante pour que les conditions d'oscillation du quartz ne varient pas. Ce montage nous permettait de disposer d'une plus grande puissance que lorsque le quartz pilote l'oscillateur, comme dans le montage de Pierce; il nous donnait d'autre part la possibilité de fixer la fréquence à la résonance série du quartz. Un quartz peut en effet résonner à deux fréquences voisines, comme nous allons le voir ci-dessous.

Le circuit électrique équivalent d'une lame de quartz au voisinage de la résonance est constitué par une capacité C_0 en parallèle avec une self L et une capacité C en série (fig. 3).

C_0 est la capacité des électrodes disposée sur les deux faces de la lame, compte tenu de la constante diélectrique du quartz, alors que C et L constituent l'oscillateur proprement dit. Si l'on augmente progressivement la fréquence de la tension appliquée aux électrodes, la branche LC a tout d'abord une impédance capacitive, qui devient

purement ohmique à une première résonance série (la résistance correspondant à l'amortissement ne figure pas sur le schéma). Lorsqu'on dépasse la fréquence de résonance série la branche LC devient selfique et peut entrer en résonance parallèle avec la capacité C_0 pour une fréquence déterminée dépendant de la surface des électrodes.

Ces deux résonances, série et parallèle, sont d'autant plus voisines que les électrodes sont plus grandes. A puissance égale, la résonance série nécessite une tension haute fréquence beaucoup plus faible que la résonance parallèle, ce qui diminue les risques de décharges entre les deux électrodes. On calcule d'autre part facilement que pour un amortissement relativement faible le courant dans la branche LC est le même pour les deux résonances, et que par conséquent, l'oscillation mécanique est la même. A la résonance série la puissance est fournie à basse tension fort courant, alors que c'est l'inverse à la résonance parallèle.

6. Les mesures.

Examinons tout d'abord qu'elles peuvent être les causes d'erreur dans le relevé des courbes de diffraction.

La largeur des fentes, placées à la sortie du tube à rayons X et devant le compteur mesurant l'intensité diffractée, a pour effet d'élargir les courbes. Si nous admettons que l'intensité diffractée, en fonction de l'angle, a la forme d'une courbe de Gauss pour une fente infiniment mince, la courbe relevée avec une fente de largeur finie est donnée par l'expression :

$$I(\varphi) = \frac{1}{c} \int_{\varphi - \Delta\varphi}^{\varphi + \Delta\varphi} e^{-\varphi^2} d\varphi$$

où $2 \Delta\varphi$ est la largeur de la fente exprimée en angle et C un facteur de normation ramenant la courbe à la hauteur unité, qui vaut donc :

$$c = \int_{-\Delta\varphi}^{+\Delta\varphi} e^{-\varphi^2} d\varphi.$$

Appelons φ_0 la demi-largeur de la courbe $I(\varphi)$ à la hauteur $1/e$. Comme cette demi-largeur vaut 1 pour la courbe de Gauss, φ_0 représente le facteur d'élargissement de la courbe; il est donné par l'expression :

$$\int_{\varphi_0 - \Delta\varphi}^{\varphi_0 + \Delta\varphi} e^{-\varphi^2} d\varphi = \frac{1}{e} \int_{-\Delta\varphi}^{+\Delta\varphi} e^{-\varphi^2} d\varphi.$$

En utilisant une table de l'intégrale de la fonction de Gauss, nous avons calculé l'élargissement de la courbe en fonction de la largeur de la fente $2 \Delta\varphi$. Cette largeur est mesurée en unités de demi-largeur de la courbe de Gauss; c'est donc plus précisément le rapport entre la largeur de la fente, et la demi-largeur de la courbe de Gauss à la hauteur $1/e$.

$2 \Delta\varphi$	2	1	0,5	0,2
φ_0	1,35	1,085	1,020	1,0030

Nous voyons que l'élargissement décroît très rapidement avec la largeur de la fente puisqu'il n'est déjà plus que de 2% pour une fente égale à la moitié de la demi-largeur de la courbe.

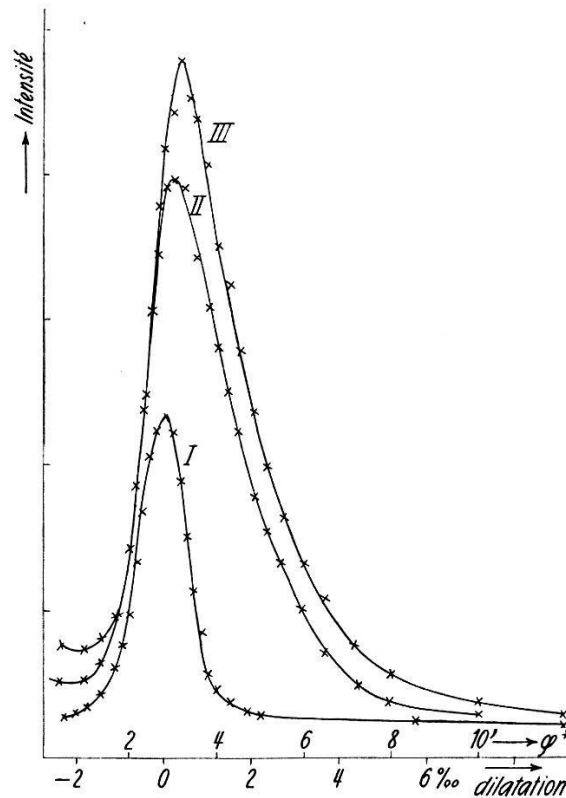


Fig. 4.

Mo K_{α_1} 1^{er} ordre, sur quartz inerte (I) et oscillant (II, III).

Nous avons utilisé des fentes d'environ $4/100^e$ de millimètres, ce qui correspond à un angle de $34''$. L'élargissement dû aux deux fentes est donc de 4% pour les courbes du troisième ordre, de 10% pour celles du deuxième ordre; il est nettement supérieur pour le

* φ = double angle de Bragg à une constante près.

premier ordre dans lequel il est difficile d'en donner une valeur, car la courbe s'écarte trop de celle de Gauss.

Cet effet d'élargissement se manifeste peu sur les courbes de diffraction du quartz oscillant qui ont déjà par elles-mêmes une largeur beaucoup plus grande.

Une deuxième perturbation des mesures pourrait être due à un échauffement de la lame de quartz sur la face libre qui n'est refroidie par le courant d'eau que par l'intermédiaire de l'épaisseur du quartz. Mais en supposant que la puissance, dissipée à l'intérieur de la lame, est de 10 watts, ce qui est très largement compté, on arrive à une élévation de la température de 1° dont l'effet est imperceptible.

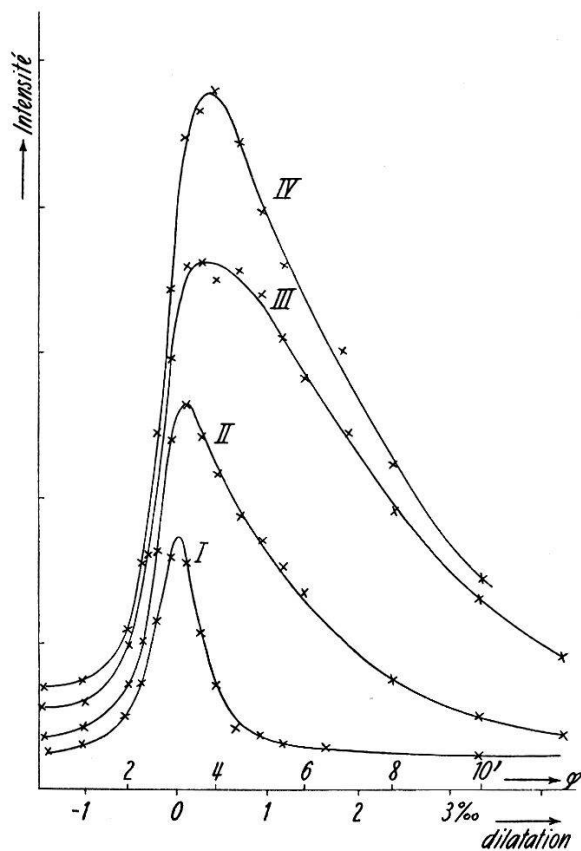


Fig. 5.

Mo K_{α_1} , 2^e ordre, sur quartz inerte (I) et oscillant (II, III, IV).

Le fait que la lame de quartz en oscillant se déplace par rapport à l'axe du spectroscopie ne crée pas non plus d'élargissement appréciable de la courbe. En effet, pour le deuxième ordre par exemple, le déplacement de la raie dû à une augmentation de la constante réticulaire est 40 fois plus grand que celui dû à la dilatation de la lame qui en résulte; les effets sont d'ailleurs opposés.

La stabilité de l'amplitude des oscillations du quartz était contrôlée par un radiomètre, constitué par un disque placé en face

de la lame, suspendu à un fil, et formant avec un contrepoids un pendule de torsion. Les fluctuations instantanées du radiomètre autour de sa position moyenne étaient de l'ordre de 5%.

Les courbes de diffraction ont été relevées point par point pour le quartz inerte, et oscillant à différentes amplitudes, pour les trois premiers ordres de diffraction (fig. 4, 5, 6).

Ces courbes montrent toutes, lorsque le quartz oscille, d'une part une forte augmentation de l'intensité diffractée et d'autre part un élargissement asymétrique de la courbe, imprévu par la théorie donnée en introduction. La pénétration des rayons X dans la lame

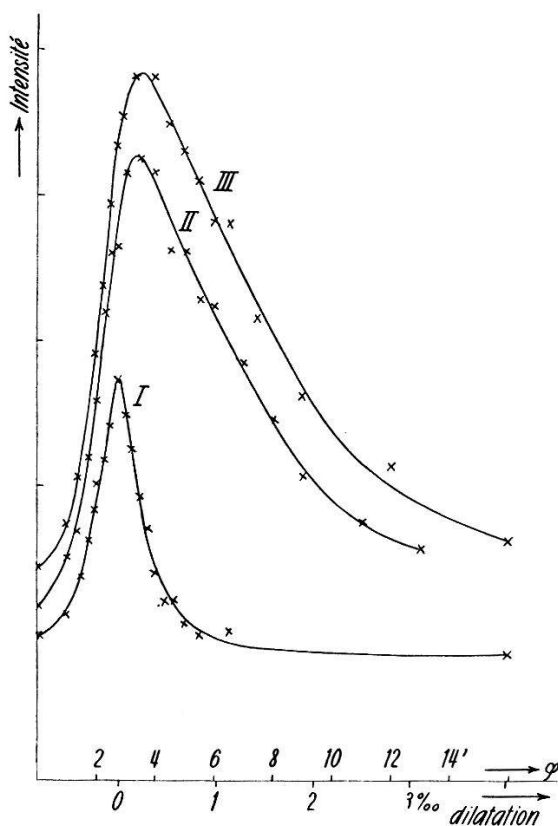


Fig. 6.

Mo K_{α_1} , 3^e ordre, sur quartz inerte (I) et oscillant (II, III).

de quartz étant meilleure pour les ordres supérieurs, on pouvait s'attendre à un effet de plus en plus grand pour les ordres croissants. Toutefois la courbe du quartz inerte, au premier ordre, subissant un élargissement non négligeable du fait de la largeur de la fente ne permet pas de bonnes mesures. Les courbes du deuxième ordre présentent les meilleures conditions et c'est sur elles que nous ferons les mesures nécessaires à l'interprétation.

Nous donnons dans le tableau ci-contre, les paramètres des différentes mesures ainsi que les indications relatives du radiomètre pour chaque courbe.

Tableau des conditions expérimentales des différentes mesures.

	1 ^{er} ordre			2 ^e ordre				3 ^e ordre		
	I	II	III	I	II	III	IV	I	II	III
Largeur des fentes en "	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35
Durée de chaque mesure en minutes	3	3	3	4	4	4	4	4	4	4
Nombre maximum de coups en milliers . .	3,3	6,0	7,4	2,1	3,6	5,1	6,1	1,3	2,2	2,5
Tension haute fréquence en Volts	0	82	85	0	83	70	80	0	80	103
Courant haute fréquence en Ampères	0	0,15	0,38	0	0,20	0,24	0,40	0	0,12	0,48
Indications du radiomètre	0	11	45	0	11	22	45	0	11	46

Tube à rayons X: 34 kV, 7 mA

Interprétation des mesures.

1. Augmentation de l'intensité diffractée.

L'effet des oscillations piézoélectriques sur la diffraction des rayons X a déjà été observé par différents auteurs; mais dans la plupart des cas en diagrammes de Laue, ce qui n'a permis d'observer qu'une augmentation du noircissement de la photo sans pouvoir faire de mesures précises sur l'intensité intégrée diffractée, ni sur l'allure des courbes⁴⁻¹⁰).

Plus récemment MILLER¹¹) a fait des mesures en diffraction de Bragg avec un compteur Geiger-Müller, mais il semble que seule l'intensité maximum ait été mesurée et non pas l'intensité intégrée.

Différentes explications de l'augmentation de l'intensité ont été proposées. JAUNCEY et BRUCE¹²) ont pensé que l'intensité était empruntée aux réflexions diffuses, qui de ce fait, devaient diminuer d'intensité; mais les mesures ont montré que les réflexions diffuses ne subissent pas de modification lorsque le quartz oscille¹¹). D'autres auteurs ont supposé qu'une variation des coefficients d'extinction, primaire pour certains, secondaire pour d'autres, était la cause de l'augmentation d'intensité. Toutefois les variations observées semblent être trop fortes pour justifier une telle hypothèse.

Des tentatives ont été également faites pour mesurer une diminution dans l'intensité du faisceau principal lors des oscillations du

quartz; mais ces expériences n'ont donné aucun résultat positif. Il semble en effet peu probable que l'augmentation de l'intensité diffractée puisse affecter beaucoup le faisceau principal, car son intensité reste toujours très grande par rapport à celle des diffusions cohérentes.

Mesurons l'intensité intégrée des raies de diffraction pour le 2^e ordre; ceci revient à calculer la surface limitée par les courbes de diffraction jusqu'au niveau du fond continu. Nous trouvons un rapport entre l'intensité intégrée de la courbe IV (oscillation maximum), et celle de la courbe I (quartz inerte), égal à 12. L'augmentation de l'intensité diffractée est donc considérable; le pouvoir réflecteur du cristal semble être profondément modifié par les oscillations piézoélectriques.

D'autre part on sait qu'un monocristal est en réalité constitué par la juxtaposition de petits cristallites, formant une mosaïque dont chaque élément présente une désorientation plus ou moins grande par rapport à ses voisins. Dans le cas où la désorientation est nulle, chaque atome occupe par rapport à ses voisins la position définie par les constantes réticulaires du cristal; on a alors affaire à un cristal parfait. Si au contraire les désorientations de chaque cristallite sont réparties statistiquement autour de la position moyenne, on parle alors d'un cristal idéalement imparfait. C'est le cas lorsque le cristal n'a subi aucune déformation permanente, ni polissage, qui donnent une orientation préférentielle aux cristallites.

Les phénomènes de diffraction des rayons X sont très différents si le cristal est une mosaïque idéale ou s'il est parfait. Dans le premier cas, lorsqu'on fait tourner le cristal autour de l'angle de Bragg, chaque cristallite est amené successivement en position de réflexion mais les rayons incidents et diffractés ont peu de chance de subir une deuxième diffraction; ils sont simplement absorbés avec un coefficient d'absorption ordinaire. Chaque cristallite diffracte donc à son tour et les intensités s'additionnent sans interférences puisqu'il n'y a pas de relation de phase entre les différentes ondes. Il se produit par contre un élargissement de la courbe de diffraction. Dans le deuxième cas, où la désorientation des cristallites est nulle, les rayons diffractés par les plans réticulaires doivent retraverser ces plans, pour sortir du cristal et sont à nouveau diffractés dans le sens de l'onde incidente. Comme chaque diffraction se fait avec un déphasage de $\pi/2$ ils se trouvent en opposition de phase avec les rayons incidents et en diminuent l'intensité.

On voit donc que l'intensité diffractée est plus faible dans le cas d'un cristal parfait que pour une mosaïque idéale. Le calcul exact

de l'intensité intégrée réfléchie par une face du cristal donne (voir par exemple ¹³):

pour un cristal en mosaïque:

$$I_m = \frac{N^2 \lambda^3}{2 \mu} |F|^2 \left(\frac{e^2}{m c^2} \right)^2 \frac{1 + \cos^2 2 \Theta}{2 \sin 2 \Theta},$$

pour un cristal parfait:

$$I_p = \frac{8}{3 \pi} N \lambda^2 |F| \frac{e^2}{m c^2} \frac{1 + |\cos 2 \Theta|}{2 \sin 2 \Theta}.$$

N = nombre de mailles par unité de volume.

λ = longueur d'onde des rayons X.

μ = coefficient linéaire d'absorption.

F = facteur de structure des plans réfléchissants.

Θ = angle de Bragg.

Ces deux formules sont valables dans les cas limites du cristal en mosaïque idéale ou du cristal absolument parfait. Si la mosaïque est peu désorientée, les rayons X peuvent traverser plusieurs cristallites ayant l'orientation de Bragg et le coefficient d'absorption μ s'en trouvera augmenté, car une partie de l'intensité sera réfléchie plusieurs fois. On peut ainsi avoir tous les cas intermédiaires entre la mosaïque et le cristal parfait.

Remarquons que le coefficient d'absorption μ qui intervient dans la première formule ne se trouve pas dans la seconde. En effet l'absorption ordinaire peut en général être négligée, pour un cristal parfait, devant la diminution de l'intensité incidente causée par les réflexions sur chaque plan successif. Cette diminution d'intensité est caractérisée par un coefficient d'extinction ξ qui intervient implicitement dans la deuxième formule et dont nous donnerons plus bas l'expression.

Faisons le rapport des deux intensités I_m et I_p pour une mosaïque et un cristal parfait:

$$\frac{I_m}{I_p} = \frac{3 \pi}{16} \frac{N \lambda}{\mu} |F| \frac{e^2}{m c^2} \frac{1 + \cos^2 2 \Theta}{1 + |\cos 2 \Theta|}$$

et calculons la valeur de ce rapport dans le cas d'une réflexion du deuxième ordre de la raie K_{α_1} , du molybdène, sur les plans $2, \bar{1}, 0$, $(4, \bar{2}, 0)$ du quartz. En introduisant $N = 89 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$; $\mu = 9,65 \text{ cm}^{-1}$; $|F_{0\bar{2}0}| = 18,2$ et $2 \Theta = 33^\circ 33'$ on trouve:

$$\frac{I_m}{I_p} = 17,8.$$

Le facteur d'augmentation d'intensité pour un quartz en mosaïque ou pour un quartz parfait est donc d'environ 18. Or, nous avons trouvé comme rapport des intensités diffractées par le quartz oscil-

lant et le quartz inerte, la valeur 12. Il semble donc que lorsque le quartz oscille, il se forme à l'intérieur du cristal une désorientation des cristallites, les uns par rapport aux autres, qui fait augmenter son pouvoir réflecteur dans des proportions comparables à l'augmentation due au passage du cristal parfait à la mosaïque.

Ceci n'est possible que si le cristal non perturbé peut être considéré comme relativement parfait, ce qui est bien le cas pour le quartz. Pour d'autres cristaux piézoélectriques, moins parfaits, l'augmentation d'intensité doit donc être beaucoup plus faible; ce qui est bien vérifié par l'expérience¹¹⁾.

Il est évident d'autre part, que le rapport limite de 18 ne peut être atteint, car le cristal inerte n'est pas absolument parfait et que le quartz oscillant n'est probablement pas exactement une mosaïque idéale. Ainsi il semble que les oscillations piézoélectriques transforment en une mosaïque le cristal du quartz.

Il faut encore vérifier les différentes conditions nécessaires à l'application des formules donnant les intensités intégrées.

La formule des intensités intégrées réfléchies par un cristal en mosaïque est établie dans le cas où les rayons incidents sont entièrement absorbés à l'intérieur du cristal. Dans le cas du deuxième ordre, avec une lame de quartz de 2 mm d'épaisseur, le rapport entre l'intensité transmise à travers le cristal et l'intensité incidente est d'environ 1⁰/₁₀₀ ce qui est négligeable.

Nous avons vu également que le coefficient d'extinction linéaire ξ doit être grand par rapport au coefficient d'absorption pour que l'on puisse appliquer la formule donnant l'intensité réfléchie par un cristal parfait. L'expression de ξ est¹³⁾ (p. 60):

$$\xi = \frac{\pi}{2} N \lambda |F| \frac{e^2}{m c^2}$$

ce qui donne $\xi = 510 \text{ cm}^{-1}$ dans notre cas; ξ est donc plus de 50 fois plus grand que μ . ξ et μ intervenant comme exposants de e , l'extinction est donc considérablement plus grande que l'absorption.

2. *Elargissement asymétrique des courbes.*

Pour tous les ordres les courbes présentent un élargissement beaucoup plus grand du côté des grandes valeurs de la constante réticulaire. Cette asymétrie ne peut pas être causée par une désorientation préférentielle des cristallites d'un côté de la normale aux plans réfléchissants, car elle n'est pas modifiée par une rotation du cristal autour de cette normale. Il n'y a d'ailleurs aucune raison pour qu'une désorientation préférentielle se produise, la lame étant parfaitement symétrique par rapport à sa normale.

D'autre part une augmentation de la température du quartz ne peut pas non plus être la cause d'une asymétrie car, comme nous l'avons vu, le quartz était refroidi et le gradient de température ne pouvait en aucun cas dépasser 1° sur l'épaisseur de la lame ce qui ne donne pas de modifications perceptibles de la raie de diffraction.

Il ne semble pas non plus que l'asymétrie puisse être imputable à une augmentation asymétrique des réflexions diffuses, car MILLER a montré¹¹⁾ que l'intensité des réflexions diffuses n'augmente pas d'une manière appréciable.

L'explication la plus plausible de ce phénomène nous a paru être que l'amplitude des oscillations piézoélectriques soit plus grande à la dilatation qu'à la compression. Mais ceci implique que le module d'élasticité n'est pas indépendant de la déformation et qu'il est plus élevé à la compression qu'à la dilatation, à condition que les amplitudes soient assez grandes.

Les amplitudes intervenant dans nos mesures sont assez difficiles à évaluer; nous l'avons fait d'une manière approximative par deux méthodes différentes: D'une part en mesurant à quelle dilatation

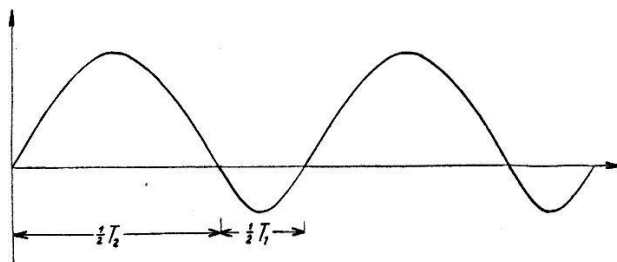


Fig. 7.

Déformation locale d'une lame vibrante en fonction du temps lorsque le module d'élasticité est différent à la compression et à la dilatation.

correspond l'élargissement de la courbe à la demi-hauteur ce qui nous donne une amplitude relative légèrement inférieure à $2^{\circ}/_{\infty}$; d'autre part en calculant la déformation provoquée par une tension continue de même valeur que la tension haute fréquence de crête appliquée, et en multipliant cette déformation par le facteur de qualité de la lame. Malheureusement ce facteur est difficilement mesurable, nous l'avons estimé d'après les conditions d'oscillation (une face libre¹⁴⁾) à 10000; ce qui nous donnerait une déformation de l'ordre de $1,5^{\circ}/_{\infty}$. La deuxième valeur est très approximative, elle est toutefois du même ordre de grandeur que la première. En utilisant le module d'élasticité donné dans les tables, qui n'est d'ailleurs probablement plus valable pour ces déformations, nous trouvons une tension de 800 kg/cm^2 pour une dilatation de $1^{\circ}/_{\infty}$.

Examinons quelles seraient les oscillations d'une lame vibrant dans son épaisseur lorsque le module d'élasticité n'est pas constant.

Pour simplifier, nous supposons que ce module a deux valeurs différentes E_1 et E_2 à la compression et à la dilatation ($E_1 > E_2$). Un pendule soumis à des forces semblables aurait un mouvement composé de deux demi-sinusoïdes de périodes différentes, données par l'équation $T_1^2 E_1 = T_2^2 E_2$, et dont les amplitudes seraient déterminées par l'égalité des vitesses au point de déplacement nul pour les deux sinusoïdes (fig. 7).

$$A_1 \omega_1 = A_2 \omega_2$$

ce qui donne

$$A_1^2 E_1 = A_2^2 E_2.$$

Dans le cas d'une lame vibrant transversalement, les longueurs de l'onde de compression et de l'onde de dilatation sont les mêmes, car les vitesses de propagation sont proportionnelles à la racine du module d'élasticité $v_1 T_1 = v_2 T_2$.

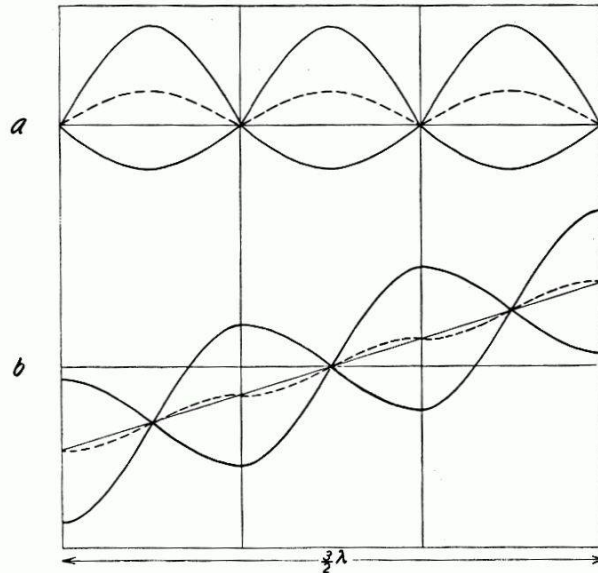


Fig. 8.

Nous avons représenté (fig.8a) les déformations locales (proportionnelles aux tensions) d'une lame vibrant à la troisième harmonique de sa fréquence de résonance, en portant positivement les dilatations et négativement les compressions.

Les deux courbes en traits pleins représentent les amplitudes maxima alors que la courbe en pointillé décrit un état intermédiaire. La période de la compression étant plus courte que celle de la dilatation, il se trouve qu'à certains moments — exactement au début et à la fin de la demi-période de dilatation — toutes les zones de la lame se trouvent à l'état dilaté; c'est le cas pour la courbe en pointillé.

En intégrant les courbes des déformations locales on obtient les déplacements absolus des différents points de la lame (fig. 8 b). Les courbes des déplacements sont portées à partir du milieu de la lame comme origine; les déplacements vers la droite étant positifs. La figure montre que la lame subit une dilatation permanente autour de laquelle elle oscille ce qui est très compréhensible puisque la dilatation locale est de plus grande amplitude et de plus longue durée que la compression.

Cette représentation graphique des oscillations n'est qu'une solution approximative de l'équation d'onde, mais elle représente assez bien l'allure des oscillations. Elle permet entre autre d'expliquer pourquoi il est possible d'exciter piézoélectriquement les oscillations d'une lame de quartz au deuxième harmonique. Ces vibrations ne peuvent en effet pas être entretenues par une tension électrique si l'on suppose le module d'élasticité constant, car la différence de potentiel entre les deux faces de la lame est toujours nulle, les tensions des deux moitiés de l'épaisseur s'opposant exactement l'une à l'autre. Comme on le voit en considérant les deux premiers tiers de la courbe des déplacements, les tensions électriques (proportionnelles aux déplacements) ne s'annulent plus dans le cas de modules d'élasticité, différents à la compression et à la dilatation.

D'autre part des travaux expérimentaux récents ¹⁵⁾ ¹⁶⁾ ont montré qu'il est également possible d'exciter des résonances d'une lame de quartz à des harmoniques demi-impairs ($3/2$, $5/2$...). Ces résonances peuvent également s'expliquer si l'on considère les courbes en pointillé. Celles-ci contiennent une oscillation dont la longueur d'onde est la moitié de l'oscillation principale. Si l'on fait osciller une lame de quartz à une fréquence $3/2$ de la fondamentale par exemple il existe donc une onde dont la demi longueur d'onde entre trois fois dans l'épaisseur de la lame et qui satisfait ainsi aux conditions aux limites d'une onde stationnaire. Il est évident que ces résonances doivent être beaucoup plus faibles que pour les harmoniques entiers ce qui est bien le cas expérimentalement.

L'hypothèse d'un module d'élasticité augmentant à la compression semble ainsi être confirmée par des expériences tout à fait indépendantes.

Il n'est malheureusement pas possible de donner un rapport entre les modules d'élasticité moyens, à la compression et à la dilatation, car les expressions obtenues en fin d'introduction pour l'allure des courbes ne sont pas intégrables et ne permettent donc pas de tirer les valeurs de ces modules. Il serait d'ailleurs nécessaire de connaître la valeur du coefficient d'absorption μ qui nous l'avons vu, varie avec l'état de mosaïque.

Conclusion.

La mesure des courbes de diffraction des rayons X, par une lame de quartz oscillant piézoélectriquement, nous a permis par une détermination précise de l'intensité intégrée diffractée, de conclure à la transformation du cristal presque parfait du quartz en une mosaïque lors des oscillations. Cette transformation est confirmée par la concordance des valeurs théoriques — des intensités diffractées — avec les valeurs expérimentales.

Le passage à l'état de mosaïque lors des oscillations permettrait peut-être d'expliquer le vieillissement des quartz dans les horloges.

L'asymétrie des courbes de diffraction fait penser que le module d'élasticité du quartz augmente à la compression, cette hypothèse permet par ailleurs d'expliquer l'existence des résonances aux harmoniques pairs et demi-impairs d'une lame de quartz (X-cut), qui ont été observées expérimentalement.

Institut de Physique de l'Université,
Genève.

Références bibliographiques.

- 1) WEIGLE et BLEULER, *Helv. Phys. Acta* **15**, 445 (1942).
 - 2) COLBY et HARRIS, *Phys. Rev.* **43**, 562 (1933).
 - 3) BOZORTH et HAWORTH, *Phys. Rev.* **45**, 821 (1934).
 - 4) BERTSCH, *Phys. Rev.* **49**, 128 (1936).
 - 5) KLAUER, *Phys. Z.* **36**, 208 (1935).
 - 6) COLBY et HARRIS, *Phys. Rev.* **46**, 445 (1934).
 - 7) CORK, *Phys. Rev.* **42**, 749 (1932).
 - 8) FOX et CORK, *Phys. Rev.* **38**, 1420 (1931).
 - 9) FOX et CARR, *Phys. Rev.* **37**, 1622 (1931).
 - 10) LANGER, *Phys. Rev.* **38**, 573 (1931).
 - 11) MILLER, *Phys. Rev.* **74**, 166 (1948).
 - 12) JAUNCEY et BRUCE, *Phys. Rev.* **54**, 163 (1938).
 - 13) JAMES, *Optical Principles of the Diff. of X-Rays* (1948).
 - 14) BERGMANN, *Der Ultraschall* (1954).
 - 15) PARTHASARATHY, PANCHOLY et CHHAPGAR, *Nature (London)* **171**, 216 (1953).
 - 16) PARTHASARATHY, PANCHOLY et CHHAPGAR, *Ann. der Phys.* [6] **12**, 1/7 (1953).
-