

# Diffraktion des électrons par le graphite

Autor(en): **Hoerni, Jean**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Helvetica Physica Acta**

Band (Jahr): **23 (1950)**

Heft VI-VII

PDF erstellt am: **20.09.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-112125>

## **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

## **Haftungsausschluss**

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

## Diffraction des électrons par le graphite

par Jean Hoerni (Genève).

(16. V. 1950.)

*Résumé.* La théorie dynamique de la diffraction est appliquée au graphite, et ses résultats sont vérifiés expérimentalement. Chaque observation se trouve expliquée par la théorie et donne des résultats numériques précis sur le cristal et sa structure. L'étude des différentes variétés de graphites donne des renseignements nouveaux sur la disposition des couches atomiques successives.

### Introduction.

L'étude rigoureuse de la propagation d'ondes à travers un milieu périodique est donnée par la théorie dynamique, qui a fait l'objet des travaux d'EWALD (1933) pour les rayons X dans les cristaux, et a été appliquée à la diffraction des électrons par BETHE (1928), LAUE (1944) et FUES (1938), entre autres. Dans le domaine expérimental de ce second cas, à part SHINOHARA (1932), qui a recouru à cette théorie dans l'interprétation des enveloppes et des bandes de KIKUCHI, c'est en 1940 seulement que MACGILLAVRY en donne une vérification marquante, mais fragmentaire, d'après une photographie publiée par KOSSEL et MÖLLENSTEDT (1939). Ces auteurs ont inauguré une nouvelle technique expérimentale, que nous avons reprise dans le présent travail. Notre intention a été de relier davantage que cela n'a été le cas jusqu'à présent, l'expérience et la théorie, par une vérification plus systématique de cette dernière.

On sait que les calculs ont été développés pour des cristaux s'étendant indéfiniment dans deux dimensions, et limités dans la troisième par deux faces parallèles. A cause de la forte absorption des électrons dans la matière, l'épaisseur du cristal ne doit pas excéder 2000 Å environ si l'on veut étudier, comme nous l'avons fait, la diffraction « par transmission ». Notre choix, ainsi limité à des substances clivables, s'est porté sur le graphite, qui présente les avantages suivants: grande facilité de préparation, système cristallin simple (hexagonal), atomes de petit nombre atomique. Le graphite présente en outre une modification rhomboédrique, découverte par LIPSON et STOKES (1942) sur des diagrammes de poudre pris aux rayons X, et que nous avons clairement mise en évidence sur des cristaux uniques.

### § 1. Données théoriques du problème.

Nous situons l'origine des coordonnées sur la face du cristal frappée par les électrons (face d'entrée). Si l'on désigne par  $\mathbf{n}$  un vecteur unité normal à la face de sortie (fig. 1), et par  $D$  l'épaisseur du cristal, les deux faces sont définies par

$$\begin{aligned} \mathbf{n}\mathbf{r} &= 0, \\ \mathbf{n}\mathbf{r} &= D. \end{aligned} \quad (1)$$

Le cristal lui-même résulte de la juxtaposition de mailles élémentaires construites sur les trois vecteurs de base  $\mathbf{a}_i$  ( $i = 1, 2, 3$ ). Nous ne nous occuperons que du cas où  $\mathbf{a}_3$  est perpendiculaire à  $\mathbf{a}_1$  et  $\mathbf{a}_2$ , et parallèle à  $\mathbf{n}$  ( $\mathbf{a}_1$  et  $\mathbf{a}_2$  étant parallèles aux faces du cristal). Les phénomènes de diffraction mettent en jeu le réseau réciproque, de vecteurs de base  $\mathbf{b}_k$  ( $k = 1, 2, 3$ ) satisfaisant aux relations

$$\mathbf{a}_i \mathbf{b}_k = \delta_{ik}.$$

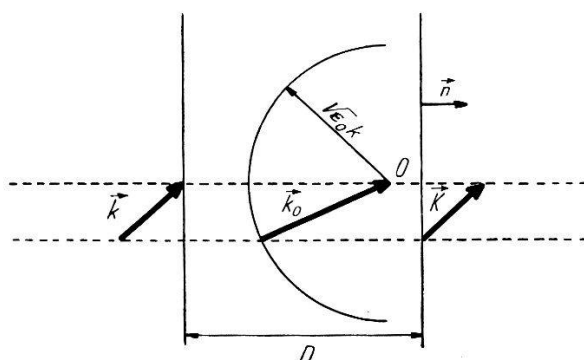


Fig. 1.

Surface de dispersion dans le cas d'une onde ( $u_0, \mathbf{k}_0$ ) intense à l'intérieur du cristal. La construction indiquée permet d'associer à tout vecteur  $\mathbf{k}$  de l'onde incidente le vecteur  $\mathbf{k}_0$  satisfaisant aux conditions aux limites, et le vecteur  $\mathbf{K}$  de l'onde à la sortie.

Le potentiel  $\Phi(\mathbf{r})$ , nul à l'extérieur du cristal, est triplement périodique à l'intérieur ( $0 < \mathbf{n}\mathbf{r} < D$ ), à part de petites perturbations près des faces, que nous négligeons; on peut donc le développer en triple série de FOURIER:

$$\Phi(\mathbf{r}) = \sum_n \Phi_n e^{2\pi i \mathbf{b}_n \mathbf{r}}, \quad (2)$$

où  $n$  est un indice triple,  $\Phi_n = \Phi_{-n}^*$  et  $\mathbf{b}_n = n_1 \mathbf{b}_1 + n_2 \mathbf{b}_2 + n_3 \mathbf{b}_3$  ( $n_1, n_2$  et  $n_3$  entiers).

Nous pouvons maintenant esquisser la théorie dynamique de la façon suivante:

On admet que les électrons ne perdent pas d'énergie en traversant le cristal — qu'ils ne subissent que des chocs élastiques — et l'on cherche d'abord les ondes possibles dans un milieu infini, où le potentiel est donné par (2), et pour une énergie donnée  $E$  des électrons. La solution de l'équation de SCHRÖDINGER est alors un champ d'ondes planes\*):

$$u(\mathbf{r}) = \sum_n u_n e^{2\pi i \mathbf{k}_n \mathbf{r}}, \quad (3)$$

\*) Une solution plus générale dépendrait du temps par le facteur  $e^{2\pi i (E/\hbar)t}$  dont il n'est pas nécessaire de s'occuper dans les phénomènes stationnaires.

où les  $u_n$  doivent satisfaire aux équations de récurrence

$$\frac{k_n^2 - \varepsilon_0 k^2}{k^2} u_n - \sum_{q \neq n} \varepsilon_{n-q} u_q = 0, \quad (4)$$

et les  $\mathbf{k}_n$  aux relations

$$\mathbf{k}_n = \mathbf{k}_0 + \mathbf{b}_n \quad (5)$$

$k$  vaut ici l'inverse de la longueur d'onde qu'auraient les électrons dans le vide ( $k = \sqrt{2mE}/\hbar$ ;  $m =$  masse de l'électron), et les coefficients  $\varepsilon$  sont définis par

$$\begin{aligned} \varepsilon_0 &= 1 + \Phi_0/P = 1 + \Phi \text{ moyen}/P, \\ \varepsilon_n &= \Phi_n/P \quad (n \neq 0), \end{aligned} \quad (6)$$

$P$  étant le potentiel accélérateur des électrons.

Pour le graphite, et  $P = 50000$  volts, on a:  $\varepsilon_0 \sim 1 + 10^{-4} \sim 1$  et  $\varepsilon_n \sim 5 \cdot 10^{-5}$ . Les équations (4) étant linéaires et homogènes, il existe une condition de compatibilité (annulation du déterminant formé par les coefficients) qui permet de calculer\*)  $k_0$  et grâce à (5) les autres  $\mathbf{k}_n$  (pour une orientation de  $\mathbf{k}_0$  donnée). On trouve en fait plusieurs valeurs propres pour  $k_0$ , d'où en définitive plusieurs champs d'ondes du type (3), dont chacun est solution indépendante de l'équation de SCHRÖDINGER. Les amplitudes relatives de ces différents champs d'ondes seront déterminées, lors du retour au cristal fini, par les conditions aux limites, existant sur la face d'entrée entre la solution générale trouvée pour le milieu périodique et la solution pour le vide (l'onde plane incidente). Les conditions aux limites sur la face de sortie permettront finalement de calculer et de comparer avec l'expérience la diffraction due au cristal.

Les calculs auxquels conduirait la théorie dans le cas général seraient inextricables, aussi allons-nous passer en revue plusieurs cas particuliers, suggérés par l'expérience, et qui suffiront à l'interprétation de toutes les figures de diffraction observées.

## § 2. La figure de diffraction ne montre qu'un seul spot intense.

Ce cas simple servira à préciser certaines notions. Soit  $u_0$  l'amplitude de l'onde intense à l'intérieur du cristal et  $\mathbf{k}_0$  son vecteur d'onde. Nous conviendrons de désigner cette onde  $u_0 e^{2\pi i \mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}}$  par la notation  $(u_0, \mathbf{k}_0)$  et ferons de même pour toute onde. L'une des équations (4), à savoir:

$$\frac{k_0^2 - \varepsilon_0 k^2}{k^2} u_0 - \sum \varepsilon_{-q} u_q = 0,$$

ne peut être satisfaite que si  $k_0 \cong \sqrt{\varepsilon_0} k$ , puisque tous les  $\varepsilon_n$  sont du même ordre et que les  $u_n$  sont très petits par hypothèse. L'onde  $(u_0, \mathbf{k}_0)$  est alors simplement l'onde incidente  $(A, \mathbf{k})$ , qui s'est réfractée dans un milieu de constante diélectrique  $\varepsilon_0$ . Les conditions de continuité auxquelles sont soumis, sur les faces du cristal (1), la fonction d'onde et son gradient, impliquent, pour la face d'entrée, l'égalité des composantes tangentielles de  $\mathbf{k}$  et  $\mathbf{k}_0$ :

$$\mathbf{k}_t = \mathbf{k}_{0t},$$

et encore

$$A = u_0.$$

\*)  $k_0 = |\mathbf{k}_0|$ .



Nous négligeons en effet l'onde réfléchiée sur cette face vu que  $\varepsilon_0 \cong 1$ . Les mêmes conditions aux limites appliquées à la face de sortie donnent :

$$\mathbf{k}_{0t} = \mathbf{K}_{0t} \quad (\mathbf{K}_0 = \mathbf{k}),$$

et

$$u_0 e^{2\pi i \mathbf{k}_0 \mathbf{n} D} = U_0 e^{2\pi i \mathbf{K}_0 \mathbf{n} D},$$

où  $(U_0, \mathbf{K}_0)$  est l'onde intense sortant du cristal et dont on observe l'intensité  $U_0 U_0^* = |U_0|^2$  sur un écran ou une plaque photographique.

La numérotation des  $\mathbf{k}_n$  selon (5) laissait le choix de  $\mathbf{k}_0$  arbitraire; nous l'avons une fois pour toutes déterminé comme le vecteur de l'onde qui reprend à la sortie du cristal la direction de l'onde incidente. Lorsque  $\mathbf{k}$  varie en direction, mais que, d'après la construction de la figure 1, l'extrémité de  $\mathbf{k}_0$  reste attachée au point  $\mathbf{b}_0 = 0$  du réseau réciproque du cristal, l'origine de  $\mathbf{k}_0$  décrit une surface qui se réduit, dans le cas particulier de ce paragraphe, à une sphère (figure 1). Cette surface possède dans le cas général du paragraphe 1 plusieurs nappes, puis qu'il existe alors plusieurs valeurs propres de  $k_0$  pour une direction donnée. Nous nommerons cette surface (lieu des origines du vecteur  $\mathbf{k}_0$ ) la *surface de dispersion* et nous allons étudier ses modifications successives en présence de deux spots intenses ou davantage dans la diffraction.

### § 3. La figure de diffraction montre deux spots intenses.

Supposons qu'à côté de l'onde  $(u_0, \mathbf{k}_0)$ , l'onde  $(u_m, \mathbf{k}_m)$  soit intense à l'intérieur du cristal, donnant ainsi lieu à une onde diffractée intense  $(U_m, \mathbf{K}_m)$  à la sortie. En approximant à l'unité  $\varepsilon_0$ , le système d'équations (4) se réduit à :

$$\begin{aligned} \frac{k_0^2 - k^2}{k^2} u_0 - \varepsilon_{-m} u_m &= 0, \\ -\varepsilon_m u_0 + \frac{k_m^2 - k^2}{k^2} u_m &= 0, \end{aligned} \quad (7)$$

car les autres  $u_n$  sont négligeables par hypothèse. L'introduction des variables  $x_0$  et  $x_m$ , définies par

$$\begin{aligned} x_0 &= k - k_0, \\ x_m &= k - k_m, \end{aligned} \quad (8)$$

facilite le calcul des valeurs propres de  $k_0$ . L'annulation du déterminant des coefficients en (7) donne

$$x_0 x_m = |\varepsilon_m|^2 k^2 / 4 \quad (9)$$

car dans le cas qui nous occupe, les  $x$  sont de l'ordre de  $10^{-3} \text{ \AA}^{-1}$ ,  $k$  de  $20 \text{ \AA}^{-1}$ , et les termes d'ordre supérieur sont négligeables.

D'après la figure 2, la surface de dispersion s'écarte d'une sphère — dégénérée à l'échelle du dessin en un plan — lorsque celle-ci coupe une autre sphère, de même rayon  $k$  et centrée au point  $\mathbf{b}_m$ . La surface de dispersion, qui présente maintenant deux nappes, est de révolution autour du vecteur  $\mathbf{b}_m$ , et la figure 2 en montre la trace (hyperbole) dans le plan contenant  $\mathbf{k}_0$  et  $\mathbf{k}_m$ . L'angle  $2\Theta$  sous lequel l'intersection des sphères a lieu est donné par la relation :

$$2k \sin \Theta = b_m \quad (10)$$

qui n'est autre chose que la loi de BRAGG puisque  $k = 1/\lambda$  et que  $b_m$  est l'inverse

de la distance entre deux plans réticulaires d'indices de MILLER  $m_1 m_2 m_3$ ; lorsque les  $m_i$  sont multiples d'un entier  $N$ , (10) s'écrit:

$$2 k \sin \Theta = N b_{m/N}$$

(réflexion du  $N$ ième ordre sur le plan d'indices  $m_1/N, m_2/N, m_3/N$ ).

Les deux nappes de la surface de dispersion donnent lieu à deux champs d'ondes, que nous distinguerons par l'indice supérieur  $i = 1, 2$ . Chaque champ possède deux ondes:  $(u_0^i, \mathbf{k}_0^i)$  et  $(u_m^i, \mathbf{k}_m^i = \mathbf{k}_0^i + \mathbf{b}_m)$ , le rapport  $p^i$  entre  $u_0^i$  et  $u_m^i$  étant fixé par (7):

$$p^i = \frac{u_0^i}{u_m^i} = \frac{k_m^i - k^2}{\epsilon_m k^2} = - \frac{2 x_m^i}{\epsilon_m k} \quad (11)$$

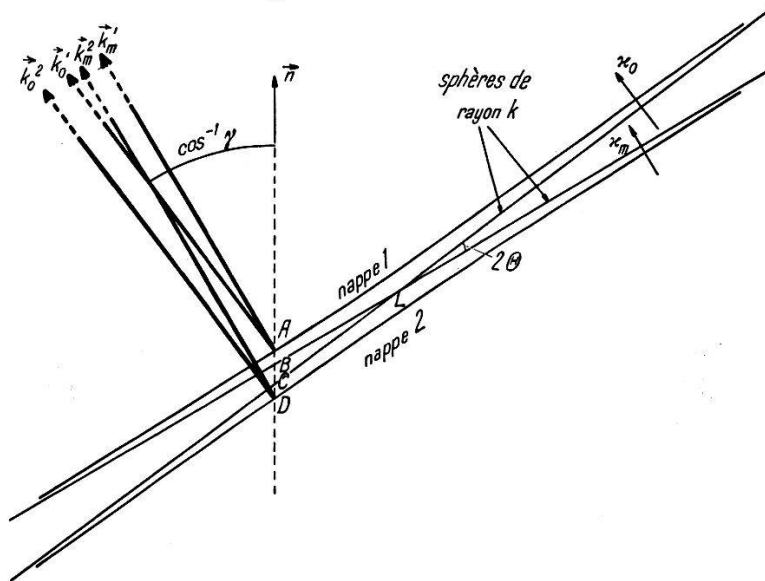


Fig. 2.

Surface de dispersion dans le cas de deux ondes  $(u_0, \mathbf{k}_0)$  et  $(u_m, \mathbf{k}_m)$  intenses à l'intérieur du cristal.

Les deux nappes hyperboliques de la surface s'appuient sur deux sphères de rayon  $k$ , centrées aux points  $O$  et  $\mathbf{b}_m$  du réseau réciproque, et qui ont dégénéré en des plans à l'échelle du dessin. Les origines des vecteurs de chaque champ d'ondes sont situées sur une même nappe, et, d'après (15), toutes ces origines sont alignées sur une même normale  $\mathbf{n}$  au cristal. Les distances  $x_0^i$  et  $x_m^i$  se mesurent perpendiculairement aux sphères centrées aux points  $O$ , respectivement  $\mathbf{b}_m$ , tandis que  $y^1 = CA$  et  $y^2 = CD$  se mesurent dans la direction de  $\mathbf{n}$ . La petitesse de l'angle  $2\Theta$  permet de poser  $LB \cong LC \cong 2\mu\Theta k$ ,  $\mu$  étant l'angle dont on s'écarte de la position de BRAGG (origines des vecteurs situées sur la normale passant par  $L$ ).

Les amplitudes relatives des deux champs dépendent, nous l'avons vu, des conditions aux limites sur la face d'entrée:

$$\begin{aligned} \mathbf{k}_t &= \mathbf{k}_0^1 = \mathbf{k}_0^2, \\ A &= u_0^1 + u_0^2, \\ 0 &= u_m^1 + u_m^2. \end{aligned} \quad (12)$$

Ces conditions déterminent, pour une onde incidente  $(A, \mathbf{k})$  donnée, les origines des vecteurs  $\mathbf{k}_0^i$  et  $\mathbf{k}_m^i$  sur la surface de dispersion d'une part, les amplitudes  $u_m^1$

et  $u_m^2$  d'autre part, après qu'on ait porté dans (12) les valeurs (11) pour  $u_0^1$  et  $u_0^2$ . On obtient ainsi:

$$u_0^1 = \frac{x_m^1}{x_m^1 - x_m^2} A, \quad u_0^2 = - \frac{x_m^2}{x_m^1 - x_m^2} A; \quad (13)$$

et

$$u_m^1 = - \frac{1}{2} \frac{\varepsilon_m k}{x_m^1 - x_m^2} A, \quad u_m^2 = \frac{1}{2} \frac{\varepsilon_m k}{x_m^1 - x_m^2} A. \quad (14)$$

Quant à la diffraction observée, elle dépend des conditions aux limites sur la face de sortie:

$$\begin{aligned} \mathbf{k}_{0t}^1 &= \mathbf{k}_{0t}^2 = \mathbf{K}_{0t} & (\mathbf{K}_0 = \mathbf{k}), \\ \mathbf{k}_{mt}^1 &= \mathbf{k}_{mt}^2 = \mathbf{K}_{mt} & (\mathbf{K}_m = \mathbf{k} + \mathbf{b}_m); \\ u_0^1 e^{2\pi i \mathbf{k}_0^1 \mathbf{r}} + u_0^2 e^{2\pi i \mathbf{k}_0^2 \mathbf{r}} &= U_0 e^{2\pi i \mathbf{K}_0 \mathbf{r}}, \\ u_m^1 e^{2\pi i \mathbf{k}_m^1 \mathbf{r}} + u_m^2 e^{2\pi i \mathbf{k}_m^2 \mathbf{r}} &= U_m e^{2\pi i \mathbf{K}_m \mathbf{r}}. \end{aligned} \quad \text{pour } \mathbf{n} \mathbf{r} = D \quad (15)$$

Posons:

$$\begin{aligned} \mathbf{k}_0^i &= \mathbf{k} + y^i \mathbf{n}, \\ \mathbf{k}_m^i &= \mathbf{k} + \mathbf{b}_m + y^i \mathbf{n}. \end{aligned} \quad (i = 1, 2) \quad (16)$$

D'après la figure 2,  $y^1$  et  $y^2$  sont les distances (mesurées algébriquement selon  $\mathbf{n}$ ) qui séparent la sphère centrée au point 0, de l'origine de  $\mathbf{k}_0^1$ , respectivement de  $\mathbf{k}_0^2$ . Les deux dernières équations (15) deviennent alors:

$$\begin{aligned} u_0^1 e^{2\pi i y^1 D} + u_0^2 e^{2\pi i y^2 D} &= U_0, \\ u_m^1 e^{2\pi i y^1 D} + u_m^2 e^{2\pi i y^2 D} &= U_m. \end{aligned} \quad (17)$$

On trouve ensuite, pour les intensités observées, et grâce à (13) et (14):

$$\begin{aligned} \left| \frac{U_0}{A} \right|^2 &= \frac{(x_m^1)^2 + (x_m^2)^2 - 2 x_m^1 x_m^2 \cos 2\pi (y^1 - y^2) D}{(x_m^1 - x_m^2)^2}, \\ \left| \frac{U_m}{A} \right|^2 &= \frac{|\varepsilon_m|^2 k^2}{(x_m^1 - x_m^2)^2} \sin^2 \pi (y^1 - y^2) D. \end{aligned} \quad (18)$$

Comme l'angle  $2\Theta$  ne dépasse généralement pas  $5^\circ$ , nous égalons  $\cos 2\Theta$  à l'unité, avec une erreur inférieure à 0,5%. L'angle que fait par contre la direction moyenne des vecteurs  $\mathbf{k}_0^i$  et  $\mathbf{k}_m^i$  avec la normale au cristal  $\mathbf{n}$  dépasse parfois  $60^\circ$ ; nous désignerons par  $\gamma$  son cosinus. Nous conviendrons encore de dire que  $\mathbf{k}$ ,  $\mathbf{k}_0^i$ ,  $\mathbf{k}_m^i$ ,  $\mathbf{K}_0$  et  $\mathbf{K}_m$  sont en position de BRAGG quand les origines de ces vecteurs sont situées sur une normale au cristal qui passe par l'intersection des sphères « asymptotiques » à la surface de dispersion (point  $L$  sur la figure 2). En vertu de (12) et (15), tous ces vecteurs d'onde sont simultanément en position de BRAGG. Si l'on désigne enfin par  $\mu$  l'angle dont ils s'écartent (dans un plan contenant le vecteur  $\mathbf{b}_m$ ) de la position de BRAGG, l'approximation  $\cos 2\Theta = 1$  entraîne:

$$\begin{aligned} y^1 - y^2 &= (x_m^1 - x_m^2) / \gamma, \\ x_m^1 - x_m^2 &= 2 x_m^1 + 2 \mu \Theta k, \\ x_m^1 x_m^2 &= - x_0^1 x_m^1 = - |\varepsilon_m|^2 k^2 / 4 \quad (\text{cf. figure 2}). \end{aligned}$$

Les équations (18) deviennent alors:

$$\left| \frac{U_0}{A} \right|^2 = \frac{4 \mu^2 \Theta^2 + |\varepsilon_m|^2 \cos^2 \pi k \sqrt{4 \mu^2 \Theta^2 + |\varepsilon_m|^2} D/\gamma}{4 \mu^2 \Theta^2 + |\varepsilon_m|^2}, \quad (19)$$

$$\left| \frac{U_m}{A} \right|^2 = \frac{|\varepsilon_m|^2 \sin^2 \pi k \sqrt{4 \mu^2 \Theta^2 + |\varepsilon_m|^2} D/\gamma}{4 \mu^2 \Theta^2 + |\varepsilon_m|^2}.$$

L'intensité du spot diffracté s'annule donc pour des angles  $\mu_n$  donnés par:

$$\mu_n = \pm \frac{\gamma}{b_m D} \sqrt{n^2 - |\varepsilon_m|^2 k^2 D^2/\gamma^2} \quad (n \text{ entier}). \quad (20)$$

La mesure expérimentale de ces angles permet ainsi de déterminer  $\varepsilon_m$  (ou  $\Phi_m$ ) et  $D$ . Formulée par MACGILLAVRY (1940) pour une incidence normale ( $\gamma = 1$ ), la relation (20) montre que le cas d'une incidence oblique ( $\gamma \neq 1$ ) est formellement identique, puisque  $D/\gamma$  est l'épaisseur effective de matière traversée par les ondes. Le paragraphe suivant sera consacré au dispositif expérimental que nous avons utilisé pour vérifier, sur le graphite, cette dernière formule.

#### § 4. Partie expérimentale et mesure des $\Phi_m$ .

La figure 3 donne le schéma de l'appareil utilisé, construit par TRÜB, TÄUBER & Cie. Le condenseur permet d'imager le premier diaphragme à des hauteurs variables entre le second diaphragme et l'écran. La vérification de la théorie exige que la portion du cristal frappée par les électrons ne soit pas tordue et ne présente

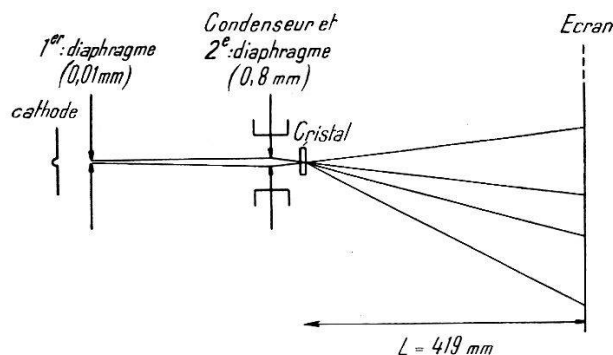


Fig. 3.

Dispositif expérimental.

La cathode froide peut être soumise à des tensions jusqu'à  $-50000$  volts. Les dimensions indiquées pour les diaphragmes réduisent à  $1 \mu$  le diamètre du faisceau, dans le cristal et donnent à l'angle de convergence la valeur de  $1,35^\circ$ . Deux cônes donnant lieu à deux spots, ont été reproduits.

pas de structure en mosaïque. Il est donc indispensable de réduire au minimum le diamètre du faisceau à la hauteur du cristal. La méthode expérimentale de KOSSEL et MÖLLENSTEDT (1939) permet de le réaliser: au moyen du condenseur, on image le premier diaphragme dans le cristal, abaissant ainsi à  $1 \mu$  le diamètre du faisceau. A la sortie du cristal, les divers faisceaux diffractés divergent.

Ils forment des cônes et leurs intersections avec l'écran sont des cercles dont le diamètre dépend de celui du second diaphragme, et à l'intérieur desquels on observe les variations d'intensité prévues par (19) (figure 4). L'onde convergente incidente peut en effet être décomposée en une somme d'ondes planes d'orientations différentes qui tombent simultanément sur le cristal\*).

Certains électrons subissent un choc non élastique dans le cristal; leur perte d'énergie est négligeable, mais ils donnent lieu à un fond continu sur lequel se détachent les paires de lignes de KIKUCHI dues à la diffraction ultérieure de ces électrons (figure 5). Ces lignes sont utiles pour déterminer l'orientation du cristal (mesure de  $\gamma$ ) et peuvent servir à l'analyse de structures (WILMAN 1948).

Le nombre des chocs non élastiques augmente avec l'épaisseur du cristal et finit (à partir de 2000 Å environ dans le cas du graphite) par masquer la diffraction sans perte d'énergie (les cercles).

Nous avons utilisé des graphites de diverses provenances (Ceylan, Madagascar, Canada), qui se sont révélés structurellement indiscernables; aussi ne nous sommes-nous plus occupé de leur origine. Le clivage, effectué au moyen de bandes collantes Durex, permet d'obtenir facilement des échantillons de l'épaisseur désirée — appréciable à leur teinte grise plus ou moins claire par transparence. Lorsque le cristal chevauche sur le bord de la bande collante, il n'est pas même nécessaire de l'en détacher et le tout est fixé au porte-cristal de l'appareil.

Le graphite résulte de la superposition de couches hexagonales d'atomes de carbone (figure 6), ordinairement selon le schéma ABAB..., les dimensions de la maille élémentaire étant  $a_1 = a_2 = 2,4562$  Å et  $a_3 = 6,6943$  Å (NELSON et RILEY 1945). La variété de LIPSON et STOKES (1942) présente une superposition du type ABCABC..., la distance entre chaque couche n'étant pas modifiée. Le réseau réciproque du graphite ABC est ainsi contracté des  $\frac{2}{3}$  selon la direction normale aux couches, mais il est formellement possible d'adopter le même réseau réciproque pour les deux variétés, en convenant, dans le cas du graphite ABC, de donner à l'indice de MILLER  $m_3$  des valeurs multiples de  $\frac{2}{3}$ . Dans la suite, et sauf mention du contraire, nos exemples et nos photographies se rapporteront à la variété ordinaire AB.

Faisons maintenant tomber le faisceau convergent sur le cristal et orientons celui-ci de façon à ce que l'intensité soit appréciable

---

\*) Cette décomposition est légitime du fait que le front de ces ondes planes mesure au moins  $1 \mu$ ; cette distance est encore grande par rapport à la longueur d'onde, ce qui rend négligeable la diffraction due à la section limitée de l'onde plane.

dans deux cercles seulement. L'un, généralement surexposé sur les photographies, est dû aux ondes ( $U_0, \mathbf{K}_0$ ) qui se propagent dans la direction des ondes incidentes; l'autre provient de la «réflexion»\*) sur le plan  $m$ . Les franges d'interférences observées dans les spots 0 et  $m$  obéissent à (19) (figure 4). Elles sont pratiquement rectilignes et parallèles, vu que la surface de dispersion est de révolution et que la variation de  $\gamma$  est lente. Ces franges sont disposées symétriquement relativement à une droite ( $\mu = 0$ ) qui correspond à la position de BRAGG des vecteurs d'onde. La droite  $\mu = 0$  qui traverse ainsi le spot  $m$  est la ligne de KIKUCHI,  $m_1 m_2 m_3$ , celle qui

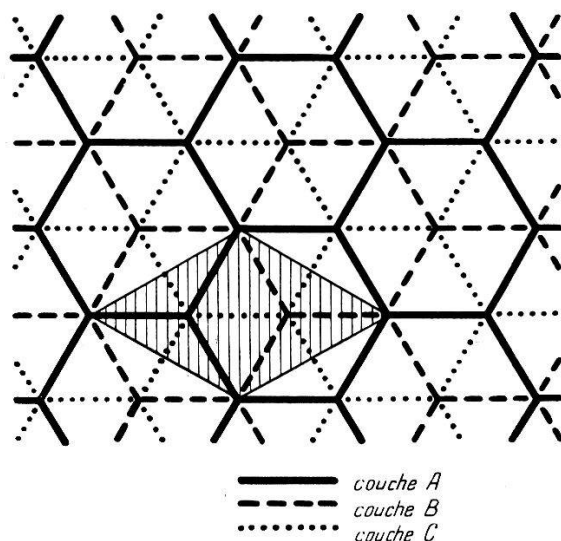


Fig. 6.

Les couches du graphite vues selon la direction de  $\mathbf{n}$  (axe  $c$ ). Chaque sommet des hexagones est occupé par un atome de carbone. Le graphite ordinaire résulte de la superposition des couches selon le schéma ABAB..., tandis que la variété de LIPSON et STOKES adopte le schéma ABCABC... La base indiquée de la maille élémentaire est la même dans les deux cas. Les coordonnées relatives  $\alpha_{ik}$  des atomes du graphite AB sont:

$$(000); \left(\frac{1}{3} \frac{2}{3} 0\right); (00 \frac{1}{2}); \left(\frac{2}{3} \frac{1}{3} \frac{1}{2}\right),$$

et celles du graphite ABC sont:

$$(000); \left(\frac{1}{3} \frac{2}{3} 0\right); (00 \frac{1}{3}); \left(\frac{2}{3} \frac{1}{3} \frac{1}{3}\right); \left(\frac{1}{3} \frac{2}{3} \frac{2}{3}\right); \left(\frac{2}{3} \frac{1}{3} \frac{2}{3}\right).$$

traverse le spot 0 la ligne — ( $m_1 m_2 m_3$ ). Ces deux droites se prolongent à l'extérieur des spots à cause de l'existence des électrons diffusés non élastiquement. En effet, les lignes de KIKUCHI  $\pm m$  sont définies comme le lieu des points où parviennent des électrons réfléchis en position de BRAGG sur le plan  $m$ .

Considérons avec plus d'attention les franges du spot  $m$ . En vertu de (20), la relation graphique entre  $\mu_n^2$  et  $n^2$  est une droite. Con-

\*) Ce terme facilite le langage, mais il faut remarquer que l'angle de réflexion n'est égal à l'angle d'incidence que pour la position de BRAGG, leur somme égalant toujours  $2\theta$ .



struite sur les données expérimentales  $\mu_n$ , cette droite permet de déterminer  $D$  et  $|\varepsilon_m|$ :

$$\begin{aligned} 1/D &= \text{pente} \cdot b^2/\gamma^2, \\ |\varepsilon_m| &= \sqrt{-\mu_0^2} b_m/k, \end{aligned} \quad (21)$$

$\mu_0^2$  étant l'ordonnée (négative) à l'origine.

Il est pourtant préférable de déterminer  $\Phi_m$  qui ne dépend pas de la tension  $P$ . Désignons par  $\Delta = 2\theta L$  la distance sur l'écran entre deux points correspondants des spots 0 et  $m$ , et par  $\bar{\mu}_n = \mu_n L$  la distance dans le spot  $m$  entre la position de BRAGG et le  $n^{\text{ième}}$  minimum. En se rappelant que  $\Phi_m = \varepsilon_m P$  et que  $k = \sqrt{P/150} \text{ \AA}^{-1}$ , on trouve pour  $|\Phi_m|$  l'expression où  $L$  n'intervient plus:

$$|\Phi_m| = 150 b_m^2 \sqrt{-\bar{\mu}_0^2} / \Delta \text{ volts} \quad (b_m \text{ en } \text{ \AA}^{-1}). \quad (22)$$

D'autre part, et d'après la loi électrostatique qui relie les charges électriques au potentiel, on peut montrer que:

$$\Phi_m = \frac{e}{4\pi^2 \kappa_0 v} \frac{Z - s(\mathbf{b}_m)}{b_m^2} F_m, \quad (23)$$

où  $e = 1,60 \cdot 10^{-19} \text{ As}$ ,

$\kappa_0 = 8,86 \cdot 10^{-12} \text{ As/Vm}$ ,

$v = 3,5 \cdot 10^{-29} \text{ m}^3$  (volume de la maille élémentaire),

$Z = 6$  (nombre atomique du carbone),

$b_m$  se mesure en  $m^{-1}$ ,

$F_m = \sum_{i=1}^4 \exp[-2\pi i (\alpha_{i1} m_1 + \alpha_{i2} m_2 + \alpha_{i3} m_3)]$  ( $\alpha_{ik}$ : coordonnées

relatives de l'atome  $i$  dans la maille élémentaire; cf. fig. 6),

et  $s(\mathbf{b})$  est la transformée de FOURIER (ou facteur d'atome) de la densité électronique  $\rho(\mathbf{r})$  d'un atome de carbone:

$$s(\mathbf{b}) = \int_{\infty} dv \rho(\mathbf{r}) e^{-2\pi i \mathbf{b} \cdot \mathbf{r}}.$$

Dans le cas d'un atome présentant une symétrie sphérique,  $\rho(\mathbf{r}) = \rho(r)$  se calcule par la méthode de HARTREE et permet de dresser des tables pour  $s(b)$ . Nous pourrions comparer ces valeurs théoriques avec les valeurs expérimentales déduites des  $\Phi_m$  observés au moyen de (23).

D'après (22) et (23), l'ordonnée à l'origine  $\bar{\mu}_0^2$  de la droite  $\mu_n^2 = f(n^2)$  est inversement proportionnelle à  $b_m^2$ : l'erreur relative faite sur cette quantité augmente donc rapidement avec des indices  $m_i$  croissants, et, outre d'autres raisons qui nous occuperont plus loin, ne nous a permis d'obtenir des valeurs significatives que pour les



$\Phi_{10 m_3}$  et les  $\Phi_{11 m_3}$  ( $m_3 = 0, 1, 2, \dots$ ). Il semblerait, toujours d'après (22) et (23), que le choix d'un cristal à petit réseau réciproque ( $\mathbf{b}_m$  petits) et composé d'atomes de nombre atomique élevé, eût augmenté avantageusement  $\bar{\mu}_0^2$ ; nous verrons au contraire que ces propriétés, en créant d'autres spots intenses inévitables et un plus fort couplage entre les ondes à l'intérieur du cristal, s'opposent à l'emploi de la formule (22).  $\bar{\mu}_0^2$  augmente quelque peu avec  $\Delta$  lorsque l'on abaisse la tension  $P$ ; on ne peut guère cependant descendre au-dessous de 25000 volts sans que la photographie devienne floue.

**Table I.**

 Valeurs expérimentales des  $\Phi_m$  et des  $s(\mathbf{b}_m)$ .

$m$	$\Phi_m^{1)}$	$\Phi_m^{2)}$	$s(\mathbf{b}_m)^{1)}$	$s(\mathbf{b}_m)^{2)}$
100	1,53	1,47	3,42	3,52
$10^2/3$	2,62	2,94	3,70	3,42
101	2,58	2,67	3,23	3,13
102	1,27	1,23	2,90	2,99
103	1,73	1,76	2,79	2,74
110	3,29	—	1,84	—
112	2,81	—	1,95	—
114	2,13	—	1,87	—

1) Valeurs obtenues au moyen des formules (22) et (23) du paragraphe 4.

2) Valeurs corrigées au moyen de la théorie du paragraphe 6.

Nous avons mesuré les distances  $\bar{\mu}_n$  à 0,02 mm. près. La deuxième colonne de la table I donne les résultats pour les  $\Phi_m$  examinés, les erreurs moyennes dues aux mesures étant d'environ 2,5%; chaque  $\Phi_m$  a fait l'objet d'une dizaine de mesures, à partir de cristaux différents, d'épaisseur  $D$  variant entre 400 et 1500 Å et pour des tensions  $P$  de 25000 à 50000 volts. Le fait de n'avoir pas effectué les mesures d'un  $\Phi_m$  pour des mêmes valeurs de  $P$  et de  $D$ , constitue déjà une bonne vérification de la formule (20), puisque, malgré la variation de  $\bar{\mu}_0^2$  due à ces paramètres, la valeur de  $\Phi_m$  en est effectivement indépendante.

En comparant, comme nous l'indiquions plus haut, les valeurs calculées et observées des  $s(\mathbf{b}_m)$ , nous constatons dans certains cas des différences excédant nettement les incertitudes expérimentales (figure 7). Trois raisons possibles se présentent: a) L'hypothèse de deux spots intenses n'est pas rigoureusement réalisée; mais les corrections que les calculs du paragraphe 6 apportent aux  $\Phi_m$  et  $s(\mathbf{b}_m)$  (troisième et cinquième colonne de la table I) sont trop faibles —

et parfois de signe opposé — pour expliquer cette divergence. b) Les atomes de carbone d'une couche de graphite ne sont pas situés dans un même plan, mais sont alternativement décalés d'une petite quantité  $\pm u$ , perpendiculairement à la couche; il en résulterait une modification du facteur  $F_m$  dans (23). Le calcul des  $|F_m|$  montre cependant que ces quantités ne varient pas pour les indices  $m_3 = 0$  et 1, laissant donc entières les divergences relatives à  $s(\mathbf{b}_{100})$  et  $s(\mathbf{b}_{101})$ . c) Le facteur d'atome  $s(\mathbf{b}_m)$  est modifié par la dissymétrie des atomes de carbone qui s'«étaient» dans les plans des couches,

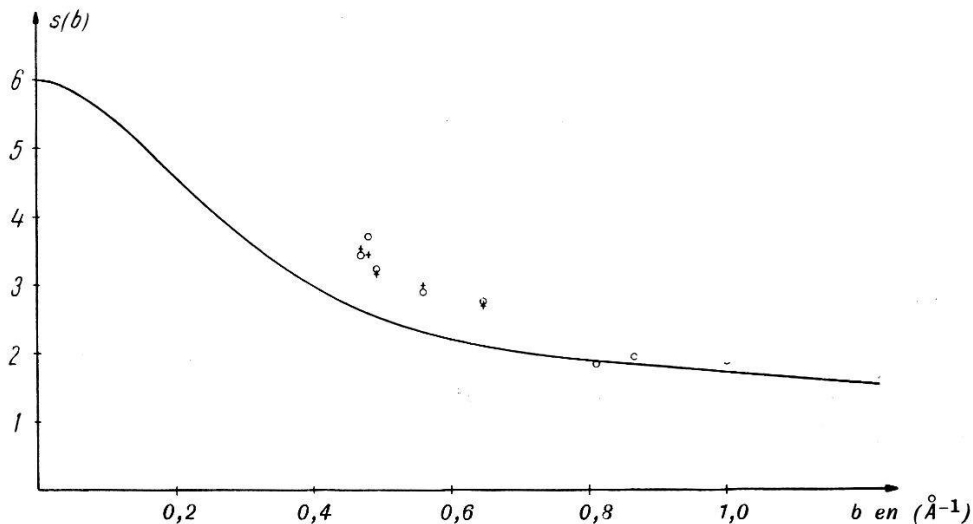


Fig. 7.

Le facteur d'atome  $s(b)$ .

Les petits cercles donnent les valeurs  $s(\mathbf{b}_m)$  déduites des distances entre les franges d'interférences, au moyen de (22) et (23). Les croix se rapportent à certaines des valeurs précédentes corrigées selon la théorie du paragraphe 6. Les valeurs théoriques de  $s(b)$ , calculées pour un atome de symétrie sphérique, sont données par la courbe.

cette déformation affectant principalement les électrons périphériques. Si nous comparons (figure 7) les résultats expérimentaux pour les  $s(\mathbf{b}_m)$ , avec les valeurs établies pour un atome de symétrie sphérique, nous ne constatons une différence que pour de petites valeurs de  $\mathbf{b}_m$ . La vraisemblance de notre troisième hypothèse trouve ainsi une confirmation, puisque, d'après les propriétés des transformées de FOURIER, les modifications périphériques de la fonction  $\rho(\mathbf{r})$  se répercutent sur la portion centrale de la transformée  $s(\mathbf{b})$ .

Nous reprendrons au paragraphe 6 la discussion des résultats expérimentaux pour les  $\Phi_m$ , à propos des valeurs obtenues par l'emploi direct de la formule (22) et des corrections apportées par la suite de la théorie, que nous développerons dans le cas de plus de deux spots intenses.

La mesure systématique de l'épaisseur d'un cristal donné, au moyen de (21), et à partir de diverses réflexions, dont chacune est rendue successivement intense par des rotations du cristal, constitue une autre vérification de la théorie du paragraphe 2. La table II en donne un exemple et montre que cette épaisseur peut être évaluée à deux couches d'atomes près. Dans ce cas encore, et bien que l'aspect de certaines franges semble à première vue justifier la détermination de  $D$  au moyen de (21); nous verrons que le domaine d'application de cette formule doit être soumis à une investigation précise. En particulier, les spots situés à l'intérieur d'une bande de  $\text{KIKUCHI}$  (zone comprise entre une paire de lignes de  $\text{KIKUCHI}$ )

**Table II.**  
Mesures de l'épaisseur  $D$  d'un cristal.

$m$	$D/\gamma$	$\gamma$	$D$
100	731	0,990	723
100	1002	0,735	736
101	752	0,950	713
101	816	0,881	718
102	857	0,842	721
103	1030	0,717	738
110	732	0,985	720
110	813	0,891	725
112	848	0,862	730
114	903	0,795	718

Valeur moyenne:  $724 \pm 6 \text{ \AA}$ , soit  $108 \pm 1$  mailles élémentaires ou  $216 \pm 2$  couches d'atomes.

d'indices  $m_i$  peu élevés, ne permettent pas la détermination de  $\Phi_m$  et  $D$  au moyen de (22) et (21).

En conclusion, la théorie de trois ou quatre spots intenses fixera le domaine de validité de ces dernières formules, en évitant d'aboutir à des résultats incorrects\*).

### § 5. La figure de diffraction montre trois spots intenses.

Il n'est pas toujours facile d'orienter le cristal de façon à «isoler» les deux spots intenses 0 et  $m$  dont nous avons donné la théorie au paragraphe 3. En particulier, l'on ne peut guère éviter la présence sur la figure de diffraction de spots périphériques  $p$  ( $b_p$  grands) de

\*) Cf. un travail de J. ACKERMANN (1948) d'où il résulte que l'emploi de la formule (20) n'est pas justifié dans le cas du mica et du iodure de plomb.

forte intensité (les vecteurs  $\mathbf{K}_0$  de ces ondes étant donc en position de BRAGG). Cependant, en vertu de (19), leur intensité décroît rapidement dès qu'on s'écarte de la position de BRAGG, et nous verrons que leur influence sur le spot  $m$  est négligeable. D'autres spots peuvent se présenter de façon inévitable: ainsi, lorsque le spot étudié  $m$  est intense, les spots  $-m$  et  $2m$  le sont déjà suffisamment pour que, vu leur proximité immédiate du spot  $m$ , leur présence perturbe les franges d'interférences de ce dernier. En d'autres termes, il existe entre les réflexions du premier ordre et du second ordre sur le plan  $m$ , un couplage qui entrave l'étude séparée des spots  $m$  et  $2m$ . Cet effet reste cependant relativement faible et ne se remarque pas à première vue dans la disposition des franges. Si nous voulons étudier au contraire un cas typique de trois ondes intenses, il nous est facile d'orienter le cristal de telle manière qu'un spot  $p$  intense, non aligné sur les spots  $0$  et  $m$ , perturbe notablement le spot  $m$ ; l'effet étant d'autant plus marqué que les indices  $m$  et  $p$  sont moins élevés.

a) *Données théoriques.*

La mise en équation des trois cas possibles que nous venons d'examiner est évidemment identique. Désignons par  $(u_0, \mathbf{k}_0)$ ,  $(u_m, \mathbf{k}_m)$  et  $(u_p, \mathbf{k}_p)$  les ondes intenses à l'intérieur du cristal, la première, comme précédemment, se propageant approximativement dans la direction de l'onde incidente  $(A, \mathbf{k})$ . Le système d'équations (4) se réduit à:

$$\begin{aligned} \frac{k_0^2 - k^2}{k^2} u_0 - \varepsilon_{-m} u_m - \varepsilon_{-p} u_p &= 0, \\ -\varepsilon_m u_0 + \frac{k_m^2 - k^2}{k^2} u_m - \varepsilon_{m-p} u_p &= 0, \\ -\varepsilon_p u_0 - \varepsilon_{p-m} u_m + \frac{k_p^2 - k^2}{k^2} u_p &= 0. \end{aligned} \quad (24)$$

Si l'on pose de nouveau

$$x_0 = k - k_0, \text{ etc. ,}$$

l'annulation du déterminant des coefficients en (24) donne l'expression suivante pour la surface de dispersion:

$$\begin{aligned} x_0 x_m x_p &= \frac{k^2}{4} [|\varepsilon_s|^2 x_0 + |\varepsilon_p|^2 x_m + |\varepsilon_m|^2 x_p - kR(\varepsilon_m \varepsilon_{-p} \varepsilon_s)] \\ (\varepsilon_s &= \varepsilon_{p-m}; R = \text{partie réelle}). \end{aligned} \quad (25)$$

La surface de dispersion possède trois nappes s'appuyant sur trois sphères de rayon  $k$ , centrées aux points  $0$ ,  $\mathbf{b}_m$  et  $\mathbf{b}_p$ , et que l'on peut considérer comme des plans à l'échelle des  $x^*$ ). Il existe ainsi une relation linéaire entre les  $x$ , qui permet

\*) Par la suite, nous désignerons simplement par sphère  $0$  celle de rayon  $k$  centrée au point  $0$ , etc.

d'en éliminer un dans (25) et de calculer au moyen d'équations numériques du second degré les points de la surface. Plusieurs coupes sont nécessaires pour la représenter, puisqu'elle n'est plus de révolution (à moins que les points 0,  $\mathbf{b}_m$  et  $\mathbf{b}_p$  ne soient alignés). Il existe donc en général un point commun aux trois sphères, et lorsque les origines des différents vecteurs d'onde sont situées sur la normale au cristal passant par ce point, nous dirons que la position de BRAGG est simultanément réalisée pour les réflexions sur les plans  $m$  et  $p$ . L'interaction des ondes  $(u_0^i, \mathbf{k}_0^i)$ ,  $(u_m^i, \mathbf{k}_m^i)$  et  $(u_p^i, \mathbf{k}_p^i)$  est alors maximum\*), tandis qu'elle diminue lorsque les intersections deux à deux des sphères s'éloignent.

Les amplitudes relatives  $p^i$  et  $q^i$  des ondes d'un même champ se déduisent des équations (24). Si l'on se propose d'étudier plus particulièrement le spot  $m$ , il est avantageux d'exprimer  $u_0^i$  et  $u_p^i$  en fonction de  $u_m^i$  et de poser :

$$\begin{aligned} p^i &= \frac{u_0^i}{u_m^i} = \frac{2 \varepsilon_{-p} x_m^i - k \varepsilon_{-m} \varepsilon_{-s}}{2 \varepsilon_{-s} x_0^i - k \varepsilon_m \varepsilon_{-p}}, \\ q^i &= \frac{u_p^i}{u_m^i} = \frac{2 \varepsilon_p x_m^i - k \varepsilon_m \varepsilon_s}{2 \varepsilon_m x_p^i - k \varepsilon_p \varepsilon_{-s}}. \end{aligned} \quad (26)$$

Les amplitudes relatives des trois champs d'onde dépendent, ici encore, des conditions aux limites sur la face d'entrée :

$$\begin{aligned} \mathbf{k}_t &= \mathbf{k}_{0t}^1 = \mathbf{k}_{0t}^2 = \mathbf{k}_{0t}^3, \\ A &= u_0^1 + u_0^2 + u_0^3, \\ 0 &= u_m^1 + u_m^2 + u_m^3, \\ 0 &= u_p^1 + u_p^2 + u_p^3. \end{aligned} \quad (27)$$

Ces conditions permettent de déterminer les orientations des vecteurs d'onde à l'intérieur du cristal d'une part, les amplitudes  $u_m^i$  d'autre part, les  $u_0^i$  et  $u_p^i$  s'exprimant en fonction de  $u_m^i$  grâce à (26); on obtient :

$$\begin{aligned} u_0^1 &= p^1 \frac{q^3 - q^2}{\Delta} A, \\ u_m^1 &= \frac{q^3 - q^2}{\Delta} A, \\ u_p^1 &= q^1 \frac{q^3 - q^2}{\Delta} A. \end{aligned} \quad \Delta = \begin{vmatrix} p^1 & p^2 & p^3 \\ 1 & 1 & 1 \\ q^1 & q^2 & q^3 \end{vmatrix} \quad (28)$$

et, pour  $i = 2$  et  $3$ , des expressions semblables obtenues par permutation circulaire des indices 1, 2, 3.

Les conditions aux limites sur la face de sortie (où les  $y^i$  sont de nouveau définis par (16)) :

$$\begin{aligned} \mathbf{k}_{jt}^1 &= \mathbf{k}_{jt}^2 = \mathbf{k}_{jt}^3 = \mathbf{K}_{jt} \quad (\mathbf{K}_j = \mathbf{k} + \mathbf{b}_j), \\ u_j^1 e^{2\pi i y^1 D} + u_j^2 e^{2\pi i y^2 D} + u_j^3 e^{2\pi i y^3 D} &= U_j \quad (j = 0, m, p), \end{aligned} \quad (29)$$

\*) L'indice supérieur  $i$  distingue ici les trois champs d'ondes qui sont chacun une solution indépendante des équations (24).

déterminent finalement les intensités des trois ondes quittant le cristal

$$\left| \frac{U_j}{A} \right|^2 = \left| \sum_i u_j^i e^{2\pi i y^i D} \right|^2. \quad (30)$$

Ainsi, cette dernière formule permet de calculer, à partir de mesures graphiques effectuées sur la surface de dispersion (25), et pour diverses orientations de l'onde incidente, les intensités des trois spots diffractés intenses, puisque les  $u_j^i$  dérivent des  $x$  par l'intermédiaire de (28) et (26) et que  $D$ ,  $\varepsilon_m$ ,  $\varepsilon_p$  et  $\varepsilon_s$  sont supposés connus. En désignant, comme précédemment, par  $\gamma$  le cosinus de l'angle moyen que font tous les vecteurs d'ondes avec la normale au cristal (approximation  $\cos 2\Theta = 1$ ), nous obtenons, pour ces intensités, les sommes du type:

$$\left| \frac{U_j}{A} \right|^2 = \sum_{i < l} f_j^{il} (x_j^1, x_j^2, x_j^3) \cos 2\pi (x_j^i - x_j^l - f_j^{il}) D/\gamma. \quad (31)$$

( $i, l = 1, 2, 3$        $j = 0, m, p$ .)

Les phases  $\beta_j^{il}$  dépendent de celles des  $\varepsilon$ , et l'on peut facilement se rendre compte qu'elles sont nulles pour  $\varepsilon_m$ ,  $\varepsilon_p$  et  $\varepsilon_s$  réels. La généralisation des formules (18) relatives à deux spots diffractés intenses est évidente, mais la complication de la surface de dispersion empêche ici d'éliminer les  $x$  et d'obtenir une relation formelle analogue à (20) entre les grandeurs expérimentales (positions des minimums d'intensité) et les constantes du problème ( $D$  et les  $\varepsilon$ ): il n'existe plus d'équivalent de la formule de MACGILLAVRY. Tel n'est d'ailleurs pas notre but dans ce paragraphe, mais bien la comparaison avec l'expérience des intensités calculées au moyen de (31), à partir des valeurs trouvées préalablement pour  $D$  et les  $\varepsilon$  par la méthode du paragraphe 4\*).

Le calcul numérique direct des intensités des spots et de la position des franges d'interférences au moyen de (30) est fastidieux et ne donne pas une idée nette de la perturbation subie par les franges du spot  $m$ , par exemple, quand le spot  $p$  est intense. L'allure de ces franges suggère pourtant que deux seulement sur trois des amplitudes  $u_j^1$ ,  $u_j^2$  et  $u_j^3$  sont grandes dans (30) et que les sommes (31) ne contiennent qu'un seul terme périodique prépondérant. Les franges, en effet, bien que décalées ou localement déformées, ne présentent pas de maximums secondaires irrégulièrement disposés, tels qu'on en observe lorsque plusieurs ondes d'amplitudes du même ordre interfèrent, c'est-à-dire lorsque les sommes (31) contiennent plusieurs termes périodiques importants. Ce dernier cas se rencontre avec le graphite lors de la transition, dans l'empilement des couches, du schéma ABAB au schéma BCBC; les franges (figure 16) présentent alors une complication qu'on ne trouve pas dans le cas de trois spots intenses, et que nous étudierons à la fin de ce travail.

Ces considérations nous conduisent à énoncer la règle suivante:

Dans le cas où le système de franges d'un spot  $m$  est perturbé par la présence d'un troisième spot intense  $p$ , les origines des vec-

\*) Nous tirerons la phase des  $\varepsilon$  de la formule théorique (23).



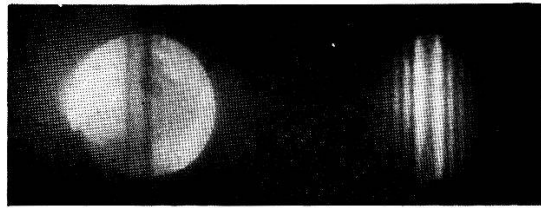


Fig. 4.

Deux spots intenses.

A droite le spot  $m = 110$ , à gauche le spot central 000. Les variations d'intensité dans les spots obéissent aux formules (19).

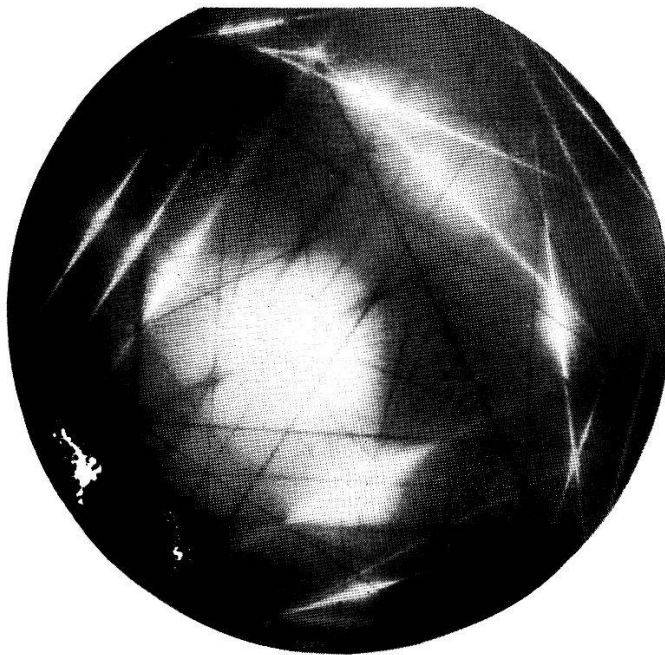


Fig. 5.

Diffraction due à un cristal épais ( $D = 2240 \text{ \AA}$ ).

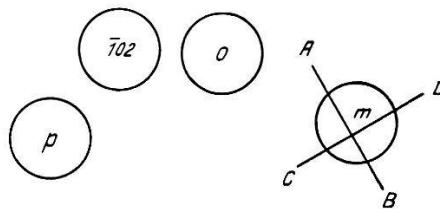


Fig. 10.

Décalément d première espèce d'un système de franges.

Le décalément d'une un... long de AB dans le spot  $m = 212$  est dû à la présence simultanée du spot  $p = 114$ . Le décalément associé de seconde espèce (cf. fig. 9a) est nul à cause de la petitesse relative de  $\epsilon_{300}$ . Le spot 330 (non visible sur la photographie) cause la perturbation selon CD. L'effet du spot  $\bar{1}02$  ne serait décelable qu'à l'extrême droite du spot  $2\bar{1}2$ .





Fig. 8a

Trois spots intenses.

L'équidistance des franges du spot  $m = 101$  (à droite) est perturbée par le spot  $p = \bar{1}0\bar{1}$  (à gauche).

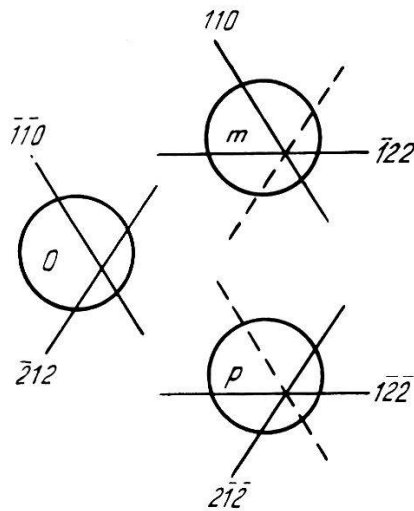


Fig. 11a.

Décallements de seconde espèce d'un système de franges.

Le cristal est assez épais pour que les décallements atteignent deux unités dans les spots  $m = 110$  et  $p = 2\bar{1}\bar{2}$ . Les droites perturbatrices qui ne sont pas des lignes de Kikuchi sont tracées en pointillé.

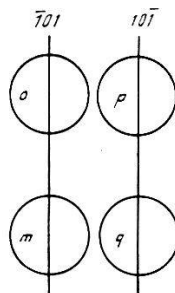
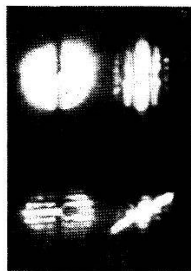


Fig. 13a.

Quatre spots intenses.

$m = \bar{1}20$ ,  $p = 10\bar{1}$  et  $q = 22\bar{1}$ . On remarquera la diminution de  $\mu_{\min}$ , entraînant un accroissement apparent de  $\Phi_m$ , lorsque les franges du spot  $m$  pénètrent à l'intérieur de la bande de Kikuchi  $\pm (101)$ .

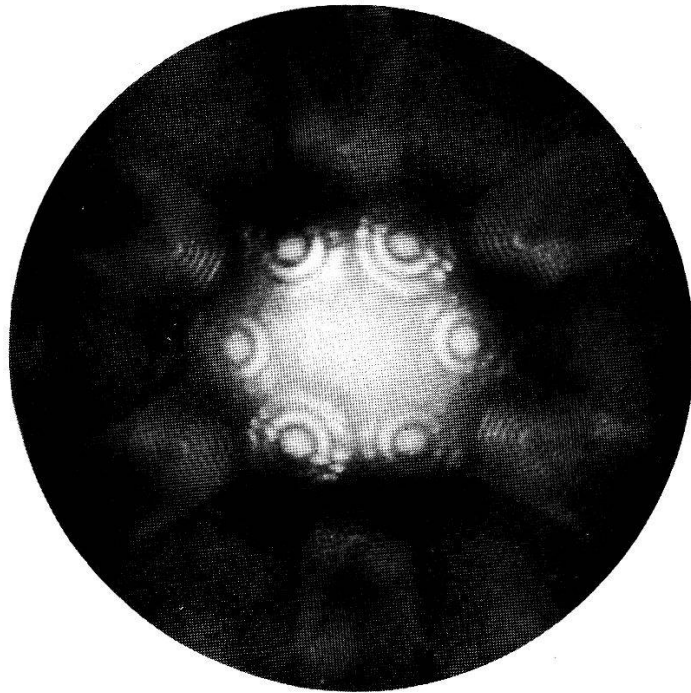


Fig. 14.

Figure de diffraction à centre de symétrie obtenue avec une orientation du faisceau normale au cristal ( $\gamma = 1$ ).

On remarquera les bandes de Kikuchi des types  $\pm (100)$  et  $\pm (110)$ , et les décallements de seconde espèce que subissent les franges à la frontière de ces bandes.

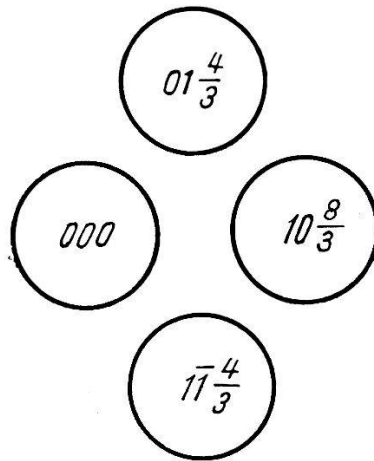
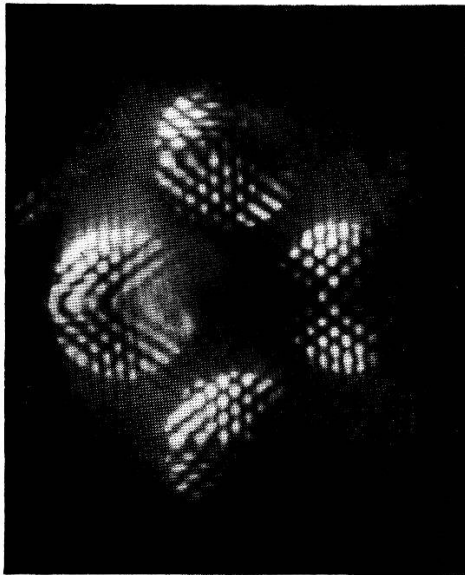


Fig. 15.

Répartition de l'intensité dans quatre spots intenses.

La réflexion simultanée sur trois plans de facteur de structure élevé rend inhomogènes les franges de chaque spot. Cette photographie constitue également une confirmation de l'empilement des couches selon le schéma ABC.

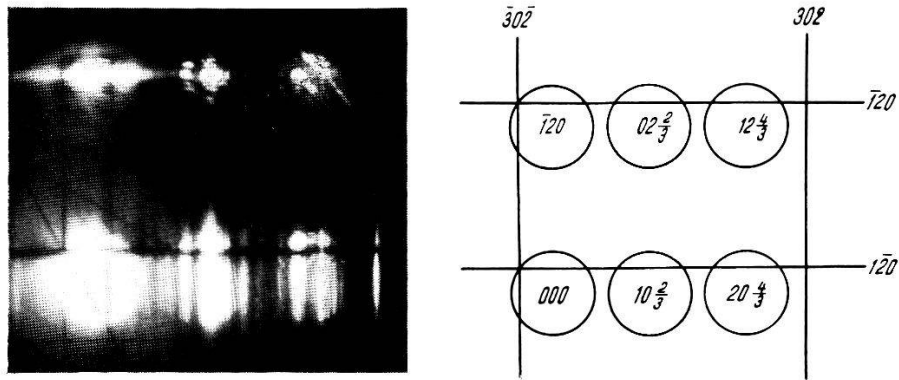


Fig. 16.

Aspect des franges dans le cas d'une transition ABCABC, BCABCA.  
 Le spot  $\bar{1}20$ , dont les indices satisfont à (38) n'est pas affecté par la transition, contrairement aux autres spots. Il en est de même pour les lignes de Kikuchi  $\pm (120)$  et  $\pm (302)$ .

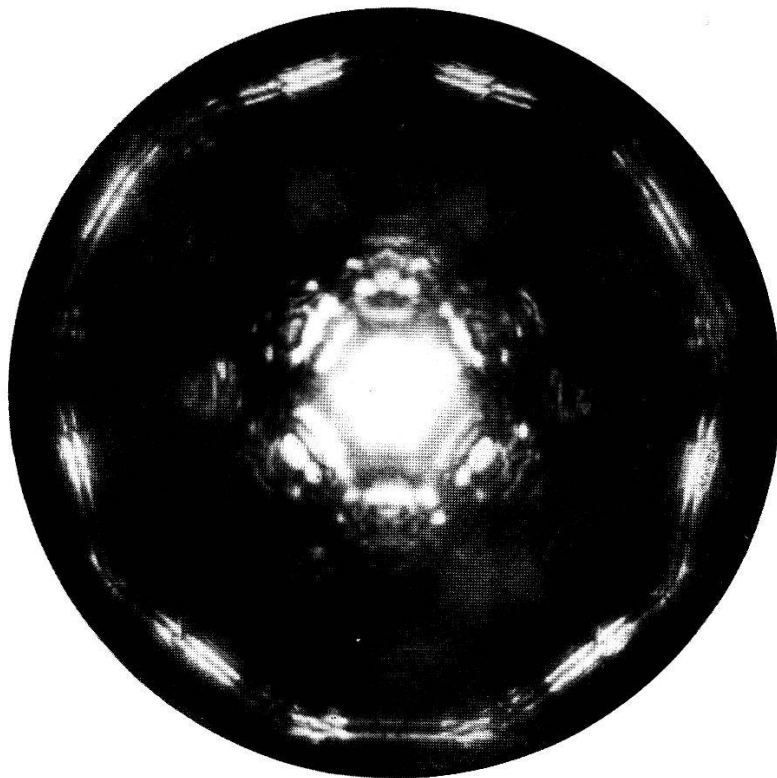


Fig. 17.

Plusieurs spots intenses dans le cas d'un cristal à plusieurs transitions.

teurs des deux ondes de grande amplitude parmi les trois ondes ( $u_m^i, \mathbf{k}_m^i$ ), sont situées sur les portions de la surface de dispersion s'écartant le moins de la surface — à deux nappes — qui existerait en l'absence de perturbation.

Les portions ainsi déterminées forment ce que nous appellerons la *surface de dispersion efficace relative au spot  $m$* ; une normale au cristal la coupe en deux points seulement, distants de

$$y^i - y^l \cong (x_m^i - x_m^l)/\gamma = \Delta x_m/\gamma.$$

Le comportement des franges du spot  $p$  est soumis à la même règle, à condition de permuter dans l'énoncé les indices  $m$  et  $p$ , et de remarquer que la surface de dispersion efficace relative au spot  $p$  est différente de celle relative au spot  $m$ . A vrai dire, si la position de BRAGG est simultanément réalisée pour les réflexions sur les plans  $m$  et  $p$ , ou que, lors de l'étude du spot  $m$ , le spot  $p$  soit en position de BRAGG\*), cette règle est inapplicable, puisqu'il y a alors ambiguïté dans le choix de la surface de dispersion efficace et qu'en fait les trois amplitudes  $u_m^1, u_m^2, u_m^3$  sont du même ordre de grandeur pour ces orientations particulières de l'onde incidente. Là encore, néanmoins, une description semi-quantitative du phénomène reste possible en utilisant deux ondes et en extrapolant le choix de la surface de dispersion efficace fait pour les orientations voisines.

La règle mentionnée peut se justifier dans chacun des cas particuliers que nous traiterons; nous en donnons un exemple dans l'Appendice II.

La détermination des minimums d'intensité d'un spot diffracté  $j = m$  ou  $p$  devient très simple puisque, dans cette approximation où  $u_j^k$ , l'une des trois amplitudes, est négligeable par rapport aux deux autres ( $u_j^i$  et  $u_j^l$ ), nous avons, d'après les deux dernières équations (27)

$$u_j^i = -u_j^l,$$

et que (30) se réduit alors à:

$$\left| \frac{U_j}{A} \right|^2 = |u_j^i e^{2\pi i y^i D} + u_j^l e^{2\pi i y^l D}|^2 = 4 |u_j^i|^2 \sin^2 \pi (x_j^i - x_j^l) D/\gamma. \quad (32)$$

Il suffit donc de tracer la surface de dispersion (25), de choisir, pour chaque domaine angulaire du vecteur d'onde incident  $\mathbf{k}$ , les deux nappes particulières de la manière que nous avons dite, et

\*) Plus exactement, que le vecteur de l'onde ( $U_p, \mathbf{K}_p$ ) soit en position de BRAGG.

de déterminer graphiquement les positions pour lesquelles les distances  $\Delta x_j = x_j^i - x_j^l$  satisfont à :

$$\Delta x_j = \frac{\gamma}{D} n \quad (n \text{ entier}). \quad (33)$$

Nous allons, sur quelques exemples, étudier principalement la perturbation qu'apporte un spot intense  $p$  aux franges du spot  $m$  qui sont éloignées de la position de BRAGG. En l'absence du spot  $p$ , les minimums d'intensité seraient équidistants et donnés par l'expression asymptotique de la formule (20) :

$$\mu_n = \frac{\gamma}{b_m D} n \quad (n \gg |\varepsilon_m| k D / \gamma), \quad (34)$$

autrement dit, la surface de dispersion efficace relative au spot  $m$  se confondrait pratiquement avec les deux sphères 0 et  $m$ .

### b) Résultats expérimentaux.

Considérons, comme premier exemple, les franges du spot  $m = 101$  de la figure 8a : leur équidistance est précisément rompue lorsque  $k$  est en position de BRAGG pour le spot  $p = \overline{101}$ , c'est-à-dire lorsque l'intensité de ce dernier spot est la plus forte. La figure 8b donne en traits continus une coupe, calculée d'après (25), de la surface de dispersion (qui est de révolution puisque les points 0,  $\mathbf{b}_m$  et  $\mathbf{b}_p$  sont alignés). La surface de dispersion efficace relative au spot  $m$  est tracée en traits renforcés, on voit qu'elle est composée des portions des nappes qui s'écartent le moins possible des deux sphères 0 et  $m$  — pointillées. Successivement  $\Delta x_m$  vaut, quand on s'éloigne de la position de BRAGG pour le spot  $m$  (point  $L$ ) :  $x_m^2 - x_m^3$  pour des normales au cristal situées entre  $L$  et  $L''$  ;  $x_m^1 - x_m^3$  (entre  $L''$  et  $L'$ ) et  $x_m^1 - x_m^2$  (à partir de  $L'$ ). Les flèches verticales et continues qui joignent les nappes de la surface de dispersion efficace mesurent  $n\gamma/D$  ( $n = 1, 2, 3, \dots$ ) et déterminent donc les origines de  $\mathbf{k}_m^i$  et  $\mathbf{k}_m^l$  pour lesquelles l'intensité du spot  $m$  s'annule. Ce calcul graphique nécessite la connaissance de  $D$  et de  $\gamma$ , 780 Å et  $\cos 18^\circ$  dans le cas particulier. Si l'on désigne comme précédemment par  $\bar{\mu}_n = \mu_n L$  la distance sur l'écran entre la position de BRAGG du spot  $m$  et le minimum du  $n^{\text{ième}}$  ordre, la distance correspondante  $l_n$  sur la figure 8b vaut

$$l_n = (k/L) \bar{\mu}_n$$

et permet de retrouver expérimentalement (dans la direction des petites flèches pointillées) les origines de  $\mathbf{k}_m^i$  et  $\mathbf{k}_m^l$  associées aux minimums d'intensité. La figure 8b montre une concordance satis-

faisante entre les positions des flèches pointillées (expérience) et continues (théorie).

Le resserrement des franges qui se produit quand l'origine des vecteurs d'onde est voisine de  $L'$  est dû au fait qu'il existe deux orientations correspondant à  $\Delta x_m = 10\gamma/D$ : le minimum du dixième ordre, donné par (33), s'est dédoublé, et l'on peut dire que le spot perturbateur a fait apparaître une frange supplémentaire.

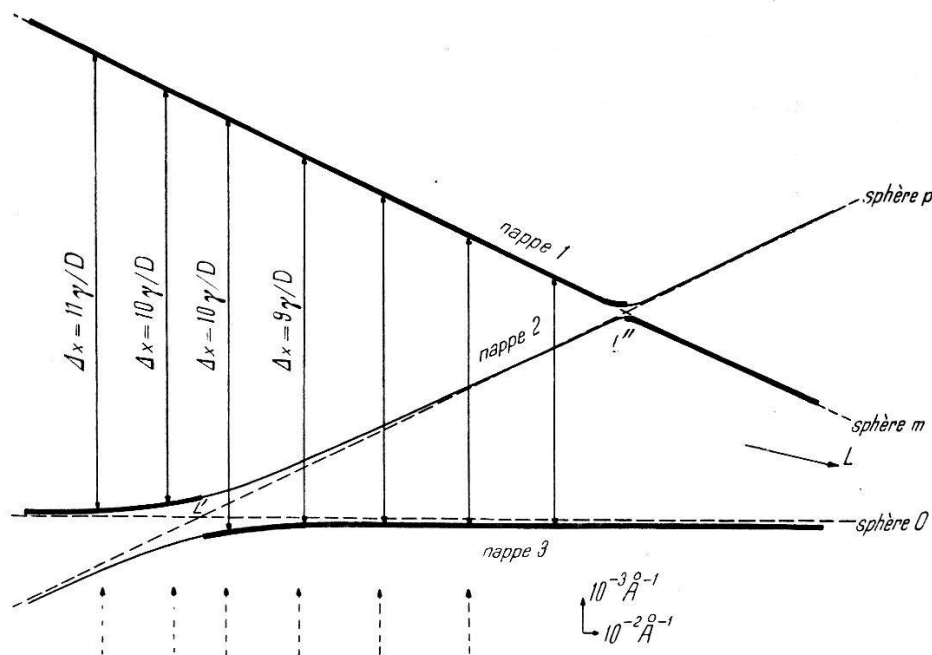


Fig. 8b.

Surface de dispersion relative à la figure 8a.

En traits pointillés, les sphères 0,  $m$  et  $p$ . En traits continus, les trois nappes de la surface de dispersion. En traits renforcés, la surface de dispersion efficace relative au spot  $m$ . Les flèches verticales et continues mesurent  $n\gamma/D$  et déterminent les origines de  $k_m^i$  et  $k_m^l$  pour lesquelles l'intensité du spot  $m$  s'annule. Les flèches pointillées donnent la direction trouvée expérimentalement pour ces mêmes origines.

$$\begin{aligned} \text{Valeurs numériques utilisées: } k &= 18,5 \text{ \AA}^{-1}, & \varepsilon_m &= \varepsilon_p^* = \varepsilon_{101} = -5,15 \cdot 10^{-5} i, \\ \varepsilon_s &= \varepsilon_{202} = 1,15 \cdot 10^{-5}, & \gamma &= 0,951, & D &= 780 \text{ \AA}. \end{aligned}$$

Selon l'épaisseur  $D$ , c'est-à-dire selon le rapport de  $\gamma/D$  à la discontinuité de la surface de dispersion efficace près de  $L'$ , il serait possible de n'observer aucun dédoublement (cristal mince), ou au contraire celui des minimums de deux ordres consécutifs (cristal épais). Ce dernier cas, impliquant  $D > 2000 \text{ \AA}$ , n'a pas été observé. Pour des cristaux très minces, les franges restent à peu près équidistantes: l'effet perturbateur devient négligeable, comme en théorie cinématique (voir Appendice I).

Quant à la discontinuité au voisinage de  $L''$ , elle est, d'après la figure 8b, trop petite pour perturber notablement les franges du



spot  $m$ . Dans le cas contraire, cette dernière discontinuité produirait un espacement des franges; en effet, le minimum d'un certain ordre, donné par (33), n'existerait plus, et une frange disparaîtrait. Nous donnerons le nom de première et de seconde espèce aux discontinuités de la surface de dispersion efficace, dont l'effet est de resserrer, respectivement d'espacer, les franges du spot  $m$ .

Le cas où les points  $0$ ,  $\mathbf{b}_m$  et  $\mathbf{b}_\mu$  ne sont pas alignés nécessitent, nous l'avons vu, plusieurs coupes de la surface de dispersion; nous les prendrons, lors de l'étude des franges du spot  $m$ , selon les divers plans d'un faisceau ayant tous le vecteur  $\mathbf{b}_m$  commun. Alors que les traces des sphères  $0$  et  $m$  restent invariables, celle de la sphère perturbatrice  $p$  se déplace d'une coupe à l'autre, parallèlement à elle-même en pratique, à cause de la petitesse des variations angulaires mises en jeu (ordre du degré). Pour une coupe particulière, les traces des trois sphères se coupent au même point, la position de BRAGG est alors simultanément réalisée pour les spots  $m$  et  $p$  quand les origines des vecteurs d'onde sont situées sur la normale au cristal par ce point. Un seul angle  $\mu$ , celui dont on s'écarte de la position de BRAGG pour le spot  $m$  dans un plan contenant le vecteur  $\mathbf{b}_m$  — c'est-à-dire dans une des coupes que nous venons de définir — suffisait précédemment à repérer un point de la surface de dispersion; un second angle s'introduit ici, celui dont on s'écarte de la position simultanée de BRAGG pour les spots  $m$  et  $p$ , dans une direction perpendiculaire à ces coupes. A ces angles  $\mu$  et  $\nu$  correspondent sur le spot  $m$  les distances  $\bar{\mu}$  et  $\bar{\nu}$  (figure 9a).

Pour des angles  $\nu$  croissants, la trace de la sphère  $p$  coupe celles des sphères  $0$  et  $m$  en des points  $L'$  et  $L''$  toujours plus éloignés de l'intersection  $L$  des sphères  $0$  et  $m$ . Comme les distances  $LL'$  et  $LL''$  augmentent linéairement avec  $\nu$ , les lieux des points correspondant dans le spot  $m$  à ces discontinuités sont deux droites. Nous allons montrer qu'une de ces droites seulement s'identifie à une ligne de KIKUCHI (d'indices  $m-p$ ), qu'en les traversant les franges sont décalées, d'une unité en général, et qu'il existe deux espèces de décalement, selon l'espèce de discontinuité qui leur donne naissance.

Les figures 9 donnent une coupe de la surface de dispersion pour les trois positions relatives essentiellement différentes des spots  $0$ ,  $m$  et  $p$ . Lorsque  $\nu$  varie et change de signe — que  $L'$  et  $L''$  traversent  $L$  —, on voit facilement que l'espèce de la discontinuité au voisinage de  $L'$  (ou de  $L''$ ) ne change pas. La discontinuité de première espèce dédouble un ordre en général et resserre les minimums; les franges qui se resserrent pour un angle  $\mu$  variable, lequel aug-



mente linéairement avec  $LL'$  ( $LL''$ ), c'est-à-dire avec  $\nu$ , subissent un décalage (de première espèce) d'une unité en général, le long d'une droite, et en épousant la direction de cette droite. Une discontinuité de deuxième espèce, par contre, qui espace les minimums, décale également les franges le long d'une droite, mais dans une direction perpendiculaire à cette droite. Dans les deux cas, le rapport de  $\gamma/D$  à  $k\varepsilon_j$  (ordre des discontinuités de la surface efficace) détermine le nombre d'unités du décalage; nous n'avons pas observé de cas où il fût supérieur à deux. On voit sur les figures 9

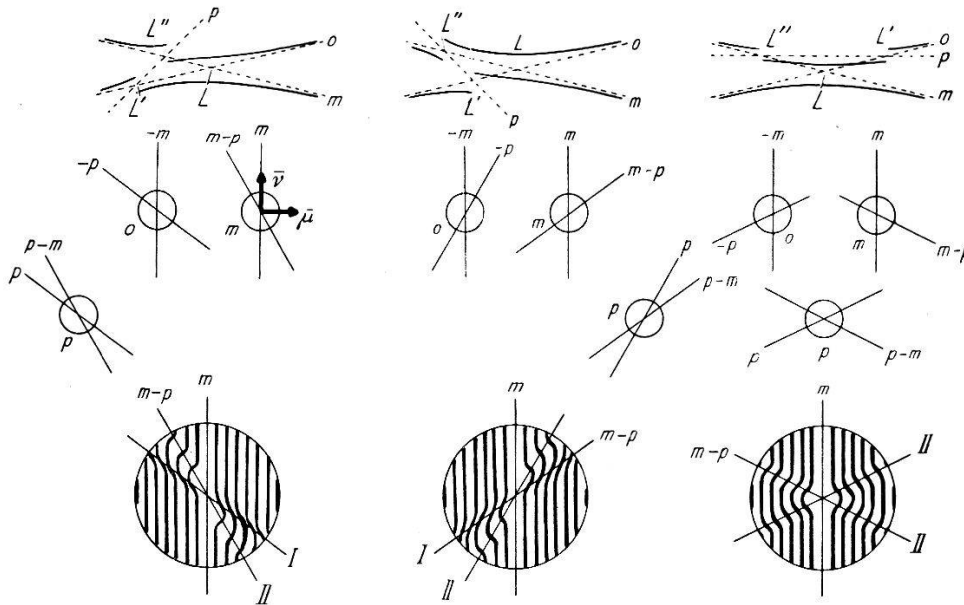


Fig. 9a.

Fig. 9b.

Fig. 9c.

Les trois arrangements possibles de trois spots intenses.

En haut, la surface de dispersion efficace relative au spot  $m$ . Au milieu l'arrangement des spots et les lignes de KIKUCHI qui les traversent. En bas, l'aspect des franges du spot  $m$ . Les trois coefficients  $\varepsilon_m, \varepsilon_p, \varepsilon_s$  ont été choisis du même ordre de grandeur. I et II dénombrent l'espèce des décalages qui se produisent au niveau des droites perturbatrices. L'une de ces droites est la ligne de KIKUCHI  $m-p$ , l'autre n'est que l'image dans le spot  $m$  de la ligne de KIKUCHI  $-p$  traversant le spot 0.

qu'une des droites est la ligne de KIKUCHI d'indice  $m-p$ : elle correspond aux directions des ondes pour lesquelles le couplage entre les spots  $m$  et  $p$  est maximum. L'autre droite, qui est en quelque sorte l'image dans le spot  $m$  de la ligne de KIKUCHI d'indices  $-p$  traversant le spot 0, correspond aux directions des ondes dans lesquelles le couplage entre les spots 0 et  $p$  est maximum. La 3e droite ( $\bar{\mu} = 0$ ) tracée dans le spot  $m$  correspond à la position de BRAGG pour ce spot; elle s'identifie évidemment avec la ligne de KIKUCHI d'indice  $m$ .

Dans les cas des figures 9a et 9b, et à cause de la grande séparation de deux spots ( $m$  et  $p$ , ou 0 et  $m$  respectivement), l'un des trois

coefficients  $\varepsilon$  ( $\varepsilon_s$  ou  $\varepsilon_p$ ) est généralement inférieur aux deux autres, diminuant ainsi la discontinuité de seconde espèce de la surface de dispersion efficace et annulant le décalage correspondant des franges; seul celui de première espèce est alors observé (figure 10). Dans le cas extrême où le spot  $p$  est à la périphérie de la figure de diffraction, à la fois  $\varepsilon_p$  et  $\varepsilon_s$  sont petits vis-à-vis de  $\varepsilon_m$  et l'influence de ce spot devient négligeable, comme nous l'annoncions au début de ce paragraphe. Le cas de la figure 9c est plus intéressant puisque, les trois spots étant sensiblement à même distance les uns des autres, des décalages (de seconde espèce) se produisent au niveau des deux droites perturbatrices. Nous avons étudié ce dernier cas pour  $0 = 000$ ,  $m = 110$ ,  $p = 2\bar{1}\bar{2}$ , et pour un cristal d'épaisseur donnant lieu à des décalages de deux unités (figure 11a). L'allure du spot  $p$  est fondamentalement analogue à celle du spot  $m$ ; ce que nous venons d'écrire au sujet de ce dernier s'appliquant en effet, mutatis mutandis, au spot  $p$ .

De toute évidence cependant, les décalages observés sont inférieurs aux nombres entiers (un ou deux) théoriquement escomptés: la surface de dispersion efficace relative au spot  $m$  ne revient ainsi pas se confondre, malgré l'éloignement de la sphère perturbatrice  $p$ , avec la surface de dispersion qui existerait en l'absence de perturbation; plus précisément, ce comportement asymptotique est si lent à se réaliser que le décalage des franges paraît rester constamment inférieur à 1 ou 2 dans le domaine étudié et que, une nouvelle perturbation survenant, il ne peut plus être atteint. Comme il est malaisé de représenter sur un seul schéma ce décalage incomplet des franges, nous insisterons plutôt sur un autre aspect du même phénomène. Considérons les deux minimums situés immédiatement de part et d'autre de la position de BRAGG et repérés par l'angle  $\mu_{\min}$  ( $\mu_1$  et plus rarement  $\mu_2$  dans le cas du graphite). Il est clair, d'après la figure 2 par exemple, que pour deux spots intenses dans la figure de diffraction,  $\mu_{\min}$  diminue lorsque l'axe transverse  $\delta = |\varepsilon_m|k$  de l'hyperbole (9) qu'est alors la surface de dispersion, augmente, toutes choses égales d'ailleurs. De même façon, pour trois spots intenses,  $\mu_{\min}$  dépend de l'axe  $\delta$  de la pseudo-hyperbole que forme la surface de dispersion efficace au voisinage de la position de BRAGG du spot étudié. La variation de  $\delta$  avec l'angle  $\nu$  précédemment défini s'étudie le plus simplement sur une coupe de la surface de dispersion, prise cette fois selon un plan contenant le point  $\mathbf{b}_m$  et l'intersection des sphères 0 et  $m$ , c'est-à-dire perpendiculairement aux coupes précédentes. La figure 11b donne cette nouvelle coupe, calculée toujours d'après (25), et qui

concerne le spot  $m$  de notre dernier exemple (figure 11 a); la position simultanée de BRAGG pour les spots  $m$  et  $p$  est réalisée quand les origines des vecteurs d'onde sont situées sur la normale passant par le point  $L$ . Alors qu'en l'absence de la sphère perturbatrice  $p$ , la surface de dispersion donnerait deux droites parallèles et distantes de  $|\varepsilon_m|k$ , nous voyons sur la figure 11 b que les deux nappes appartenant à la surface de dispersion efficace se resserrent en s'approchant de  $L$  par la gauche et s'écartent en s'en approchant par la droite. L'effet perturbateur de la sphère  $p$  s'étend si loin de part et d'autre de  $L$  et la variation de  $\delta$  est par conséquent si

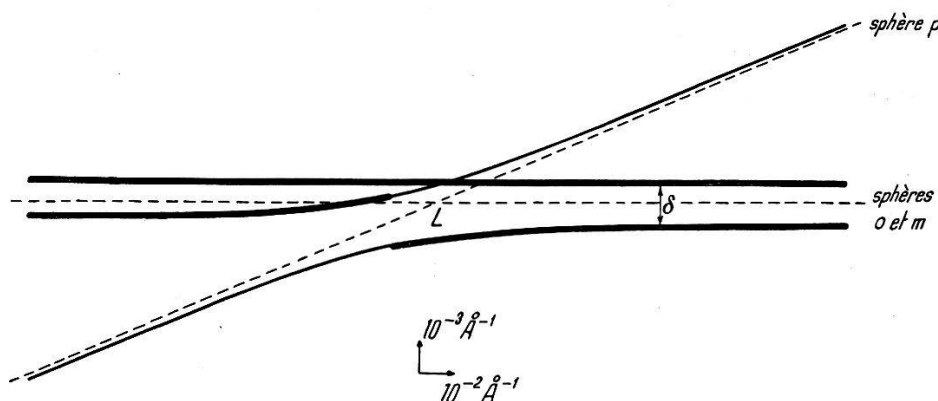


Fig. 11 b.

Surface de dispersion relative à la figure 11 a.

En traits renforcés, la surface de dispersion efficace relative au spot  $m$ .

lente que, dans le domaine délimité par l'angle de convergence du spot,  $\delta$  semble garder à droite et à gauche de  $L$  deux valeurs presque constantes, mais systématiquement différentes. La même conclusion s'applique à  $\mu_{\min}$  (ou  $\bar{\mu}_{\min}$ ), puisque cet angle varie inversement à  $\delta$ . L'effet, bien visible sur la figure 11 a, donne à  $\bar{\mu}_{\min}$  des valeurs plus petites à l'intérieur de la bande de KIKUCHI ( $\bar{1}22, \bar{1}2\bar{2}$ ) qu'à l'extérieur. Ce comportement de franges qui chevauchent sur le bord d'une bande de KIKUCHI d'indices peu élevés est général; nous en donnerons un autre exemple au paragraphe suivant.

## § 6. La figure de diffraction montre quatre spots intenses ou davantage.

La généralisation formelle des formules du dernier paragraphe dans le cas de quatre spots intenses est évidente, mais les calculs numériques deviennent très longs et pratiquement impossibles en toute généralité. De toute façon, la surface de dispersion s'obtient par annulation d'un déterminant du quatrième ordre, et le calcul complet de l'intensité diffractée nécessiterait la connaissance de quatre champs d'ondes. Nous considérerons deux cas particuliers

dans lesquels les spots seront soit alignés et à même distance, soit formant un rectangle. La symétrie introduite rend, dans les coupes de la surface de dispersion, les traces des sphères  $0$ ,  $m$ ,  $p$  et  $q$  parallèles deux à deux, et permet de nouveau de calculer la surface au moyen d'équations numériques du second degré. La surface de dispersion efficace se détermine d'après la même règle que précédemment et permet, sauf quand plusieurs spots sont simultanément en position de BRAGG, de situer les minimums de l'intensité diffractée au moyen de (33). Les franges d'un spot  $m$  subissent également des décallements de première et de seconde espèce, mais le nombre de droites le long desquelles ces décallements ont lieu est plus élevé puisque plusieurs lignes de KIKUCHI traversent les spots  $0$  et  $m$  (cf. la figure 10 où il y a effectivement cinq spots intenses, dont un en dehors de la photographie).

Considérons, comme premier exemple, les spots  $0 = 000$ ,  $m = 10 m_3$ ,  $p = 20 (2 m_3)$  et  $q = \bar{10} \bar{m}_3$ . La figure 8a peut illustrer ce cas, à condition d'y numéroter autrement les spots. Le spot  $m$  étant en position de BRAGG, nous désirons savoir si les spots  $p$  et  $q$  — non en position de BRAGG et donc peu intenses — ne vont pas influencer sur la position des franges du spot  $m$ . Un calcul élémentaire donne pour la surface de dispersion l'expression suivante où nous avons posé  $\varepsilon_m = \varepsilon_1$ ,  $\varepsilon_{2m} = \varepsilon_2$  et  $\varepsilon_{3m} = \varepsilon_3$ :

$$\begin{aligned} x_0 x_m x_p x_q &= (x_0 x_q + x_m x_p + x_p x_q) |\varepsilon_1|^2 k^2/4 + (x_0 x_p + x_m x_q) \cdot \\ &\quad \cdot |\varepsilon_2|^2 k^2/4 + x_0 x_m |\varepsilon_3|^2 k^2/4 \\ &- (x_0 + x_m) R(\varepsilon_1 \varepsilon_2 \varepsilon_3^*) k^3/4 - (x_p + x_q) R(\varepsilon_1^2 \varepsilon_2^*) k^3/4 - C k^4/16 \quad (35) \end{aligned}$$

avec  $C = (|\varepsilon_1|^2 - |\varepsilon_2|^2)^2 - 2 R(\varepsilon_1^* \varepsilon_2^2 \varepsilon_3^*) - 2 R(\varepsilon_1^3 \varepsilon_3^*) + |\varepsilon_1|^2 |\varepsilon_3|^2$

La figure 12 donne la trace schématique, selon un plan contenant  $\mathbf{b}_m$ ,  $\mathbf{b}_p$  et  $\mathbf{b}_q$ , de la surface (35). Afin de mieux illustrer le phénomène, nous avons exagéré les axes des pseudo-hyperboles, que nous désignerons par les indices des deux sphères sur lesquelles elles s'appuient. Nous avons calculé (35) pour  $m_3 = 0, 1, 2, 3$  et  $2/3$  (graphite ABC) et tracé dans chaque cas la pseudo-hyperbole  $(0, m)$ , qui n'est autre que la surface de dispersion efficace relative au spot  $m$ , au voisinage de la position de BRAGG. La comparaison avec l'hyperbole (9) qu'on obtiendrait en négligeant l'effet des spots  $p$  et  $q$  montre que cette hyperbole est d'abord décalée vers le bas, puis que ses branches s'écartent ou se resserrent, suivant les phases relatives de  $\varepsilon_1$ ,  $\varepsilon_2$  et  $\varepsilon_3$ : il y a écartement lorsque ces coefficients sont tous réels et positifs (lorsque  $m_3 = 0$  et  $2$ ), et resserrement dans les autres cas ( $m_3 = 1, 3, 2/3$ ). Quoi qu'il en soit, cette déformation reste faible et si l'on détermine graphiquement, comme dans l'ex-

emple de la figure 8 b, les positions théoriques des minima d'intensité, on trouve que la dépendance entre  $\mu_n^2$  et  $n^2$  est encore linéaire, aux erreurs de mesures près; la pseudo-hyperbole  $(0, m)$  reste ainsi une hyperbole, mais d'axe  $\delta' \neq |\varepsilon_m|k$ . Ce fait est important: il permet de déterminer d'après les quantités expérimentales  $\bar{\mu}_n$  et la formule (22) une première valeur approximative  $\Phi'_m$  (deuxième colonne de la table I), et de calculer ensuite, à partir de ce  $\Phi'_m$ , les surfaces de dispersion efficaces, exacte (35) et simplifiée (9). Le rapport des axes des deux hyperboles est alors égal à celui des valeurs réelle et observée ( $\Phi'_m$ ) de  $\Phi_m$ ; d'où:

$$\Phi_m = \frac{\delta}{\delta'} \Phi'_m.$$

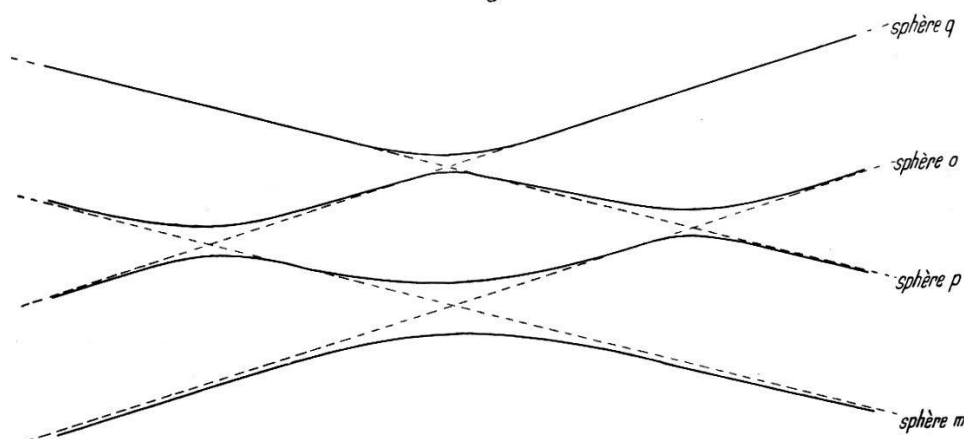


Fig. 12.

Coupe schématique de la surface de dispersion pour les quatre spots  $0 = 000$ ,  $m = 10 m_3$ ,  $p = 20 (2 m_3)$  et  $q = \bar{10} \bar{m}_3$ .

Les axes des pseudo-hyperboles voisines des intersections des sphères sont exagérés, afin de rendre le schéma plus clair.

Ces valeurs corrigées sont données dans la troisième colonne de la table I. On constatera que la différence entre  $\Phi_m$  et  $\Phi'_m$ , maximum (10%) pour  $m_3 = 2/3$ , reste faible. Si elle était plus forte, c'est-à-dire si les pseudo-hyperboles de la figure 12 «empiétaient» les unes sur les autres, la fonction  $\mu_n^2 = f(n^2)$  ne serait plus une droite et le procédé que nous avons employé deviendrait inapplicable. Ce cas se produit pour des cristaux de poids atomique élevé ( $\Phi_m$  grand) ou de grande maille élémentaire ( $b_m$  petit), tels que la molybdénite, l'iodure de plomb, le mica. Il n'est donc pas étonnant que l'emploi de la formule de MACGILLAVRY (20) ne se soit pas toujours révélé correct pour ces cristaux.

Même pour le graphite d'ailleurs, la détermination de  $\Phi_{20 (2 m_3)}$  ou  $\Phi_{30 (3 m_3)}$  n'est pas possible. En effet, les pseudo-hyperboles de (35) relatives à ces spots, celles que nous désignons d'après la figure 12 par  $(0, p)$  et  $(p, q)$  respectivement, diffèrent considérablement des



hyperboles (9)\*), et les fonctions  $\mu_n^2 = f(n^2)$  ne sont plus des droites. Nous ne pouvons pas, en d'autres termes, déterminer directement d'après les franges observées les coefficients  $\Phi_m$  relatifs au deuxième ou au troisième ordre d'une réflexion du type  $10\ m_3$ . Tout au plus, si l'on approximait à des droites les fonctions  $\mu_n^2 = f(n^2)$ , la formule (22) donnerait-elle l'ordre de grandeur de ces coefficients.

Nous pourrions appliquer également aux spots  $11\ m_3$  le procédé d'investigation dont il vient d'être question, mais les différences pour  $\Phi_m$  auxquelles il conduit sont si petites qu'elles ne dépassent pas les erreurs expérimentales. D'autre part, et comme nous l'avions déjà remarqué au paragraphe 4, la petitesse relative — en vertu de (23) — de  $\Phi_{22\ (2\ m_3)}$  et  $\Phi_{33\ (3\ m_3)}$  ne nous a pas permis de vérifier la théorie en nous appuyant sur des données expérimentales suffisamment précises; il en a été de même pour les spots excentriques ( $|m_1\ \mathbf{b}_1 + m_2\ \mathbf{b}_2| > |\mathbf{b}_1 + \mathbf{b}_2|$ ).

En résumé, nous constatons que la détermination des coefficients  $\Phi_m$  du potentiel cristallin au moyen de la formule (22), dont l'intérêt est de ne mettre en jeu que des mesures de longueurs, est malheureusement inapplicable pour un grand nombre de spots, même pour un cristal léger tel que le graphite, et que le nombre de cas favorables diminue avec l'augmentation du nombre atomique des atomes du cristal étudié.

Dans un second exemple, nous considérerons les quatre spots  $0 = 000$ ,  $m = 1\bar{2}0$ ,  $p = 10\bar{1}$  et  $q = 2\bar{2}\bar{1}$  (figure 13a). L'intérêt est de nouveau dans le comportement différent des deux parties du spot  $m$ : «tout se passe comme si le coefficient  $\Phi_m$ , mesuré d'après (22), était plus grand pour les électrons se propageant à l'intérieur de la bande de KIKUCHI ( $\bar{1}01$ ,  $10\bar{1}$ ) que pour ceux de l'extérieur». L'explication en est donnée une fois de plus par la surface de dispersion, dont l'équation, du même genre que (35) et mettant en jeu les trois coefficients  $\varepsilon_m$ ,  $\varepsilon_p$  et  $\varepsilon_q$ , permet le tracé exact d'une coupe (figure 13b), prise selon un plan contenant le point  $\mathbf{b}_m$  et l'intersection des sphères  $0$  et  $m$ . Comme dans le cas de la figure 11b, la distance moyenne  $\delta'$  entre les deux nappes de la surface de dispersion efficace relative au spot  $m$ , n'est pas la même de part et d'autre de la perturbation, c'est-à-dire de la frontière de la bande (ligne de KIKUCHI  $\bar{1}01$ ). Cette différence est assez faible pour que, comme dans l'exemple précédent, les valeurs apparentes  $\Phi'_m$  calculées au

\*) En particulier,  $\delta' \neq 0$ , même si le  $\Phi_m$  correspondant est nul (par exemple  $\Phi_{303}$ ).

moyen de (22) de part et d'autre de la frontière soient dans le rapport

$$\Phi'_m(\text{int})/\Phi'_m(\text{ext}) = \delta'(\text{int})/\delta'(\text{ext})$$

La mesure d'après (22) du membre de gauche, et le calcul d'après l'équation pour la surface de dispersion de celui de droite, donnent pour ce rapport la même valeur de  $1,10 \pm 0,02$ .

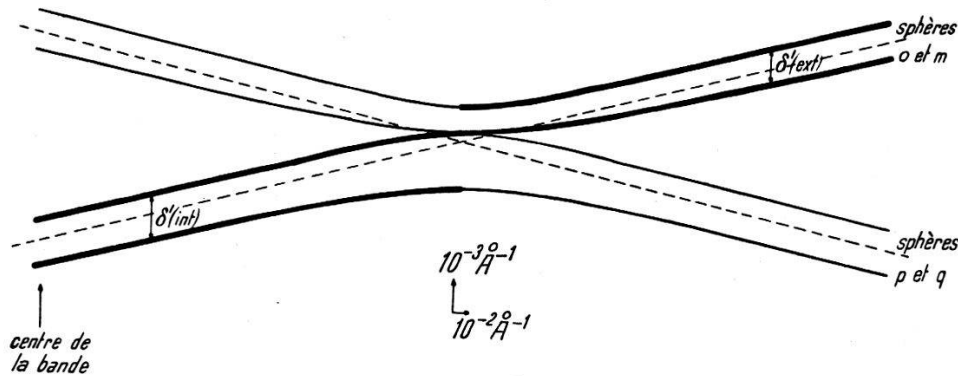


Fig. 13b.

Surface de dispersion relative à la figure 13a.

En traits renforcés, la surface de dispersion efficace relative au spot  $m$ .

Notons encore que le comportement asymptotique de la surface de dispersion efficace ( $\delta' \rightarrow \delta = |\Phi_m|k/P$ ) ne se réalise pas à l'intérieur de la bande, à cause de son étroitesse; car il est impossible de s'éloigner suffisamment de la ligne de KIKUCHI  $\bar{1}01$  sans rencontrer la ligne  $10\bar{1}$  dont l'effet perturbateur est identique. L'effet sur un système de franges diminue lorsque les indices de la bande augmentent, puisque les deux lignes de KIKUCHI qui la délimitent s'écartent et que les coefficients  $\varepsilon$  entrant en jeu diminuent; pour le graphite, seules les bandes du type  $\pm(10 m_3)$  et  $\pm(11 m_3)$  ont une action appréciable. Il faut donc éviter, lors de la détermination d'un  $\Phi_m$ , que les spots 0 ou  $m$  ne se trouvent à l'intérieur d'une de ces bandes.

Lorsqu'une bande est située symétriquement par rapport au spot 000, on sait que l'intensité du fond continu, provenant des électrons diffusés non élastiquement, est généralement différente à l'intérieur et à l'extérieur de cette bande; pour le graphite, l'intensité est toujours plus forte à l'intérieur (figure 14). Divers auteurs, parmi lesquels SHINOHARA (1932a), EMSLIE (1933) et, récemment, ARTMANN (1948, 1949), ont étudié ce problème. Artmann a démontré notamment que le phénomène ne peut être décrit en théorie dynamique que par la considération de plusieurs ondes intenses (Vielstrahl-



problem). Ainsi, dans les deux cas des électrons diffusés élastiquement — ceux que nous avons étudiés — et inélastiquement, leur comportement particulier à l'intérieur des bandes de KIKUCHI de bas indices procède d'une cause identique.

Les effets associés aux bandes augmentent également avec le nombre atomique. KOSSEL et MÖLLENSTEDT (1942) ont publié pour le mica des photographies analogues à nos figures 11a et 13a, et qu'on peut expliquer de la même façon.

Une discussion quantitative devient pratiquement impossible lorsque le nombre des spots intenses dépasse quatre, à moins que leur disposition ne présente une haute symétrie. Le cas se produit quand la normale au cristal  $n$  coïncide avec l'axe du faisceau convergent (figure 14). FUES (1943 et 1949) en a donné la théorie, pour le mica, en considérant le spot central et les six spots immédiatement voisins; il trouve également que le nombre d'unités du décalage des franges augmente avec l'épaisseur, et que la structure fine des franges dépend des phases relatives des  $\varepsilon$ .

Nous donnerons la raison, pour terminer, de l'aspect ponctué de certains spots étudiés aux paragraphes 5 et 6. Nous avons montré que les minimums d'intensité d'un spot  $m$  s'obtenaient de façon simple en considérant ce que nous avons appelé la surface de dispersion efficace relative au spot  $m$ , et nous ne nous sommes plus par la suite intéressé qu'à la position de ces minimums. En effet, sur la grandeur des maximums d'intensité, la règle que nous avons énoncée à la page 602 ne peut rien dire. Elle détermine, d'après l'Appendice II, celle des trois amplitudes  $u_m^1$ ,  $u_m^2$  et  $u_m^3$  qui est négligeable relativement aux deux autres, mais non le rapport de ces dernières à l'amplitude  $A$  de l'onde incidente, rapport qui s'abaisse lorsque l'amplitude  $U_p$  d'un spot diffracté perturbateur est grande. Sans recourir aux formules exactes — (30) pour trois spots —, l'on s'attendra, pour les maximums d'intensité des franges du spot  $m$ , à une sensible diminution quand les franges du spot  $p$  sont intenses. Le lieu des points où s'exerce cette diminution est donc l'image dans le spot  $m$  des franges du spot  $p$ . L'effet réciproque du spot  $m$  sur le spot  $p$  existe aussi, d'ailleurs, mais un spot sera d'autant plus influencé que son intensité moyenne est plus faible et celle de l'autre plus forte. Le phénomène est visible dans les spots des figures 11 et 13. La figure 15 en donne un exemple remarquable, dû à un cristal de graphite ABC: les franges des trois spots diffractés se «hâchent» littéralement les unes les autres.

**§ 7. Les structures particulières du graphite.**

Nous avons vu jusqu'à présent les complications successives que présente un spot sous l'effet d'autres spots intenses, et avons constaté que les franges observées dépendaient de la surface de dispersion efficace, c'est-à-dire essentiellement de l'interférence de deux ondes intenses seulement. Il nous reste à étudier brièvement l'aspect de certaines franges, qu'on ne rencontre pas avec tous les cristaux examinés et dont la figure 16 donne un exemple typique: elles laissent supposer qu'un plus grand nombre d'ondes intenses contribuent à leur formation. Elles n'appartiennent pas cependant à des spots «supplémentaires», en ce sens qu'on peut assigner à ceux-ci des indices  $m_1$ ,  $m_2$  et  $m_3$  entiers (ou  $m_3$  multiple de  $2/3$  dans le cas du graphite ABC). La complexité des franges révèle par contre un défaut du cristal, plus précisément une transition dans le schéma d'empilement des couches. Dans les cristaux de graphite AB, par exemple, il peut se produire une transition ABAB, ACAC (la virgule marquant la transition): les deux cristaux partiels ainsi superposés ont la même maille élémentaire, le même réseau réciproque par conséquent, mais leurs facteurs de structure\*)  $F_m$ , semblables en grandeur, peuvent différer en *phase*, et cette différence de phase est responsable des franges observées. La même conclusion s'appliquerait à une transition ABCABC, BCABCA.

**Table III.**

Facteurs de structure  $F_m$  relatifs à un empilement ABAB... (premier nombre de chaque case) et ACAC... (second nombre).

	$m_2 = m_1 \pm 3n$	$m_2 = m_1 + 1 \pm 3n$	$m_2 = m_1 + 1 \pm 3n$
$m_3 = \pm 2n'$	4 ; 4	1 ; $e^{2\pi i/3}$	1 ; $e^{-2\pi i/3}$
$m_3 = 1 \pm 2n'$	0 ; 0	$\sqrt{3}i$ ; $\sqrt{3}e^{\pi i/6}$	$-\sqrt{3}i$ ; $\sqrt{3}e^{-\pi i/6}$

$n$  et  $n' = 0, 1, 2, \dots$

**Table IV.**

Facteurs de structure relatifs à un empilement ABCABC... (premier nombre de chaque case) et BCABCA... (second nombre).

	$m_2 = m_1 \pm 3n$	$m_2 = m_1 + 1 \pm 3n$	$m_2 = m_1 - 1 \pm 3n$
$m_3 = \pm 3n'$	6 ; 6	0 ; 0	0 ; 0
$m_3 = 2/3 \pm 3n'$	0 ; 0	0 ; 0	$3e^{-\pi i/3}$ ; $3e^{\pi i/3}$
$m_3 = -2/3 \pm 3n'$	0 ; 0	$3e^{\pi i/3}$ ; $3e^{-\pi i/3}$	0 ; 0

$n = 0, 1, 2, \dots$

$n' = 0, 2/3, 4/3, 6/3, \dots$

\*) Nous désignons ainsi la quantité  $F_m$  de la formule (23), bien qu'en toute rigueur ( $Z-s(\mathbf{b}_m)$ )  $F_m$  soit le facteur de structure.

Le calcul par la théorie dynamique de la diffraction due à ces cristaux n'est pratiquement réalisable que dans le cas d'une seule transition, et lorsque la figure de diffraction présente deux spots intenses seulement. Nous appliquerons donc la théorie du paragraphe 3 à deux cristaux superposés, à faces parallèles, de même réseau réciproque, et se juxtaposant à la hauteur du plan où se produit la transition\*). Les trois plans sur lesquels s'appliquent les conditions aux limites sont définis par

$$\begin{aligned} \mathbf{nr} &= -D && \text{(face d'entrée } \Sigma_1), \\ \mathbf{nr} &= 0 && \text{(plan de la transition } \Sigma_2), \\ \mathbf{nr} &= \bar{D} && \text{(face de sortie } \Sigma_3). \end{aligned}$$

Dans chaque cristal partiel existent deux champs d'ondes et les rapports  $p^i$  ou  $\bar{p}^i$  des amplitudes des ondes d'un même champ sont données par (11). Quant aux amplitudes relatives des divers champs, elles dépendent des conditions aux limites sur  $\Sigma_1$  et  $\Sigma_2$ :

$$\begin{aligned} \text{Sur } \Sigma_1: \quad & A = p^1 u_m^1 e^{-2\pi i y^1 D} + p^2 u_m^2 e^{-2\pi i y^2 D}, \\ & 0 = u_m^1 e^{-2\pi i y^1 D} + u_m^2 e^{-2\pi i y^2 D}, \\ \text{Sur } \Sigma_2: \quad & p^1 u_m^1 + p^2 u_m^2 = \bar{p}^1 \bar{u}_m^1 + \bar{p}^2 \bar{u}_m^2, \\ & u_m^1 + u_m^2 = \bar{u}_m^1 + \bar{u}_m^2. \end{aligned}$$

Ces quatre équations déterminent  $u_m^1, u_m^2, \bar{u}_m^1$  et  $\bar{u}_m^2$  en fonction des  $p^i$  et  $\bar{p}^i$ . Il reste à déterminer l'intensité  $|U_m|^2$  dans le spot  $m$  en appliquant la condition aux limites sur  $\Sigma_3$ :

$$\bar{u}_m^1 e^{2\pi i y^1 \bar{D}} + \bar{u}_m^2 e^{2\pi i y^2 \bar{D}} = U_m.$$

La substitution des valeurs précédemment obtenues pour  $\bar{u}_m^1$  et  $\bar{u}_m^2$  donne:

$$\begin{aligned} \frac{U_m}{A} (p^1 - p^2) (\bar{p}^1 - \bar{p}^2) &= (p^1 e^{2\pi i y^1 D} - p^2 e^{2\pi i y^2 D}) (e^{2\pi i y^1 \bar{D}} - e^{2\pi i y^2 \bar{D}}) \\ &+ (\bar{p}^1 e^{2\pi i y^2 \bar{D}} - \bar{p}^2 e^{2\pi i y^1 \bar{D}}) (e^{2\pi i y^1 D} - e^{2\pi i y^2 D}). \end{aligned} \quad (36)$$

A moins que les vecteurs d'onde ne soient très proches de la position de BRAGG (dans un domaine angulaire inférieur à  $0,05^\circ$ ), l'un des  $p^i$  (ou des  $\bar{p}^i$ ) est d'après (11) négligeable par rapport à l'autre, et l'on a, par exemple,  $p^2 \ll p^1$  et  $\bar{p}^2 \ll \bar{p}^1$ . Les termes de (36) contenant  $p^2$  et  $\bar{p}^2$  seront alors négligeables. En outre, les facteurs de structure ne différant que d'une phase  $2\pi\varphi$ , on a

\*) Nous distinguerons par une barre les quantités relatives au second cristal partiel.

$\bar{F}_m = F_m e^{2\pi i \varphi}$  et aussi, d'après (6) et (23)  $\bar{\varepsilon}_m = \varepsilon_m e^{2\pi i \varphi}$ . Les surfaces de dispersion relatives aux deux cristaux sont donc identiques: il s'ensuit que  $y^i = \bar{y}^i$ , et  $\bar{p}^i = p^i e^{-2\pi i \varphi}$ . (36) devient alors:

$$\frac{U_m}{A} = \frac{2i}{p^1} \left\{ \exp \pi i [2\varphi + 2y^1 D + (y^1 + y^2) \bar{D}] \sin \pi (y^1 - y^2) \bar{D} \right. \\ \left. + \exp \pi i [2y^2 \bar{D} + (y^1 + y^2) D] \sin \pi (y^1 - y^2) D \right\}.$$

On obtient pour l'intensité observée, après quelques transformations trigonométriques:

$$\left| \frac{U_m}{A} \right|^2 = \frac{|\varepsilon_m|^2}{4\mu^2 \Theta^2 + |\varepsilon_m|^2} [\sin^2 \pi \Delta y (D + \bar{D}) - 4 \sin \pi \varphi \sin \pi \Delta y D \cdot \\ \cdot \sin \pi \Delta y \bar{D} \sin \pi [\Delta y (D + \bar{D}) + \varphi]], \quad (\Delta y = y^1 - y^2). \quad (37)$$

D'après (18) ou (19), le premier terme de cette formule représente la diffraction due à un cristal de même épaisseur totale  $D + \bar{D}$ , mais sans transition. Le second terme décrit les perturbations subies par les franges sous l'effet de la transition; il s'annule évidemment pour  $\varphi = 0$ , c'est-à-dire quand les facteurs de structure  $F_m$  et  $\bar{F}_m$  sont aussi égaux en phase. Tout se passe alors dans le spot  $m$  comme s'il n'y avait pas de transition. Il existe ainsi un moyen très simple de justifier l'hypothèse de ces transitions. On observe les divers spots de la figure de diffraction et vérifie que les franges de ceux pour lesquels  $F_m = \bar{F}_m$  ( $\varphi = 0$ ) conservent l'aspect qu'elles ont en l'absence de transition. D'après les tables III et IV, qui donnent les valeurs de  $F_m$  et  $\bar{F}_m$  pour une transition ABAB, ACAC, respectivement ABCABC, BCABCA, les indices de tels spots satisfont à:

$$m_1 - m_2 = 3n. \quad (38)$$

Le résultat est d'ailleurs plus général: quels que soient le nombre et l'espèce des transitions, ces spots conservent l'aspect qu'ils ont en l'absence de transition\*); ils permettront donc de déterminer, sous les conditions que nous avons vues, l'épaisseur totale du cristal. La figure 16 illustre clairement ce phénomène, que nous avons retrouvé avec tous les cristaux à transition observés.

On pourrait ensuite déterminer les épaisseurs des cristaux partiels grâce aux spots où  $m_1 - m_2 = 3n$ , en donnant aux paramètres  $D$  et  $\bar{D}$  dans (37) les valeurs convenables pour rendre identiques les intensités calculée et observée.

\*) En toute rigueur quand deux spots seulement sont intenses. Dans le cas d'un troisième spot  $p$ , les facteurs de structure  $F_p$  et  $F_{p-m}$  mis en jeu peuvent varier en phase d'un cristal partiel à l'autre et modifier éventuellement la surface de dispersion efficace relative au spot  $m$ . La figure 16 montre que cet effet n'est pas décelable à première vue.

L'effet des transitions est de « disperser » l'intensité maximum de part et d'autre de la position de BRAGG, comme on peut le constater sur la figure 16. Il s'ensuit que les lignes de KIKUCHI associées à ces réflexions perdent leur netteté, contrairement aux lignes dont les indices satisfont à (38); c'est ainsi que sur la figure 15 les lignes de KIKUCHI  $\pm (\bar{1}20)$  et  $\pm (302)$  restent nettes.

Lorsque les nombres des spots intenses et des transitions augmentent, la figure de diffraction (figure 17) atteint une complication beaucoup plus grande qu'en l'absence de transitions (figure 15). Dans le cas d'une poudre cristalline et d'un grand nombre de transitions, le phénomène peut être étudié statistiquement et l'on trouve que les anneaux de diffraction dont les indices satisfont à (38) ne sont pas élargis (WILSON 1942). WARREN (1941) a étudié le cas extrême de graphite semi-amorphe où les couches d'atomes restent parallèles et équidistantes, mais sont déplacées de façon arbitraire les unes par rapport aux autres.

Il nous reste à citer les transitions mixtes, ABAB, CAB CAB par exemple, entre les deux variétés de graphite. Tous les spots communs aux deux cristaux partiels ont le même facteur de structure; leurs franges permettent donc de déterminer l'épaisseur totale. Pour les autres spots, la théorie de ce paragraphe n'est pas applicable puisque l'un des deux facteurs de structure  $F_m$  et  $F'_m$  est nul. En première approximation, ces spots sont identiques à ceux que fournirait indépendamment chaque cristal partiel. L'absence d'un accord quantitatif entre la somme des épaisseurs partielles ainsi déterminées et l'épaisseur totale, nécessiterait une extension de la théorie au cas de trois ondes intenses traversant le cristal à transition.

D'après les observations faites sur un grand nombre de cristaux uniques, nous estimons à 5% la proportion de graphite ABC relativement à la variété ordinaire AB. Cette valeur ne dépend pas de l'origine du cristal et est en accord avec celle qu'a trouvée BACON (1950) d'après des diagrammes de poudre. Les transitions sont relativement plus fréquentes dans la variété ABC, mais il est de toute façon peu fréquent de rencontrer un cristal d'épaisseur supérieure à 2000 Å qui ne présente une transition. Nous n'avons observé qu'une seule fois un empilement ABC sans transition (figure 15). Nous avons pu vérifier sur ce cristal que les spots associés à un facteur de structure nul étaient absents — ou très faibles\*) — et justifier avec certitude l'existence de la variété ABC du graphite.

---

\*) A cause de la présence d'autres spots intenses.



### Conclusions.

Nous avons montré dans ce travail que la théorie dynamique rend correctement compte des diagrammes de diffraction dus au passage des électrons à travers le graphite. Nous avons utilisé la technique expérimentale de KOSSEL et MÖLLENSTEDT, qui permet d'observer de la façon la plus favorable les variations d'intensité prévues par la théorie.

Les résultats suivants ont été obtenus :

1<sup>o</sup> Dans le cas où la figure de diffraction ne présente que deux spots intenses, nous avons vérifié que la formule (20) permet une détermination satisfaisante de l'épaisseur du cristal et de certains facteurs de structure.

2<sup>o</sup> L'emploi de la formule en question reste malheureusement très restreint, car la présence d'autres spots intenses est souvent inévitable.

3<sup>o</sup> Dans les cas de trois ou quatre spots intenses sur la figure de diffraction, nous avons introduit la notion de surface de dispersion efficace qui facilite l'interprétation des phénomènes observés (décalages des franges d'interférences, leur comportement particulier à l'intérieur des bandes de KIKUCHI de bas indices).

4<sup>o</sup> Nous avons rencontré diverses particularités dans la manière dont s'empilent les couches du graphite; en particulier, nous avons mis en évidence sur des cristaux uniques l'existence de la variété rhomboédrique de ce cristal.

Le présent travail a été effectué à l'Institut de Physique de l'Université de Genève sous la direction du professeur J. WEIGLE; je tiens à le remercier pour l'intérêt constant qu'il a porté à mes recherches, dont il m'avait proposé le sujet.

Ma gratitude va également au professeur R.-C. EXTERMANN pour ses précieux conseils.

Je remercie enfin Messieurs ANDERSEN, de la maison Caran d'Ache, LUKESH, de la General Electric, et BACON, de Harwell, qui ont obligeamment mis à ma disposition des échantillons de graphite.



## Appendice I.

## Le passage à la théorie cinématique\*).

On sait que cette théorie adopte le procédé de calcul suivant: on détermine d'abord la diffraction due à un seul atome, en considérant la déviation des électrons incidents dans le champ de potentiel créé par les charges de cet atome. Puis on additionne les amplitudes des ondes diffractées par tous les atomes du cristal, compte tenu de leurs phases, pour obtenir l'effet total. Ce procédé relativement simple n'est évidemment justifié que si l'on peut négliger la rediffraction par les atomes suivants des électrons déjà diffractés une première fois, l'intensité diffractée restant par conséquent toujours petite par rapport à l'intensité incidente. Dans le cas d'une lame cristalline à faces parallèles, d'épaisseur  $D = Na_3$ , on sait que l'intensité  $I$  d'un spot diffracté  $m$  vaut

$$I = C \frac{\sin^2 \pi N (\mathbf{a}_3, \mathbf{b})}{\sin^2 \pi (\mathbf{a}_3, \mathbf{b})},$$

où le vecteur  $\mathbf{b}$  (tracé dans l'espace réciproque) est égal à la différence entre les vecteurs des ondes diffractée et incidente. Pour la position de BRAGG ( $\mathbf{b} = \mathbf{b}_m$ ),  $I = CN^2$ ; de part et d'autre de cette position,  $I$  décroît en s'annulant périodiquement lorsque

$$(\mathbf{a}_3, \mathbf{b}) = n/N \quad (n \text{ entier}).$$

En transcrivant cette relation dans la notation de la théorie dynamique, nous trouvons pour les distances angulaires  $\mu_n$  séparant les minimums d'intensité de la position de BRAGG:

$$\mu_n = \frac{\gamma}{b_m D} \cdot n.$$

Si nous comparons ces valeurs avec celles que donne la formule (20) du paragraphe 3, nous constatons que les deux théories donnent des résultats identiques pour  $|\varepsilon_m|kD/\gamma n \ll 1$ . Il est donc inexact de restreindre l'application de la théorie cinématique à des cristaux extrêmement minces seulement. On peut toujours, quelle que soit l'épaisseur (finie) du cristal, trouver un ordre  $n'$  à partir duquel cette théorie est applicable, l'angle  $\mu_{n'}$  correspondant restant d'ailleurs invariable, puis que les minimums se resserrent quand  $D$  augmente;  $\mu_{n'}$  ne dépend que de  $|\varepsilon_m|k$ , c'est-à-dire de la distance minimum séparant les deux nappes de la surface de dispersion. Pour  $\mu > \mu_{n'}$ , les résultats dynamiques confirment la théorie cinématique; l'hypothèse de base de cette dernière doit donc se trouver vérifiée. Les formules (19) le prouvent sans autre, puisque  $|U_0/A|^2 \rightarrow 1$ , et  $|U_m/A|^2 \rightarrow 0$ , pour tout angle  $\mu > \mu_{n'}$ .

En résumé, ce n'est pas l'épaisseur du cristal qui est déterminante pour savoir si la théorie cinématique est applicable, mais bien la distance séparant la région du spot étudié de la position de BRAGG (et des droites perturbatrices dans le cas de trois spots intenses ou davantage). Comme l'angle critique  $\mu_{n'}$  augmente avec  $\varepsilon_m$ , les «effets dynamiques» s'observeront surtout dans les spots d'indices peu élevés.

\*) Cf. FUES (1948).

**Appendice II.**

**Justification dans un cas particulier des propriétés de la surface de dispersion efficace.**

Considérons la surface de dispersion de la figure 8b et une orientation des vecteurs d'onde telle que leurs origines soient, par exemple, alignées sur une normale au cristal rencontrant la surface de dispersion à mi-chemin des points  $L'$  et  $L''$ . En vertu de (8), les équations (24) valables pour chaque champ d'ondes  $i$ , peuvent être mises sous la forme:

$$\begin{aligned} 2x_0^i u_0^i + \varepsilon_{-m} k u_m^i + \varepsilon_{-p} k u_p^i &= 0, \\ \varepsilon_m k u_0^i + 2x_m^i u_m^i + \varepsilon_{-s} k u_p^i &= 0, \quad (i = 1, 2, 3) \\ \varepsilon_p k u_0^i + \varepsilon_s k u_m^i + 2x_p^i u_p^i &= 0. \end{aligned} \tag{24'}$$

Désignant par  $\bar{\delta}$  la moyenne des axes des pseudo-hyperboles situées près de  $L'$  et de  $L''$  ( $\bar{\delta} \sim |\varepsilon|k$  en vertu de (9)), l'on voit que les  $2x_j^i$  ( $j = 0, m, p$ ) sont beaucoup plus grands que  $\bar{\delta}$  sauf  $2x_m^1, 2x_p^2$  et  $2x_0^3$  qui sont beaucoup plus petits. On trouve les ordres de grandeur relatifs des amplitudes du premier champ d'ondes, par exemple, en mettant (24') sous la forme:

$$\begin{aligned} Nu_0^1 + u_m^1 + u_p^1 &\cong 0, \\ u_0^1 + \frac{1}{N}u_m^1 + u_p^1 &\cong 0, \\ u_0^1 + u_m^1 + Nu_p^1 &\cong 0, \end{aligned} \quad (N: \text{nombre relativement grand dépendant de la surface de dispersion et de l'orientation choisie des vecteurs d'onde.})$$

d'où l'on déduit que

$$u_0^1 : u_m^1 : u_p^1 = 1 : N : 1.$$

On trouverait de même:

$$\begin{aligned} u_0^2 : u_m^2 : u_p^2 &= 1 : 1 : N, \\ u_0^3 : u_m^3 : u_p^3 &= N : 1 : 1. \end{aligned}$$

Considérons maintenant les deux dernières équations des conditions aux limites (27); eu égard aux rapports que nous venons d'écrire elles peuvent se mettre sous la forme:

$$\begin{aligned} u_m^1 + u_m^2 + u_m^3 &= 0, \\ \frac{1}{N}u_m^1 + Nu_m^2 + u_m^3 &\cong 0, \end{aligned}$$

d'où:

$$u_m^1 : u_m^2 : u_m^3 = N : 1 : N.$$

Ainsi, pour l'orientation choisie des vecteurs d'onde,  $u_m^2$  est négligeable par rapport à  $u_m^1$  et  $u_m^3$ , et il s'ensuit la règle énoncée à la page 602. Le même raisonnement s'appliquera à d'autres orientations: pour les origines des vecteurs d'onde situées entre  $L$  et  $L''$ ,  $u_m^1$  serait négligeable, etc. Il y a évidemment ambiguïté aux discontinuités de la surface de dispersion efficace (en  $L'$  et  $L''$ ), où certains des  $x_j^i$  sont de l'ordre de  $\bar{\delta}$ .

**Bibliographie.**

- ACKERMANN, J., 1948, *Ann. d. Phys.* **2**, 19 et 41.  
ARTMANN, K., 1948, *Z. Phys.* **125**, 225.  
ARTMANN, K., 1949, *Z. Phys.* **126**, 533.  
BACON, G. E., 1950, *Acta Cryst.* **3**, 320.  
BETHE, H., 1928, *Ann. d. Phys.* **87**, 55.  
EMSLIE, A. G., 1933, *Phys. Rev.* **45**, 43.  
EWALD, P. P., 1933, *Handbuch d. Phys.* XXIII/2, chap. 4.  
FUES, E., 1938, *Z. Phys.* **109**, 14 et 236.  
FUES, E., 1943, *Ann. d. Phys.* **43**, 538.  
FUES, E., 1948, *Optik* **3**, 14.  
FUES, E., 1949, *Z. Phys.* **125**, 531.  
KOSSEL, W. et MÖLLENSTEDT, G., 1939, *Ann. d. Phys.* **36**, 113.  
KOSSEL, W. et MÖLLENSTEDT, G., 1942, *Ann. d. Phys.* **42**, 287.  
LAUE, M. v., 1944, *Materiewellen und ihre Interferenzen* (Leipzig), chap. 5.  
LIPSON, H. et STOKES, A. R., 1942, *Proc. Roy. Soc.* **181**, 101.  
MAC GILLAVRY, C.H., 1940, *Physica* **7**, 329.  
NELSON, J. B. et RILEY, D. P., 1945, *Proc. Phys. Soc.* **57**, 477.  
SHINOHARA, K., 1932 a, *Sci. Pap. Inst. Phys. Chem. Res.* **18**, 223.  
SHINOHARA, K., 1932 b, *Sci. Pap. Inst. Phys. Chem. Res.* **18**, 315.  
WARREN, B. E., 1941, *Phys. Rev.* **59**, 693.  
WILMAN, H., 1948, *Proc. Phys. Soc.* **60**, 341 et **61**, 416.  
WILSON, A. J. C., 1942, *Proc. Roy. Soc.* **180**, 277.
-