Zeitschrift: Helvetica Physica Acta

Band: 14 (1941)

Heft: VII

Artikel: Diffusion des Rayons X par les ondes thermiques des Cristaux (Diamant)

Autor: Weigle, J.

DOI: https://doi.org/10.5169/seals-111202

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. Mehr erfahren

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. En savoir plus

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. Find out more

Download PDF: 04.12.2025

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

Diffusion des Rayons X par les ondes thermiques des Cristaux (Diamant)

(par **J. Weigle**).

I.

La distribution de la matière dans un cristal peut être représentée par une série de FOURIER à trois dimensions. Si $\varrho(\vec{r})$ est la densité électronique au point $\vec{r}$, on a

$$\varrho(\vec{r}) = \sum_h \sum_k \sum_l \varrho_{hkl} e^{2\pi i (\vec{b}_{hkl} \cdot \vec{r})}$$

ϱ_{hkl} est alors le facteur de structure du plan dont les indices de MILLER sont (hkl) et les vecteurs $\vec{b}_{hkl} = h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3$ définissent par leurs extrémités un réseau de points (hkl) qu'on appelle le réseau réciproque. A chacun des points du réseau réciproque un poids ϱ_{hkl} est donc attaché.

Si une onde de rayons X tombe sur le cristal, la théorie élémentaire de la diffraction montre qu'elle sera diffractée si la relation

$$\vec{k}_i - k_d = \vec{b}_{hkl}$$

est vérifiée, lorsque $\vec{k}_i$ et $\vec{k}_d$ $(k_i = k_d = 1/\lambda)$ sont les vecteurs d'onde des ondes incidente et diffractée respectivement. Cette relation donne immédiatement lieu à la construction de la sphère de propagation (fig. 1). D'autre part, on trouve que l'intensité de l'onde diffractée est proportionnelle au carré du facteur de structure ϱ_{hkl} du point (hkl) auquel le vecteur d'onde $\vec{k}_d$ aboutit.

Ainsi, la représentation du cristal par la série de FOURIER donne tous les renseignements désirés, définissant d'un côté les conditions géométriques de la diffraction par les $\vec{b}_{hkl}$ et le réseau réciproque construit sur ceux-ci et donnant d'autre part l'intensité de la diffraction par les facteurs ϱ_{hkl}.

Si l'on veut calculer l'effet du mouvement thermique des atomes sur la diffraction des rayons X, il faudra représenter le cristal par une nouvelle série de FOURIER donnant la distribution de matière dans le cristal lorsque les atomes sont déplacés de leurs positions d'équilibre. Car comme le mouvement d'agita-

tion thermique est fait d'ondes se propageant dans le cristal, la distribution de matière reste périodique (avec une période égale à la longueur d'onde de l'onde thermique considérée). Nous avons pu montrer[1]) que la présence d'une onde thermique dans une direction déterminée introduit dans le réseau réciproque deux points supplémentaires autour de chacun des points du réseau sans onde thermique. Ces points supplémentaires sont placés dans la direction de la propagation de l'onde à une distance égale au vecteur d'onde

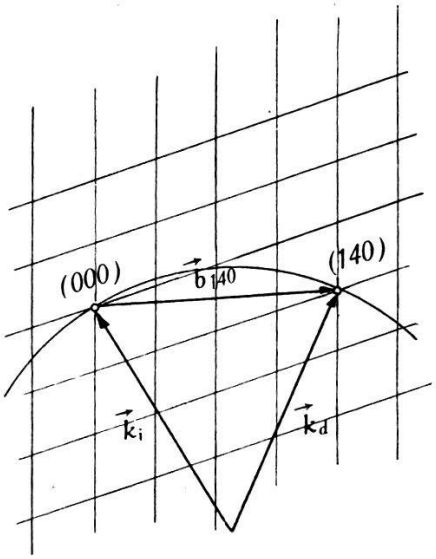

Fig. 1.

Sphère de Propagation.

Dans le réseau réciproque, on a porté le vecteur d'onde incident aboutissant à l'origine du réseau. Puis, en prenant comme centre l'origine de ce vecteur, on a tracé la sphère de propagation. Si cette sphère rencontre un point du réseau réciproque (comme 140), il y aura une onde diffractée dont le vecteur d'onde aboutit au point du réseau et a son origine au centre de la sphère. En effet, la différence vectorielle entre les deux vecteurs d'onde incident et diffracté est égale à un vecteur du réseau réciproque, ce qui est la condition de diffraction imposée par la théorie des interférences.

($r = 1/\lambda$). Et ils ont un facteur de structure dépendant de celui du point (hkl) auquel ils sont associés, de l'amplitude ξ_r de l'onde et des cosinus directeurs ($\alpha\beta\gamma$) de cette amplitude. On trouve, pour ces facteurs (en valeur absolue)

$$\varrho_{r,hkl} = \varrho_{hkl} \frac{\pi \xi_r}{a} (h\alpha + k\beta + l\gamma) \tag{1}$$

où ϱ_{hkl} est le facteur de la structure du point (hkl), et a la constante de la maille du réseau supposé cubique.

---

[1]) Smith and Weigle, Phys. Rev. (sous presse).

En réalité, nous n'avons dérivé cette expression que dans le cas d'un réseau cubique dont les atomes, tous semblables, sont placés à chaque coin du cube. Nous montrerons plus loin qu'elle s'applique beaucoup plus généralement.

L'amplitude ξ des ondes thermiques est extrêmement petite, de l'ordre de 10^{-18} cm. à la température ordinaire, pour des ondes de 10^{-5} cm. Par conséquent, l'intensité des rayons X diffractés ou réfléchis sur les plans formés par l'onde thermique est extrêmement petite et serait tout à fait négligeable si l'onde thermique considérée était seule. En réalité, le cristal est parcouru dans tous

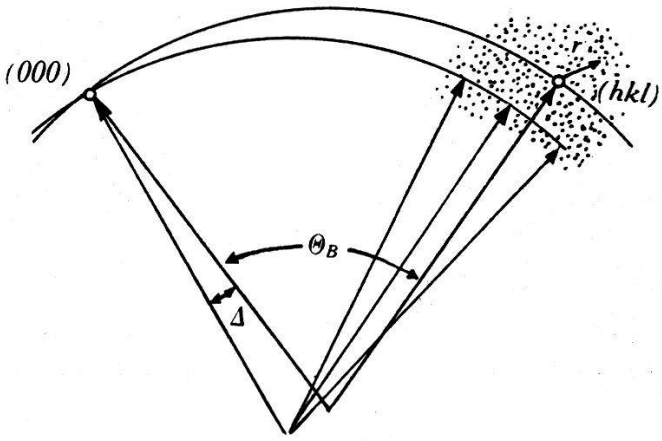

Fig. 2.

Sphère de Propagation dans le réseau perturbé par les ondes thermiques.

Le nouveau réseau est figuré par les points entourant le point (hkl); ils s'étendent dans tout le réseau avec une densité constante. La distance r est l'inverse de la longueur d'onde de l'onde thermique se propageant dans cette direction. On a tracé les sphères de propagation pour deux directions des rayons X incidents. L'une de ces directions correspond à l'angle de Bragg Θ_8 nécessaire pour obtenir la réflexion sur le plan (hkl), l'autre déplacée de l'angle Δ par rapport à la première. Chaque point du nouveau réseau rencontré par la sphère donne une réflexion et l'on voit que les ondes thermiques donnent un large faisceau diffusé même lorsque les rayons incidents ne sont pas dans l'angle de Bragg.

les sens par un très grand nombre de ces ondes thermiques (il y en a 3 N si le cristal contient N atomes). Leurs longueurs d'ondes s'échelonnent entre les dimensions du cristal pour les grandes ondes et approximativement la moitié de la distance entre deux atomes pour les ondes thermiques les plus courtes. On voit donc facilement que le réseau réciproque devient rempli d'une façon homogène par un très grand nombre de points supplémentaires.

Aussi, si l'on envoie des rayons X sur le cristal dans une direction qui n'est plus celle nécessaire pour obtenir la diffraction sur le plan $((hkl)$, la sphère de propagation passera par un grand nombre de points du nouveau réseau réciproque (fig. 2). D'autre

part, le faisceau des rayons X incidents n'est jamais exactement monochromatique et parallèle. Il a en tout cas la largeur spectrale des raies caractéristiques employées et sa divergence, donnée par les fentes qui délimitent le faisceau, est rarement plus petite qu'une minute d'arc. En mesurant donc l'intensité des rayons X diffractés, même dans une direction exactement fixée, on mesure en réalité la diffraction due à tous les points du réseau réciproque contenus dans un petit volume déterminé par la divergence du faisceau incident et par la largeur du domaine spectral (fig. 3).

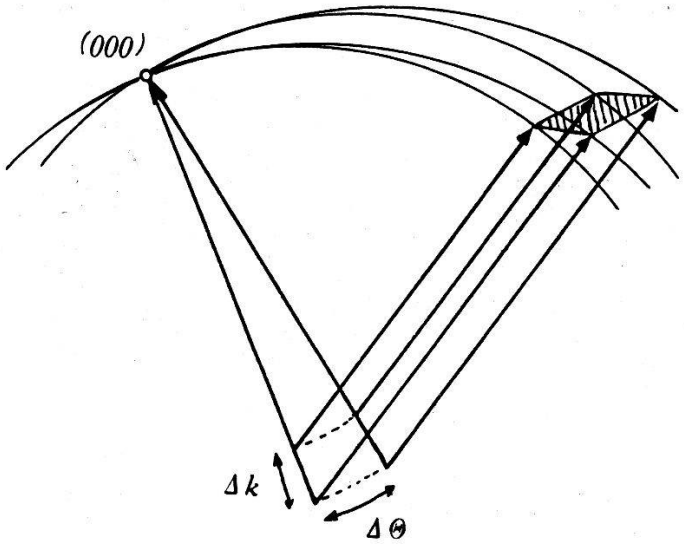

Fig. 3.
Effet de la divergence du faisceau incident et de sa largeur spectrale.

Par conséquent, si l'on veut calculer cette intensité, il faudra connaître la densité des facteurs de structure en chaque endroit du réseau réciproque. La densité de répartition des points dans l'espace réciproque est constante en chaque endroit et sa valeur ne dépend que des dimensions du cristal car celles-ci déterminent les plus grandes longueurs d'ondes et donc les plus petits vecteurs d'ondes. Or c'est sur ces derniers qu'est construit le nouveau réseau réciproque du cristal perturbé par les ondes thermiques. Le nombre des points supplémentaires contenus dans le volume V_b de la maille du réseau réciproque construit sur les $\vec{b}_{hkl}$ est égal au nombre des atomes N formant le cristal. Il n'y en a pas 3 N car à chaque point (à chaque longueur d'onde) correspondent trois ondes thermiques: une onde « longitudinale » et deux ondes «transversales», qui se propagent toutes trois avec des vitesses différentes. Ainsi la densité n des points dans l'espace réciproque est

$$n = \frac{N}{V_b} = \frac{\varrho V}{m V_b}$$

où ϱ est la densité, V le volume du cristal et m la masse d'un atome.

Le facteur de structure de chaque point dépend de la position de celui-ci, car l'amplitude ξ_r de l'onde thermique qui lui donne naissance est fonction de la longueur d'onde qui, elle, est mesurée par l'inverse de la distance r du point considéré au point associé du réseau non perturbé. On trouve en effet que si chaque onde porte l'énergie

$$\frac{h\nu}{e^{\frac{h\nu}{kT}} - 1} \cong kT \tag{2}$$

(les fréquences ν qui interviendront rendent $h\nu$ beaucoup plus petit que kT), l'amplitude est donnée par

$$\xi_r^2 = \frac{kT}{2\pi^2 \varrho V} \frac{\lambda^2}{v^2} \tag{3}$$

λ et v étant la longueur d'onde et la vitesse de l'onde thermique respectivement. On trouve donc finalement pour la densité du carré des facteurs de structure dans l'espace réciproque

$$\varrho_{r,hkl}^2 = \varrho_{hkl}^2 \frac{kT}{2mV_b a^2} \cdot \frac{1}{r^2} \sum_i \left(\frac{h\alpha_i + k\beta_i + l\gamma_i}{v_i} \right) \tag{4}$$

L'indice $i = 1, 2, 3$ se réfère aux trois ondes longitudinale et transversales correspondant à chaque longueur d'onde. Cette expression est, comme il se doit, indépendante des dimensions du cristal. Cela provient de ce que la densité d'énergie pour une température donnée ne dépend pas de la grandeur du cristal. Ainsi, lorsque les dimensions du cristal augmentent, le nombre des points supplémentaires du réseau réciproque augmente aussi mais, comme l'amplitude de chacune des ondes diminue, la densité du carré du facteur de structure reste constante.

Comme on le voit, cette densité, qui détermine l'intensité des rayons X diffractés, diminue rapidement à mesure qu'on s'éloigne du point (hkl) dans l'espace réciproque, c'est-à-dire que r augmente. Le faisceau diffusé de la fig. 2 aura donc un large maximum d'intensité dans la région où la sphère de propagation est la plus rapprochée du point (hkl). Plus la direction des rayons incidents s'écartera de l'angle de Bragg pour le plan (hkl), plus le maximum s'étalera et plus il sera faible. Pratiquement on ne pourra l'observer que dans un domaine angulaire très voisin de l'angle de Bragg, de l'ordre de grandeur d'un degré.

Cette condition, nous obligera donc à restreindre nos considérations à des régions du réseau réciproque immédiatement voisines des points (hkl) du réseau non perturbé. Elle va nous permettre d'appliquer ce que nous venons de trouver pour un simple réseau cubique à d'autres réseaux plus compliqués.

II. Poles de diffusion du diamant.

On sait que si le cristal est composé de plusieurs atomes différents, on trouve pour une même longueur d'onde élastique, en plus des trois ondes (ondes acoustiques) dont nous avons parlé, d'autres ondes de fréquences beaucoup plus élevées (ondes optiques). Mais ces ondes ont des amplitudes qui, d'après les expressions (2) et (3) sont beaucoup plus petites que celles que nous avons considérées. On peut donc les négliger.

D'autre part, comme nous nous restreignons aux grandes longueurs d'ondes, les lois de propagation sont celles des milieux continus, pour lesquels il n'y a pas de dispersion. L'amplitude des ondes donne le déplacement des atomes; car, en effet, on peut montrer facilement que, dans ces conditions, tous les atomes du cristal vibrent avec la même amplitude, même si leurs masses sont très différentes. Si l'on connaît les constantes élastiques du cristal, on peut calculer en chaque point du réseau réciproque la valeur de la densité du carré des facteurs de structure. On peut tracer alors, dans ce réseau, les surfaces d'égale densité, qui donnent donc les directions d'intensités diffusées égales. Nous avons appelé ces figures les «poles de diffusion» et ce sont celles-ci que nous avons calculées pour le diamant.

Ce cristal est formé d'atomes de carbone placés aux points $(000, \frac{1}{2}\frac{1}{2}0, \frac{1}{2}0\frac{1}{2}, 0\frac{1}{2}\frac{1}{2}, \frac{1}{4}\frac{1}{4}\frac{1}{4}, \frac{3}{4}\frac{3}{4}\frac{1}{4}, \frac{3}{4}\frac{1}{4}\frac{3}{4}, \frac{1}{4}\frac{3}{4}\frac{3}{4})$ d'un cube de côté a égal à $3{,}560\ 10^{-8}$ cm. Avec cette disposition, on trouve que les ϱ_{hkl} sont nuls si les indices sont mixtes ou si $h+k+l=2$, $6, 10$, etc. Si l'on ne considère que les points du réseau réciproque pour lesquels les ϱ_{hkl} sont différents de zéro, on trouve une maille cubique à face centrée, dont le côté vaut $4/a$ et dans laquelle les 8 cubes intérieurs construits sur $2/a$ ont des points occupés en leurs centres.

Les constantes élastiques du diamant ont été calculées par NATH[1]), qui donne les valeurs $C_{11} = 9{,}8\ 10^{12}$, $C_{12} = 4{,}5 \cdot 10^{12}$ et

[1]) NATH, Proc. Ind. Acad. **1**, 841, 1934.

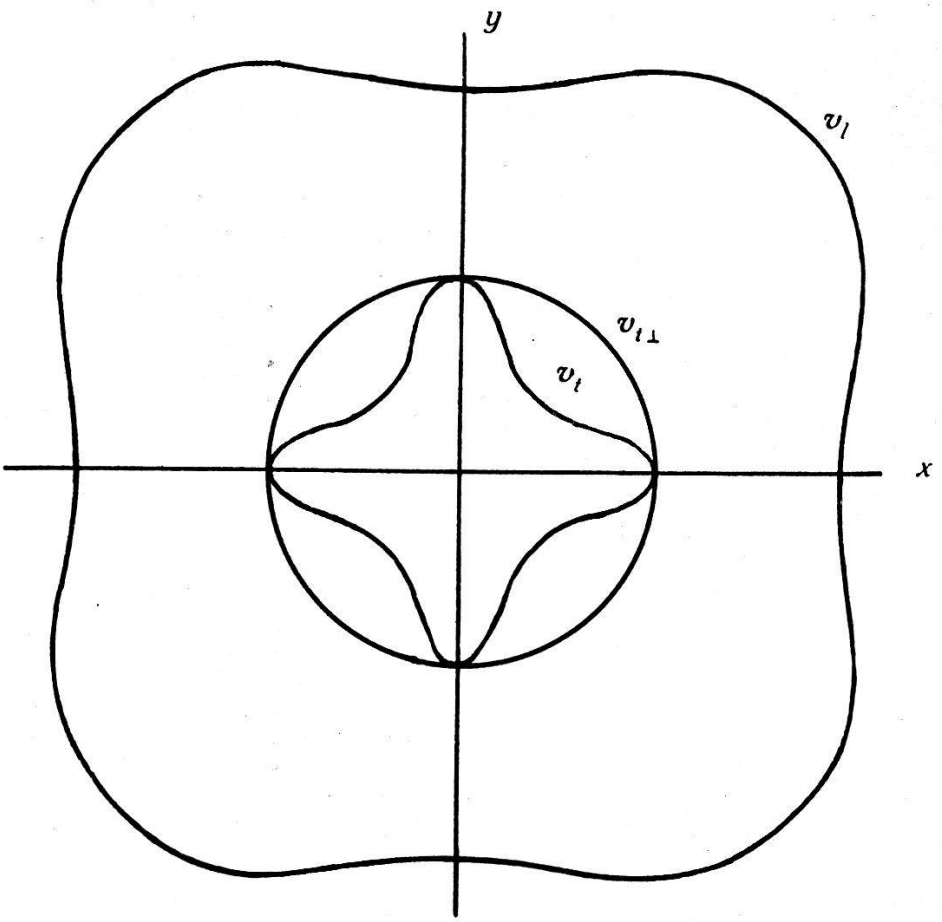

Fig. 4.

Vitesses de propagation des ondes élastiques dans le diamant.

Les directions x et y correspondent à celles de deux arêtes de la maille cubique du cristal. On aurait les mêmes figures pour les plans (yz) et (zx). La surface extérieure est celle de l'onde « longitudinale » polarisée donc dans le plan du papier. La direction de vibration n'est dirigée suivant la direction de propagation que selon les axes x et y et à 45^0 de ceux-ci. La surface donnant un cercle est celle de l'onde transversale vibrant perpendiculairement au plan (xy). La troisième surface correspond à l'autre onde transversale vibrant dans le plan (xy). Sa vibration est toujours perpendiculaire à celle de l'onde longitudinale.

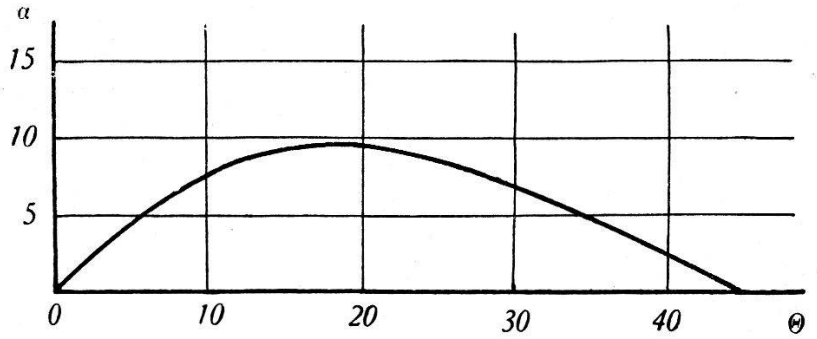

Fig. 5.

Direction de vibration de l'onde longitudinale.

L'angle α est celui que fait la vibration avec la direction de propagation qui, elle, fait un angle Θ avec l'axe x.

$C_{44} = 5{,}3 \cdot 10^{12}$ toutes en dynes/cm². Pour simplifier les calculs, nous avons pris $C_{11} = 10 \cdot 10^{12}$ et $C_{12} = C_{44} = C_{11}/2$.

Les équations des ondes donnent, en plus de chaque vitesse les cosinus directeurs $(\alpha\beta\gamma)$ de ξ qui interviennent dans l'expression (4). Nous avons donné, dans les figures (4) et (5), les résultats de ces calculs pour le diamant. On voit que, même dans un plan tel

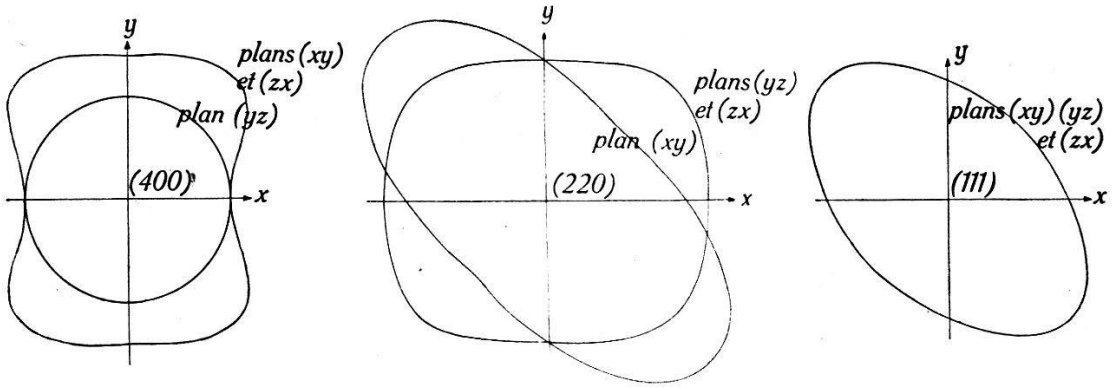

Fig. 6.

Poles de diffusion des plans (400), (220) et (111).

Nous avons dessiné les intersections de ces surfaces avec les trois plans (xy), (yz) et (zx). Ces figures ne sont pas à la même échelle, les plans d'indices élevés diffusent relativement plus que ceux de petits indices. Cela provient de ce que le mouvement des atomes brouille beaucoup l'arrangement des plans d'indices élevés. La symétrie des poles de diffusion se comprend facilement en fonction de la symétrie du cristal. Ainsi l'on voit que la diffusion autour du plan (400) n'est pas fonction de l'azimuth des rayons incidents. Il n'en va pas de même pour les plans (220) et (111).

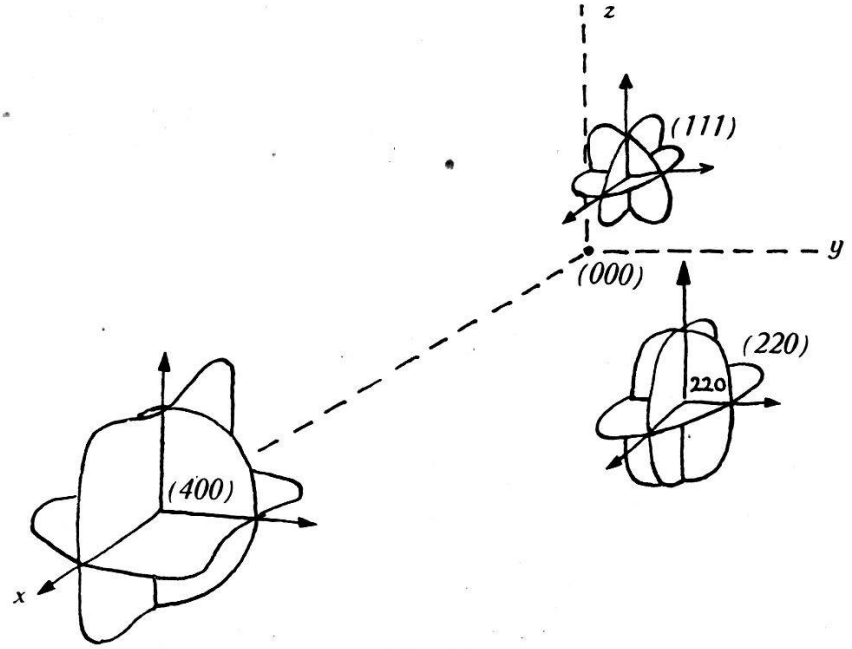

Fig. 7.

Vue perspective des poles de diffusion dans le réseau réciproque du diamant.

que (xy) les ondes ne sont transversales et longitudinales que dans certaines directions comme ox, ou oy ou encore à 45^0 de ces deux axes. Il y a, dans ce plan, une seule onde vraiment transversale; c'est celle qui vibre parallèlement à oz et qui a donc la même vitesse de propagation dans toutes les directions.

Les figures 6 et 7 donnent les poles de diffusion pour les diffractions associées aux trois plans (400), (220) et (111). Ce sont, comme nous l'avons dit, les surfaces d'égales densités du carré des facteurs de structure. On peut, quand on les connaît, trouver pour chaque direction des rayons X incidents, la distribution de l'inten-

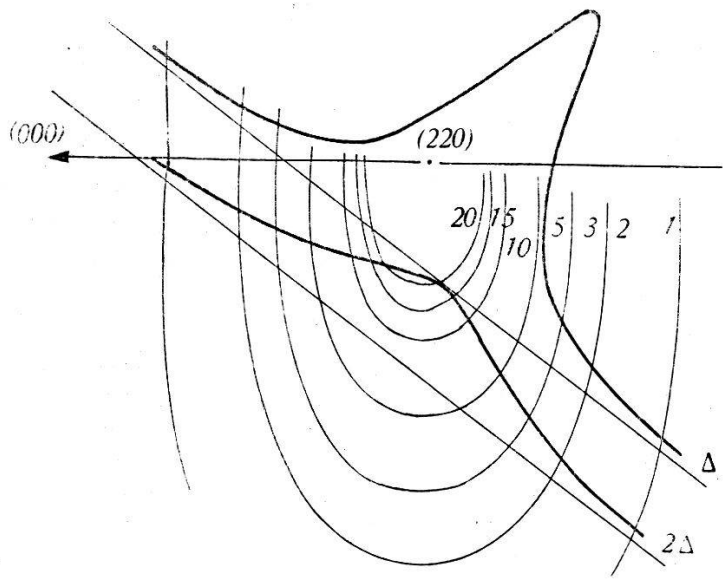

Fig. 8.

Poles de diffusion de (220) dans le plan (xy) et distribution de l'intensité du faisceau diffusé pour deux incidences en dehors de l'angle de Bragg.

L'échelle est très grande et les sphères de propagation Δ et $2\,\Delta$ sont devenues des droites. L'angle qu'elles font avec la direction (000) (220) est l'angle de Bragg pour les rayons K du cuivre. Les courbes marquées 1, 2, 3 etc. sont les courbes d'égales densités du carré du facteur de structure.

Suivant l'échelle choisie, il sera nécessaire de tenir compte de la divergence du faisceau incident et de sa largeur spectrale. Car si l'échelle est si grande que le volume (fig. 3) est fini, il faudra, pour représenter l'intensité, prendre la moyenne des densités dans ce volume.

sité dans le faisceau diffusé. Dans la figure 8, nous avons tracé plusieurs intersections des poles de diffusion avec le plan xy. Ces courbes correspondent aux valeurs successives 1, 2, 3, etc., en unités arbitraires de l'intensité de diffusion. Puis, nous avons indiqué les sphères de propagation pour différentes incidences en dehors de l'angle de Bragg. Enfin, d'après les poles de diffusion, nous avons, pour chaque incidence, donné la distribution de l'intensité dans le faisceau diffusé.

*

Les circonstances actuelles ne nous ont malheureusement pas permis de nous procurer les travaux expérimentaux concernant la diffusion des rayons X par le diamant, en particulier ceux de LONSDALE[1]), pour pouvoir les comparer à nos résultats. Pour autant que nous pouvons nous en rendre compte, ces travaux vérifient, au moins qualitativement, les calculs que nous présentons.

III. Conclusions.

L'effet de la température sur l'intensité du faisceau diffusé en dehors de l'angle de Bragg est dû principalement au facteur T intervenant dans l'expression (4). Cependant, comme les constantes élastiques, qui déterminent la vitesse de propagation des ondes thermiques, changent aussi, on trouvera que la forme des poles de diffusion dépend de la température. D'autre part, la dilatation thermique du cristal fait varier le volume réciproque V_b. Ces deux derniers effets sont du reste beaucoup plus petits que le premier, mais ils ne sont pas négligeables.

Il faut remarquer que l'effet de la température sur l'intensité des rayons X réfléchis suivant l'angle de Bragg est très différent. Leur intensité est proportionnelle au facteur $(1 - e^{-2M})$, où e^{-2M} est le facteur de DEBYE-WALLER[2]). Cette différence provient du fait que ce facteur est dû simultanément à toutes les ondes thermiques qui, séparément, soustraient chacune du facteur de structure ϱ_{hkl} une petite quantité. La présence, dans la quantité M, de la température caractéristique du cristal montre bien que même les ondes thermiques de petites longueurs d'ondes viennent jouer un rôle tandis que nous avons pu les négliger dans les calculs de la diffusion en dehors de l'angle de Bragg.

La présence du facteur $1/r^2$ dans l'expression (4) pourrait faire penser que, puisque la densité des facteurs de structure thermique devient infinie pour $r = 0$, l'intensité des rayons X diffusés dans cette direction devient infinie elle aussi. Cependant, il faut tenir compte de la divergence du faisceau incident et de sa largeur spectrale. Si, dans le petit volume déterminé par ces imprécisions (fig. 3), la densité varie fortement, les rayons X diffusés auront une intensité donnée par la moyenne de la densité dans le volume considéré. On voit facilement alors que, même au point $r = 0$, cette moyenne reste finie. Toutefois, en ce point intervient la diffraction de Bragg sur le plan (hkl). Ainsi celle-ci va se détacher

---

[1]) LONSDALE, Proc. Roy. Soc., août 1941.

[2]) I. WALLER, Ztschr. f. Phys. **17**, 398, 1923.

sur un fond d'intensité beaucoup plus petite dû aux perturbations thermiques. On retrouvera ainsi le résultat donné il y a longtemps déjà par WALLER[1]). En effet, toute la théorie de la diffusion thermique des rayons X avait été donnée par ce dernier et nos calculs se sont bornés à mettre sous une forme à la fois plus simple et plus détaillée, et peut-être plus accessible, la théorie de WALLER et celle, semblable, de ZACHARIASEN[2]).

Je désire, pour terminer, remercier mon collègue M. E. C. G. STUECKELBERG, pour ses précieux conseils.

Institut de Physique de l'Université de Genève.

---

[1]) I. WALLER, loc. cit.

[2]) W. H. ZACHARIASEN, Phys. Rev. **57**, 597, 1940 et **59**, 207, 1941.