



Théorie statistique de la diffraction des rayons X et des neutrons

Mostafa Al Haddad

► To cite this version:

Mostafa Al Haddad. Théorie statistique de la diffraction des rayons X et des neutrons. Cristallographie. Université Joseph Fourier Grenoble, 1989. Français. NNT: . tel-03361390

HAL Id: tel-03361390

<https://theses.hal.science/tel-03361390>

Submitted on 1 Oct 2021

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

T0137
1989 / DU

1989.3
(043) N

THESE

présentée par

Mostafa AL Haddad

POUR OBTENIR LE TITRE DE

DOCTEUR de l'UNIVERSITE JOSEPH FOURIER de GRENOBLE

(Arrêté ministériel du 5 Juillet 1984)

(spécialité : Physique)

Sujet

THEORIE STATISTIQUE DE LA DIFFRACTION DES RAYONS X ET DES NEUTRONS

soutenue le 27 juin 1989 devant la Commission d'Examen

Composition du Jury :

Président : M. MAREZIO

Examineurs : P. BECKER
C. MALGRANGE
R. MAYNARD
M. SCHLENKER
J. SCHNEIDER



Ce travail a été effectué au laboratoire de Cristallographie du C.N.R.S. Grenoble.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à son Directeur, Monsieur M. Marezio, pour m'avoir accueilli dans son laboratoire, permis de réaliser ce travail dans les meilleures conditions possibles et de m'avoir fait l'honneur de présider ce jury.

Que Madame C. Malgrange, Professeur à l'Université Paris 7 et Monsieur M. Schlenker, Professeur à l'I.N.P.G., trouvent ici l'expression de mes plus vifs remerciements pour l'intérêt qu'ils ont bien voulu porter à ce travail en assurant la tâche de rapporteurs.

Pour leur présence dans ce jury, j'adresse également mes remerciements sincères à Messieurs R. Maynard, Professeur à l'Université J. Fourier et J. Schneider, Professeur à l'Université de Berlin.

Monsieur, le Professeur P. Becker, a dirigé ce travail avec beaucoup d'attention et d'efficacité. Je le remercie pour l'aide et le soutien précieux qu'il m'a apporté et pour m'avoir formé à la recherche. Qu'il trouve ici l'expression de ma respectueuse reconnaissance.

Je suis très reconnaissant envers Monsieur I. Haddad, Directeur du C.E.A. Syrie, d'être à l'origine de mon séjour et d'en avoir assuré l'aspect financier.

Je tiens à remercier Messieurs F. De Bergerin, Directeur de Recherche et M. Anne, Chargé de Recherche, pour leur disponibilité et leurs nombreux conseils.

En la personne de Jean Claude Charenton, j'ai trouvé un ami et un camarade de travail appréciable. Je l'en remercie.

Mes remerciements vont également au service informatique (Messieurs J.C. Guitel, R. Siegfried, P. Wolfers) et au service électronique. Je tiens à souligner la patience de Monsieur C. Mouget.

Il m'est très agréable de pouvoir également remercier ici tous les membres du laboratoire de Cristallographie, qui par leur présence amicale ont contribué à rendre ce travail agréable et tout particulièrement Marie-France Gorius, Roger Argoud et Maurice Perroux.

Ma fiancée, Frédérique Alessi, a effectué l'essentiel de la frappe de ce manuscrit. Je l'en remercie chaleureusement pour la qualité de son travail et son dévouement...

Mademoiselle M.C. Tiso y a contribué également, je l'en remercie. Que Monsieur B. Pichand soit remercié pour la reproduction rapide et efficace de ce mémoire.



SOMMAIRE

	Pages
INTRODUCTION	1
 CHAPITRE I :	
RAPPELS sur la THEORIE de la DIFFRACTION et de l'EXTINCTION	
INTRODUCTION	5
A – LA THEORIE CINEMATIQUE	6
A – 1. Intensité diffractée	6
A – 2. Puissance intégrée enregistrée dans le détecteur	9
B – QUE MESURE-T-ON en REALITE dans une EXPERIENCE de DIFFRACTION ?	11
B – 1. Fluctuation thermique et facteur de Debye-Waller	11
B – 2. Validité de l'approximation de Born	13
C – EQUATIONS de TRANSFERT de DARWIN	16
D – THEORIE DYNAMIQUE de la DIFFRACTION	19
D – 1. Théorie dynamique de la diffraction neutronique	19
1) Approximation à une onde	22
2) Approximation à deux ondes	22
3) Approximation à trois ondes	25
D – 2. Equations de Takagi-Taupin	27
E – APPROXIMATIONS	31
E – 1. Approximations à deux ondes	31
E – 2. Approximations à trois ondes	31
F – CONDITIONS aux LIMITES : RELATION entre le CAS de SOURCES PONCTUELLES et celui d'un FAISCEAU INCIDENT HOMOGENE	31
F – 1. Cas de couplage d'intensités	33
F – 2. Cas de couplage d'amplitudes	36
<i>Exposé invité au Congrès " Physique en Herbes " : Théorie générale de la diffraction</i>	39

CHAPITRE II :

UN MODELE STATISTIQUE pour la THEORIE de la DIFFRACTION par un CRISTAL

INTRODUCTION	53
A - LES PARAMETRES E et τ	54
B - UN MODELE SIMPLE pour la DISTRIBUTION de PAIRE	56
C - ESTIMATION de $g(t)$	58
Article : " Concerning order parameters in the statistical dynamical theory of diffraction "	61

CHAPITRE III :

CRISTAL PARFAIT : APPLICATION à une SPHERE

INTRODUCTION	67
A - LE FACTEUR D'EXTINCTION y_p : GEOMETRIE DE LAUE	69
B - LE FACTEUR D'EXTINCTION y_p pour une SPHERE : CAS GENERAL	77
Article : " Extinction in finite perfect crystals : case of a sphere "	83

CHAPITRE IV :

CRISTAL " IDEALEMENT " IMPARFAIT : EXTINCTION SECONDAIRE

A - EXTINCTION SECONDAIRE : MODELE STATISTIQUE	113
A - 1. Approximation de Kato	116
A - 2. Théorie correcte	117

B – LE FACTEUR D'EXTINCTION dans le MODELE STATISTIQUE en GEOMETRIE de Laue	122
C – EXTINCTION SECONDAIRE : MODELE du CRISTAL MOSAIQUE	125
C – 1. La fonction de diffraction σ^-	125
C – 2. Le facteur d'extinction dans le modèle mosaïque en géométrie de Laue	129
C – 3. Comparaison entre le modèle statistique de l'extinction secondaire et le modèle mosaïque	130
Article : " Diffraction by a randomly distorted crystal. I : Case of a short range order "	131

C H A P I T R E V :

C R I S T A L R E E L : T H E O R I E G E N E R A L E

INTRODUCTION	153
A – L'ONDE COHERENTE	155
A – 1. Les équations de propagation de $\langle D_0 \rangle$ et $\langle D_h \rangle$	155
A – 2. L'intensité cohérente	156
B – APPROXIMATION de KATO pour les INTENSITES INCOHERENTES	158
B – 1. Equations de propagation	158
B – 2. Les intensités incohérentes	162
C – INTENSITE DIFFRACTEE INTEGREE pour une PLAQUETTE INFINIE (APPROXIMATION de KATO)	165
C – 1. La partie cohérente P^c	165
C – 2. La partie incohérente P^i	166
C – 3. Application au silicium à haut degré de perfection	169
Article : " On the statistical dynamical theory of diffraction : application to silicon "	173
D – CRITIQUE de L'APPROXIMATION de KATO	183
E – LES INTENSITES INCOHERENTES : APPROXIMATION AMELIOREE	184
E – 1. Calcul de $(B - A)$ et $(B' - A')$	186
1) Calcul de X	188
2) Calcul de Y	191

E -2. Equations de propagation modifiées des intensités incohérentes	193
1) <i>Simplifications physiques</i>	196
2) <i>Conditions aux limites</i>	197
E - 3. Les intensités incohérentes : solutions des équations de propagation (V-81)	198
F – INTENSITE DIFFRACTEE pour une PLAQUETTE INFINIE (APPROXIMATION AMELIOREE) : GEOMETRIE SYMMETRIQUE de LAUE	201
F - 1. Calcul de P_i	201
F - 2. Application au silicium à haut degré de perfection	205
Article : " Diffraction by a randomly distorted crystal. II : General theory "	211

CHAPITRE VI

CRISTAL REEL : APPLICATION

INTRODUCTION	253
A – LES TROIS COMPOSANTES de L'INTENSITE DIFFRACTEE	254
A - 1. L'intensité purement cohérente I_h^c	254
A - 2. L'intensité purement incohérente $I_h^{i,0}$	255
A - 3. L'intensité mixte $I_h^{i,m}$	255
B – LE FACTEUR d'EXTINCTION TOTAL en GEOMETRIE de LAUE SYMETRIQUE	258
B - 1. Calcul de y_c	258
B - 2. Calcul de y_i	264
B - 3. Calcul de y_m	268
CONCLUSION	279

INTRODUCTION

La diffraction des rayons X et des neutrons permet de connaître, non seulement, la structure atomique des cristaux, mais aussi la densité électronique ou la densité d'aimantation microscopique, ou encore la distribution des amplitudes des mouvements atomiques. Ces grandeurs sont essentielles à la compréhension de la cohésion dans la matière condensée : signalons, par exemple, que la densité électronique caractérise totalement l'état fondamental du système [Hohenberg et Kohn, 1964]. La mesure de telles grandeurs fondamentales est rendue possible par l'amélioration des techniques et des sources de diffraction mais en même temps exige une maîtrise de plus en plus pointue de la physique sous-jacente à la section efficace de diffraction.

La théorie cinématique, basée sur l'hypothèse d'une réflexion unique de l'onde incidente, n'est en réalité applicable qu'à des cristaux parfaits très minces. Pour des cristaux parfaits épais ou des cristaux dans lesquels on a introduit de manière contrôlée des déformations ou des imperfections, il est possible de traiter le problème grâce à la théorie dynamique, laquelle tient compte des possibilités de multiple diffraction. Malheureusement, cette théorie dynamique devient extrêmement complexe lorsqu'on étudie un cristal naturel, pour lequel les imperfections sont inconnues et distribuées de manière assez aléatoire dans l'échantillon.

Un modèle phénoménologique a été proposé il y a longtemps par Darwin, et repris beaucoup plus récemment (Zachariasen, Becker-Coppens...) : le modèle du cristal mosaïque qui considère un échange d'énergie entre les faisceaux incident et réfléchi, du fait de réflexions dans des blocs différents. Ce modèle, construit à partir de la théorie cinématique, s'est avéré efficace mais repose sur des hypothèses physiquement très contestables.

Parallèlement, la théorie dynamique pour un cristal déformé peut être exprimée sous la forme des équations de propagation de Takagi-Taupin. La résolution explicite de ces équations supposerait une connaissance précise du champ de déformation, et ne pourrait dans ce cas être menée que par voie numérique ou de simulation.

Un pas décisif a été franchi par Kato qui, partant des équations de Takagi-Taupin, a introduit des hypothèses statistiques permettant d'aborder le problème de la section efficace de diffraction pour un cristal d'un degré de perfection quelconque. Mais l'application de la théorie proposée par Kato a révélé des défaillances. Ceci amène à rediscuter les paramètres essentiels sur lesquels elle est basée. L'objet de cette thèse est de proposer une théorie plus satisfaisante de la diffraction dynamique par un cristal statistiquement déformé, et plus précisément de proposer des expressions pour la section efficace de diffraction.

Nous présentons dans le premier chapitre, les théories de la diffraction déjà existantes dans la littérature et leurs domaines de validité : la théorie cinématique et dynamique, et les équations de Takagi-Taupin et de Darwin. Ci-joint, en annexe, un exposé sur la théorie générale de la diffraction présenté au congrès "*PHYSIQUE EN HERBES*", M. Al Haddad et P. Becker, 1986.

Dans le deuxième chapitre et dans l'article en annexe ("*CONCERNING ORDER PARAMETERS IN THE STATISTICAL DYNAMICAL THEORY OF DIFFRACTION*", P. Becker and M. Al Haddad, 1989), nous introduisons les hypothèses et les modèles sur lesquels nous nous basons pour la théorie dynamique statistique de la diffraction, théorie que nous développerons dans les chapitres suivants.

Dans le troisième chapitre, nous étudions l'extinction primaire pour un cristal parfait de forme isotrope dans différentes géométries (Géométrie de Laue, Laue-Bragg et Bragg-Laue). (Ce chapitre est suivi d'un article intitulé : "*EXTINCTION IN FINITE PERFECT CRYSTALS : CASE OF A SPHERE*", M. Al Haddad and P. Becker, 1989).

Le quatrième chapitre concerne l'application au cas où l'un des deux paramètres d'ordre est nul : celui à grande distance, c'est le cristal "idéalement imparfait", le plus proche du modèle mosaïque. Ce chapitre est suivi de l'article : "*DIFFRACTION BY A RANDOMLY DISTORTED CRYSTAL. I : THE CASE OF A SHORT RANGE ORDER*", P. Becker and M. Al Haddad, 1989.

Dans le cinquième chapitre, nous abordons la théorie dynamique statistique pour un cristal quelconque et ceci en deux étapes :

◇ Tout d'abord, nous discutons de l'approximation de Kato et de son application sur une plaquette infinie. Nous apportons sur cette dernière des corrections, plus précisément abordées dans l'article intitulé : "*ON THE STATISTICAL DYNAMICAL THEORY OF DIFFRACTION : APPLICATION TO SILICON*", M. Al Haddad and P. Becker, 1988.

◇ Puis, nous faisons ressortir l'insuffisance de cette approximation en utilisant un raisonnement auto-cohérent, qui nous permet de parvenir à des équations de propagation plus correctes et générales.

C'est ainsi que nous pouvons donner une solution analytique pour un cristal réel ayant la forme d'une plaquette infinie et appliquer cette même solution à des données concrètes sur le silicium. Ceci est complété par l'article suivant : "*DIFFRACTION BY A RANDOMLY DISTORTED CRYSTAL. II : GENERAL THEORY*", P. Becker and M. Al Haddad, 1989.

Enfin, dans le dernier chapitre (chapitre 6), nous appliquons le résultat de la théorie améliorée, présentée dans le chapitre précédent, à un cristal réel symétrique de forme isotrope (article en cours de préparation).

CHAPITRE I

RAPPELS SUR LA THEORIE DE LA DIFFRACTION ET DE L'EXTINCTION

INTRODUCTION

La mesure par diffraction des distributions électroniques dans les cristaux exige une analyse attentive de la section efficace mesurée. Les résultats expérimentaux doivent être interprétés par des modèles fiables concernant le facteur de structure.

Il y a deux théories principales de la diffraction des Rayons-X ou des neutrons (James, 1963 ; Authier, 1970 ; Kato, 1974 ; P. Becker, 1980) :

◊ La théorie cinématique suppose que l'approximation de Born est valable pour tout l'échantillon étudié, c'est à dire qu'on suppose que le faisceau incident n'est pas perturbé dans l'échantillon et qu'il n'y a pas d'interaction entre les faisceaux diffractés et la matière. En fait la nature périodique du cristal impose des restrictions sur l'onde qui peut le traverser.

Comme nous le verrons plus loin, la théorie cinématique est seulement valable pour un cristal très mince.

◊ La théorie dynamique basée sur la théorie de Bloch, est l'étude des ondes qui se propagent dans un milieu périodique (cristal parfait), généralisable pour un cristal déformé (paragraphes C – 2., E et F), et de leur interaction.

A – LA THÉORIE CINÉMATIQUE

A – 1. Intensité diffractée

La diffusion élastique est décrite par une amplitude (relative à l'électron libre) :

$$A(\vec{s}) = \int \rho(\vec{r}) \exp(i \vec{s} \cdot \vec{r}) d\vec{r} \quad (\text{I-1})$$

dans laquelle :

$$\vec{s} = \vec{K}_f - \vec{K}_0 \quad (\text{I-2})$$

où $\vec{K}_0$ et $\vec{K}_f$ sont respectivement les vecteurs d'onde de l'onde incidente et diffractée,

$$\text{Fig. I-1. : } K_f = K_0 = \frac{2\pi}{\lambda} \text{ et donc } s = \frac{4\pi \sin \theta}{\lambda} \quad (\text{I-3})$$

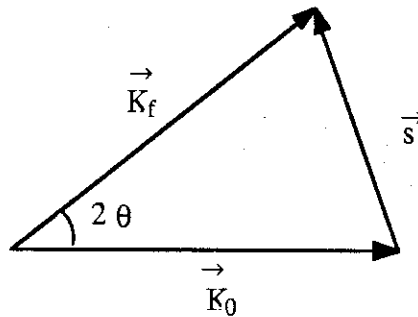


Fig. I-1 : Les directions d'onde incidente et diffractée dans le cas d'une diffraction élastique

$\rho(\vec{r})$ est la densité électronique. Dans le cas d'un cristal $\rho(\vec{r})$ est périodique :

$$\rho(\vec{r} + \vec{T}) = \rho(\vec{r})$$

Où $\vec{T}$ est un vecteur quelconque de translation du réseau direct.

On définit le facteur de structure $F(\vec{s})$ comme la transformée de Fourier de $\rho(\vec{r})$ limitée à une maille :

$$F(\vec{s}) = \int_{V_c} \rho(\vec{r}) \exp(i \vec{s} \cdot \vec{r}) d\vec{r} \quad (I-4)$$

Il en résulte que :

$$A(\vec{s}) = F(\vec{s}) \cdot \Delta(\vec{s}) \quad (I-5)$$

où :

$$\Delta(\vec{s}) = \sum_l \exp(i \vec{s} \cdot \vec{l}) = \frac{1}{V_c} \int_v \exp(i \vec{s} \cdot \vec{r}) d\vec{r} \quad (I-6)$$

$\Delta(\vec{s})$ est la fonction d'interférence, qui dépend seulement du réseau de translation et de la forme limitant le cristal.

V_c : le volume d'une maille.

v : le volume du cristal.

Si on suppose un cristal infini (théorie géométrique), la fonction $\Delta(\vec{s})$ est non nulle seulement si $\vec{s}$ est un noeud du réseau réciproque : $\vec{s} = \vec{H}$ (condition de diffraction de Bragg).

Donc, la périodicité se traduit par une condition de diffraction qui confère au réseau réciproque une signification physique très importante. En réalité, le cristal est fini et on n'a plus simplement des pics de Dirac. Il y a des maxima principaux situés sur des noeuds du réseau réciproque avec des largeurs finies, séparées par des maxima secondaires dont les hauteurs sont négligeables par rapport à celles des principaux (J.P. Eberhart, 1976). Par conséquent, la diffusion a lieu au voisinage immédiat d'un noeud du réseau réciproque :

$$\vec{s} = \vec{H} + \frac{2\pi \vec{\epsilon}}{\lambda} \quad (I-7)$$

où $\vec{\epsilon}$ est un vecteur très petit et sans dimension.

Pour une réflexion donnée associée à un vecteur du réseau réciproque $\vec{H}$, $F(\vec{H} + \frac{2\pi}{\lambda} \vec{\epsilon})$ ne varie pratiquement pas avec $\vec{\epsilon}$ c'est à dire $F(\vec{s}) \sim F(\vec{H}) = F_{\vec{H}}$ et l'amplitude de la diffraction s'écrit :

$$A(\vec{\epsilon}) = F(\vec{H}) \cdot \Delta(\vec{\epsilon}) \quad (\text{I-8})$$

L'intensité de l'onde diffusée, pour un faisceau incident d'intensité unité est donnée par :

$$I_k(\vec{\epsilon}) = \left| \frac{a F_{\vec{H}} C}{R_0} \right|^2 \cdot |\Delta(\vec{\epsilon})|^2 \quad (\text{I-9})$$

R_0 est la distance entre le cristal et le détecteur (point d'observation), Fig. I-2.

Dans le cas des rayons X :

$$a = \frac{e^2}{4 \pi \epsilon_0 m c^2} = 0.28 \cdot 10^{-12} \text{ cm (rayon classique de l'électron).}$$

$c = 1$ ou $\cos 2\theta$ pour des rayonnements électromagnétiques polarisés respectivement orthogonalement ou parallèlement au plan de diffraction ($\vec{K}_0, \vec{K}_f$).

Dans une approximation où les atomes sont considérés comme des diffuseurs indépendants (à symétrie sphérique) :

$$F_{\vec{H}} = \sum_{i=1}^n f_i(\vec{H}) \exp(i \vec{H} \cdot \vec{R}_i) \quad (\text{I-10})$$

n : le nombre d'atomes dans la maille.

$$f_i(\vec{H}) = \int_V \rho_i(r) \exp(i \vec{H} \cdot \vec{r}) d\vec{r} \quad (\text{I-11})$$

f_i : le facteur de forme du $i^{\text{ème}}$ atome (A_i) dans la maille.

$\vec{R}_i$: le vecteur de position de A_i par rapport à l'origine de la maille.

Pour la diffraction neutronique :

$$a = 10^{-12} \text{ cm}, C = 1$$

$$F_{\vec{H}} = \sum_i b_i \exp(i \cdot \vec{H} \cdot \vec{R}_i) \quad (\text{I-12})$$

b_i est la longueur de diffusion pour A_i , dépend de l'isotope et du spin du noyau.

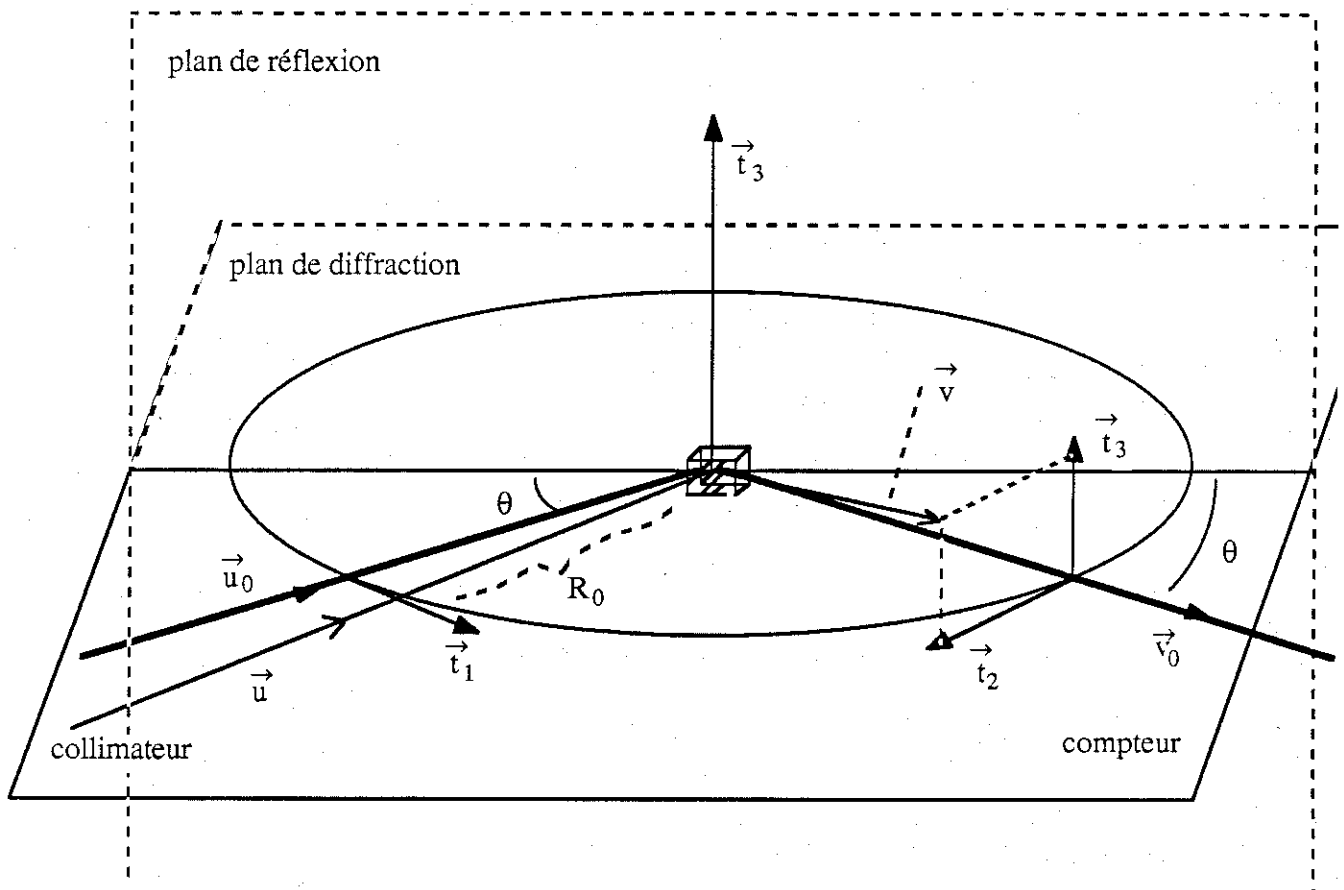


Fig. I-2 : Définition des directions du faisceau incident $\vec{u}$ et du faisceau diffracté $\vec{v}$ par rapport à leurs valeurs exactes $\vec{u}_0$ et $\vec{v}_0$ (la condition de Bragg est remplie). R_0 est la distance entre le cristal et le compteur.

A - 2. Puissance intégrée enregistrée dans le détecteur

Nous supposons que les observations sont faites dans le plan horizontal (le plan de diffraction $(\vec{K}_0, \vec{K}_f)$). Le cristal peut être tourné autour d'un axe vertical. Appelons $\vec{u}$ et $\vec{v}$ les vecteurs unitaires le long des directions incidentes et diffractées. $\vec{u}_0$ et $\vec{v}_0$ sont les vecteurs lorsque la condition de Bragg est exactement réalisée. Nous définissons la géométrie dans la

Fig. I-2. $\vec{t}_1$ et $\vec{t}_2$ sont des vecteurs unitaires dans le plan de diffraction respectivement perpendiculaires à $\vec{u}_0$ et $\vec{v}_0$. $\vec{t}_3$ est le long de l'axe vertical. Nous pouvons écrire :

$$\vec{\varepsilon} = \varepsilon_1 \vec{t}_1 + \varepsilon_2 \vec{t}_2 + \varepsilon_3 \vec{t}_3 \quad (\text{I-13})$$

Le détecteur recueille le signal dans un angle solide Ω (intégration sur ε_2 et ε_3). Donc, pour une direction incidente fixée, la puissance $p_k(\varepsilon_1)$ recueillie dans le détecteur s'écrit :

$$p_k(\varepsilon_1) = R_0^2 \int \int I_k(\vec{\varepsilon}) d\varepsilon_2 d\varepsilon_3 = v \sigma(\varepsilon_1) \quad (\text{I-14})$$

(l'indice k symbolise la théorie cinématique).

$\sigma(\varepsilon_1)$ est la section efficace unitaire de diffraction qui peut être calculée pour n'importe quelle forme du cristal (P. Becker et P. Coppens, 1974). Pour enregistrer toute la puissance diffractée P_K , on fait tourner le cristal autour de l'axe $\vec{t}_3$:

$$P_k = \int p_k(\varepsilon_1) d\varepsilon_1 = Q v \quad (\text{I-15})$$

Q est la puissance diffractée intégrée par unité de volume :

$$\begin{aligned} Q &= \int \sigma(\varepsilon_1) d\varepsilon_1 \\ &= \left| \frac{a F_H C}{V_c} \right|^2 \frac{\lambda^3}{\sin 2\theta} \end{aligned} \quad (\text{I-16})$$

B – QUE MESURE-T-ON EN RÉALITÉ DANS UNE EXPÉRIENCE DE DIFFRACTION ?

B – 1. Fluctuation thermique et facteur de Debye–Waller.

La théorie cinématique suppose des atomes figés dans un réseau cristallin parfait.

En réalité, du fait des fluctuations thermiques, les atomes oscillent autour de positions d'équilibre. La densité électronique instantanée $\rho(\vec{r}, t)$ n'est pas rigoureusement périodique, mais seule sa valeur moyenne sur un temps long devant les périodes des vibrations atomiques est périodique.

Plaçons nous dans l'approximation à atomes indépendants. Si $\vec{R}_n$ est la position d'équilibre de l'atome n et $\vec{u}_n(t)$ la fluctuation instantanée

$$\rho(\vec{r}, t) \sim \sum_n \rho_n [\vec{r} - \vec{R}_n - \vec{u}_n(t)] \quad (\text{I-17})$$

où ρ_n est la densité de l'atome n .

Le terme principal de l'amplitude de diffraction correspond à :

$$F(\vec{H}) = \int_{V_c} \langle \rho(\vec{r}, t) \rangle \exp(i\vec{H} \cdot \vec{r}) d\vec{v} \quad (\text{I-18})$$

où $\langle \rangle$ signifie la moyenne thermique.

soit :

$$F(\vec{H}) = \sum_n f_n(\vec{H}) \langle \exp(i\vec{H} \cdot \vec{u}_n) \rangle \exp(i\vec{H} \cdot \vec{R}_n) \quad (\text{I-19})$$

Il apparaît le terme :

$$W_n(\vec{H}) = \langle \exp(i\vec{H} \cdot \vec{u}_n) \rangle \quad (\text{I-20})$$

qui est connu sous le nom de facteur de Debye–Waller.

Dans l'hypothèse de fluctuations harmoniques :

$$\begin{aligned}
 W_n(\vec{H}) &= \exp \left(-\frac{1}{2} \langle (\vec{H} \cdot \vec{u}_n)^2 \rangle \right) \\
 &= \exp \left(-\sum_{i,j} \beta_{ij} h_i h_j \right)
 \end{aligned}
 \tag{I-21}$$

Si de plus on suppose les mouvements isotopes :

$$W_n = \exp \left(-\frac{1}{6} H^2 \langle u_n^2 \rangle \right) \tag{I-22}$$

D'une manière générale, le facteur de Debye-Waller affaiblit le pouvoir diffusé d'un système, et ceci d'autant plus que l'angle de diffusion augmente.

Bien entendu, l'énergie ainsi perdue se retrouve sous forme d'une intensité correspondant à des processus dynamiques donc inélastiques.

Remarque :

Supposons que tous les atomes ont environ le même facteur de Debye-Waller W . l'amplitude cohérente de diffraction est atténuée d'un facteur W , donc l'intensité de diffraction est proportionnelle à :

$$W^2 F_0^2(\vec{H}) \tag{I-23}$$

Si F_0 correspond à un cristal où les atomes seraient immobiles, les fluctuations thermiques induiraient une certaine incohérence optique, se traduisant par une intensité proportionnelle à :

$$(1 - W^2) F_0^2 \tag{I-24}$$

(nous retrouverons cette forme de séparation plus loin).

B – 2. Validité de l'approximation de Born

La diffraction des rayons X et des neutrons est un processus d'interaction faible donc, l'approximation de Born paraît valable. Faisons malgré tout le raisonnement suivant : l'épaisseur du cristal est t , on a n plans d'une famille, distants de d . Fig. I-4.

L'onde réfléchi par le plan 1, peut se réfléchir à nouveau sur le plan 0 (1 fois). L'onde réfléchi par le plan K peut se réfléchir à nouveau sur les plans 0, 1, ..., $K-1$ (K fois).

Donc le faisceau une fois réfléchi peut se réfléchir à nouveau de $1 + 2 + 3 + \dots + K + n \sim n^2/2$ façons différentes. La probabilité de réflexion par un plan étant $(Q.d)$, la probabilité de deuxième réflexion est donnée par : $n^2/2 \cdot Q.d = Q t^2/2d$. Donc, si $t \sim \sqrt{d/Q} = \Lambda$, le processus de diffraction multiple est de forte probabilité et perturbe considérablement l'approximation de Born [Becker, 1980] (Computing India).

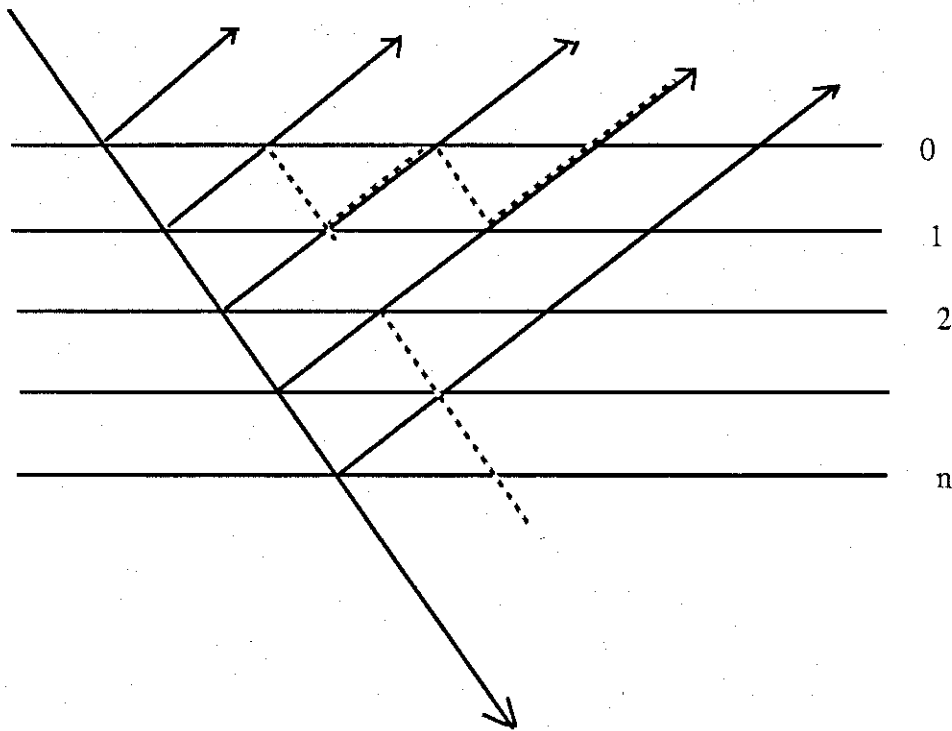


Fig. I-3 : Possibilité de réflexions successives.

Λ sera appelé longueur d'extinction :

$$\Lambda \sim \frac{v_c}{a | F | C \lambda} \quad (I-25)$$

Cela nous amène à conclure que la théorie cinématique n'est valable que pour un cristal parfait d'épaisseur t inférieure à la longueur d'extinction Λ .

L'ordre de grandeur de Λ est de quelques μm à quelques dizaines de μm , pour les cristaux et les rayonnements utilisés couramment et pour les réflexions les plus fortes. Les mesures nécessitent des cristaux dont les dimensions ne sont pas inférieures à $100\ \mu\text{m}$ pour des rayons X avec les sources classiques et à $1\ \text{mm}$ pour des neutrons mais avec les anneaux de rayonnement synchrotron, on peut envisager d'utiliser des cristaux de l'ordre de $10\ \mu\text{m}$. Pour un cristal parfait de dimension $t \gg \Lambda$, un calcul correct montre que $P \sim |F|$ et non plus égal à $|F|^2$ comme le prévoyait la théorie cinématique (Zachariasen, 1945 ; Becker et Coppens, 1974), (pour un cristal $t > \Lambda$ l'interférence n'a lieu que sur une distance Λ ce qui donne un pouvoir diffractant de l'ordre de $Q \Lambda \propto F$).

L'effet que nous venons de décrire (réduction du pouvoir réflecteur) s'appelle extinction primaire. Mais de plus, il se peut que des domaines adjacents soient faiblement désorientés les uns par rapport aux autres, Fig. I-4. Il en résulte un déphasage partiel entre les ondes qui sont diffractées dans des domaines différents. Cet effet est représenté par le modèle mosaïque (paragraphe E - 2.). Dans ce cas, il faut tenir compte de la distribution de désorientation relative des domaines parfaits. Ce qui implique un nouvel effet : l'extinction secondaire. En général, on peut écrire la puissance intégrée diffractée P en fonction de P_k :

$$P = P_k \cdot y ; \quad y \leq 1.$$

On appelle y le facteur d'extinction.

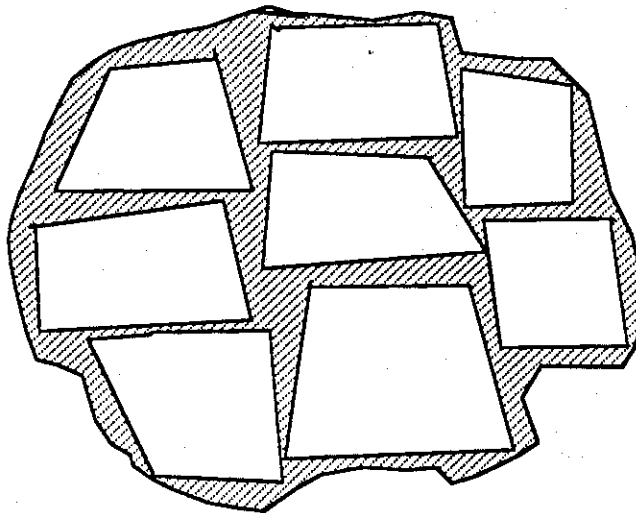


Fig. I-4 : Modèle mosaïque

Le modèle mosaïque, qui décrit de manière discontinue les effets d'interférences multiples et la diffraction dans deux domaines différents, ne peut être justifié du point de vue thermodynamique. En réalité, les défauts, impuretés, contraintes présents dans un cristal donné induisent un champ de déformation $\vec{u}(\vec{r})$ avec des zones à fort gradient et des zones à faible gradient. Cette description sera utilisée dans l'essentiel de ce qui constitue le présent travail.

C - EQUATIONS DE TRANSFERT DE DARWIN

Compte tenu de ce qui vient d'être dit comment expliquer que la théorie cinématique ait permis de résoudre autant de structures cristallines qu'il y en a dans la littérature ?

Tout d'abord on voit sur (I-25) que Λ augmente si le facteur de structure diminue. En conséquence, pour des grands angles de diffraction, Λ devient grand. En d'autres termes, les phénomènes d'extinction sont surtout importants pour les réflexions fortes aux bas angles de diffraction.

Parallèlement, l'extinction est un effet décroissant quand la longueur d'onde augmente.

D'autre part, si les cristaux utilisés ont une mosaïcité suffisante, le faisceau diffracté issu d'un "bloc" n'a qu'une très faible chance d'attaquer un autre bloc sous un angle proche de l'angle de Bragg pour donner lieu à la diffraction multiple et l'extinction secondaire.

Pour l'étude des réflexions de bas angle de Bragg (par exemple pour l'étude des électrons de valence) ou dans le cas de gros cristaux (par exemple aux neutrons), l'extinction est presque toujours sévère et constitue l'un des écueils majeurs à l'interprétation des expériences. Il est impératif de trouver une description améliorée du processus de diffraction.

Darwin (1914) pour dépasser l'approximation de Born, a pris en compte l'échange d'énergie entre faisceau incident et diffracté. Supposons $\vec{s}_0$ et $\vec{s}_h$ respectivement les directions des faisceaux incident et diffracté. I_0 et I_h sont les intensités incidente et diffractée, variables à l'intérieur du cristal, Fig. I-5.

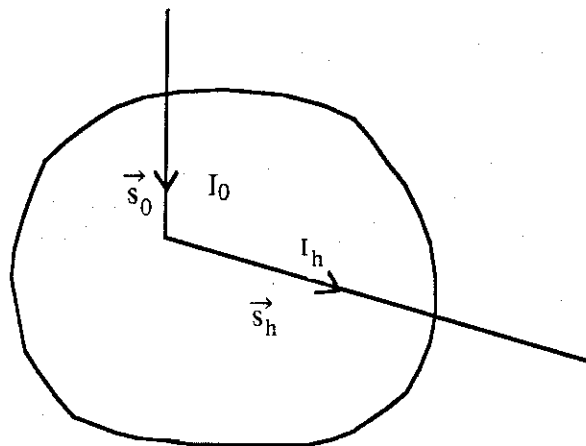


Fig. I-5 : Situation de diffraction

Nous avons déjà défini la probabilité σ de diffraction par unité d'intensité et de longueur du cristal. On suppose que σ ne varie pas dans le cristal et qu'elle est la même pour les

mécanismes $I_0 \rightarrow I_h$ et $I_h \rightarrow I_0$. Nous allons retrouver les équations décrivant la propagation de I_0 et I_h par une méthode phénoménologique :

Entre deux points $m(s_0, s_h)$ et $m'(s_0 + \Delta s_0, s_h)$ sur le même chemin optique dans la direction $\vec{s}_0$, l'intensité incidente I_0 peut être perturbée par deux façons :

- ◇ Une partie de cette intensité $\sigma I_0 \Delta s_0$ est transférée dans la direction du faisceau diffracté.
- ◇ Une fraction de l'intensité diffractée $\sigma I_h \Delta s_0$ vient du faisceau diffracté et renforce le faisceau incident.

D'après cette analyse, la variation de l'intensité incidente ΔI_0 entre les deux points m et m' peut être donnée par :

$$\Delta I_0 = -\sigma I_0 \Delta s_0 + \sigma I_h \Delta s_0$$

De façon analogue, on évalue la variation de l'intensité diffractée ΔI_h entre deux points très proches m et m'' sur la même route optique dans la même direction $\vec{s}_h$:

$$\Delta I_h = -\sigma I_h \Delta s_h + \sigma I_0 \Delta s_h$$

En faisant tendre m' et m'' vers m , on obtient deux équations différentielles partielles couplant les intensités :

$$\begin{aligned} \frac{\partial I_0}{\partial s_0} &= -\sigma (I_0 - I_h) \\ \frac{\partial I_h}{\partial s_h} &= -\sigma (I_h - I_0) \end{aligned} \quad (I-26)$$

Dans le cas d'un cristal absorbant, une partie de l'intensité incidente (diffractée) sera absorbée. Si μ_0 est le coefficient linéaire d'absorption, les équations (I-26) deviennent :

$$\begin{aligned} \frac{\partial I_0}{\partial s_0} &= -(\sigma + \mu_0) I_0 + \sigma I_h \\ \frac{\partial I_h}{\partial s_h} &= -(\sigma + \mu_0) I_h + \sigma I_0 \end{aligned} \quad (I-27)$$

σ est supposée constante à l'intérieur du cristal, dépendant seulement de la géométrie moyenne des blocs constituant le cristal mosaïque.

La solution de ces équations dépend des conditions aux limites imposées par le cristal lui-même.

Il y a plusieurs modèles suivant l'approximation pour σ , nous en traitons certains dans le paragraphe (IV - C), (Darwin, 1922 ; Hamilton, 1957-1963 ; Zachariasen, 1967 ; Werner, 1974 ; Becker et Coppens, 1974).

D – THÉORIE DYNAMIQUE DE LA DIFFRACTION

Lorsque les processus de diffraction multiple ne sont pas négligeables, il faut en principe reconsidérer le phénomène de propagation des ondes dans le cristal, en tenant compte de l'interaction entre les faisceaux incident et diffracté : c'est la base de la théorie dynamique.

Nous présentons quelques éléments de cette théorie dynamique qui prend en compte la diffraction successive et l'échange d'énergie entre les ondes incidentes et diffractées (James, 1963 ; Batterman and Cole, 1964 ; Authier, 1970 ; Kato, 1974).

Nous commençons par le cas d'un cristal parfait, pour faire apparaître quelques approximations qui seront utilisées par la suite. Dans le cas des rayons X, la théorie dynamique est déduite des équations de Maxwell et pour les neutrons et les électrons, elle est basée sur l'équation de Schrödinger (Schlenker, 1975 ; Batterman, 1964).

Nous discutons le cas des neutrons, les autres cas donnent lieu à une formulation similaire.

D – 1. Théorie dynamique de la diffraction neutronique

Nous considérons ici seulement l'interaction nucléaire. Un neutron à l'intérieur du cristal est soumis à un pseudopotentiel périodique qui peut être représenté par : (Marshall et Lovesey, 1971 ; Squires, 1978).

$$V(\vec{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} \sum_i b_i \delta(\vec{r} - \vec{R}_i) \quad (\text{I-28})$$

où $\hbar = h/2\pi$, h est la constante de Planck.

b_i : la longueur de diffusion de l'atome i est de l'ordre de 10^{-12} cm et pour des neutrons thermiques (notre cas) d'énergie E , (V/E) est de l'ordre de 10^{-5} .

Nous considérons la théorie quantique de la diffusion de neutrons par le potentiel $V(\vec{r})$. Donc, la propagation de neutrons est déterminée par l'équation de Schrödinger :

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta + V(\vec{r}) \right] D(\vec{r}) = E D(\vec{r}) \quad (\text{I-29})$$

où $D(\vec{r})$ est l'amplitude de l'onde neutronique.

Nous supposons toujours la diffusion élastique. On cherche des solutions correspondant à : $E = \hbar^2 k^2 / 2m$ (I-30)

où $\vec{k}$ est le vecteur d'onde dans le vide, $k = 2\pi/\lambda$.

La représentation de Fourier de $V(\vec{r})$ est :

$$V(\vec{r}) = \sum_{\vec{H}} V_H \exp(-i \vec{H} \cdot \vec{r}) \quad (\text{I-31})$$

où :

$$V_H = \frac{1}{V_c} \int_{V_c} V(\vec{r}) \exp(i \vec{H} \cdot \vec{r}) d\vec{r} = \frac{2\pi \hbar^2}{m V_c} F_H \quad (\text{I-32})$$

La fonction d'onde $D(\vec{r})$ des neutrons prend la forme d'une fonction de Bloch :

$$D(\vec{r}) = \sum_{\vec{H}} D_H \exp(-i \vec{K}_H \cdot \vec{r}) \quad (\text{I-33})$$

avec :

$$\vec{K}_H = \vec{K}_0 + \vec{H} \quad (\text{I-34})$$

$\vec{K}_0$: vecteur d'onde de l'onde dans la direction incidente et à l'intérieur du cristal.

Nous reportons les équations (I-31) et (I-33) dans l'équation (I-29) ce qui donne :

$$\left(\frac{\hbar^2}{2m} K_H^2 - E \right) D_H = - \sum_G V_{H-G} D_G \quad (\text{I-35})$$

Si nous posons : $\gamma = \frac{\lambda^2}{\pi V_c}$, $K^2 = k^2 (1 - \gamma F_0)$, ce qui définit le vecteur d'onde

K comme $\gamma F_0 \ll 1$:

$$K = k(1 - 1/2 \gamma F_0) \quad (\text{I-36})$$

Alors :

$$(K^2 - K_H^2) D_H - k^2 \gamma \sum_{G \neq H} D_G F_{H-G} = 0 \quad (I-37)$$

Nous pouvons écrire l'équation (I-37) sous une forme matricielle :

$$\begin{bmatrix} K^2 - K_0^2 & -k^2 \gamma F_{-H} & -k^2 \gamma F_{-G} \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ -k^2 \gamma F_H & \dots & K^2 - K_H^2 & \dots & -k^2 \gamma F_{H-G} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ -k^2 \gamma F_G & \dots & -k^2 \gamma F_{G-H} & \dots & K^2 - K_G^2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} D_0 \\ \vdots \\ D_H \\ \vdots \\ D_G \end{bmatrix} = 0 \quad (I-38)$$

S'il n'y a pas de limite pour le nombre des points du réseau réciproque, il y a une infinité de solutions i de l'équation (I-37) ou (I-38), donc une infinité de vecteurs d'onde $\vec{K}_H^i$, amplitudes D_H^i et de fonctions d'onde :

Dans le cristal, d'après la théorie de Bloch :

$$D(\vec{r}) = \sum_H D_H^i \exp(-i \vec{K}_H^i \vec{r}) \quad (I-39)$$

En réalité, une onde qui se propage dans le cristal est soumise aux conditions aux limites du cristal. Nous n'avons pas l'intention de traiter la solution de (I-38) dans ce paragraphe, elle sera discutée comme un cas particulier (cristal parfait) de la solution des équations de Takagi-Taupin.

Avant de retrouver ces équations qui décrivent de manière équivalente la propagation dans le cristal nous voulons discuter trois cas particuliers :

◇ Approximation à une onde ($\vec{K}_0, D_0$)

◇ Approximations à deux ondes ($\vec{K}_0, D_0$) et $\vec{K}_H, D_H$)

◇ Approximations à trois ondes ($\vec{K}_0, D_0$), ($\vec{K}_H, D_H$) et ($\vec{K}_G, D_G$).

1) *Approximation à une onde :*

Si $\vec{K}_0$ est loin d'une condition de Bragg, seule une onde D_0 est excitée de façon importante dans le développement (I-33). D'après (I-37), nous avons $K_0 = K$; il y a seulement réfraction ($K_0 < k$) et l'onde se propage dans le cristal. Les ondes D_H existent mais peuvent être traitées comme de faibles perturbations, Fig. I-7.

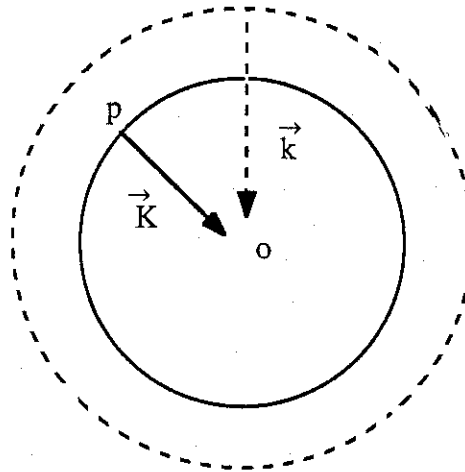


Fig. I-7 : La surface de dispersion dans l'approximation à une onde

— : la sphère d'Ewald dans le cristal, ----- : la sphère d'Ewald dans le vide.

p est le point de dispersion, $\vec{k}$ et $\vec{K}$ sont respectivement le vecteur d'onde dans le vide et dans le cristal.

2) *Approximation à deux ondes :*

La théorie de perturbation devient inapplicable si $K_0 \neq K_H$ pour une valeur donnée de $\vec{H}$, ce qui correspond à la condition de Bragg pour le nœud $\vec{H}$. Dans ce cas, deux ondes prépondérantes existent D_0 et D_H ; les autres amplitudes négligeables.

Cette situation se produit quand l'onde incidente est en condition de réflexion, c'est à dire quand l'extrémité du vecteur d'onde incident $\vec{K}_0$ est sur la limite d'une zone de Brillouin (la condition de Bragg pour une famille de plans), Fig. I-8.

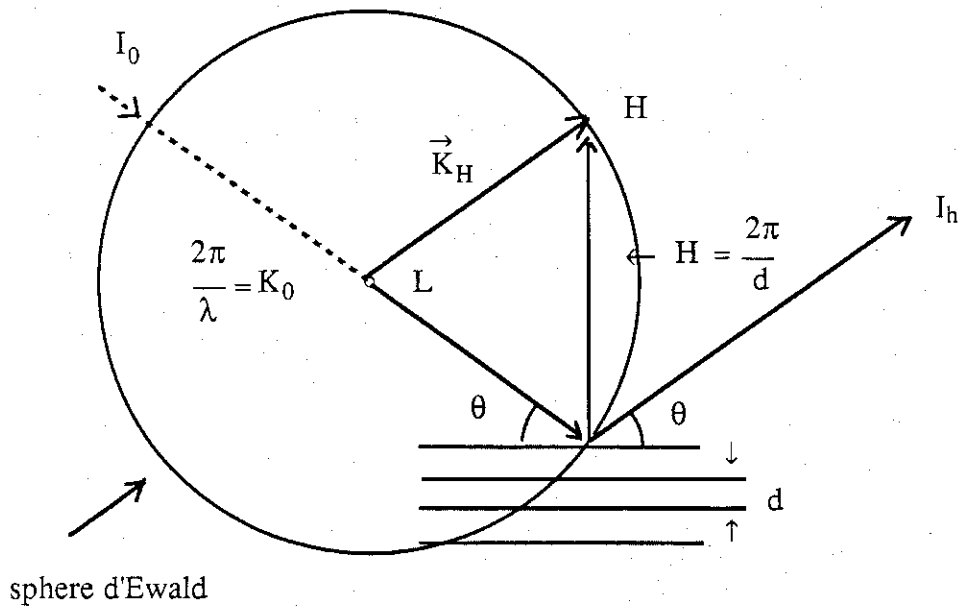


Fig.I-8 : La sphère d'Ewald et la loi de Bragg. L'onde incidente du vecteur d'onde. $\vec{K}_0$ est diffractée par une famille de plans (h, k, l) distants de d. Ce diagramme représente la solution dans l'espace réel et réciproque.

L'équation (I-38) devient dans ce cas :

$$\begin{bmatrix} K^2 - K_0^2 & -k^2 \gamma F_{-H} \\ -k^2 \gamma F_H & K^2 - K_H^2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} D_0 \\ D_H \end{bmatrix} = 0 \quad (\text{I-40})$$

Pour qu'il y ait une solution non triviale de l'équation (I-40) il faut que le déterminant des coefficients soit nul :

$$(K^2 - K_0^2)(K^2 - K_H^2) - k^4 \gamma^2 F_H F_{-H} = 0 \quad (\text{I-41})$$

C'est une équation du 4^{ème} degré, Fig. I-9.

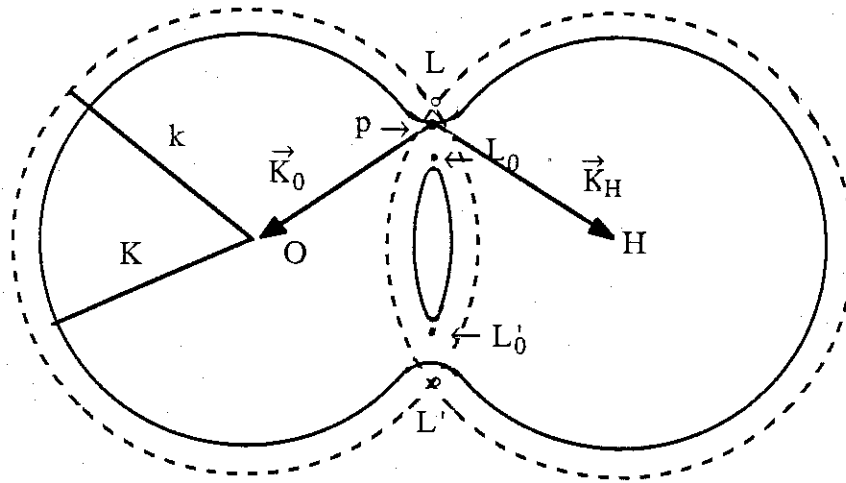


Fig. I-9 : Le point de dispersion p dans le cas de l'approximation à deux ondes O et H qui sont très proches de la sphère d'Ewald centrée en L_0 (condition de Bragg dans le cristal $K_0 = K_H = K$) ou en L (condition de Bragg dans le vide $k_0 = k_H = k$).

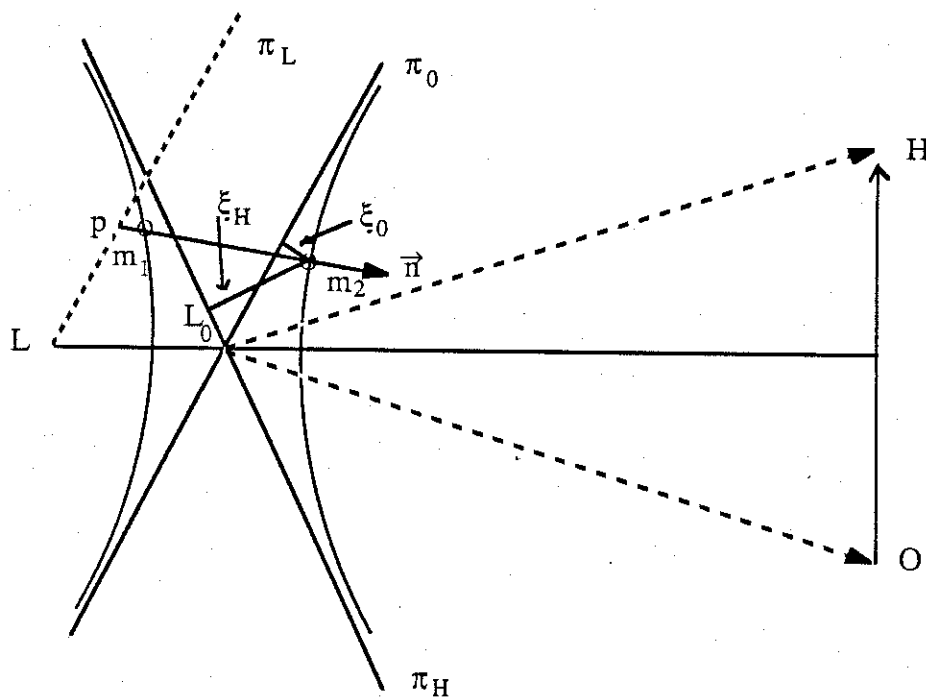


Fig. I-10 : Surface de dispersion : p est le point d'entrée, $\vec{n}$ est la normale de la surface d'entrée. L_p est la déviation à la condition de Bragg ($\Delta\theta = \frac{L_p}{K}$).

Nous voyons sur la Fig. I-9, que le point de dispersion p est très proche de L_0 , (point de Lorentz). Donc on peut remplacer les deux cercles d'Ewald centrés en O et H par leurs tangentes π_0 et π_H , (Fig. I-10) et écrire :

$$\begin{aligned} K^2 - K_0^2 &\sim 2k(K - K_0) = 2k\xi_0 \\ K^2 - K_H^2 &\sim 2k(K - K_H) = 2k\xi_H \end{aligned} \quad (I-42)$$

où ξ_0 et ξ_H sont les distances entre le point p et ses projections respectivement sur les plans π_0 et π_H . L'équation de dispersion (I-41) devient :

$$\xi_0 \xi_H = \frac{1}{4} k^2 \Gamma^2 F_H F_{-H} \quad (I-43)$$

c'est l'équation d'une hyperbole ayant π_0 et π_H comme plans asymptotiques. C'est la surface de dispersion.

Partant d'une onde incidente $\vec{PO}$ dans le vide où LP est l'écart à la condition de Bragg, et utilisant la continuité de la composante tangentielle des vecteurs d'onde quand on change de milieu, on mène la normale $\vec{n}$ à la surface d'entrée du cristal, issue de P . Cette normale coupe la surface de dispersion en deux points m_1 et m_2 qui représentent les points caractéristiques des deux champs d'onde qui peuvent se propager dans le cristal. Pour m_1 les deux vecteurs d'onde sont $(\vec{m_1O}$ et $\vec{m_1H})$ et pour m_2 $(\vec{m_2O}$ et $\vec{m_2H})$.

ξ_0 et ξ_H sont aisément calculables et de ce fait on peut déterminer D_0 et D_H en fonction de l'écart à l'angle de Bragg. C'est le cadre de la théorie dynamique, et nous ne développerons pas ce sujet plus loin, concentrant notre attention sur la description de la variation de D_0 et D_H avec la position dans le cristal. (James, 1963; Balibar F., 1975; Authier, 1970).

3) Approximation à trois ondes :

C'est une situation que l'on ne rencontre dans la pratique de la diffraction des rayons-X et des neutrons que dans le cas de réflexion multiple : il existe $\vec{H}$ tel que $K_0 = K_H = K_G$ simultanément. Par contre souvent on ne peut pas l'éviter dans le cas de la diffraction électronique (le rayon de la sphère d'Ewald est assez grand).

L'approximation à trois ondes est à considérer quand deux nœuds du réseau réciproque sont simultanément sur la sphère d'Ewald, Fig. I-11.

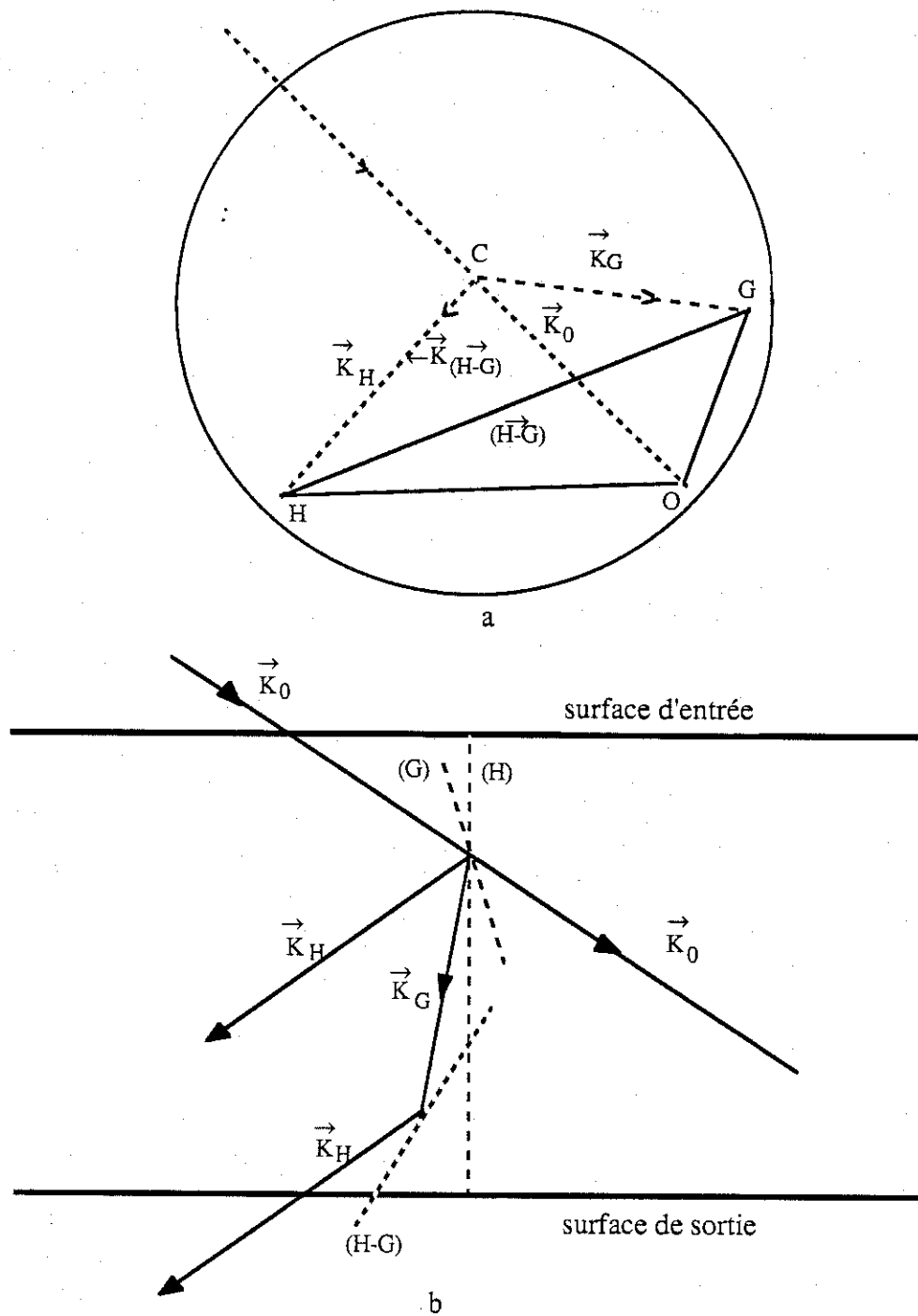


Fig. I-11 : Diffraction de trois faisceaux simultanément : a) sphère d'Ewald,
b) cas de transmission

Donc, il y a trois amplitudes qui peuvent être importantes avec six composantes du facteur de la structure, Fig I-11 :

$$\begin{bmatrix} K^2 - K_0^2 & -k^2 \gamma F_{-H} & -k^2 \gamma F_{-G} \\ -k^2 \gamma F_H & K^2 - K_H^2 & -k^2 \gamma F_{H-G} \\ -k^2 \gamma F_G & -k^2 \gamma F_{G-H} & K^2 - K_G^2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} D_0 \\ D_H \\ D_G \end{bmatrix} = 0 \quad (I-44)$$

Pour avoir une solution non nulle de l'équation (I-44), il faut que le déterminant soit nul. Comme dans le cas à deux ondes, quand la diffraction se produit, le point de dispersion est dans une région très proche du point de Lorentz L_0 , donc, on peut remplacer les sphères d'Ewald (centrées en O, H, G) et de rayons $K \sim K_0 \sim K_H \sim K_G$ par leurs plans tangents.

L'équation de dispersion devient :

$$\begin{bmatrix} \xi_0 & -\frac{1}{2} k \gamma F_{-H} & -\frac{1}{2} k \gamma F_{-G} \\ -\frac{1}{2} k \gamma F_H & \xi_H & -\frac{1}{2} k \gamma F_{H-G} \\ -\frac{1}{2} k \gamma F_G & -\frac{1}{2} k \gamma F_{G-H} & \xi_G \end{bmatrix} = 0 \quad (I-45)$$

où ξ_G est la distance entre le point de dispersion p et le plan tangent de la sphère (G).

A l'aide de cette équation et des conditions de limites, on peut en principe trouver les amplitudes.

D - 2. Equations de Takagi-Taupin

La formulation précédente de la théorie dynamique n'est applicable que pour des cristaux parfaits ou présentant des imperfections bien définies géométriquement et en faible nombre.

Afin de pouvoir approcher la propagation des ondes dans un cristal défini quelconque, Takagi (1968-1969) et Taupin (1964) ont proposé une méthode très performante, se traduisant par des équations de propagation pour les ondes dans le cristal. Nous allons décrire cette méthode.

La périodicité du réseau n'est plus parfaite. Supposons que $\vec{u}(\vec{r})$ soit le déplacement local, Fig. I-12., $V(\vec{r})$ est le potentiel au point $\vec{r}$ dans le cristal.

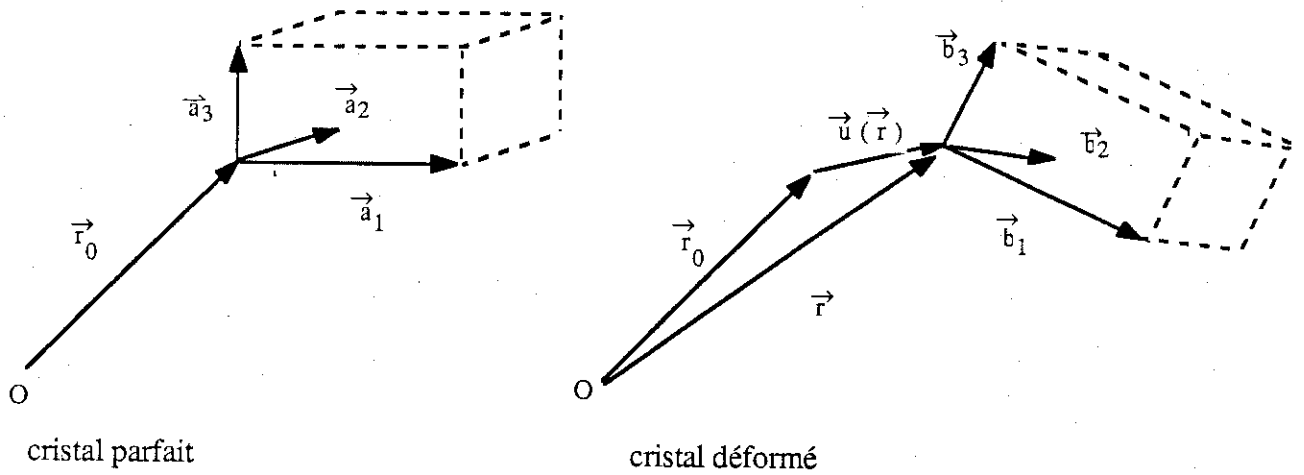


Fig. I-12 : Transformation de vecteurs de base (a_1, a_2, a_3) (cristal parfait) au point $\vec{r}_0$ en (b_1, b_2, b_3) (cristal déformé) au point $\vec{r}$. $\vec{u}(\vec{r})$ est le déplacement local : $\vec{r} = \vec{r}_0 + \vec{u}(\vec{r}_0)$.

On suppose le champ de déplacement tel que :

$$V(\vec{r}) = V_p(\vec{r} - \vec{u}(\vec{r})) \quad (\text{I-46})$$

où : V_p est le potentiel du cristal parfait.

Cette approximation du potentiel est valable si on peut représenter le potentiel comme une somme des contributions des différents sites dans le cristal.

D'après l'équation (I-31), on peut toujours écrire :

$$V(\vec{r}) = \sum_{\vec{H}} V_H(\vec{r}) \exp(-i\vec{H}\vec{r}) \quad (\text{I-47})$$

où :

$$V_H(\vec{r}) = V_H \exp(i\vec{H}\vec{u}(\vec{r})) \quad (\text{I-48})$$

Dans ce cas, nous cherchons une solution de l'équation de Schrödinger (I-29), sous la forme (Takagi, 1969 ; P. Becker, 1980) :

$$D(\vec{r}) = \sum_H D_H(\vec{r}) \exp(-i \vec{K}_H \vec{r}) \quad (I-49)$$

où $D_H(\vec{r})$ est la fonction de Bloch modifiée qui est supposée varier lentement avec $\vec{r}$. Nous supposons qu'il y a n fonctions d'onde qui pourraient se propager dans le cristal $D_0, D_H, D_G, \dots$, c'est à dire, il y a n vecteurs d'onde dont les extrémités sont proches de la sphère d'Ewald, $\vec{K}_0, \vec{K}_H, \vec{K}_G, \dots$

Si on reporte (I-47) et (I-49) dans (I-29), en séparant les composants $\vec{K}_0, \vec{K}_H, \vec{K}_G, \dots$, on obtient n équations différentielles :

$$-\frac{\hbar^2}{2m} (\vec{\nabla} + i \vec{K}_H)^2 D_H + (V_0 - E) D_H + \sum_{G \neq H} V_{H-G} D_G = 0 \quad (I-50)$$

Si $\phi_H(\vec{p})$ et $U_H(\vec{p})$ sont respectivement les T.F. de $D_H(\vec{r})$ et $V_H(\vec{r})$ et $E - V_0 = \frac{\hbar^2 K_0^2}{2m}$, la T.F. de (I-50) est :

$$\frac{\hbar^2}{2m} [(\vec{p} + \vec{K}_H)^2 - K_0^2] \phi_H - \sum_{G \neq H} U_{H-G} * \phi_G = 0 \quad (I-51)$$

où :

$$U_{G-H} * U_G = \int U_{H-G}(q) \phi_G(p-q) d\vec{q} \quad (I-52)$$

On utilise la même approximation que pour obtenir les équations (I-43 et I-45) (remplacer les sphères d'Ewald autour du point L_0 par leurs plans tangents) :

$$(\vec{p} + \vec{K}_H)^2 - K_0^2 \approx 2 \vec{K}_H \vec{p} \quad (I-53)$$

On définit la quantité χ_H :

$$\chi_H = \frac{m}{\hbar k} U_H = \frac{\lambda}{V_c} F_H \quad (I-54)$$

Si on revient à l'équation d'origine de (I-51), en faisant la T.F.⁻¹, on trouve :

$$\frac{1}{i} \vec{K}_H \vec{\nabla} D_H = k \sum_{G \neq H} \chi_{H-G} \varphi_{H-G} D_G \quad (I-55)$$

Comme on peut écrire :

$$\vec{K}_H \vec{\nabla} = K_H \frac{\partial}{\partial s_h} \quad (I-56)$$

on a :

$$\frac{\partial D_H}{\partial s_h} = i \sum_{G \neq H} \chi_{H-G} \varphi_{H-G} D_G \quad (I-57)$$

où :

$$\varphi_H = \exp(i \vec{H} \cdot \vec{u}) \quad (I-58)$$

s_h : est la coordonnée dans la direction $\vec{K}_H$.

Ces équations de Takagi-Taupin sont équivalentes aux autres représentations (Takagi, 1969 ; Taupin, 1964 ; Authier et al., 1968 ; P. Becker, 1980 ; Kato, 1975).

Ces équations couplent n amplitudes de rayonnements neutroniques propagés dans un cristal légèrement déformé (pour que D_H varie lentement avec la position).

Dans le cas de rayons-X, les équations (I-57) sont aussi valables pour chaque composante (polarisation σ ou π) avec :

$$\chi_H = \frac{a C \lambda}{V_c} F_H \quad (I-59)$$

On peut montrer que les équations (I-55) sont parfois aussi valables dans le cas d'un cristal fortement distordu (F. Balibar and C. Malgrange, 1975).

E – APPROXIMATIONS

E – 1. Approximation à deux ondes

Comme nous avons signalé dans le paragraphe précédent que le cas le plus fréquent dans la diffraction est avec une onde incidente D_0 et une autre diffractée D_H , les équations (I-57) se réduisent :

$$\begin{aligned}\frac{\partial D_0}{\partial s_0} &= i \chi_{-H} \varphi_H^* D_H \\ \frac{\partial D_H}{\partial s_h} &= i \chi_H \varphi_H D_0\end{aligned}\tag{I-60}$$

Notre but est de rendre ces équations exploitables pour calculer l'intensité diffractée.

E – 2. Approximation à trois ondes

Nous avons précédemment vu qu'on peut avoir une situation dans laquelle, il y a trois ondes qui peuvent se propager dans le cristal D_0 , D_H et D_G . Les équations (I-57) redeviennent :

$$\begin{aligned}\frac{\partial D_0}{\partial s_0} &= i \chi_{-H} \varphi_H^* D_H + i \chi_{-G} \varphi_G^* D_G \\ \frac{\partial D_H}{\partial s_h} &= i \chi_H \varphi_H D_0 + i \chi_{H-G} D_G \\ \frac{\partial D_G}{\partial s_g} &= i \chi_G \varphi_G D_0 + i \chi_{G-H} \varphi_{G-H} D_H\end{aligned}\tag{I-61}$$

En particulier on obtient les équations de propagation des ondes dans un cristal parfait en faisant $\vec{u}(\vec{r}) = 0$. Ce qui conduit à une description équivalente à celle décrite au paragraphe D.

F – CONDITIONS AUX LIMITES : RELATION ENTRE LE CAS DE SOURCES PONCTUELLES ET CELUI D'UN FAISCEAU INCIDENT HOMOGÈNE

La formulation qui vient d'être décrite en E est physiquement la meilleure approche actuelle à la propagation des rayons X et neutrons dans un cristal réel. Comme nous le verrons plus tard, la solution concrète de ces équations (I-57) est très complexe et nécessite plusieurs approximations.

Les équations phénoménologiques du modèle mosaïque de Darwin, présentés en C, sont plus simples, bien que d'une structure mathématique semblable.

Les équations du modèle mosaïque sont-elles compatibles avec les équations de Takagi ? Nous verrons qu'elle en constituent une forme limite.

En tout état de cause, ce qui intéresse l'expérimentateur est de connaître une relation entre la puissance diffractée totale et le facteur de structure, afin de pouvoir analyser ce dernier. Il est donc indispensable d'étudier le lien entre la puissance intégrée et l'amplitude des ondes qui se propagent à l'intérieur du cristal. Ceci fait évidemment intervenir les conditions aux limites imposées par la surface du cristal.

Le problème est schématisé sur la Fig. I-13

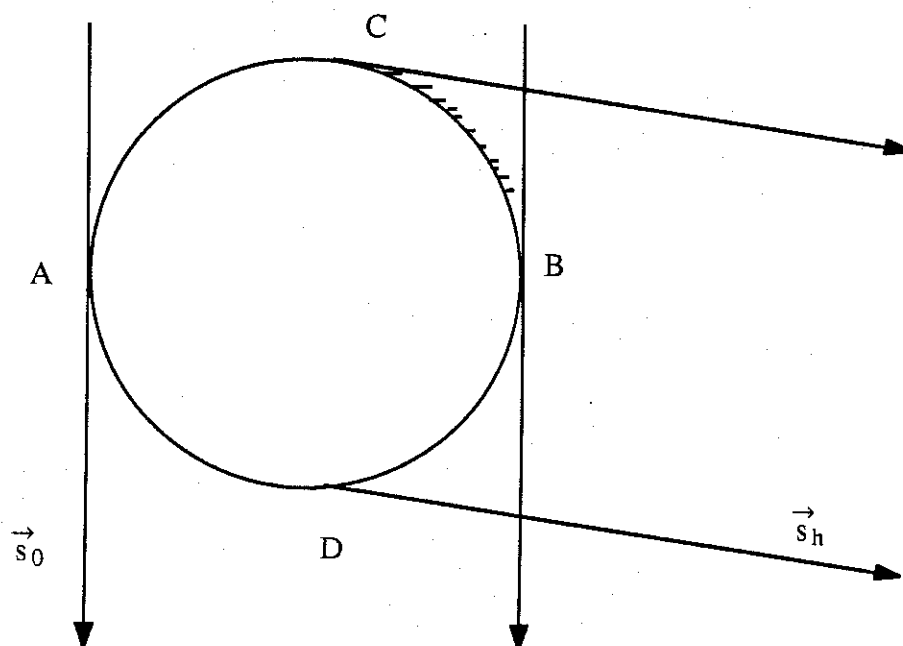


Fig. I-13 : Section du Cristal dans un plan de diffraction

Sur cette figure le faisceau incident entre par la surface $\widehat{ACB}$ (surface d'entrée) et sort par la surface $\widehat{CBD}$ (surface de sortie). Sur la partie de la surface d'entrée $\widehat{AC}$ aucun faisceau n'est réfléchi. Par contre sur l'autre partie $\widehat{CB}$ les faisceaux incident et réfléchi sont en présence, donc les conditions aux limites sont complexes et mal définies. Ce cas est appelé la géométrie de Laue-Bragg. Lorsque les deux surfaces d'entrée et de sortie sont disjointes, les conditions aux limites sont bien définies partout, c'est la géométrie de Laue. Quand les deux surfaces sont superposées, c'est la géométrie de Bragg.

Nous allons discuter ici du cas d'un couplage d'intensités (modèle mosaïque) ou d'amplitudes (équations de Takagi).

F-1. Cas de couplage d'intensités

Pour une onde incidente (faisceau homogène), soit $\widehat{ACB}$ la surface d'entrée dans le cristal et $\widehat{CBD}$ celle de sortie. Prenons les axes $\vec{x}$ et $\vec{y}$ respectivement perpendiculaires aux directions incidentes $\vec{s}_0$ et diffractées $\vec{s}_h$. $\vec{u}_0$ et $\vec{u}_h$ sont respectivement les vecteurs unitaires sur les directions incidente et diffractée, Fig. I-14. Le faisceau incident peut être décomposé en superposition de points sources indépendants S .

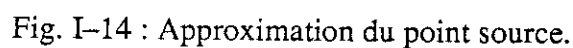
Pour un faisceau d'intensité unité, l'intensité incidente d'une seule source est :

$$I_0(S) = \delta(x - x_S) \quad (\text{I-62})$$

$$\text{d'après la Fig. I-14., on peut écrire } x - x_S = s_h \sin 2\theta \quad (\text{I-63})$$

Donc l'équation (I-62) devient :

$$I_0(S) = \frac{1}{\sin 2\theta} \delta(s_h) \quad (\text{I-64})$$


$$p(S) = \frac{1}{\sin 2\theta} \int_{p,q} I_h(M/S) d\vec{s} \cdot \vec{u}_h \quad (I-65)$$
$$p(S) = \frac{1}{\sin 2\theta} \int_{\alpha\beta} I_h(M/S) dy \quad (I-66)$$

L'intensité diffractée intégrée pour le faisceau homogène tout entier est :

$$p = \iint p(S) dx dz \quad (I-67)$$

où z est la coordonnée perpendiculaire au plan de diffraction.

Si on suppose un faisceau incident divergent et si ϵ est l'angle de divergence, écart à la condition de Bragg, pour chaque valeur de ϵ , on peut calculer $p(\epsilon)$ par I-67 et la puissance totale est

$$P = \int p(\epsilon) d\epsilon \quad (I-68)$$

Il existe une correspondance biunivoque entre un couple de points (S, M) et un point m défini dans le domaine v' de la Fig. I-15. (m correspond à la position pour une simple diffraction de S vers M).

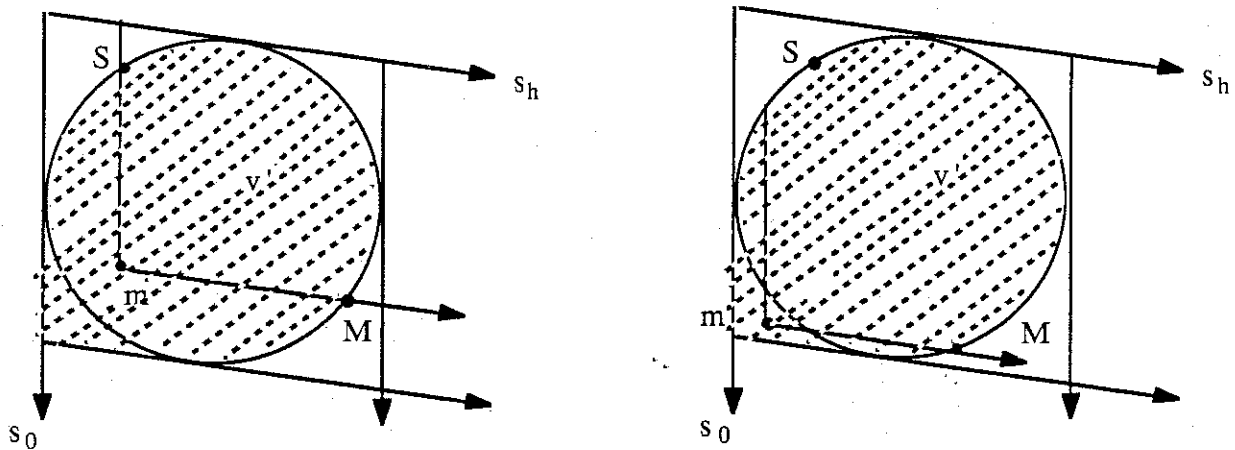


Fig. I-15 : Définition du volume v' et du point m .

A la place de $I_h(S \rightarrow M)$, on note $I_h(m)$. En utilisant pour m les coordonnées orthogonales s_h, y, z et en utilisant le fait que $dx = \sin 2\theta ds_h$, l'intensité intégrée peut être réécrite :

$$P = \int d\epsilon \int_{v'} I_h(m) dv \quad (I-69)$$

F - 2. Cas de couplage d'amplitude

On emploie ici la théorie qui donne la relation entre l'onde plane et sphérique (Kato, 1974-1976).

On suppose qu'une onde incidente sphérique à son origine au point S :

$$D_0 = \delta(s_h) \quad (I-70)$$

Si on considère une onde incidente plane de vecteur d'onde $\vec{K}$ avec une déviation ϵ par rapport à l'angle exact de Bragg, la composante de $\vec{K}$ sur l'axe $\vec{x}$ est $K_x \approx K \cdot \epsilon$. On peut écrire la partie qui dépend de ϵ dans l'onde incidente plane sous la forme :

$$\exp(2 i \pi \epsilon K x) = \int \exp(2 i \pi K \epsilon x_s) \delta(x - x_s) dx_s \quad (I-71)$$

On note $D_h^s(s_0, s_h)$ l'amplitude de l'onde diffractée au point M à la sortie du cristal, correspondant à une onde incidente sphérique (source ponctuelle S) et $D_h^p(s_0, s_h)$ celle correspondant à une onde incidente plane.

A l'aide de la relation (I-64), on peut relier les deux amplitudes par la relation :

$$D_h^p(x, y) = \frac{1}{\sin 2\theta} \int \exp(2 i \pi K \epsilon x) D_h^s(x - x_s, y - y_s) dx_s \quad (I-72)$$

L'intensité intégrée diffractée pour l'onde plane est :

$$P^p = \lambda \int \int \int dy dz dK_x |D_h^p(M)|^2 \quad (I-73)$$

D'après le théorème de Parseval, on peut écrire P^p en fonction de D_h^s :

$$P^p = \frac{\lambda}{\sin^2 2\theta} \int \int \int dx_s dy dz |D_h^s|^2 \quad (I-74)$$

par le même argument que pour passer de (I-59, 60, 61) à (I-62) on peut obtenir la relation finale :

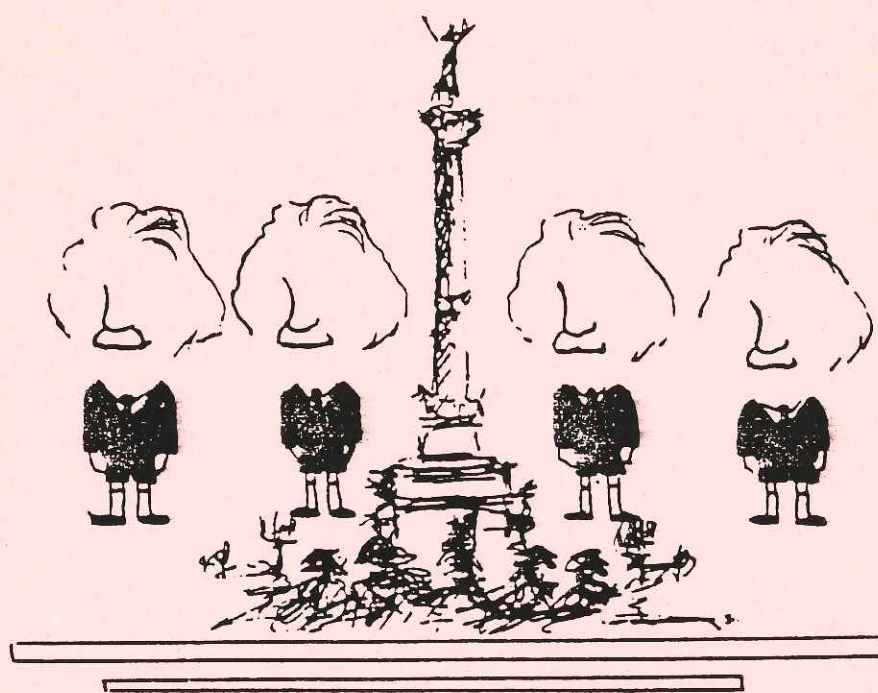
$$P^p = \frac{\lambda}{\sin 2\theta} \int_v I_h^s(m) dv \quad (I-75)$$

où :

$$I_h^s(m) = |D_h^s(m)|^2 \quad (I-76)$$

Dans la suite pour simplifier le problème des conditions aux limites, nous utiliserons cette décomposition en sources ponctuelles.

CONGRES PHYSIQUE EN HERBE



BORDEAUX
17-18-19 juin 1986

LA THEORIE DE LA DIFFRACTION

M. Al-Haddad et P. Becker

Laboratoire de Cristallographie, associé à l'U.S.T.M.G., C.N.R.S.,
166 X, 38042 Grenoble Cedex

Pourquoi parler de la diffraction des rayons X ou des neutrons aujourd'hui ?

D'une part, même si le phénomène est bien connu, l'interprétation des sections efficaces est aussi variée que les composés sur lesquels les mesures sont effectuées. D'autre part, l'avènement des nouvelles sources de rayonnement (en particulier les sources de rayonnement synchrotron) ouvre des perspectives nouvelles et passionnantes.

I. Théorie géométrique de la diffraction

1) La diffusion élastique est décrite par une amplitude :

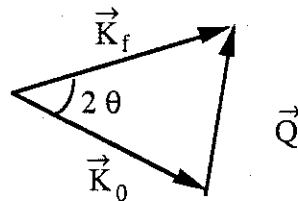
$$A(\vec{Q}) = \int \langle n(\vec{r}) \rangle \exp(i \vec{Q} \cdot \vec{r}) d\vec{r}$$

dans laquelle $\vec{Q} = \vec{K}_f - \vec{K}_0$

$\vec{K}_f$ et $\vec{K}_0$ sont vecteurs d'onde incident et diffracté.

$$|\vec{Q}| = \frac{4\pi \sin 2\theta}{\lambda}$$

et $\langle n(\vec{r}) \rangle$ est la moyenne thermodynamique de la densité des objets diffusants pondérée par leur amplitude propre de diffusion (voir ci-dessous).



La section efficace élastique est :

$$\frac{\partial \sigma}{\partial \Omega} = |A(\vec{Q})|^2$$

Ceci suppose la validité de l'approximation de Born. Dans le cas d'un cristal, $n(\mathbf{r})$ est périodique.

$$\langle n(\vec{r} + \vec{l}) \rangle = \langle n(\vec{r}) \rangle$$

où $\vec{l}$ est un vecteur quelconque de translation du réseau. Si $F(\vec{Q})$ est la transformée de Fourier de $\langle n(\vec{r}) \rangle$ limitée à une maille, le facteur de structure est

$$F(\vec{Q}) = \int \langle n(\vec{r}) \rangle \exp(i \vec{Q} \cdot \vec{r}) d\vec{r}$$

Il en résulte que :

$$A(\vec{Q}) = F(\vec{Q}) \Delta(\vec{r})$$

où

$$\Delta(\vec{Q}) = \sum_{\vec{l}} \exp(i \vec{Q} \cdot \vec{l})$$

est la fonction d'interférence qui dépend seulement du réseau de translation. Nous supposons ici un cristal d'extension infinie, ce qui se traduit par la condition :

$$\Delta(\vec{Q}) = \sum_{\vec{K}} \delta(\vec{Q} - \vec{K})$$

$\vec{K}$ étant un noeud du réseau réciproque.

Donc, la périodicité se traduit par une condition de diffraction qui confère au réseau réciproque une signification physique très importante.

2) Dans le cas des rayons X, on montre que (diffusion Thomson)

$$\langle n(\vec{r}) \rangle = r_0 \vec{\epsilon}_0 \vec{\epsilon}_f \langle \rho(\vec{r}) \rangle$$

$\vec{\epsilon}_0, \vec{\epsilon}_f$ représentent la polarisation des ondes électromagnétiques, r_0 est le rayon classique de l'électron ($0.28 \cdot 10^{-12}$ cm) et $\langle \rho(\vec{r}) \rangle$ est la moyenne thermodynamique de la densité spatiale des électrons.

Cette fonction $\rho(\vec{r})$ est d'importance considérable puisqu'Hohenberg et Kohn ont montré que la densité d'électrons caractérise totalement l'état fondamental d'un système d'électrons.

Ceci justifie les tentatives de mesure de la densité électronique à partir de la diffraction X, afin de caractériser la redistribution des électrons sous l'effet de forces interatomique. Il y a là une intéressante compétition entre recherche expérimentale et théorie quantique qui connaît des développements actuels avec les méthodes "Local Density Functional".

3) Dans le cas des neutrons, l'interaction est de deux types :

a- tout d'abord une interaction nucléaire entre neutron et noyau, se traduisant par une "longueur de diffusion" b_K pour chaque atome.

$$\langle n(\vec{r}) \rangle = \left\langle \sum_K b_K \delta(\vec{r} - \vec{R}_K) \right\rangle$$

b_K dépend de l'isotope et du spin du noyau.

Donc, on peut accéder à la distribution d'équilibre des noyaux dans un cristal, compte-tenu de leurs mouvements et éventuellement de leur désordre, l'information pouvant aller jusqu'à l'ordre magnétique nucléaire

b- dans le cas où les atomes sont porteurs d'un moment magnétique électronique, une interaction dipolaire entre le moment électronique et le spin du neutron conduit à une amplitude de module a peu près comparable à l'interaction nucléaire. $\langle n(\vec{r}) \rangle$ est alors proportionnelle à la projection de la densité microscopique d'aimantation perpendiculairement au vecteur $\vec{Q}$. En particulier, si le magnétisme vient du spin, $\langle n(\vec{r}) \rangle$ est proportionnel à la densité de spin moyenne $\langle s(\vec{r}) \rangle$. Si $\rho_{\uparrow}(\vec{r})$ et $\rho_{\downarrow}(\vec{r})$ sont les densités de spin $\uparrow$ et $\downarrow$ respectivement, rappelons que

$$\rho(\vec{r}) = \rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow}$$

$$s(\vec{r}) = \rho_{\uparrow} - \rho_{\downarrow}$$

En conséquence, la combinaison des mesures de $\rho(\vec{r})$ et de $s(\vec{r})$ peut renseigner de manière unique sur les effets dépendants du spin (corrélation électronique, polarisation de spin). La diffraction magnétique des neutrons est une technique très attirante car il faut bien remarquer que seuls les électrons magnétiques jouent un rôle. Donc, faire des mesures sur des éléments 3d, 4f, 5f... est de la même difficulté. Cette technique s'est avérée cruciale pour faire des estimations des propriétés électroniques des terres rares et des actinides. C'est la technique reine pour une étude microscopique du magnétisme.

La conjonction des deux mesures de ρ et s commence à être appliquée aux composés métallo-organique 3d. Par exemple, ceci permet de comprendre les interactions métal-ligand qui sont fondamentales dans le mécanisme d'absorption d'oxygène par l'hémoglobine.

4) Dans tous les cas, il est clair qu'une mesure donne au plus accès à $|A(\vec{Q})|$ et non pas à la grandeur complexe $A(\vec{Q})$. Donc on ne peut pas mesurer directement $\langle n(\vec{r}) \rangle$. Le problème de la phase des facteurs de structure est le problème le plus célèbre de la cristallographie.

A partir de la remarque que les paramètres essentiels du facteur de structure (positions et amplitude moyenne de vibration) sont en nombre beaucoup plus faible que les noeuds du réseau réciproque que l'on peut mesurer, il est clair qu'il doit exister une dépendance statistique sur l'ensemble des $|F(\vec{K})|$. La recherche de cette dépendance a permis de déterminer des structures de plus en plus complexes et en particulier dans le domaine de la biologie. Ces travaux ont valu aux auteurs le prix Nobel de Chimie en 1985.

5) Les vibrations atomiques jouent un rôle très important en diffraction élastique.

Réécrivons pour un atome j :

$$\vec{R}_j = \vec{R}_j^0 + \vec{u}_j$$

où $\vec{u}_j$ est le déplacement autour de la position d'équilibre $\vec{R}_j^0$, le facteur de structure nucléaire aux neutrons :

$$\begin{aligned} F_N(\vec{K}) &= \sum_{s=1}^n b_j \exp(i \vec{K} \cdot \vec{R}_j) \langle \exp(i \vec{K} \cdot \vec{u}_j) \rangle \\ &= \sum_{s=1}^n b_j \exp(i \vec{K} \cdot \vec{R}_j) T_j(\vec{K}) \end{aligned}$$

où $T_j(\vec{K})$ est le facteur de Debye-Waller. Dans l'approximation harmonique

$$T_j(\vec{K}) = \exp(-1/2 \langle (\vec{K} \cdot \vec{u}_j)^2 \rangle).$$

Les seuls paramètres sont donc les positions atomiques d'équilibre et les tenseurs de vibration.

On peut évidemment étudier des situations où les vibrations sont anharmoniques et tester ainsi des modèles de potentiel vibrationnel. C'est un développement intéressant de la diffraction neutronique, en particulier au voisinage de transitions de phase, dans les systèmes à double puits de potentiel (cristaux à liaison hydrogène...).

6) Qu'en est-il aux rayons X. Seuls les électrons contribuent à la diffraction et donc sur le plan des principes, il n'y a pas de relation simple entre expériences rayons X et neutrons, mais on peut faire la remarque suivante : seuls les électrons de valence contribuent aux forces de cohésion, et c'est parce qu'ils sont moins liés et plus diffus que les électrons de couches internes. En conséquence, ils diffusent dans un domaine très limité dans l'espace réciproque. D'où l'idée, qui a été la pierre angulaire de la cristallographie pendant ce siècle: l'on commet une faible erreur en remplaçant dans le facteur de structure la densité électronique par la somme des densités des atomes constitutif indépendants (modèle à atomes indépendants)

$$\rho(\vec{r}) = \sum_j \rho_j(\vec{r} - \vec{R}_j)$$

Si $f_j = T.F.(\rho_j)$ facteur de forme atomique

$$F_K(\vec{K}) = \sum_j f_j(\vec{K}) \exp(i \vec{K} \cdot \vec{R}_j) T_j(\vec{K})$$

Aux substitutions près de b_j (constante) par $f_j(\vec{K})$, décroissante dans l'espace réciproque et proportionnelle au numéro atomique, une grande similitude apparaît avec $F_N(\vec{K})$: les paramètres deviennent identiques.

Il n'est pas inintéressant de remarquer qu'en réalité, les atomes s'interpénètrent, un système dont la densité électronique sera la simple somme des atomes constitutifs serait quelque peu explosif. Toute la physique des électrons intéressante est donc contenue dans cette petite différence entre $\rho(\vec{r})$ et le modèle à atomes indépendants. Mais il est vrai que pour accéder à cette petite différence, il faut faire des mesures d'une grande qualité et maîtriser parfaitement la physique de l'interaction rayonnement -matériaux considéré.

7) Remarquons enfin que la condition de diffraction est en réalité liée non pas à la périodicité tridimensionnelle d'un cristal mais plus généralement au fait que la Transformée de Fourier de $n(\vec{r})$ présente des discontinuités. Ceci conduit à pouvoir observer des situations de plus en plus complexes dans lesquelles, soit il s'accroche une modulation sur une structure de base, phases modulées, incommensurables ou commensurables, soit il n'existe plus de structure de base et il reste une figure de diffraction. C'est le cas récent et intrigant des quasi-cristaux. L'étude quantitative de la position et de l'amplitude des pics généralisés de diffraction est aujourd'hui une ouverture considérable de la cristallographie sur le domaine des transitions de phase.

II. Que mesure-t-on en réalité dans une expérience de diffraction ?

1) S'il est vrai que l'on mesure $|F(\vec{K})|^2$, nous venons de voir de multiples facettes pour l'interprétation de ces mesures. Mais la réalité est amère.

Tout d'abord, le cristal est fini, ce qui implique une longueur finie pour les pics de diffraction. Ces pics nous apparaissent de plus convolués par la fonction de résolution de l'appareil. D'où la nécessité de mesurer une intensité intégrée sur le domaine de diffusion autour du pic de Bragg. Ceci se traduit par une section efficace où v est le volume du cristal et $I = Q.v$

$$Q = \left| \frac{a F(\vec{H}) C}{V} \right|^2 \frac{\lambda^3}{\sin 2\theta}$$

V le volume d'une maille.

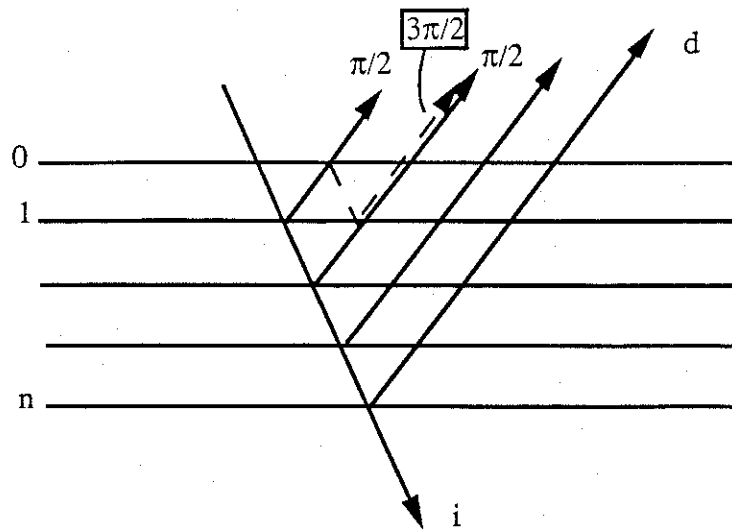
Dans le cas des rayons X: $a = r_0$, $C = I$ pour les R.X. polarisés orthogonalement et $\cos 2\theta$ pour les rayons X polarisés parallèlement au plan de la diffraction ($\vec{K}_0, \vec{K}$).

Dans le cas des neutrons : $a = 10^{-12}$ cm, $c = 1$.

Q représente la probabilité de diffraction par unité de longueur.

2) Tout le monde sait que la diffraction des rayons X et des neutrons est un processus d'interaction faible. Donc, on peut se reposer sur la validité de l'approximation de Born.

Faisons quand même le raisonnement suivant : on a n plans d'une famille, distants de d , épaisseur $t = nd$.



On remarque que l'onde réfléchi est déphasée de $\pi/2$ par rapport à l'onde incidente. Par ailleurs, les faisceaux diffractés sont en position de Bragg par rapport aux plans, donc peuvent se réfléchir à nouveau. En fait, après 3 réflexions, on a une onde dans la direction diffractée, déphasée de π par rapport à l'onde simple diffractée.

L'onde réfléchi par le plan 1 peut se réfléchir à nouveau sur le plan 0 (1 fois).

L'onde réfléchi par le plan K peut se réfléchir à nouveau sur les plans 0, 1..., K-1 (K fois).

Donc le faisceau une fois réfléchi peut se réfléchir à nouveau de $1 + 2 + 3 + \dots + K + \dots + n$ de façon différente. La probabilité de réflexion par plan étant $(Q.d)$, la probabilité de deuxième réflexion est donnée par : $n^2/2 \cdot Q.d = Q.t^2/2d$. Donc si $T \sim \sqrt{d/Q} = \Lambda$, le processus de diffraction multiple est de forte probabilité et perturbe considérablement l'approximation de Born. Pratiquement, $\Lambda \sim \frac{1}{\lambda F} \sim 10 \text{ à } 100 \text{ } \mu\text{m}$. D'où le paradoxe suivant. La théorie géométrique est basée sur un cristal infiniment périodique et dès que la dimension de la zone périodique dépasse quelques μm , elle n'est plus valable.

Si, comme c'est le cas, la théorie cinématique a fait ses preuves en radiocristallographie, c'est qu'il se passe autre chose. En fait, on est amené à considérer que le cristal réel est un assemblage de domaines presque parfaits séparés par des zones fortement distordues. C'est le modèle mosaïque idéal qui suppose le cristal fait de microcristaux parfaits de taille inférieure à Λ et désorientés les uns par rapport aux autres suffisamment pour que ces divers domaines deviennent optiquement incohérents. On remarque que Λ dépend de F et λ , donc dépend du pic de Bragg que l'on considère. En réalité, dans bien des cas, pour des réflexions fortes et surtout quand λ est élevée, la théorie cinématique est totalement fausse.

Supposons, par exemple, un cristal parfait $t > \lambda$. Un calcul correct montre que $\sigma \sim |F|$ et non plus à $|F|^2$ comme le prévoyait la théorie cinématique.

L'enjeu étant la mesure de F , il y a lieu de s'inquiéter quelque peu de trouver une théorie adaptée au cristal que l'on veut étudier.

L'effet que nous venons de décrire, qui se traduit par une réduction du pouvoir réflecteur, s'appelle extinction primaire. Mais, de plus, il se peut que des domaines adjacents soient faiblement désorientés les uns par rapport aux autres et qu'il n'en résulte qu'un déphasage partiel entre les ondes qui y sont diffractées. Dans ce cas, il faut tenir compte de la distribution des orientations relatives des domaines parfaits, ce qui implique un nouvel effet : l'extinction secondaire

On peut écrire en général :

$$\sigma = Q V y$$

$y < 1$ facteur de structure.

y_s est d'autant plus petit que le cristal est grand.

y_p ne dépend que de la taille de domaines parfaits. En pratique, aux neutrons en particulier, il n'est pas rare que y puisse descendre au-dessous de $1/10$ pour des réflexions pathologiques. D'où l'importance de cet effet et de la recherche de théories raisonnables pour en rendre compte.

III. Théorie dynamique et modèles d'extinction

Si on envoie une onde $\vec{K}_0$ sur un cristal, c'est-à-dire sur un potentiel périodique, il en résulte une onde dans le cristal du type

$$\psi = \sum_{\vec{H}} \psi_{\vec{H}} \exp(i(\vec{K}_0 + \vec{H}) \cdot \vec{r})$$

superposition d'ondes compatibles avec la périodicité du milieu.

$$\text{Si } |\vec{K}_0 + \vec{H}| \neq |\vec{K}_0|$$

on peut obtenir les coefficients $\psi_{\vec{H}}$ à l'aide d'un développement de perturbation en termes du potentiel d'interaction $\psi_{\vec{H}}$ sont toutes proportionnelles aux coefficients de Fourier $V_{\vec{H}}$ du potentiel, et sont très faibles.

Mais si lorsque l'onde incidente satisfait la condition de Bragg pour les plans $\vec{H}$, le développement de perturbation n'est plus valable, car les ondes $\vec{K}_0$ et $\vec{K}_0 + \vec{H}$ sont dégénérées, on a alors un système d'ondes stationnaires qui s'établit et ψ l'onde résultante est composée à parts quasi égales des composantes $\vec{K}_0$ et $\vec{K}_H = \vec{K}_0 + \vec{H}$ (approximation à deux ondes).

$$\psi = \psi_0 \exp(i \vec{K}_0 \vec{r}) + \psi_H \exp(i \vec{K}_H \vec{r})$$

La théorie dynamique est l'étude dans un cristal parfait des conditions de propagation des ondes $\vec{K}_0$ et $\vec{K}_H$ au voisinage d'une condition exacte de Bragg. L'interaction entre onde incidente $\vec{K}_0$ et onde réfléchie $\vec{K}_H$ est à la base des effets remarquables de cette théorie. On peut évidemment montrer que lorsque la dimension effective du cristal devient faible devant Λ , l'amplitude de l'onde réfléchie tend vers la valeur cinématique. Mais si $t/\Lambda > 1$, il en est tout autrement.

En particulier, les interférences entre les champs d'ondes présents dans le cristal donnent lieu à des franges localisées dans le cristal, dont l'interfrange est lié directement à Λ , donc permet de mesurer pour des cristaux parfaits le facteur de structure de façon absolue : ceci a été réalisé avec une précision extraordinaire sur (Si).

Il y a dans l'application de la théorie dynamique, aux cristaux réels, deux difficultés :

- a- comment tenir compte proprement des déplacements locaux présents dans le cristal ?
- b- comment tenir compte proprement des conditions aux limites sur les champs d'ondes imposées par la géométrie du cristal ?

Une technique très spécifique est la topographie qui réalise des images bidimensionnelles de la zone du cristal irradiée et qui permet de mesurer le contraste associé aux divers défauts que rencontrent les ondes sur leur passage.

L'interprétation quantitative des topographies est parfois difficile car il faut relier le contraste observé à l'influence des défauts sur le potentiel de diffraction (figure II-1). Une avancée considérable a été possible grâce aux équations de propagation des ondes $\vec{K}_0$ et $\vec{K}_H$ dans un milieu déformé, proposées par Takagi et Taupin.

Si le milieu est distordu, mais que l'approximation à deux ondes reste valable, l'onde dans le cristal s'écrit :

$$\psi = \psi_0(\vec{r}) \exp(i \vec{K}_0 \vec{r}) + \psi_H(\vec{r}) \exp(i \vec{K}_H \vec{r})$$

avec ψ_0 et ψ_H dépendant de la position.

On peut montrer que si x_0 et x_h sont les coordonnées le long des directions incidente et diffractée, alors :

$$\frac{\partial \psi_0}{\partial x_0} = \frac{i}{\Lambda} \psi_H \exp(-i \vec{H} \cdot \vec{u})$$

$$\frac{\partial \psi_H}{\partial x_h} = \frac{i}{\Lambda} \psi_0 \exp(i \vec{H} \cdot \vec{u})$$

où $u(r)$ est l'écart local à la perfection.

Une des avancées les plus remarquables en topographie consiste en une solution numérique de ces équations pour des distributions données de défauts et donc en une simulation numérique des images topographiques.

Quant à nous, nous sommes davantage intéressés à l'utilisation de ces équations pour calculer l'intensité intégrée de diffraction pour un cristal ayant une distribution donnée de défauts.

Sur une telle distribution de défauts, l'intensité de l'onde réfléchie est $\langle |\psi_H|^2 \rangle$, où la moyenne est sur la distribution de défauts.

Si on réécrit :

$$\langle |\psi_H|^2 \rangle = \langle \psi_H \rangle^2 + \{ \langle |\psi_H|^2 \rangle - \langle \psi_H \rangle^2 \}$$

Le premier terme est le carré d'une amplitude moyenne et correspond donc à un processus de diffraction parfaitement cohérent. Le second correspond à un terme incohérent.

Jusqu'en 1980, il n'existait qu'un type de théorie pour rendre compte de l'effet des défauts : en supposant que les termes cohérent (extinction primaire) et incohérent (extinction secondaire) pouvaient être traités indépendamment l'un de l'autre. En particulier, Becker et Coppens ont développé une théorie dans le cadre de telles approximations, décrit le pouvoir réfléchi du cristal en termes de désorientation statistique entre des blocs mosaïques parfaits et la dimension de ceux-ci. Cette théorie a pu être appliquée avec succès à de nombreux cas mais a toujours laissé une insatisfaction sur le plan fondamental. C'est Kato, en 1980, qui a le premier fait apparaître la possibilité de coupler correctement les deux effets. En fait, il montre que l'incohérence vient des défauts rencontrés sur le chemin optique. Il est clair que deux paramètres s'introduisent dans une telle théorie :

- $\langle \exp (i \vec{H} \cdot \vec{u}) \rangle = E$, paramètre d'ordre à grande distance, équivalent à un facteur de Debye-Waller statique.

- $\langle \exp (i \vec{H} \cdot [\vec{u} (\vec{r}) - \vec{u} (\vec{r} - \vec{\tau})]) \rangle = f_{\vec{H}} (\vec{\tau})$, fonction de corrélation dont la longueur τ est une mesure de la longueur de cohérence optique dans l'échantillon. Bien sûr, c'est le paramètre τ/Λ qui va être le paramètre effectif de la théorie.

La théorie de Kato se traduit en termes de deux systèmes d'équations aux dérivées partielles couplées: L'un de ces systèmes est relatif à l'onde cohérente qui s'affaiblit avec la profondeur de pénétration. L'autre est relatif à l'intensité incohérente dont le taux de croissance dans l'échantillon est directement lié à l'intensité cohérente.

Ces équations sont évidemment difficiles à exploiter en toute généralité. C'est le sujet de la thèse de M. Al-Haddad d'essayer d'en trouver une solution approchée valable pour un petit cristal de forme quelconque, afin, en particulier, de voir l'amélioration que l'on peut obtenir par rapport aux modèles précédents.

Nous avons commencé par résoudre le problème de la réflectivité intégrée pour un cristal parfait. Si la solution est bien connue pour une lame cristalline infinie, figure (III-1), nous avons pu obtenir un résultat quasi-exact pour un cristal sphérique (de forme isotrope), figure (III-2).

On voit nettement les effets d'oscillations de l'intensité discutés plus haut, l'interfrange étant proportionnel à Λ , et on voit aussi que la forme du cristal joue un rôle crucial dans le résultat.

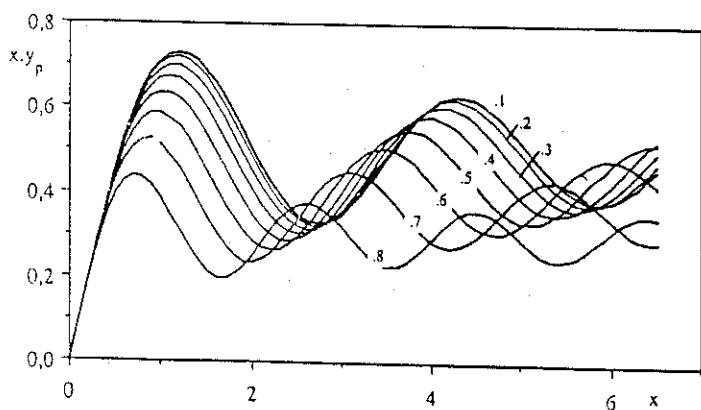


Figure III-1

Le produit du facteur de l'extinction primaire par $X = t/\Lambda$ en fonction de X pour $\sin \theta$ donné (pour une plaquette, cas de Laue)

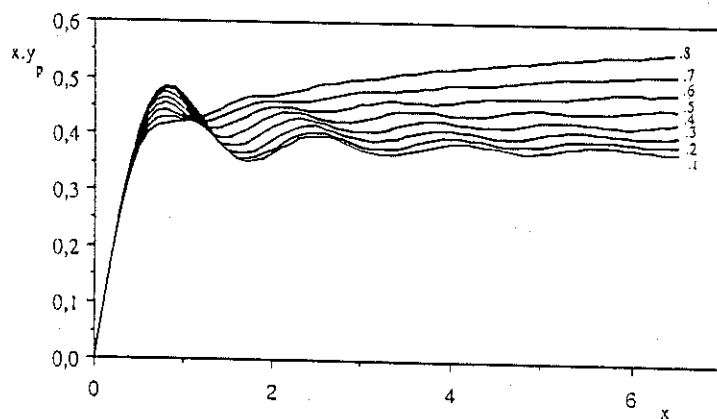


Figure III-2

Le produit du facteur de l'extinction primaire par $X = R/\Lambda$ en fonction de X pour $\sin \theta$ donné (pour une sphère, cas de Laue)

En cristallographie, le cristal "sphérique" est beaucoup plus utile que la lame, elle-même très utile en topographie.

Actuellement, nous développons une méthode d'intégration dans le cas du cristal réel (avec E et τ/Λ)

Kato a donné une solution pour une lame infinie, figure (III-3).

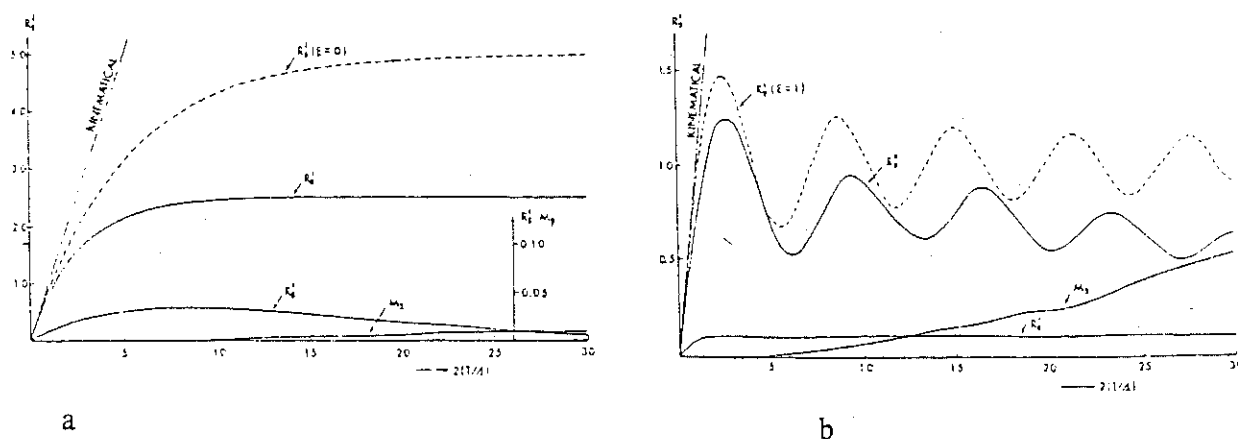


Figure III-3 : elle montre l'intensité intégrée à l'échelle de $(\lambda/2\Lambda \sin 2\theta \exp(-\mu_0 T))$ où $T = t \cos \theta$; où R_g^i étant la partie purement incohérente, R_g^c la partie cohérente, m_g la partie transformée ; a) $E = 0,1$, $\tau/\Lambda = 0,1$; b) $E = 0,9$, $\tau/\Lambda = 0,1$.

Un des grands problèmes connus est la signification physique des paramètres d'extinction que l'on peut obtenir en appliquant la méthode des moindres carrés sur un ensemble d'intensités de Bragg et un modèle donné de diffraction. Becker et Bastie ont pu montrer, en étudiant la dépendance critique de l'intensité intégrée aux rayons X des RbDp et KDp autour de la transition ferroélastique, que les paramètres d'extinction ajustés sont en excellent accord avec des valeurs que l'on estime à partir de mesures piézoélastiques. En fait le comportement pathologique d'un pic de Bragg lors d'une transition de phase peut être valablement exploité en termes d'évolution des défauts statiques ou dynamiques induits par la transition.

IV. Présent et avenir de la diffraction

On pourrait se dire que la diffraction a donné depuis un siècle tout ce qu'on pourrait en attendre. Ce serait sans doute une conclusion bien hâtive. Nous voulons ici seulement dresser la liste des quelques domaines dans lesquels la cristallographie reste ou devient une science tournée vers l'avenir.

- L'observation de la composante magnétique de la diffraction de rayons X par Brunel et de Bergevin prend un essor avec les sources Synchrotron : possibilité d'observer simultanément des effets structuraux et magnétiques associés à des transitions de phase ; possibilité, en jouant sur la

polarisation du faisceau, de découpler magnétisme orbital et magnétisme de spin de façon expérimentale : ceci constitue un écueil aux neutrons.

- L'utilisation du rayonnement synchrotron dans le domaine de la diffraction en surface, en utilisant les rayons X rasants (faisceaux totalement réfléchis) ouvre la voie à de multiples travaux dans le domaine de la physique des surfaces et interfaces (Brunel et de Bergevin).

- Une autre application du rayonnement synchrotron est la possibilité de faire varier la longueur d'onde en particulier autour d'un seuil d'absorption K d'un élément.

On peut ainsi façonner à volonté le facteur de diffusion d'un atome qui devient $f + \delta f' + i \delta f''$ où $\delta f'$ et $\delta f''$ sont des composantes liées à la dispersion et à l'absorption des rayons X. Les applications dans le domaine de l'ordre-désordre sont importantes puisque l'on peut faire des mesures indépendamment (à divers λ) sur le même matériau. Par ailleurs, l'utilisation de la diffraction anormale permet aussi de résoudre bien souvent et de façon élégante le problème de la phase.

- Le rayonnement synchrotron est un rayonnement pulsé. L'exploitation de cette propriété peut permettre d'étudier des phénomènes dynamiques par synchronisation de fréquences et donc de les voir comme des effets statiques.

L'énorme flux disponible permet aussi de faire des mesures très rapides.

- Le domaine des structures modulées et des quasi-cristaux est en pleine expansion. Il s'agit là d'une véritable révolution des conceptions mêmes d'une structure condensée à l'équilibre.

- L'emploi des neutrons et de leur diffusion magnétique est toujours aussi riche d'informations dans le domaine des structures magnétiques, gageur pour les modèles théoriques des transitions de phase.

- Enfin, l'amélioration technologique (sources, monochromateurs-détecteurs) permet d'approcher de mieux en mieux la compréhension de l'écart à l'approximation des atomes indépendants. En diffraction X, on peut non seulement observer la redistribution des électrons sous l'effet des liaisons chimiques ou forces cristallines (avec une précision souvent meilleure que les calculs quantiques), mais on peut aussi prédire certaines propriétés électroniques (potentiel électrostatique, moment dipolaire,...).

Ainsi, nous avons essayé de montrer que la diffraction de rayons X et des neutrons était au centre.. des préoccupations dans le domaine de la matière condensée. En parallèle aux développements instrumentaux, on doit toujours revenir sur la compréhension du mécanisme de l'interaction photon, neutron avec un matériau donné.

Références

- Becker, (1980) Electron and Magnetization Densities in Molecules and Crystals (Plenum)
- Becker, P., Coppens, P., (1974) Acta Cryst. A30, 129-147.
- Becker, P., Bastie (1984), J. Phys. 17, 193-205.
- Brunel, M. and de Bergevin, F., (1981) Acta Cryst. A37, 324-331.
- Brunel, M. et de Bergevin, F., (1986) Acta Cryst., à paraître.
- Burns, S.J. and Roessler, B., Phys. Stat. Sol. (a) 13, K91 (1972).
- Kato, N., (1980) Acta Cryst. A36, 770-778.
- Takagi, S., (1969), J. Phys. Soc. Japan 26, 1239-1253.
- Taupin, D., (1964), Bull. Soc. franç. Minéral. Cristallogr. 87, 469-511.
- Proceedings of the International Conference on Synchrotron Radiation Instrumentation and new developments, Orsay, France, septembre 1977.
- Program in X-Ray Studies by Synchrotron Radiation, Strasbourg, 1985.

CHAPITRE II

UN MODELE STATISTIQUE POUR LA THEORIE DYNAMIQUE DE LA DIFFRACTION PAR UN CRISTAL

INTRODUCTION

Comme nous avons vu précédemment, la propagation du rayonnement dans un cristal peut être décrite par les équations de Takagi-Taupin (I-60) :

$$\begin{aligned}\frac{\partial D_0}{\partial s_0} &= i\chi_{\bar{h}} \varphi D_h \\ \frac{\partial D_h}{\partial s_h} &= i\chi_h \varphi^* D_0\end{aligned}\tag{II-1}$$

Pour résoudre ces équations, il faut en principe connaître le champ de déplacement $\{\vec{u}(\vec{r})\}$. Dans le cas général les équations II-1 ne peuvent être résolues que par une méthode numérique (Taupin; 1967; Authier et al. 1968; Epelboin, 1977).

Dans notre travail, nous nous proposons de résoudre ces équations dans le cas où le champ de déplacement $\{\vec{u}(\vec{r})\}$ n'est pas localement connu, mais est seulement décrit par sa distribution statistique.

Tout d'abord nous posons les hypothèses suivantes :

L'intensité intégrée ne dépend pas du détail du champ de déplacement ; on peut donc imaginer un ensemble de cristaux pour lesquels on obtient le même spectre de diffraction ce qui revient à considérer que les intensités incidente et diffractée mesurées peuvent être traitées comme des moyennes d'ensemble sur ces cristaux.

En vertu du principe ergodique, cela revient aussi à supposer que l'intensité observée est égale à la moyenne statistique de l'intensité sur tous les déplacements $\{\vec{u}(\vec{r})\}$ dans un cristal donné :

$$\begin{aligned}I_0 &= \langle |D_0|^2 \rangle \\ I_h &= \langle |D_h|^2 \rangle\end{aligned}\tag{II-2}$$

Nous introduisons dans ce chapitre deux paramètres à grande et courte distances, puis nous présentons un modèle statistique concernant le facteur de phase φ et sa corrélation entre deux points du cristal (P. Becker and M. Al Haddad, 1989 : concerning order parameters in the statistical dynamical theory of diffraction) sur lesquels nous développons la théorie dynamique statistique de diffraction du cristal (chap. IV et V).

A - LES PARAMETRES E et τ

Définissons deux paramètres E et τ , qui décrivent respectivement l'ordre à grande et à courte distance, pour le facteur de phase statistique φ .

On définit une variable stochastique $\xi(\vec{r})$.

$$\xi(\vec{r}) = \hat{h} \cdot \vec{u}(\vec{r}) \quad (\text{II-3})$$

où $\hat{h}$ est le vecteur unitaire dans la direction $\vec{h}$. Le facteur de phase $\varphi(\vec{r})$ peut être représenté sous la forme suivante :

$$\varphi = \exp(2\pi i h \xi(\vec{r})) \quad (\text{II-4})$$

où $\vec{H} = 2\pi \vec{h}$

On définit $P(\xi)$ comme la fonction de distribution de ξ . E est la moyenne du facteur de phase φ :

$$E = \langle \varphi \rangle = \int P(\xi) \exp(2\pi i h \xi(\vec{r})) d\xi \quad (\text{II-5})$$

Les deux cas limites représentent l'extinction primaire pour un cristal parfait ($E = 1$) et l'extinction secondaire dans le cas d'un cristal imparfait ($E = 0$).

Si on considère seulement la corrélation entre les deux noeuds les plus proches voisins " les noeuds sont les positions définies par les vecteurs du réseau" et si $P_2(\xi, \xi', \vec{t})$ est la fonction de probabilité d'avoir ξ au point $\vec{r}$ et ξ' au point $\vec{r} + \vec{t}$, la fonction de corrélation de paire $F(\vec{t})$:

$$\begin{aligned} F(\vec{t}) &= \langle \varphi(\vec{r}) \varphi^*(\vec{r} + \vec{t}) \rangle \\ &= \int \int \exp(2\pi i h (\xi - \xi')) P_2(\xi, \xi', \vec{t}) d\xi d\xi' \end{aligned} \quad (\text{II-6})$$

On doit supposer un processus homogène. D'autre part on supposera les directions équivalentes et indépendantes au sens de la corrélation.

On définit la longueur de corrélation τ comme la mi-largeur à mi hauteur de la fonction de corrélation intrinsèque $g(\vec{t})$ dans une direction donnée, (Fig. II-1.), définie par la relation :

$$F(\vec{t}) = E^2 + (1 - E^2) g(\vec{t}) \quad (\text{II-7})$$

où

$g(\vec{t}) = g(x, y)$ x et y sont les coordonnées du vecteur $\vec{t}$ respectivement dans la direction s_0 et s_h . Nous notons $g(x, 0) = g(x)$, $g(0, y) = g(y)$

$$\tau = \int_0^\infty g(t) dt \quad (\text{II-8})$$

plus généralement la longueur de corrélation de $n^{\text{ème}}$ ordre τ_n :

$$\tau_n = \int_0^\infty g^n(t) dt \quad (\text{II-9})$$

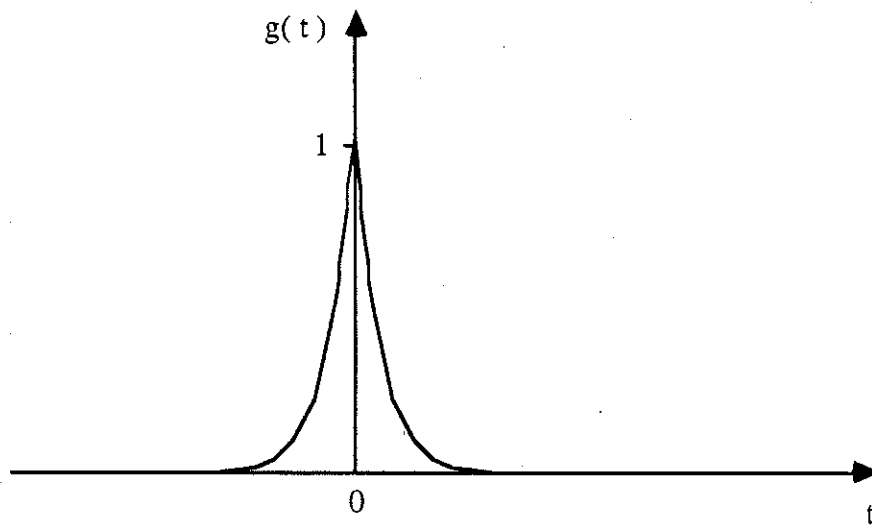


Fig II-1 : Fonction de corrélation $g(t)$

L'approximation de corrélation de paire n'est valable que si :

$$\tau \ll \Lambda \quad (\text{II-10})$$

où Λ est la longueur caractéristique traduisant l'interférence entre deux points.

B – UN MODELE SIMPLE POUR LA DISTRIBUTION DE PAIRE

N'importe quelle fonction de distribution de paire continue possède deux limites extrêmes :

1) Corrélation totale si t est très petit :

$$\lim_{t \rightarrow 0} P_2 [\xi, \xi', \vec{t}] = P(\xi) \delta(\xi' - \xi) \quad (\text{II-11})$$

2) Absence de corrélation lorsque t devient très grand :

$$\lim_{t \rightarrow \infty} P_2 [\xi, \xi', \vec{t}] = P(\xi) P(\xi') \quad (\text{II-12})$$

Dans le cas intermédiaire, nous définissons le modèle simple selon lequel la fonction de distribution P_2 est une combinaison linéaire de ces deux limites :

$$P_2 [\xi, \xi', \vec{t}] = \alpha(\vec{t}) P(\xi) \delta(\xi' - \xi) + [1 - \alpha(\vec{t})] P(\xi) P(\xi') \quad (\text{II-13})$$

où $\alpha(t)$ est un facteur de pondération inconnu, satisfaisant aux conditions suivantes :

$$\alpha(0) = 1, \quad \alpha(\infty) = 0 \quad (\text{II-14})$$

Pour calculer $\alpha(t)$, évaluons la quantité $\langle \xi(\vec{r}) \cdot \xi(\vec{r} + \vec{t}) \rangle$:

$$\begin{aligned} \langle \xi(\vec{r}) \xi(\vec{r} + \vec{t}) \rangle &= \int \xi \xi' P_2(\xi, \xi', \vec{t}) d\xi d\xi' \\ &= \alpha(\vec{t}) \langle \xi^2 \rangle + [1 - \alpha(\vec{t})] \langle \xi \rangle^2 \end{aligned} \quad (\text{II-15})$$

la distribution $P(\xi)$ étant supposée symétrique :

$$\langle \xi \rangle = 0 \quad (\text{II-16})$$

par conséquent l'équation (II-15), donne :

$$\alpha(\vec{t}) = \frac{\langle \xi(\vec{r}) \xi(\vec{r} + \vec{t}) \rangle}{\langle \xi^2 \rangle} = \Gamma(\vec{t}) \quad (\text{II-17})$$

où $\Gamma(t)$ est la fonction de corrélation "habituelle".

Donc :

$$P_2 = \Gamma(\vec{t}) P(\xi) \delta(\xi' - \xi) + [1 - \Gamma(\vec{t})] P(\xi) P(\xi') \quad (\text{II-18})$$

Si on remplace dans l'équation (II-6) P_2 par sa valeur donnée par (II-18), la fonction de corrélation $F(t)$ devient :

$$F(\vec{t}) = E^2 + (1 - E^2) \Gamma(\vec{t}) \quad (\text{II-19})$$

donc :

$$g(\vec{t}) = \Gamma(\vec{t}) = \alpha(\vec{t}) \quad (\text{II-20})$$

C - ESTIMATION DE $g(t)$

Comme la corrélation est considérée seulement entre les noeuds plus proches voisins on peut par exemple regarder le processus stochastique comme processus de Markov :

Si on a une série de points $m_1(\vec{r}_1)$, $m_2(\vec{r}_2)$, ..., $m_n(\vec{r}_n)$ sur un chemin optique (Fig. II-2), la probabilité $P_1(\xi_n/\xi_{n-1}, \dots, \xi_1)$ d'avoir ξ_n au point m_n sachant que ξ_{n-1} affecte m_{n-1} , ..., ξ_1 affecte m_1 , ne dépend que de ξ_{n-1} :

$$P_1(\xi_n / \xi_{n-1}, \dots, \xi_1) = P_1(\xi_n / \xi_{n-1}) = \frac{P_2(\xi_{n-1}, \xi_n, \vec{r}_n - \vec{r}_{n-1})}{P(\xi_{n-1})} \quad (\text{II-21})$$

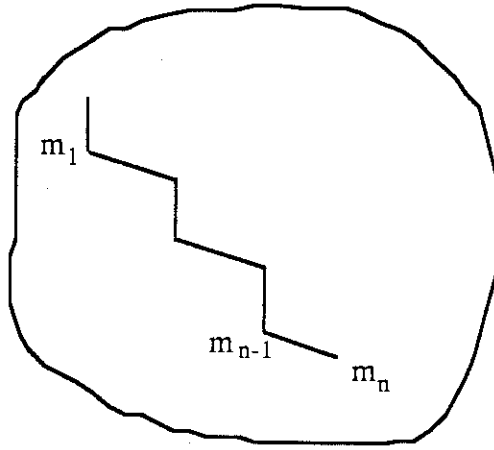


Fig. II-2 : processus de diffraction

Pour le processus de Markov, l'équation de Chapman-Kolmogorov doit être satisfaite : pour un triplet de points $(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \vec{r}_3)$ l'équation de Chapman-Kolmogorov est la suivante :

$$P_1[\xi_3 / \xi_1] = \int P_1[\xi_3 / \xi_2] P_1[\xi_2 / \xi_1] d\xi_2 \quad (\text{II-22})$$

En utilisant (II-21) et (II-22) et remplaçant P_2 par sa valeur donnée en (II-18), on obtient :

$$\Gamma(\vec{r}_3 - \vec{r}_1) = \Gamma(\vec{r}_3 - \vec{r}_2) \Gamma(\vec{r}_2 - \vec{r}_1) \quad (\text{II-23})$$

par conséquent :

$$g(\vec{t}) = g(\vec{x})g(\vec{y}) \quad (\text{II-24})$$

où

$$\vec{t} = \vec{x} + \vec{y} \quad (\text{II-25})$$

et

$$g(\vec{t}) = \exp(-\vec{a} \cdot \vec{t}) = \exp(-t/\tau) \quad (\text{II-26})$$

Donc, dans les limites des approximations faites dans ce modèle, on aboutit à $g(\vec{t})$ comme une exponentielle indépendante de $\vec{h}$ contrairement à E qui dépend de $\vec{h}$.

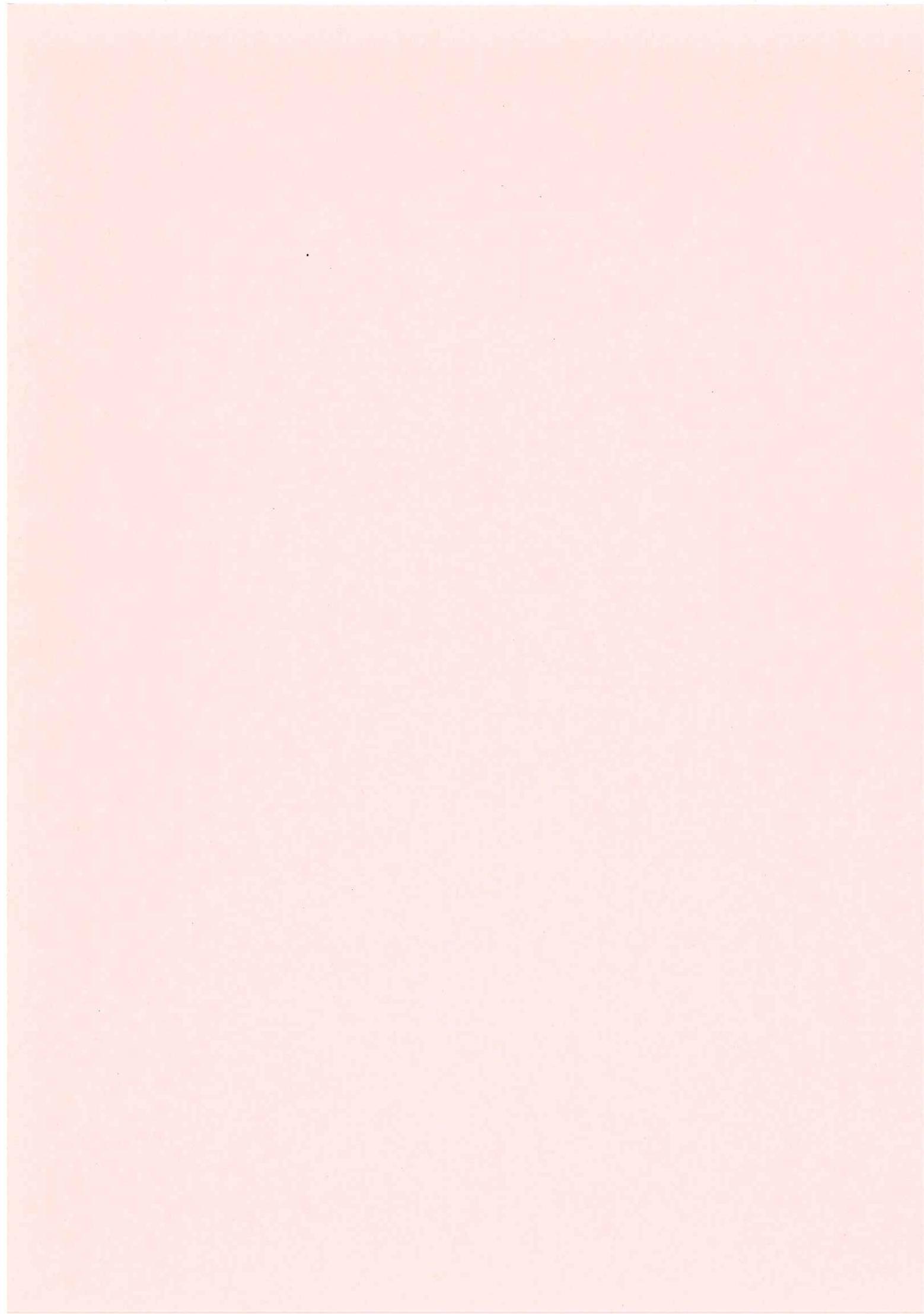
Nous nous basons sur ce modèle pour développer la théorie dynamique statistique de la diffraction du cristal (chap. IV et V). De même les hypothèses formulées par Kato (1980) impliquaient la même approximation pour $g(t)$.

L'article joint en annexe de ce chapitre reprend ces points en détails et discute aussi d'autres approximations pour $g(t)$, conduisant à d'autres approximations pour τ .

ARTICLE

" CONCERNING ORDER PARAMETERS IN THE STATISTICAL DYNAMICAL THEORY OF DIFFRACTION "

Acta Cryst. (1989). A45, 333-337



Concerning Order Parameters in the Statistical Dynamical Theory of Diffraction

BY PIERRE J. BECKER* AND MOSTAFA AL HADDAD†

Laboratoire de Cristallographie, CNRS, and Université J. Fourier, 166X, 38042 Grenoble CEDEX, France

(Received 28 November 1988; accepted 16 December 1988)

Abstract

The development of the statistical dynamical theory of diffraction by real crystals involves two order parameters: a long-range and a short-range one. These parameters play a fundamental role in practical applications of the theory to real diffraction data. A reasonable probabilistic model is proposed to describe the phase correlation at two given scattering positions. This model allows for a tractable solution of the propagation equations for the beams.

Introduction

The propagation of X-rays or neutrons in real crystals can be described by Takagi's equations (Takagi, 1962, 1969; Kato, 1973). For a Bragg reflection associated with the reciprocal-lattice vector $\mathbf{h}$, let D_0 and D_h be the amplitudes of the waves propagating in the incident direction (with coordinate s_0) and the diffracted direction (with coordinate s_h) respectively. Takagi's equations are

$$\begin{aligned} \partial D_0 / \partial s_0 &= i\chi_h \varphi D_h, \\ \partial D_h / \partial s_h &= i\chi_h \varphi^* D_0. \end{aligned} \quad (1)$$

In (1) χ_h is given by

$$\chi_h = (\lambda a C / V) F_h \quad (2)$$

where λ is the wavelength, V is the volume of the unit cell, $a = 10^{-12}$ cm for neutrons and 0.28×10^{-12} cm for X-rays, and C is the polarization factor for X-rays. F_h is the structure factor

$$|\chi_h| = 1/A$$

where A is the extinction distance.

The imperfect nature of the crystal occurs through the phase factor φ ,

$$\varphi = \exp[2\pi i \mathbf{h} \cdot \mathbf{u}(\mathbf{r})] \quad (3)$$

where $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ is the local displacement from the perfect position $\mathbf{r}$.

Without a precise knowledge of the distortion field $[\mathbf{u}(\mathbf{r})]$, (1) can only be solved by introducing a statistical hypothesis concerning the distribution of $\mathbf{u}$ within the crystal. Kato (1980) proposed a statistical theory for describing the propagation of the beams in real crystals: this theory covers the whole range between perfect crystals (dynamical theory) and ideally imperfect crystals (kinematical theory). The beams, which are coherent for a perfect crystal, become partially incoherent, owing to phase couplings of the type $\varphi(\mathbf{r})\varphi^*(\mathbf{r}')$ which occur in the expression for the intensities. The statistical properties of the phase factor $\varphi(\mathbf{r})$ are thus essential for developing the theory.

Kato's theory has been modified by the present authors (Al Haddad & Becker, 1988) and then generalized (Becker & Al Haddad, 1989a, b). The purpose of the present paper is to discuss the statistical properties of $\varphi(\mathbf{r})$ and its spatial correlations, since this leads to the fundamental parameters appearing in the integrated reflectivity or in the extinction factor.

* Present address: Laboratoire de Minéralogie et Cristallographie, Université Pierre et Marie Curie, Tour 16, 4 place Jussieu, 75252 Paris CEDEX 05, France.

† Permanent address: Atomic Energy Commission, PO Box 6091, Damascus, Syria.

Statistical hypothesis

(A) It is possible to consider $u(r)$ as a random variable when r varies within the crystal. Let $p(u)$ be the probability distribution function for u . Let E be the quantity

$$E = \int \exp(2\pi i h \cdot u) p(u) du. \quad (4)$$

$p(u)$ is assumed to be an even function, so that the average u is zero. Owing to the definition of $p(u)$, one can also write

$$E = (1/V) \int_V \varphi(r) dr. \quad (5)$$

Kato (1980) defined E as the 'static Debye-Waller factor'. It is the long-range order parameter of the theory. $|E| \leq 1$, and $E = 1$ corresponds to the perfect crystal case.

Assuming t to be small compared with the crystal dimension, one can also define

$$F(t) = (1/V) \int_V \varphi(r) \varphi^*(r+t) dr. \quad (6)$$

$F(t)$ is a spatial correlation function of the phase, which is assumed to be a real function.

Following Kato, we write

$$F(t) = E^2 + (1 - E^2)g(t) \quad (7)$$

where the pair-correlation function $g(t)$ is such that $g(0) = 1$.

Higher-order correlation functions can also be defined. However, the theories that have been developed so far are restricted to pair correlations. The meaning of this restriction is that the correlation length of $g(t)$ must be smaller than the average distance between two successive scattering events.

(B) The problem can be tackled from a different viewpoint. It is assumed in the diffraction theories that the beam intensities are uniquely defined when the distributions for $\varphi(r)$ and $\varphi(r)\varphi^*(r')$ are given. We consider the ensemble of crystals (of a common shape) with the same distribution functions for $\varphi(r)$ and $\varphi(r)\varphi^*(r')$. $u(r)$ and $\varphi(r)$ are assumed to be ergodic and homogeneous stochastic processes: their distribution over the various members of the ensemble, for fixed r , is equivalent to their distribution over r , for a fixed member of the ensemble. The observed diffracted intensity I_h can be viewed as the ensemble average

$$I_h = \langle |D_h|^2 \rangle. \quad (8)$$

Equation (4) can be written as

$$E = \langle \varphi(r) \rangle. \quad (9)$$

E is independent of r , owing to the property of homogeneity. Similarly

$$F(t) = \langle \varphi(r) \varphi^*(r+t) \rangle = E^2 + (1 - E^2)g(t). \quad (10)$$

Because of homogeneity, $F(t)$ does not depend on r .

For simplicity, isotropy will be assumed, so that $F(t)$ depends only on t . The correlation length τ is defined in any direction as

$$\tau = \int_0^\infty g(t) dt \quad (11)$$

together with generalized correlation lengths

$$\tau_n = \int_0^\infty g^n(t) dt. \quad (12)$$

(C) If $\hat{h}$ is the unit vector along h , we define

$$\xi(r) = \hat{h} \cdot u(r). \quad (13)$$

Let $P(\xi)$ be the probability distribution function for ξ ,

$$E = \int P(\xi) \exp(2\pi i h \xi) d\xi. \quad (14)$$

The joint probability for having ξ at r and ξ' at $(r+t)$ is

$$P_2[\xi(r), \xi'(r+t)] = P_2(\xi, \xi', t),$$

such that

$$\int d\xi' P_2(\xi, \xi', t) = P(\xi). \quad (15)$$

The correlation function $F(t)$ is thus

$$F(t) = \iint \exp[2\pi i h(\xi - \xi')] P_2(\xi, \xi', t) d\xi d\xi'. \quad (16)$$

(D) The optical path from a source S to a point M is an ordered trajectory, made of a sequence of segments parallel to the incident- and the diffracted-beam directions. If we consider two points M and M' in the crystal, one of them is always a preceding one with respect to the propagation process. Let us consider an ordered sequence of points $M_1, M_2, \dots, M_n$. We can define the conditional probability of having a distortion ξ_n at r_n , knowing the distortions $\xi_1(r_1), \dots, \xi_{n-1}(r_{n-1})$, as

$$P_1[\xi_n(r_n)/\xi_{n-1}(r_{n-1}), \dots, \xi_1(r_1)].$$

The stochastic process $\xi(r)$ is said to be a Markov process (Feller, 1970; Van Kampen, 1981; Ziman, 1979) if this conditional probability depends only on $\xi_{n-1}(r_{n-1})$ and not on the preceding events. This assumption is clearly consistent with the pair-correlation restriction: one considers only the correlation between nearest neighbours. Thus,

$$\begin{aligned} P_1[\xi_n(r_n)/\xi_{n-1}(r_{n-1}), \dots, \xi_1(r_1)] \\ = P_1[\xi_n(r_n)/\xi_{n-1}(r_{n-1})]. \end{aligned} \quad (17)$$

From (17) and elementary probability theory, we obtain

$$P_2(\xi_1, \xi_2, t) = P(\xi_1) P_1[\xi_2(r+t)/\xi_1(t)]. \quad (18)$$

If we consider a three-point event $[\xi_1(r_1), \xi_2(r_2), \xi_3(r_3)]$, where (r_1, r_2, r_3) is an ordered triplet of points,

then we obtain

$$P_3[\xi_3(r_3), \xi_2(r_2), \xi_1(r_1)] = P(\xi_1) P_1[\xi_2(r_2)/\xi_1(r_1)] \\ \times P_1[\xi_3(r_3)/\xi_2(r_2)]. \quad (19)$$

Integrating (19) over ξ_2 , one finds

$$P_2[\xi_3(r_3), \xi_1(r_1)] = P(\xi_1) \int P_1[\xi_2(r_2)/\xi_1(r_1)] \\ \times P_1[\xi_3(r_3)/\xi_2(r_2)] d\xi_2.$$

Comparison with (17) finally leads to the Chapman-Kolmogorov equation

$$P_1[\xi_3(r_3)/\xi_1(r_1)] = \int P_1[\xi_3(r_3)/\xi_2(r_2)] \\ \times P_1[\xi_2(r_2)/\xi_1(r_1)] d\xi_2. \quad (20)$$

If $\xi(r)$ is a Markov process, (20) must be fulfilled.

Crystals with a high degree of perfection

We first consider the limiting case of a crystal with a high degree of perfection. This means that E is very close to 1. In other words, the random variable $\xi(r)$ will remain very small. Since dynamical effects occur only at small Bragg angles, this corresponds to the case where

$$h\xi(r) = h \cdot u(r) \ll 1.$$

In this case, one can make the approximation

$$F(t) \sim 1 - \frac{1}{2!} 4\pi^2 h^2 \langle (\xi - \xi')^2 \rangle \\ = 1 - 4\pi^2 h^2 \langle \xi^2 \rangle + 4\pi^2 h^2 \langle \xi \xi' \rangle.$$

Since E^2 can also be approximated as

$$E^2 \sim 1 - 4\pi^2 h^2 \langle \xi^2 \rangle,$$

$F(t)$ can be written in the form

$$F(t) = E^2 + (1 - E^2) \langle \xi(r) \xi(r+t) \rangle / \langle \xi^2 \rangle. \quad (21)$$

The usual correlation factor in probability theory is

$$\Gamma(t) = \langle \xi(r) \xi(r+t) \rangle / \langle \xi^2 \rangle. \quad (22)$$

Within the present approximation, we see from (7) that the pair-correlation function $g(t)$, which is the leading term in the diffraction theory, can be represented as

$$\lim_{E \rightarrow 1} g(t) = \Gamma(t). \quad (23)$$

Since all directions are supposed to be equivalent, $g(t)$ will not depend on h or on the Bragg angle. The correlation length τ will be constant.

The Gaussian random model

In order to deal with smaller values of E , or larger Bragg angles, it is necessary to make some statistical assumptions. The most common model in probability

theory is the Gaussian distribution (Feller, 1970; Ziman, 1979),

$$P_2(\xi, \xi', t) = \{2\pi \langle \xi^2 \rangle [1 - \Gamma^2(t)]\}^{-1} \\ \times \exp \left(- \frac{\xi^2 + \xi'^2 - 2\xi\xi'\Gamma(t)}{2\langle \xi^2 \rangle [1 - \Gamma^2(t)]} \right). \quad (24)$$

This model is justified when ξ can be considered as the sum of a large number of independent random contributions. For example, we may represent $\xi(r)$ as a Fourier sum,

$$\xi(r) = \sum_q a(q) \exp(2i\pi q \cdot r). \quad (25)$$

When q varies in the Brillouin zone, and if one assumes statistical independence among the various components $a(q)$, then (24) follows from the central limit theorem. $F(t)$ takes the simple form

$$F(t) = \exp \{ -4\pi^2 h^2 \langle \xi^2 \rangle [1 - \Gamma(t)] \} \quad (26)$$

and E is given by

$$E = \exp \{ -2\pi^2 h^2 \langle \xi^2 \rangle \} = \exp \{ -(2\pi^2/3) h^2 \langle u^2 \rangle \}. \quad (27)$$

If it is further assumed that $\xi(r)$ is a Markov process, the application of (20) leads to

$$\Gamma(t+t') = \Gamma(t)\Gamma(t') \quad (28)$$

where

$$t = x\hat{u}_0 + y\hat{u}_h \quad x, y \geq 0$$

($\hat{u}_0$ and $\hat{u}_h$ are unit vectors along the incident and diffracted directions). If all directions are equivalent, (28) is only compatible with

$$\Gamma(t) = \exp(-x/\tau) \exp(-y/\tau), \quad (29)$$

τ being a characteristic length, which measures the domains of phase coherence.

The advantage of the decomposition (7) for $F(t)$, in the development of the diffraction theory, is the possibility of separating the intensities into coherent and incoherent contributions. However, we notice that $F(t)$, as given by (26), is not well suited for the decomposition (7), since $g(t)$ would be a complicated function depending on h .

However, we may notice that the Gaussian model might permit another type of solution of Takagi's equations. Using the notation of Becker & Al Haddad (1989a, b), (1) can be written in the integral form

$$D_h(s_0, s_h) = -\chi^2 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta \varphi^*(s_0, \eta) \varphi(\xi, \eta) D_h(\xi, \eta) \\ + i\chi \varphi^*(s_0, 0) \\ = -\hat{L} D_h + i\chi \varphi^*(s_0, 0), \quad (30)$$

$$D_h = \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n \hat{L}^n [i\chi \varphi^*(s_0, 0)] \quad (31)$$

and

$$I_h = \langle |D_h|^2 \rangle \\ = \sum_{n,m} (-1)^{n+m} \langle \hat{L}^n [i\chi\varphi^*(s_0, 0)] \hat{L}^{*m} [i\chi\varphi(s_0, 0)] \rangle. \quad (32)$$

Each term in (32) would involve integrals over Gaussian-type correlations, each of the form (26). Such integrations are in principle possible, but would involve exponential integral functions. The notion of incoherent *versus* coherent processes would be lost.

A simple model for the pair distribution

Rather than assuming a Gaussian model, we wish to discuss some general properties of $P_2(\xi, \xi', t)$.

Where $t \rightarrow 0$, $\xi'(r+t) \rightarrow \xi(r)$, for any model of continuous disorder (Ziman, 1979). This leads to

$$\lim_{t \rightarrow 0} P_2[\xi, \xi', t] = P(\xi)\delta(\xi' - \xi). \quad (33)$$

This is the complete correlation limit.

Where $t \rightarrow \infty$, $\xi(r)$ and $\xi'(r+t)$ are no longer correlated. Therefore

$$\lim_{t \rightarrow \infty} P_2[\xi, \xi', t] = P(\xi)P(\xi'). \quad (34)$$

This is the uncorrelated limit.

The simplest model is to assume a linear relation between these two limits, (33) and (34). We thus write

$$P_2(\xi, \xi', t) = \alpha(t)P(\xi)\delta(\xi' - \xi) \\ + [1 - \alpha(t)]P(\xi)P(\xi'), \quad (35)$$

where the weighting factor $\alpha(t)$ is to be determined. $\alpha(t)$ must fulfil the conditions

$$\alpha(0) = 1, \quad \alpha(\infty) = 0. \quad (36)$$

Let us calculate the quantity

$$\langle \xi(r)\xi(r+t) \rangle = \int \int \xi\xi' P_2(\xi, \xi', t) d\xi d\xi'.$$

The application of (35) leads to

$$\langle \xi(r)\xi(r+t) \rangle = \langle \xi^2 \rangle \alpha(t) + [1 - \alpha(t)]\langle \xi \rangle^2.$$

Since $\langle \xi \rangle$ is assumed to be zero,

$$\alpha(t) = F(t), \quad (37)$$

which gives a very clear meaning to the weighting factor $\alpha(t)$ in (35):

$$P_2(\xi, \xi', t) = F(t)P(\xi)\delta(\xi' - \xi) \\ + [1 - F(t)]P(\xi)P(\xi'). \quad (38)$$

Using (16), we get for $F(t)$

$$F(t) = F(t) + [1 - F(t)]E^2 = E^2 + [1 - E^2]F(t), \quad (39)$$

from which we conclude that $g(t)$ is equal to $F(t)$.

Within this model, $g(t)$ is independent of h . The model is indeed well suited for the decomposition (7) and thus for a separation into coherent and incoherent contributions to the intensity.

E is of course h dependent, and can reasonably well be represented as

$$E = \exp[-(2\pi^2/3)h^2\langle u^2 \rangle]. \quad (40)$$

If we further assume $\xi(r)$ to be a Markov process, we make use of the Chapman-Kolmogorov identity (20), with

$$P_1[\xi_2(r_2)/\xi_1(r_1)] = F(r_2 - r_1)\delta(\xi_2 - \xi_1) \\ + [1 - F(r_2 - r_1)]P(\xi_2). \quad (41)$$

For an ordered triplet (r_1, r_2, r_3) , one gets

$$F(r_3 - r_1)\delta(\xi_3 - \xi_1) + [1 - F(r_3 - r_1)]P(\xi_3) \\ = F(r_3 - r_2)F(r_2 - r_1)\delta(\xi_3 - \xi_1) \\ + [1 - F(r_3 - r_2)]F(r_2 - r_1)P(\xi_3),$$

which is fulfilled if

$$F(r_3 - r_1) = F(r_3 - r_2)F(r_2 - r_1).$$

We retrieve the condition (28), and thus

$$g(t) = g(x)g(y), \\ g(x) = \exp(-x/\tau), \quad (42)$$

τ being the coherence length of the phase factor φ .

We notice that (42) was implied in several approximations when developing the diffraction theory (Becker & Al Haddad, 1989a, b).

The present model is therefore consistent with the development of the theory for a real crystal. The last point to be considered is the limit of validity of the Markov process to describe multiple scattering. As we said earlier, it is equivalent to assuming that the correlation length is smaller than the average distance between points where multiple scattering occurs. The average distance between centres of scattering is of the order of Λ , the extinction length. Therefore, the present model may be considered as valid if

$$\tau \ll \Lambda, \quad (43)$$

again a condition that was implied in the theories.

Concluding remarks

It has been possible to describe phase coupling by a model which is a distance-weighted linear combination between a fully correlated and a totally uncorrelated model. This model turns out to be totally consistent with the assumptions that are to be made in the development of the diffraction theory. It leads to a short-range-order parameter τ that is a constant, E being represented by a Gaussian in h . Two parameters are thus needed, $\langle u^2 \rangle$ and τ .

References

- AL HADDAD, M. & BECKER, P. J. (1988). *Acta Cryst.* A44, 262-270.
- BECKER, P. J. & AL HADDAD, M. (1989a). *Acta Cryst.* A45. Submitted.
- BECKER, P. J. & AL HADDAD, M. (1989b). *Acta Cryst.* A45. Submitted.
- FELLER, W. (1970). *An Introduction to Probability Theory and its Applications*. New York: John Wiley.
- KATO, N. (1973). *Z. Naturforsch. Teil A*, 28, 604-609.
- KATO, N. (1980). *Acta Cryst.* A36, 763-778.
- TAKAGI, S. (1962). *Acta Cryst.* 15, 1311-1312.
- TAKAGI, S. (1969). *J. Phys. Soc. Jpn*, 26, 1239-1253.
- VAN KAMPEN, N. G. (1981). *Stochastic Processes in Physics and Chemistry*. Amsterdam: North-Holland.
- ZIMAN, J. M. (1979). *Models of Disorder. The Theoretical Physics of Homogeneously Disordered Systems*. Cambridge Univ. Press.

CHAPITRE III

CRISTAL PARFAIT : APPLICATION A UNE SPHERE

INTRODUCTION

A partir de la théorie dynamique, nous calculons le facteur d'extinction pour un cristal parfait de forme sphérique y_p . (M. Al Haddad and P. Becker, 1989 : Extinction in finite perfect crystals : case of a sphere), (voir annexe de ce chapitre).

Nous sommes dans le premier cas extrême de la théorie dynamique statistique de diffraction du cristal où $E = 1$. $\varphi \sim 1$, l'intensité est parfaitement cohérente :

$$I_0 = |\langle D_0 \rangle|^2, \quad I_h = |\langle D_h \rangle|^2$$

Les équations de propagation (II-1) deviennent :

$$\begin{aligned} \frac{\partial D_0}{\partial s_0} &= i \chi_h D_h \\ \frac{\partial D_h}{\partial s_h} &= i \chi_h D_0 \end{aligned} \quad (\text{III-1})$$

Avec une onde incidente d'amplitude D_0^0 [I-F-2] :

$$D_0^0 = \delta(s_h) \quad (\text{III-2})$$

la nature de la solution des équations (III-1) dépend de l'intersection du parallélogramme $SmMm'$ avec le cristal, Fig. III-1.

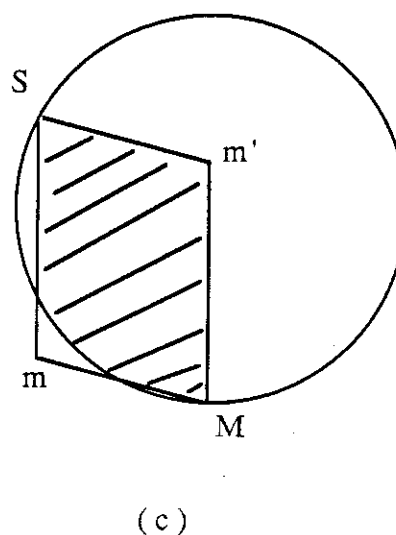
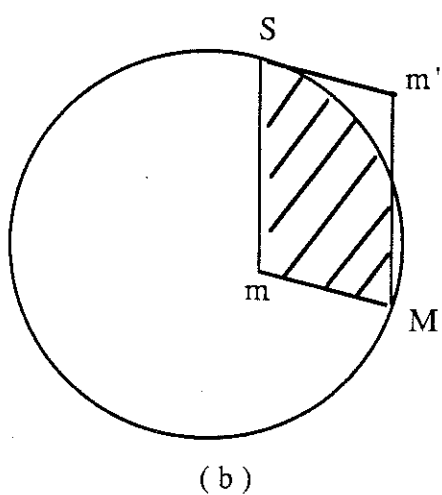
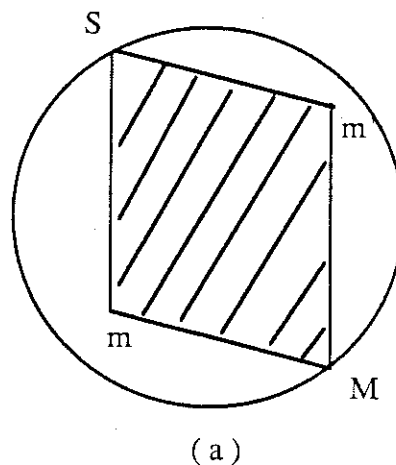
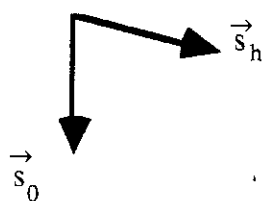


Fig. III-1 : les trois configurations possibles de la diffraction :

a : géométrie de Laue,

b : le point m est à l'intérieur du cristal et m' est à l'extérieur (Laue-Bragg).

c : m est à l'extérieur et m' est à l'intérieur du cristal (Bragg).

La géométrie de Laue est le cas le plus simple où le parallélogramme SmMm' est entièrement à l'intérieur du cristal, Fig. III-1-a.

A – LE FACTEUR D'EXTINCTION y_p : GEOMETRIE DE LAUE

P. Becker et Coppens, 1974 ont montré que pour de petits angles de Bragg la géométrie de Laue permet de calculer le facteur d'extinction avec une bonne précision.

Dans ce cas, à l'aide de la condition aux limites (III-2), les équations (III-1) peuvent être transformées sous la forme d'intégrales :

$$\begin{aligned} D_0(s_0, s_h) &= -\chi^2 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta D_0(\xi, \eta) + \delta(s_h) \\ D_h(s_0, s_h) &= -\chi^2 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta D_h(\xi, \eta) + i\chi_h \end{aligned} \quad (\text{III-3})$$

Si on définit un opérateur $\hat{L}$ par la relation :

$$\hat{L} f = \chi^2 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta f(\xi, \eta) \quad (\text{III-4})$$

les équations (III-3) deviennent :

$$\begin{aligned} D_0 &= [1 + \hat{L}]^{-1} \delta(s_h) = \sum_{n=0}^{\infty} (-)^n \hat{L}^n \delta(s_h) \\ D_h &= [1 + \hat{L}]^{-1} i\chi_h = \sum_{n=0}^{\infty} (-)^n \hat{L}^n i\chi_h = \sum_{n=0}^{\infty} T_n \end{aligned} \quad (\text{III-5})$$

Le terme T_0 correspond à une onde diffractée une seule fois (théorie cinématique).

Le terme T_1 correspond à une onde diffractée 3 fois.

Le terme T_n correspond à une onde diffractée $2n + 1$ fois, Fig. III-2.

On obtient finalement :

$$D_h = i\chi_h J_0\left(2\chi\sqrt{s_0 s_h}\right) \quad (\text{III-6a})$$

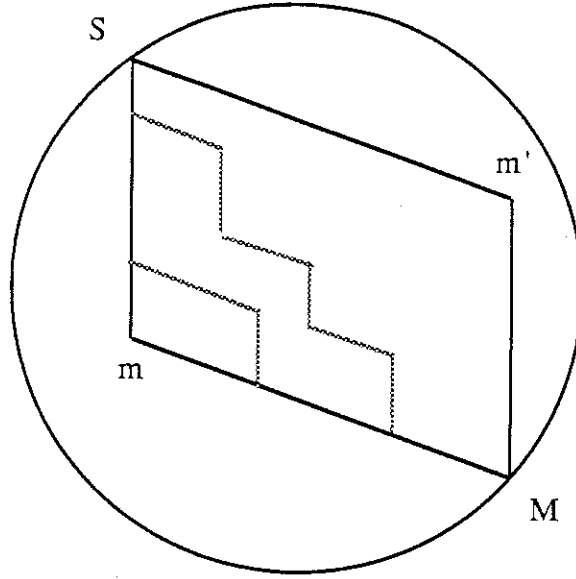


Fig. III-2 : Diffraction multiple dans le cas de la géométrie de Laue.

de la même façon , on trouve :

$$D_0 = i \chi_h \sqrt{\frac{s_0}{s_h}} J_1 \left(2 \chi \sqrt{s_0 s_h} \right) \quad (\text{III-6b})$$

et les intensités pour un cristal non absorbant sont :

$$I_h = |\chi_h|^2 J_0^2 \left(2 \chi \sqrt{s_0 s_h} \right), \quad I_0 = |\chi_h|^2 \frac{s_0}{s_h} J_1^2 \left(2 \chi \sqrt{s_0 s_h} \right) \quad (\text{III-7})$$

où J_0 et J_1 sont les fonctions de Bessel d'ordre zéro et un.

Pour un cristal absorbant, les intensités incidente et diffractée sont celles données par les équations (III-7) diminuées par le facteur $\exp(-\mu_0 (s_0 + s_h))$:

$$\begin{aligned} I_h &= |\chi_h|^2 J_0^2 \left(2 \chi \sqrt{s_0 s_h} \right) \cdot \exp(-\mu_0 (s_0 + s_h)) \\ I_0 &= |\chi^2| \frac{s_0}{s_h} J_1^2 \left(2 \chi \sqrt{s_0 s_h} \right) \cdot \exp(-\mu_0 (s_0 + s_h)) \end{aligned} \quad (\text{III-8})$$

où :

$$\chi_h = \chi_h' + i \chi_h''$$

et

$$\chi^2 = \chi_h \chi_{-h} \quad (\text{III-9})$$

$|\chi'_h| = \frac{1}{\Lambda}$ et χ''_h est la partie imaginaire.

Nous considérons seulement, ici, un cristal parfait non absorbant. Donc, pour calculer l'intensité intégrée diffractée P, on remplace en (I-75) I_h par sa valeur donnée en (III-7a) :

$$P = |\chi_h|^2 \frac{\lambda}{\sin 2\theta} \int_{v'} J_0^2 (2\chi \sqrt{s_0 s_h}) dv \quad (\text{III-10})$$

Et le facteur d'extinction primaire y_p :

$$y_p = \frac{1}{v} \int_{v'} J_0^2 (2\chi \sqrt{s_0 s_h}) dv \quad (\text{III-11})$$

Comme la géométrie de Laue est considérée, le volume d'intégration v' est donc remplacé par v , Fig. III-3 par conséquent l'équation (III-11) devient :

$$y_p = \frac{1}{v} \int_v |J_0 (2\chi \sqrt{s_0 s_h})|^2 dv \quad (\text{III-12})$$

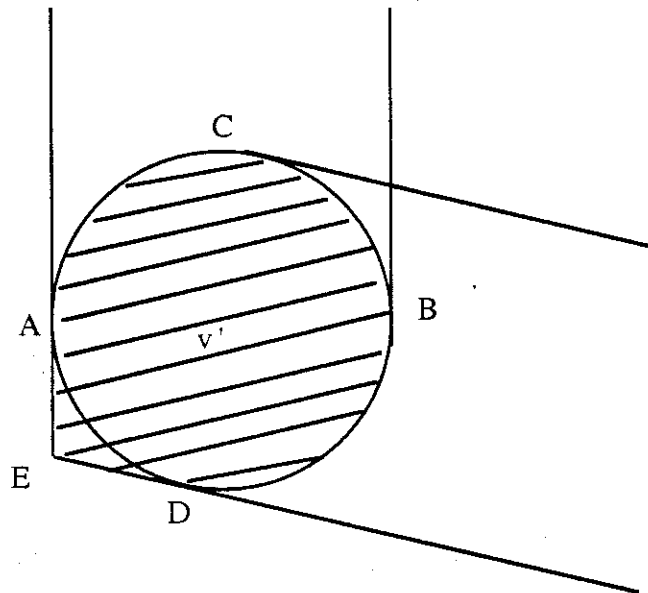


Fig. III-3 : le volume v' : l'endroit où m peut être trouvé

Si on définit le paramètre x comme étant le rayon de la sphère R divisé par la longueur d'extinction Λ : $x = R/\Lambda$, on peut limiter l'intégrale dans l'équation (III-12) sur une sphère dont le rayon est unitaire. Le facteur d'extinction y_p dépend de deux paramètres ; x et l'angle de Bragg θ :

$$y_p(x, \theta) = \frac{3}{4\pi} \cdot \int \int \int_{R=1} J_0^2 \left(2x \sqrt{s_0 s_h} \right) |^2 dv \quad (\text{III-13})$$

On développe y_p en fonction de $\sin \theta$:

$$y_p = y_0(x) + \sin^2 \theta y_1(x) + \sin^4 \theta y_2(x) + \dots \quad (\text{III-14})$$

La variation de y_p en fonction de $\sin \theta$ étant assez douce, on a pu limiter le développement à :

$$y_p \approx y_0(x) + y_1(x) \cdot \sin^2 \theta \quad (\text{III-15})$$

où :

$$\begin{aligned} y_0 &= y_p(x, 0) = \frac{3}{2} \left\{ J_0(4xt) dt - \int_0^1 t^2 J_0(4xt) dt \right\} \\ y_1(x) &= \frac{\partial^2 y_p}{\partial^2 \sin \theta} \Big|_{\theta=0} \\ &= 6x^2 \left\{ \int_0^1 [t^2 - t^4 + 2t^2 \ln t] J_0(4xt) dt \right\} \end{aligned} \quad (\text{III-16})$$

De façon plus correcte, nous avons calculé $y_p(x, \theta)$ numériquement (méthode de Gauss, 16 points dans chaque direction $\vec{x}, \vec{y}, \vec{z}$).

La table III-1 et la Fig. III-4 présentent y_p en fonction de x pour plusieurs valeurs de $\sin \theta$.

$x \sin \theta$	0.05	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8
0.0	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000
0.1	0.9920	0.9920	0.9918	0.9915	0.9911	0.9905	0.9898	0.9888	0.9876
0.2	0.9685	0.9683	0.9677	0.9666	0.9650	0.9627	0.9598	0.9561	0.9516
0.3	0.9306	0.9303	0.9289	0.9266	0.9231	0.9185	0.9124	0.9049	0.8957
0.4	0.8803	0.8797	0.8775	0.8737	0.8681	0.8605	0.8510	0.8393	0.8254
0.5	0.8199	0.8191	0.8160	0.8106	0.8028	0.7926	0.7798	0.7647	0.7472
0.6	0.7524	0.7514	0.7474	0.7407	0.7310	0.7186	0.7036	0.6864	0.6674
0.7	0.6808	0.6796	0.6750	0.6671	0.6563	0.6427	0.6269	0.6096	0.5917
0.8	0.6080	0.6067	0.6017	0.5934	0.5821	0.5686	0.5537	0.5386	0.5242
0.9	0.5369	0.5356	0.5306	0.5224	0.5117	0.4995	0.4872	0.4762	0.4672
1.0	0.4700	0.4687	0.4640	0.4566	0.4474	0.4379	0.4297	0.4240	0.4212
1.1	0.4091	0.4080	0.4040	0.3979	0.3911	0.3853	0.3820	0.3821	0.3853
1.2	0.3556	0.3548	0.3517	0.3475	0.3437	0.3422	0.3442	0.3497	0.3576
1.3	0.3104	0.3098	0.3079	0.3059	0.3054	0.3083	0.3152	0.3250	0.3359
1.4	0.2734	0.2732	0.2726	0.2729	0.2758	0.2828	0.2935	0.3061	0.3180
1.5	0.2445	0.2445	0.2452	0.2478	0.2538	0.2641	0.2773	0.2909	0.3022
1.6	0.2227	0.2230	0.2249	0.2294	0.2380	0.2505	0.2648	0.2777	0.2874
1.7	0.2069	0.2075	0.2104	0.2165	0.2268	0.2404	0.2543	0.2654	0.2733
1.8	0.1959	0.1967	0.2003	0.2075	0.2188	0.2322	0.2445	0.2534	0.2598
1.9	0.1883	0.1893	0.1933	0.2011	0.2124	0.2248	0.2348	0.2415	0.2472
2.0	0.1830	0.1839	0.1881	0.1959	0.2066	0.2172	0.2247	0.2298	0.2357
2.1	0.1787	0.1796	0.1837	0.1911	0.2007	0.2090	0.2143	0.2187	0.2255
2.2	0.1746	0.1755	0.1793	0.1860	0.1940	0.2002	0.2039	0.2086	0.2166
2.3	0.1702	0.1709	0.1743	0.1801	0.1866	0.1909	0.1940	0.1996	0.2087
2.4	0.1650	0.1657	0.1686	0.1735	0.1785	0.1816	0.1849	0.1919	0.2017
2.5	0.1591	0.1596	0.1621	0.1662	0.1701	0.1726	0.1768	0.1853	0.1953
2.6	0.1525	0.1529	0.1550	0.1585	0.1617	0.1644	0.1700	0.1795	0.1891
2.7	0.1455	0.1459	0.1477	0.1509	0.1538	0.1571	0.1643	0.1743	0.1831
2.8	0.1384	0.1387	0.1405	0.1435	0.1466	0.1511	0.1595	0.1693	0.1772
2.9	0.1315	0.1318	0.1336	0.1369	0.1404	0.1461	0.1554	0.1645	0.1717
3.0	0.1251	0.1255	0.1275	0.1310	0.1353	0.1421	0.1516	0.1596	0.1664
3.1	0.1195	0.1199	0.1222	0.1262	0.1311	0.1387	0.1478	0.1547	0.1616
3.2	0.1147	0.1153	0.1178	0.1222	0.1277	0.1358	0.1440	0.1500	0.1572
3.3	0.1109	0.1115	0.1143	0.1190	0.1250	0.1330	0.1400	0.1455	0.1532
3.4	0.1078	0.1085	0.1116	0.1165	0.1226	0.1301	0.1359	0.1413	0.1495
3.5	0.1054	0.1061	0.1094	0.1143	0.1202	0.1269	0.1318	0.1375	0.1460
3.6	0.1035	0.1042	0.1075	0.1122	0.1178	0.1236	0.1278	0.1341	0.1426
3.7	0.1018	0.1025	0.1057	0.1102	0.1152	0.1200	0.1240	0.1310	0.1393
3.8	0.1002	0.1008	0.1038	0.1079	0.1123	0.1164	0.1206	0.1282	0.1360
3.9	0.0984	0.0990	0.1018	0.1054	0.1093	0.1128	0.1177	0.1255	0.1328
4.0	0.0965	0.0970	0.0995	0.1027	0.1061	0.1094	0.1151	0.1228	0.1298
4.1	0.0943	0.0948	0.0970	0.0998	0.1029	0.1064	0.1128	0.1201	0.1270
4.2	0.0919	0.0923	0.0943	0.0968	0.0999	0.1038	0.1107	0.1175	0.1243
4.3	0.0893	0.0897	0.0916	0.0939	0.0971	0.1015	0.1087	0.1148	0.1219
4.4	0.0866	0.0870	0.0888	0.0912	0.0946	0.0996	0.1067	0.1122	0.1195
4.5	0.0840	0.0844	0.0862	0.0887	0.0925	0.0979	0.1046	0.1098	0.1173
4.6	0.0815	0.0819	0.0838	0.0865	0.0906	0.0964	0.1024	0.1076	0.1151
4.7	0.0793	0.0797	0.0817	0.0847	0.0891	0.0948	0.1002	0.1056	0.1129
4.8	0.0773	0.0778	0.0799	0.0832	0.0877	0.0933	0.0979	0.1037	0.1108
4.9	0.0756	0.0761	0.0784	0.0818	0.0864	0.0916	0.0957	0.1020	0.1088
5.0	0.0743	0.0748	0.0772	0.0807	0.0851	0.0898	0.0937	0.1003	0.1069
5.1	0.0731	0.0737	0.0761	0.0796	0.0837	0.0879	0.0918	0.0987	0.1050
5.2	0.0721	0.0727	0.0751	0.0785	0.0822	0.0859	0.0902	0.0970	0.1032
5.3	0.0712	0.0718	0.0741	0.0773	0.0806	0.0840	0.0887	0.0954	0.1016
5.4	0.0703	0.0708	0.0731	0.0760	0.0789	0.0822	0.0874	0.0937	0.0999
5.5	0.0694	0.0699	0.0719	0.0746	0.0772	0.0806	0.0862	0.0920	0.0983
5.6	0.0683	0.0688	0.0707	0.0730	0.0755	0.0791	0.0850	0.0905	0.0968
5.7	0.0672	0.0676	0.0693	0.0715	0.0739	0.0778	0.0837	0.0890	0.0952
5.8	0.0659	0.0663	0.0679	0.0699	0.0724	0.0767	0.0824	0.0876	0.0937
5.9	0.0646	0.0649	0.0664	0.0684	0.0711	0.0757	0.0811	0.0863	0.0922
6.0	0.0632	0.0635	0.0650	0.0670	0.0699	0.0747	0.0797	0.0850	0.0908
6.1	0.0618	0.0621	0.0637	0.0657	0.0689	0.0738	0.0783	0.0838	0.0895
6.2	0.0605	0.0608	0.0624	0.0646	0.0680	0.0728	0.0770	0.0826	0.0882
6.3	0.0594	0.0597	0.0614	0.0637	0.0672	0.0717	0.0758	0.0814	0.0870
6.4	0.0583	0.0586	0.0604	0.0628	0.0664	0.0706	0.0747	0.0802	0.0859
6.5	0.0574	0.0577	0.0596	0.0620	0.0655	0.0694	0.0736	0.0789	0.0848

Table III-1. y_p en fonction de x pour plusieurs valeurs de $\sin \theta$

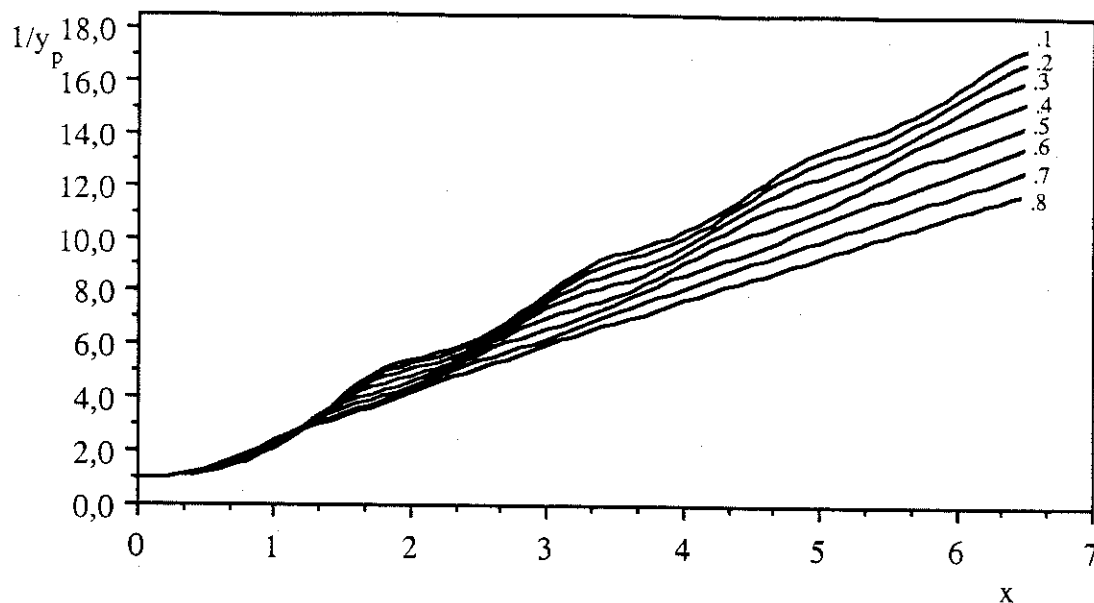


Fig. III-4 : $1/y_p$ en fonction de x , pour différentes valeurs de $\sin \theta$

En utilisant la méthode des moindres carrés, on cherche y_p sous la forme suivante :

$$y_p = Z_0 + Z_1 \sin^2 \theta + Z_2 \sin^4 \theta \quad (\text{III-17})$$

où Z_0 , Z_1 et Z_2 sont des fonctions en x , données numériquement par la Table III-2.

Z_0 n'est pas différent de y_0 , Fig. III-5.

Dans le paragraphe suivant, nous allons calculer y_p dans le cas général, pour estimer l'erreur commise en assimilant la géométrie à une situation purement Laue.

x	Z_0	Z_1	Z_2	x	Z_0	Z_1	Z_2
0.0	1.	0.	0	3.3	0.1112	0.0888	-0.0323
0.1	0.9922	-0.0055	-0.0024	3.4	0.1085	0.0857	-0.0308
0.2	0.9687	-0.0214	-0.008	3.5	0.1065	0.0805	-0.027
0.3	0.9309	-0.0463	-0.0132	3.6	0.1047	0.074	-0.0217
0.4	0.8807	-0.0776	-0.0132	3.7	0.103	0.0672	-0.0159
0.5	0.8206	-0.1113	-0.0044	3.8	0.1012	0.061	-0.0104
0.6	0.7532	-0.1427	0.0143	3.9	0.0992	0.0563	-0.0061
0.7	0.6816	-0.1661	0.0406	4.0	0.097	0.0533	-0.0034
0.8	0.6086	-0.1766	0.0693	4.1	0.0945	0.0523	-0.0025
0.9	0.5371	-0.1706	0.0935	4.2	0.0918	0.0529	-0.0032
1.0	0.4694	-0.1465	0.1065	4.3	0.089	0.0546	-0.0051
1.1	0.4076	-0.106	0.1038	4.4	0.0863	0.0571	-0.0078
1.2	0.3532	-0.0532	0.0847	4.5	0.0837	0.0595	-0.0105
1.3	0.3072	0.0054	0.0519	4.6	0.0813	0.0615	-0.0129
1.4	0.2698	0.0625	0.0112	4.7	0.0792	0.0627	-0.0146
1.5	0.2408	0.1111	-0.03	4.8	0.0775	0.0628	-0.0154
1.6	0.2195	0.146	-0.0647	4.9	0.076	0.0619	-0.0152
1.7	0.2046	0.1647	-0.0877	5.0	0.0748	0.0601	-0.0141
1.8	0.1948	0.1674	-0.0967	5.1	0.0737	0.0577	-0.0124
1.9	0.1884	0.1566	-0.0924	5.2	0.0727	0.0549	-0.0103
2.0	0.1841	0.1367	-0.0778	5.3	0.0717	0.0523	-0.0082
2.1	0.1805	0.1127	-0.0574	5.4	0.0707	0.05	-0.0063
2.2	0.1767	0.0893	-0.0359	5.5	0.0696	0.0483	-0.005
2.3	0.1722	0.0701	-0.017	5.6	0.0684	0.0472	-0.0043
2.4	0.1666	0.057	-0.0033	5.7	0.0671	0.0469	-0.0042
2.5	0.16	0.0509	0.0041	5.8	0.0657	0.0471	-0.0047
2.6	0.1527	0.051	0.0054	5.9	0.0643	0.0477	-0.0055
2.7	0.1451	0.0559	0.0019	6.0	0.0629	0.0485	-0.0065
2.8	0.1376	0.0636	-0.0047	6.1	0.0617	0.0491	-0.0075
2.9	0.1306	0.0723	-0.0128	6.2	0.0605	0.0495	-0.0082
3.0	0.1243	0.0802	-0.0207	6.3	0.0594	0.0494	-0.0085
3.1	0.1189	0.0860	-0.0271	6.4	0.0585	0.0489	-0.0084
3.2	0.1146	0.0889	-0.0311	6.5	0.0577	0.0479	-0.0079

Table III-2 : Z_0 , Z_1 et Z_2 en fonction de x.

Table III-2 : Z_0 , Z_1 et Z_2 en fonction de x .

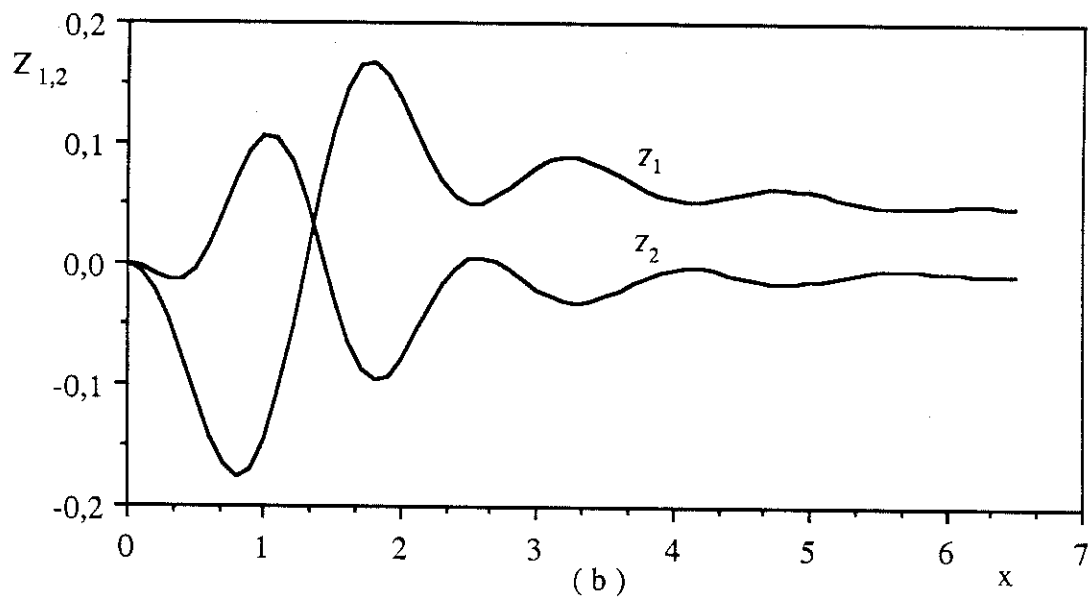
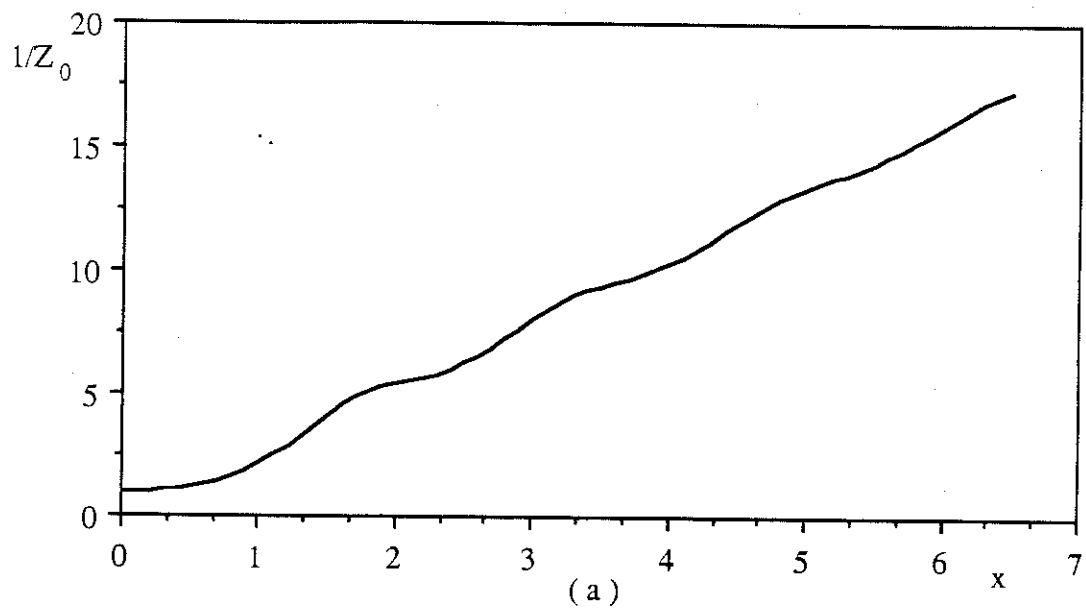


Fig. III-5 : a : $1/Z_0$ b : Z_1 et Z_2 en fonction de x

B - LE FACTEUR D'EXTINCTION y_p POUR UNE SPHERE : CAS GÉNÉRAL

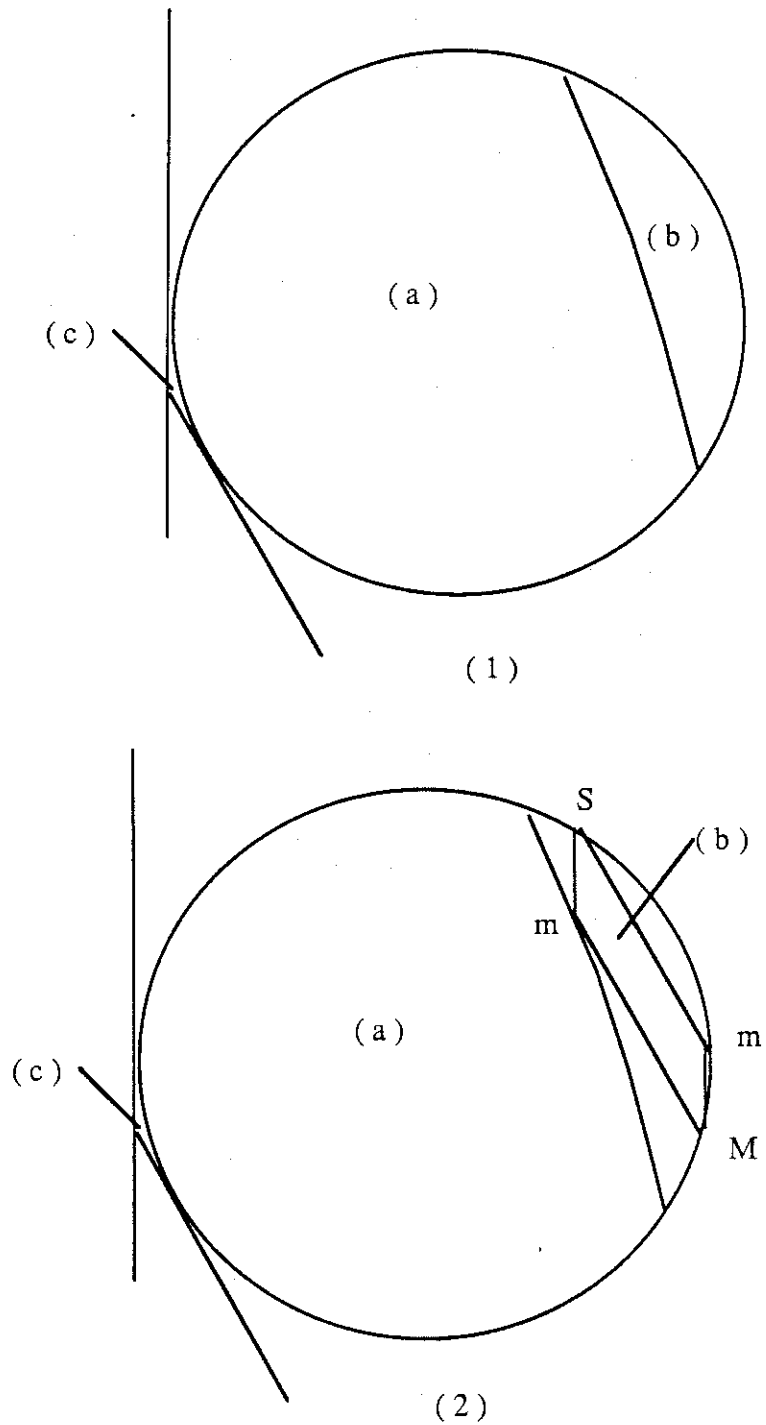


Fig. III-6 : ♦ Les trois régions correspondantes aux trois configurations possibles de diffraction par un cristal sphérique.

♦ La limite entre la région (a) et (b) : quand m est sur cette limite, m' doit être sur la sphère.

Si $D_h(b, 1)$ est l'amplitude de l'onde diffractée calculée dans le cas (1) et $D_h(b, 2)$ celle calculée dans le cas (2), on considère que l'amplitude d'onde diffractée pour la sphère dans la région b , $D_h(b)$, est la moyenne des amplitudes $D_h(b, 1)$ et $D_h(b, 2)$:

$$D_h(b) = \frac{1}{2} (D_h(b, 1) + D_h(b, 2)) \quad (\text{III-18})$$

On s'approche de plus en plus de la valeur exacte si on augmente le nombre n des segments entre n_1 et n_2 .

On utilise comme test de convergence la quantité suivante :

$$\begin{aligned} \Delta &= \frac{1}{2} (|D_h(b, 1)|^2 + |D_h(b, 2)|^2) - \frac{1}{4} |D_h(b, 1) + D_h(b, 2)|^2 \\ &= \frac{1}{4} |D_h(b, 1) - D_h(b, 2)|^2 \end{aligned} \quad (\text{III-19})$$

On augmente n jusqu'à avoir : $\Delta \leq 2.10^{-4}$

Nous adaptons la même méthode pour calculer l'amplitude d'onde diffractée $D_h(c)$ quand le point m est dans la région c .

L'amplitude de l'onde diffractée $D_h(a)$ quand le point m est dans la région (a) est donnée par la relation (III-6a).

Donc le facteur d'extinction pour un cristal parfait de forme sphérique (appelons la y_{AB}) peut être calculé par la relation suivante :

$$y_{AB} = \frac{3}{4\pi\chi^2} \left[\int_{v_a} |D_h(a)|^2 dv + \int_{v_b} |D_h(b)|^2 dv + \int_{v_c} |D_h(c)|^2 dv \right] \quad (\text{III-20})$$

où v_a , v_b et v_c sont respectivement les volumes des régions a , b et c .

(la méthode de Gauss est utilisée pour 16 points dans chaque direction $\vec{x}$, $\vec{y}$ et $\vec{z}$).

Tout comme on le fait pour y_p , on représente y_{AB} par un polynôme, en utilisant la méthode de moindre carré :

$$y_{AB} = Z_0(x) + Z_1(x) \sin^2 \theta + Z_2(x) \sin^4 \theta \quad (\text{III-21})$$

où Z_0 , Z_1 et Z_2 sont données par la table III-3, l'erreur relative étant inférieure à 1%.

Dans le Fig. III-8, nous comparons les fonctions Z'_1 et Z'_2 avec les fonctions Z_1 et Z_2 , on remarque Z_1 et Z_2 tendent respectivement vers Z'_1 et Z'_2 quand x augmente. Par contre quelle que soit x , $Z_0 \sim Z'_0 \sim y_0$.

x	Z'_0	Z'_1	Z'_2	x	Z'_0	Z'_1	Z'_2
0.0	1.0000	0.0000	0.0000	3.3	0.1109	0.1369	-0.0645
0.1	0.9921	-0.0081	0.0090	3.4	0.1082	0.1333	-0.0663
0.2	0.9689	-0.0317	0.0359	3.5	0.1061	0.1263	-0.0630
0.3	0.9314	-0.0659	0.0760	3.6	0.1044	0.1176	-0.0570
0.4	0.8815	-0.1098	0.1349	3.7	0.1028	0.1080	-0.0490
0.5	0.8218	-0.1571	0.2110	3.8	0.1011	0.0984	-0.0400
0.6	0.7548	-0.2017	0.2994	3.9	0.0993	0.0891	-0.0292
0.7	0.6834	-0.2350	0.3889	4.	0.0972	0.0821	-0.0211
0.8	0.6106	-0.2504	0.4673	4.1	0.0948	0.0782	-0.0168
0.9	0.5391	-0.2429	0.5218	4.2	0.0922	0.0766	-0.0159
1.	0.4711	-0.2093	0.5398	4.3	0.0894	0.0776	-0.0192
1.1	0.4089	-0.1515	0.5161	4.4	0.0866	0.0799	-0.0236
1.2	0.3539	-0.0747	0.4514	4.5	0.0839	0.0830	-0.0303
1.3	0.3069	0.0133	0.3531	4.6	0.0815	0.0861	-0.0375
1.4	0.2686	0.1024	0.2344	4.7	0.0793	0.0886	-0.0439
1.5	0.2386	0.1830	0.1110	4.8	0.0775	0.0888	-0.0466
1.6	0.2164	0.2456	0.0000	4.9	0.0760	0.0875	-0.0466
1.7	0.2009	0.2850	-0.0860	5.	0.0748	0.0848	-0.0444
1.8	0.1907	0.3006	-0.1414	5.1	0.0737	0.0801	-0.0394
1.9	0.1842	0.2937	-0.1637	5.2	0.0729	0.0749	-0.0333
2.	0.1802	0.2697	-0.1586	5.3	0.0720	0.0692	-0.0261
2.1	0.1772	0.2345	-0.1323	5.4	0.0710	0.0650	-0.0215
2.2	0.1742	0.1968	-0.0973	5.5	0.0700	0.0604	-0.0155
2.3	0.1704	0.1617	-0.0613	5.6	0.0686	0.0643	-0.0291
2.4	0.1656	0.1342	-0.0321	5.7	0.0673	0.0627	-0.0276
2.5	0.1596	0.1165	-0.0133	5.8	0.0659	0.0626	-0.0289
2.6	0.1527	0.1083	-0.0056	5.9	0.0645	0.0636	-0.0313
2.7	0.1453	0.1086	-0.0084	6.	0.0631	0.0652	-0.0351
2.8	0.1378	0.1128	-0.0154	6.1	0.0617	0.0657	-0.0353
2.9	0.1307	0.1206	-0.0274	6.2	0.0604	0.0668	-0.0376
3.	0.1244	0.1285	-0.0409	6.3	0.0593	0.0664	-0.0366
3.1	0.1189	0.1341	-0.0509	6.4	0.0583	0.0654	-0.0341
3.2	0.1144	0.1368	-0.0589	6.5	0.0576	0.0628	-0.0293

Table III-3 : Les fonctions Z'_0 , Z'_1 et Z'_2 en fonction de x

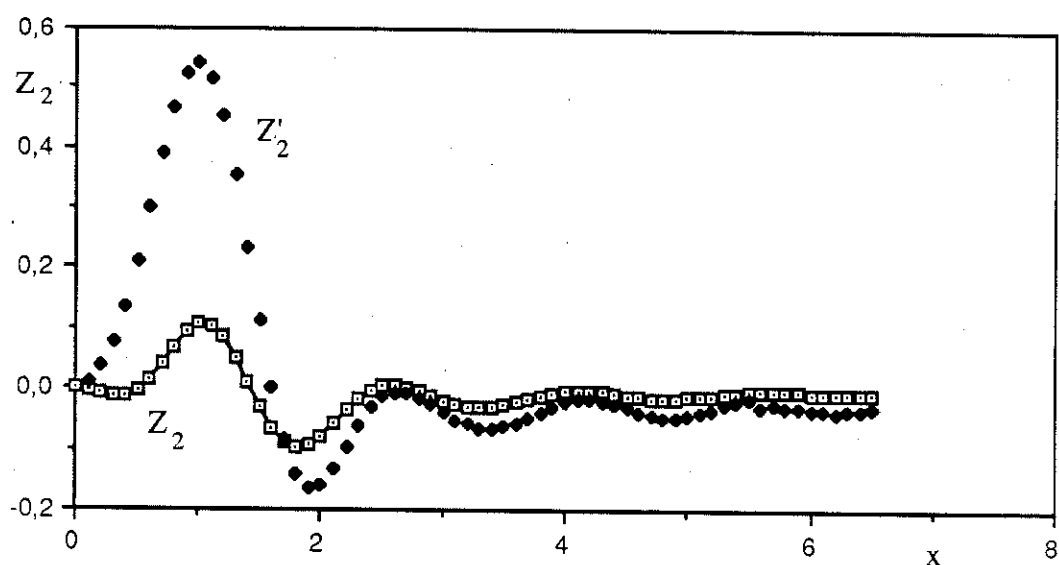
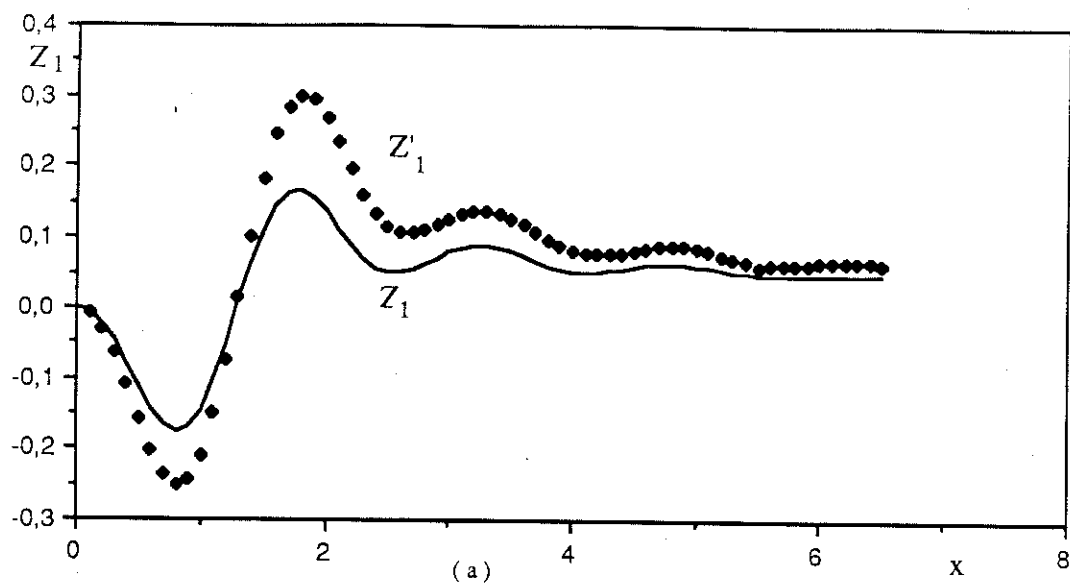


Fig. III-8 : a : $Z_1 \sim Z'_1$ b : $Z_2 \sim Z'_2$ en fonction de x

Il resterait à étudier le même problème pour un cristal absorbant, donc au voisinage d'un seuil du composé. Ceci peut être d'une grande importance pour des mesures en longueur d'onde variable sur anneau de rayonnement synchrotron.

L'intérêt de ce travail, et de l'article présenté en annexe, est multiple. Tout d'abord il permet une approche précise de la puissance intégrée pour un cristal parfait de forme à peu près isotrope. D'autre part, il amène à discuter d'approches numériques qui seront reprises lors du calcul du facteur d'extinction dans le cas d'un cristal réel (voir dernier chapitre).

ARTICLE

" *EXTINCTION IN FINITE PERFECT CRYSTALS : CASE OF A SPHERE* "

Acta Cryst. (1989). A45, Accepté

EXTINCTION IN FINITE PERFECT CRYSTALS : CASE OF A SPHERE

M. AL HADDAD* and P. BECKER+

Laboratoire de Cristallographie, associé à l'Université J. Fourier,
C.N.R.S., 166 X, 38042 Grenoble, FRANCE

ABSTRACT

The extinction factor in finite perfect crystals is calculated from pure dynamical theory. In particular, a detailed solution is proposed for a sphere, in which case the extinction factor depends on the Bragg angle θ and the parameter (R/Λ) , where R is the radius of the crystal and Λ the extinction length. An approximate solution based on the Laue geometry is proposed and corrections to take care of the complex boundary conditions are presented. An expression easily usable in refinement programs is proposed, that fits the exact value to better than 1%.

INTRODUCTION

Two main difficulties are encountered when developing a model for extinction. The major one is to decide for a coupling scheme between coherent and incoherent contributions to the diffracted intensity. A model based on purely incoherent intensities has been developed by BECKER and COPPENS (1974, 1975), which essentially corresponds to the assumption of pure "secondary extinction". To go beyond this approach, KATO (1980) has developed a statistical dynamical theory for the propagation of X rays or neutrons in a distorted crystal. In this new approach, the separation between coherent and incoherent components to the intensity is rather subtle, which shows that "secondary" and "primary" extinction are not independent concepts and that the celebrated mosaic model is invalid. The present authors have reformulated KATO's ideas in a more general way (AL HADDAD and BECKER, 1988. BECKER and AL HADDAD,

* Permanent address: Atomic Energy Commission, Po Box 6091, Damascus, Syria.

+ Present address: Laboratoire de Minéralogie et Cristallographie, Université Pierre & Marie Curie
Tour 16, 4 place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05, France.

1989 a, b. see also GUIGAY, 1989). This statistical theory contains the purely incoherent coupling as one limiting case. At the one limit, one also retrieves the purely coherent or dynamical theory, that corresponds to "primary extinction by a perfect crystal".

The second difficulty has to do with the geometrical boundaries imposed by the sample under study. All known propagation equations have a well defined solution for an infinite parallel plate in the transmission geometry. Most crystals under study in X Ray or neutron crystallography have a rather regular shape, leading to very intricate boundary conditions. A useful approach consists in approximating the sample by a sphere, and then introducing some modifications to take the anisotropy of the crystal shape into account (BECKER and COPPENS, 1974, 1975). The detailed solution for a polyhedral sample has been also considered (BECKER and DUNSTETTER, 1984) and the validity of simple geometrical approximations was discussed.

In the present paper, we intend to solve the case of a perfect crystal for an isotropic sample approximated by a sphere. The geometrical boundary will thus be the essential difficulty in studying the propagation of the wave fields in the incident and diffracted directions.

PROPAGATION EQUATIONS, BOUNDARY CONDITIONS, EXTINCTION FACTOR

On fig. 1, we present the geometry of scattering on a plane that is a section of the crystal.

The portion of the crystal excited by the incident beam in the $\vec{u}_0$ direction is $\widehat{ACB}$. The portion where diffracted beam ($\vec{u}_h$ direction) exits is $\widehat{DBC}$. The entrance and exit surfaces overlap by the portion $\widehat{CB}$, and this is the cause of the difficulties due to the boundary. Let S be a point on the entrance surface, and M a point on the exit surface. To the couple (S, M) is associated a unique point m and we define the two optical path lengths, s_0 and s_h as $s_0 = \overline{Sm}$, $s_h = \overline{mM}$. s_0 and s_h are therefore coordinates along the axes $\vec{u}_0$ and $\vec{u}_h$.

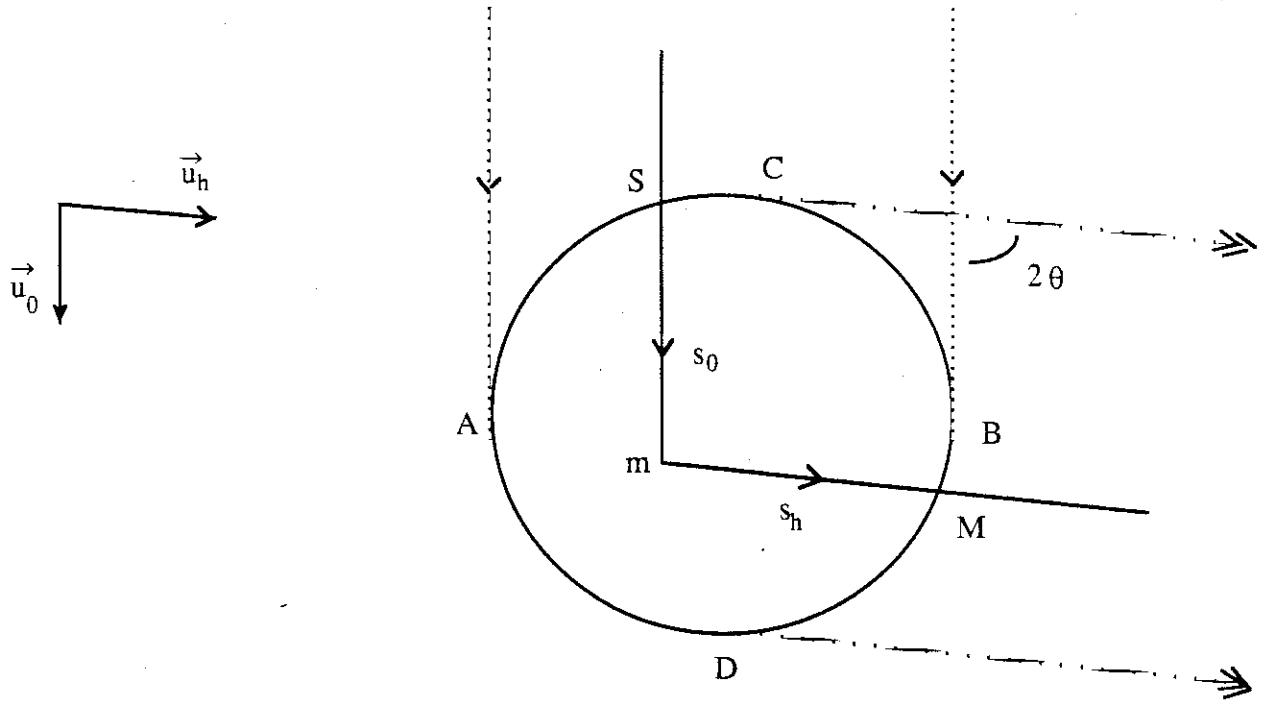


Fig. 1 : geometry of the scattering $S_0 \vec{m} = s_0 \quad m \vec{M} = s_h$

Let D_0 and D_h be the amplitudes of the waves propagating along the incident and diffracted directions respectively. In the case of a perfect crystal, in the two beam case, the propagation is governed by Takagi-Taupin's equations (KATO, 1973–1976).

$$\begin{aligned} \frac{\partial D_0}{\partial s_0} &= i \chi_h^- D_h \\ \frac{\partial D_h}{\partial s_h} &= i \chi_h D_0 \end{aligned} \quad (1)$$

where for neutrons :

$$\begin{aligned} \chi_h &= \frac{\lambda}{V} a F(\vec{h}) & \chi_h^- &= \frac{\lambda}{V} a F(-\vec{h}) \\ a &= 10^{-12} \text{cm} \end{aligned} \quad (2)$$

and for X Rays :

$$\begin{aligned} \chi_h &= \frac{\lambda}{V} r_0 C F(\vec{h}) & \chi_h^- &= \frac{\lambda}{V} r_0 C F(-\vec{h}) \end{aligned} \quad (3)$$

with F being the structure factor, λ the wave length, V the unit cell volume, r_0 the classical radius of the electron, C the polarisation factor.

Notice that the coefficients χ_h and χ_{-h} are not the Fourier coefficients of the microscopic susceptibility.

The following strategy has been proposed to solve equations (1) for a given sample (KATO, 1976–BECKER, 1977 – BECKER and DUNSTETTER, 1984).

One first considers the scattering originating from a point source S on the entrance surface $\widehat{ACB}$, with a unit intensity. The incident beam is thus characterized by :

$$D_0^0 = \delta(s_h) \quad (4)$$

One then calculates the diffracted intensity $I_h(S \rightarrow M)$ at the exit point M , originating from S . The couple (S, M) of points can be replaced by a point m within the "extended" domain $AEDBCA$, defined in figure 2.

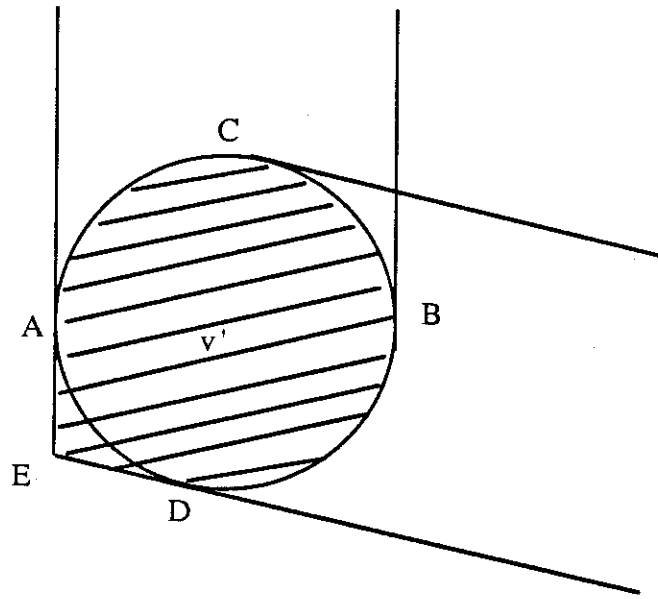


Fig. 2. : Definition of the volume v' for variation of m , as the shaded domain $AEDBCA$.

One can show (KATO, 1976 – BECKER, 1977), for a crystal illuminated by an homogeneous beam or a plane wave, that the integrated diffracted power is given by :

$$P = \frac{\lambda}{\sin 2\theta} \int_{v'} dv_m I_h(m) \quad (5)$$

where

$$I_h(m) = I_h(S \rightarrow M) = |D_h(m)|^2 \quad (6)$$

(5) is obtained by varying the exit and entrance points successively.

In the kinematic approximation (simple scattering), the diffracted power becomes :

$$P_k = \frac{\lambda}{\sin 2\theta} |\chi_h|^2 \cdot v \quad (7)$$

where v is the volume of the crystal.

The extinction factor is defined by :

$$P = P_k \cdot y \quad (8)$$

and for a perfect finite crystal, y is normally given by :

$$y = \frac{1}{|\chi_h|^2 v} \int_{v'} dv_m I_h(m) \quad (9)$$

In the general case of an absorbing crystal, $\chi_h^- \neq \chi_h^*$, which leads to anomalous scattering and anomalous absorption. We will not consider this case here, and we will devote our effort to the case of a perfect non absorbing crystal.

APPROXIMATE SOLUTION IN THE LAUE APPROXIMATION

In order to evaluate (5) or (9), it is necessary to obtain $D_h(m)$ for any point m within the domain v' . Three basic configurations can be encountered, shown of Fig. 3.

In the case of configuration (I), the entire parallelogram $SmMm'$ belongs to the crystal : it is the pure Laue case. In contrast, for configurations (II) and (III), $SmMm'$ has a finite intersection with the crystal surface and this corresponds to a mixed Laue-Bragg situation.

It has been shown (BECKER and COPPENS, 1974) that for small scattering angles, case (I) is the only relevant situation. The corrections due to cases (II) and (III) only become important for large angles of diffraction. The problem has been discussed by KAWAMURA and KATO (1983) and BECKER and DUNSTETTER (1984): taking cases (II) and (III) into account is possible, but leads to complicated calculations. Most applications of extinction theories have been restricted to approximations which discard configurations like (II) and (III). In this paper, we shall start by developing the same kind of approximation and we shall later consider the corrections implied by a more exact treatment.

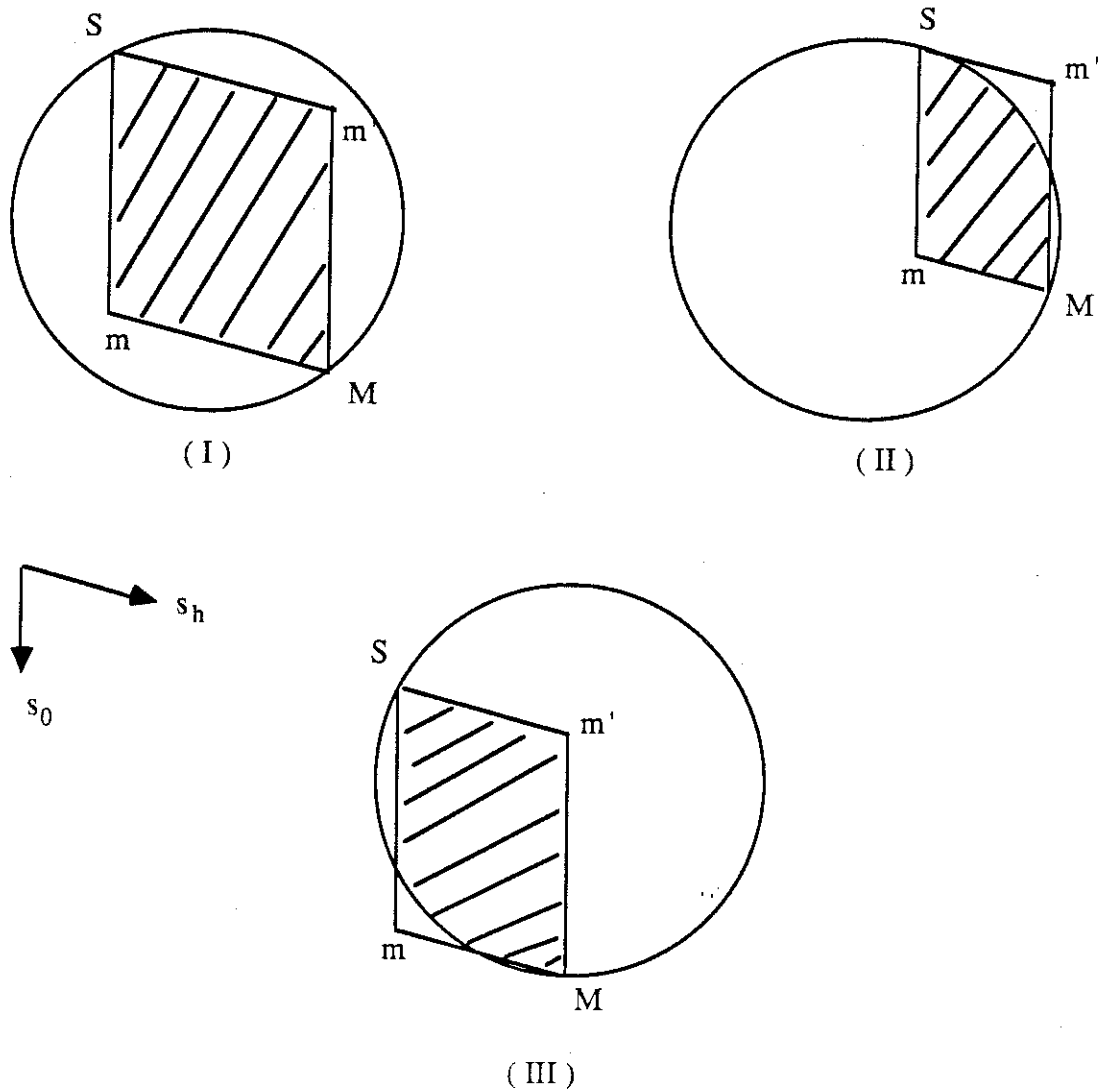


Fig. 3. The three basic geometrical configurations for scattering

In this section, we therefore assume that (I) is the only situation and therefore we must replace v' by the crystal volume v .

Solving (1) with the boundary condition (4) leads to :

$$D_h = i \chi_h J_0 \left[2 \chi \sqrt{s_0 s_h} \right] \quad (10)$$

where $\chi^2 = \chi_h \chi_{\bar{h}}$

J_0 is a zero order Bessel function.

The extinction factor is :

$$y_p = \frac{1}{v} \int_v \left| J_0 \left(2 \chi \sqrt{s_0 s_h} \right) \right|^2 dv \quad (11)$$

for a non absorbing crystal.

In the case of a sphere of radius R , we define the parameter :

$$x = R \chi = R/\Lambda \quad (12)$$

One gets :

$$y_p = \frac{3}{4\pi} \int_{R=1} \left| J_0 \left(2 x \sqrt{s_0 s_h} \right) \right|^2 dv \quad (13)$$

where the integral is now over a sphere of unit radius. (13) is computed, for each x and θ , by a Gaussian quadrature with 16 points in each dimension. The results for $1/y_p$ versus x , for different values of $\sin \theta$, are shown on Fig. 4, and numerical...

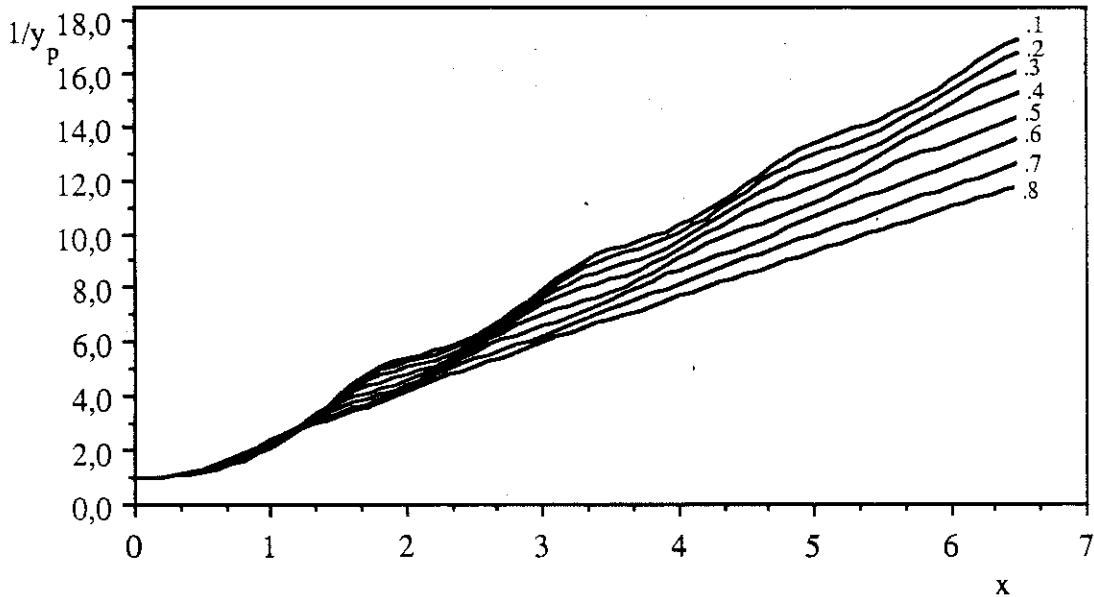


Fig. 4 : $1/y_p$ as a function of x , for different $\sin \theta$ values.

and numerical values are given in Table 1 :

$\sin \theta$	0.05	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8
X									
0.0	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000
0.1	0.9920	0.9920	0.9918	0.9915	0.9911	0.9905	0.9898	0.9888	0.9876
0.2	0.9685	0.9683	0.9677	0.9666	0.9650	0.9627	0.9598	0.9561	0.9516
0.3	0.9306	0.9303	0.9289	0.9266	0.9231	0.9185	0.9124	0.9049	0.8957
0.4	0.8803	0.8797	0.8775	0.8737	0.8681	0.8605	0.8510	0.8393	0.8254
0.5	0.8199	0.8191	0.8160	0.8106	0.8028	0.7926	0.7798	0.7647	0.7472
0.6	0.7524	0.7514	0.7474	0.7407	0.7310	0.7186	0.7036	0.6864	0.6674
0.7	0.6808	0.6796	0.6750	0.6671	0.6563	0.6427	0.6269	0.6096	0.5917
0.8	0.6080	0.6067	0.6017	0.5934	0.5821	0.5686	0.5537	0.5386	0.5242
0.9	0.5369	0.5356	0.5306	0.5224	0.5117	0.4995	0.4872	0.4762	0.4672
1.0	0.4700	0.4687	0.4640	0.4566	0.4474	0.4379	0.4297	0.4240	0.4212
1.1	0.4091	0.4080	0.4040	0.3979	0.3911	0.3853	0.3820	0.3821	0.3853
1.2	0.3556	0.3548	0.3517	0.3475	0.3437	0.3422	0.3442	0.3497	0.3576
1.3	0.3104	0.3098	0.3079	0.3059	0.3054	0.3083	0.3152	0.3250	0.3359
1.4	0.2734	0.2732	0.2726	0.2729	0.2758	0.2828	0.2935	0.3061	0.3180
1.5	0.2445	0.2445	0.2452	0.2478	0.2538	0.2641	0.2773	0.2909	0.3022
1.6	0.2227	0.2230	0.2249	0.2294	0.2380	0.2505	0.2648	0.2777	0.2874
1.7	0.2069	0.2075	0.2104	0.2165	0.2268	0.2404	0.2543	0.2654	0.2733
1.8	0.1959	0.1967	0.2003	0.2075	0.2188	0.2322	0.2445	0.2534	0.2598
1.9	0.1883	0.1893	0.1933	0.2011	0.2124	0.2248	0.2348	0.2415	0.2472
2.0	0.1830	0.1839	0.1881	0.1959	0.2066	0.2172	0.2247	0.2298	0.2357
2.1	0.1787	0.1796	0.1837	0.1911	0.2007	0.2090	0.2143	0.2187	0.2255
2.2	0.1746	0.1755	0.1793	0.1860	0.1940	0.2002	0.2039	0.2086	0.2166
2.3	0.1702	0.1709	0.1743	0.1801	0.1866	0.1909	0.1940	0.1996	0.2087
2.4	0.1650	0.1657	0.1686	0.1735	0.1785	0.1816	0.1849	0.1919	0.2017
2.5	0.1591	0.1596	0.1621	0.1662	0.1701	0.1726	0.1768	0.1853	0.1953
2.6	0.1525	0.1529	0.1550	0.1585	0.1617	0.1644	0.1700	0.1795	0.1891
2.7	0.1455	0.1459	0.1477	0.1509	0.1538	0.1571	0.1643	0.1743	0.1831
2.8	0.1384	0.1387	0.1405	0.1435	0.1466	0.1511	0.1595	0.1693	0.1772
2.9	0.1315	0.1318	0.1336	0.1369	0.1404	0.1461	0.1554	0.1645	0.1717
3.0	0.1251	0.1255	0.1275	0.1310	0.1353	0.1421	0.1516	0.1596	0.1664
3.1	0.1195	0.1199	0.1222	0.1262	0.1311	0.1387	0.1478	0.1547	0.1616
3.2	0.1147	0.1153	0.1178	0.1222	0.1277	0.1358	0.1440	0.1500	0.1572
3.3	0.1109	0.1115	0.1143	0.1190	0.1250	0.1330	0.1400	0.1455	0.1532
3.4	0.1078	0.1085	0.1116	0.1165	0.1226	0.1301	0.1359	0.1413	0.1495
3.5	0.1054	0.1061	0.1094	0.1143	0.1202	0.1269	0.1318	0.1375	0.1460
3.6	0.1035	0.1042	0.1075	0.1122	0.1178	0.1236	0.1278	0.1341	0.1426
3.7	0.1018	0.1025	0.1057	0.1102	0.1152	0.1200	0.1240	0.1310	0.1393
3.8	0.1002	0.1008	0.1038	0.1079	0.1123	0.1164	0.1206	0.1282	0.1360
3.9	0.0984	0.0990	0.1018	0.1054	0.1093	0.1128	0.1177	0.1255	0.1328
4.0	0.0965	0.0970	0.0995	0.1027	0.1061	0.1094	0.1151	0.1228	0.1298
4.1	0.0943	0.0948	0.0970	0.0998	0.1029	0.1064	0.1128	0.1201	0.1270
4.2	0.0919	0.0923	0.0943	0.0968	0.0999	0.1038	0.1107	0.1175	0.1243
4.3	0.0893	0.0897	0.0916	0.0939	0.0971	0.1015	0.1087	0.1148	0.1219
4.4	0.0866	0.0870	0.0888	0.0912	0.0946	0.0996	0.1067	0.1122	0.1195
4.5	0.0840	0.0844	0.0862	0.0887	0.0925	0.0979	0.1046	0.1098	0.1173
4.6	0.0815	0.0819	0.0838	0.0865	0.0906	0.0964	0.1024	0.1076	0.1151
4.7	0.0793	0.0797	0.0817	0.0847	0.0891	0.0948	0.1002	0.1056	0.1129
4.8	0.0773	0.0778	0.0799	0.0832	0.0877	0.0933	0.0979	0.1037	0.1108
4.9	0.0756	0.0761	0.0784	0.0818	0.0864	0.0916	0.0957	0.1020	0.1088
5.0	0.0743	0.0748	0.0772	0.0807	0.0851	0.0898	0.0937	0.1003	0.1069
5.1	0.0731	0.0737	0.0761	0.0796	0.0837	0.0879	0.0918	0.0987	0.1050
5.2	0.0721	0.0727	0.0751	0.0785	0.0822	0.0859	0.0902	0.0970	0.1032
5.3	0.0712	0.0718	0.0741	0.0773	0.0806	0.0840	0.0887	0.0954	0.1016
5.4	0.0703	0.0708	0.0731	0.0760	0.0789	0.0822	0.0874	0.0937	0.0999
5.5	0.0694	0.0699	0.0719	0.0746	0.0772	0.0806	0.0862	0.0920	0.0983
5.6	0.0683	0.0688	0.0707	0.0730	0.0755	0.0791	0.0850	0.0905	0.0968
5.7	0.0672	0.0676	0.0693	0.0715	0.0739	0.0778	0.0837	0.0890	0.0952
5.8	0.0659	0.0663	0.0679	0.0699	0.0724	0.0767	0.0824	0.0876	0.0937
5.9	0.0646	0.0649	0.0664	0.0684	0.0711	0.0757	0.0811	0.0863	0.0922
6.0	0.0632	0.0635	0.0650	0.0670	0.0699	0.0747	0.0797	0.0850	0.0908
6.1	0.0618	0.0621	0.0637	0.0657	0.0689	0.0738	0.0783	0.0838	0.0895
6.2	0.0605	0.0608	0.0624	0.0646	0.0680	0.0728	0.0770	0.0826	0.0882
6.3	0.0594	0.0597	0.0614	0.0637	0.0672	0.0717	0.0758	0.0814	0.0870
6.4	0.0583	0.0586	0.0604	0.0628	0.0664	0.0706	0.0747	0.0802	0.0859
6.5	0.0574	0.0577	0.0596	0.0620	0.0655	0.0694	0.0736	0.0789	0.0848

Table 1. $y_p(x, \sin \theta)$ as the result of the Gaussian integration.

y_p must be invariant by an interchange of $(\vec{u}_0, \vec{u}_h)$ into $(-\vec{u}_h, -\vec{u}_0)$: therefore y_p is an even function of $\sin \theta$. The variation of y_p with $\sin \theta$, for a fixed x , is shown on Fig. 5 :

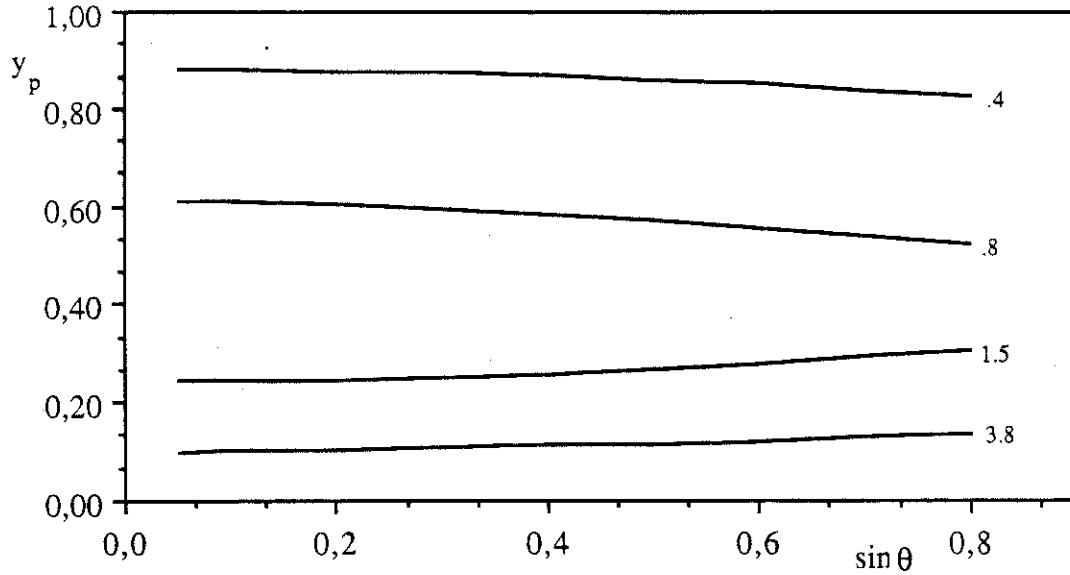


Fig. 5. $y_p(\sin \theta)$ for different values of x .

We conclude that the variation with θ is smooth, which suggests to do the expansion :

$$y_p = y_0(x) + \sin^2(\theta) y_1(x) + \sin^4(\theta) y_2(x) + \dots \quad (14)$$

It can be shown by lengthy but elementary algebra that :

$$y_0(x) = \frac{3}{2} \left\{ \int_0^1 J_0(4xt) dt - \int_0^1 t^2 J_0(4xt) dt \right\}$$

$$y_1(x) = 6x^2 \left\{ \int_0^1 [t^2 - t^4 + 2t^2 \ln t] J_0(4xt) dt \right\} \quad (15)$$

the expression for y_2 being more complicated.

If the expansion is limited at order 4 in $\sin \theta$, the relative error on y_p can be of the order 3 to 5% for large x and $\sin \theta$ values. It seems thus more appropriate to fit $y_p(x, \sin \theta)$ by the expression :

$$Z(x, \sin \theta) = Z_0(x) + \sin^2 \theta Z_1(x) + \sin^4(\theta) Z_2(x) \quad (16)$$

Where Z_0, Z_1, Z_2 are obtained numerically, for a given x , by a least squares fit over $\sin \theta$ values. For $x < 8$ and $\sin \theta < 0.8$, the relative error $|\frac{y_p - Z}{y_p}|$ is always smaller than 1%.

Moreover, $Z_0(x)$ is equal to $y_0(x)$. The functions Z_0, Z_1, Z_2 are tabulated in table 2, and their variation with x is shown on Fig. 6.

X	Z ₀	Z ₁	Z ₂	X	Z ₀	Z ₁	Z ₂
0.0	1.0000	0.0000	0.0000	3.3	0.1112	0.0888	-0.0323
0.1	0.9922	-0.0055	-0.0024	3.4	0.1085	0.0857	-0.0308
0.2	0.9687	-0.0214	-0.0080	3.5	0.1065	0.0805	-0.0270
0.3	0.9309	-0.0463	-0.0132	3.6	0.1047	0.0740	-0.0217
0.4	0.8807	-0.0776	-0.0132	3.7	0.1030	0.0672	-0.0159
0.5	0.8206	-0.1113	-0.0044	3.8	0.1012	0.0610	-0.0104
0.6	0.7532	-0.1427	0.0143	3.9	0.0992	0.0563	-0.0061
0.7	0.6816	-0.1661	0.0406	4.0	0.0970	0.0533	-0.0034
0.8	0.6086	-0.1766	0.0693	4.1	0.0945	0.0523	-0.0025
0.9	0.5371	-0.1706	0.0935	4.2	0.0918	0.0529	-0.0032
1.0	0.4694	-0.1465	0.1065	4.3	0.0890	0.0546	-0.0051
1.1	0.4076	-0.1060	0.1038	4.4	0.0863	0.0571	-0.0078
1.2	0.3532	-0.0532	0.0847	4.5	0.0837	0.0595	-0.0105
1.3	0.3072	0.0054	0.0519	4.6	0.0813	0.0615	-0.0129
1.4	0.2698	0.0625	0.0112	4.7	0.0792	0.0627	-0.0146
1.5	0.2408	0.1111	-0.0300	4.8	0.0775	0.0628	-0.0154
1.6	0.2195	0.1460	-0.0647	4.9	0.0760	0.0619	-0.0152
1.7	0.2046	0.1647	-0.0877	5.0	0.0748	0.0601	-0.0141
1.8	0.1948	0.1674	-0.0967	5.1	0.0737	0.0577	-0.0124
1.9	0.1884	0.1566	-0.0924	5.2	0.0727	0.0549	-0.0103
2.0	0.1841	0.1367	-0.0778	5.3	0.0717	0.0523	-0.0082
2.1	0.1805	0.1127	-0.0574	5.4	0.0707	0.0500	-0.0063
2.2	0.1767	0.0893	-0.0359	5.5	0.0696	0.0483	-0.0050
2.3	0.1722	0.0701	-0.0170	5.6	0.0684	0.0472	-0.0043
2.4	0.1666	0.0570	-0.0033	5.7	0.0671	0.0469	-0.0042
2.5	0.1600	0.0509	0.0041	5.8	0.0657	0.0471	-0.0047
2.6	0.1527	0.0510	0.0054	5.9	0.0643	0.0477	-0.0055
2.7	0.1451	0.0559	0.0019	6.0	0.0629	0.0485	-0.0065
2.8	0.1376	0.0636	-0.0047	6.1	0.0617	0.0491	-0.0075
2.9	0.1306	0.0723	-0.0128	6.2	0.0605	0.0495	-0.0082
3.0	0.1243	0.0802	-0.0207	6.3	0.0594	0.0494	-0.0085
3.1	0.1189	0.0860	-0.0271	6.4	0.0585	0.0489	-0.0084
3.2	0.1146	0.0889	-0.0311	6.5	0.0577	0.0479	-0.0079

Table 2 : Z_0, Z_1, Z_2 as functions of x .

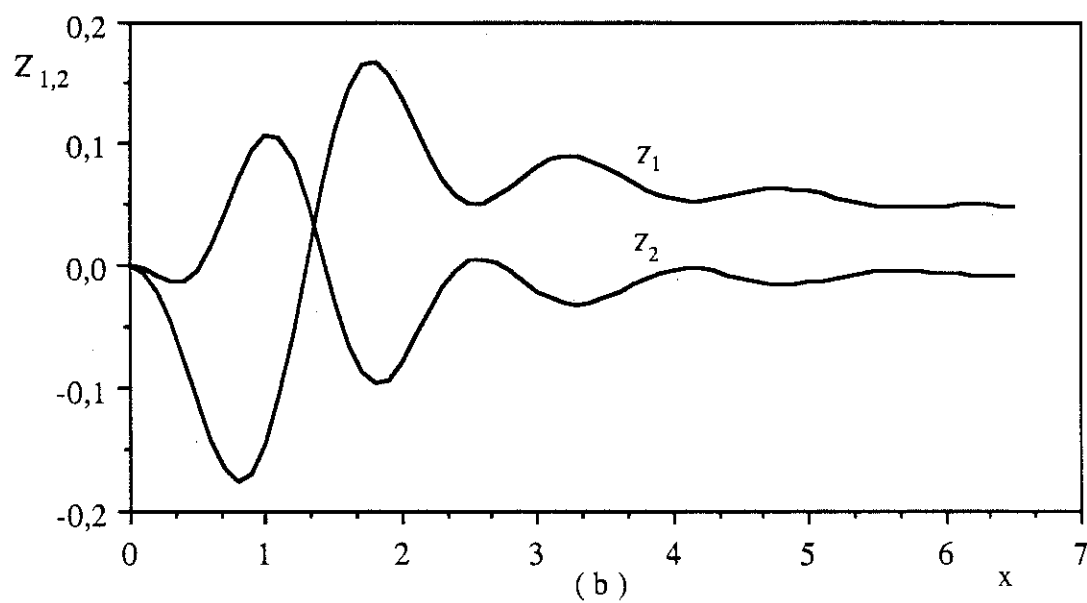
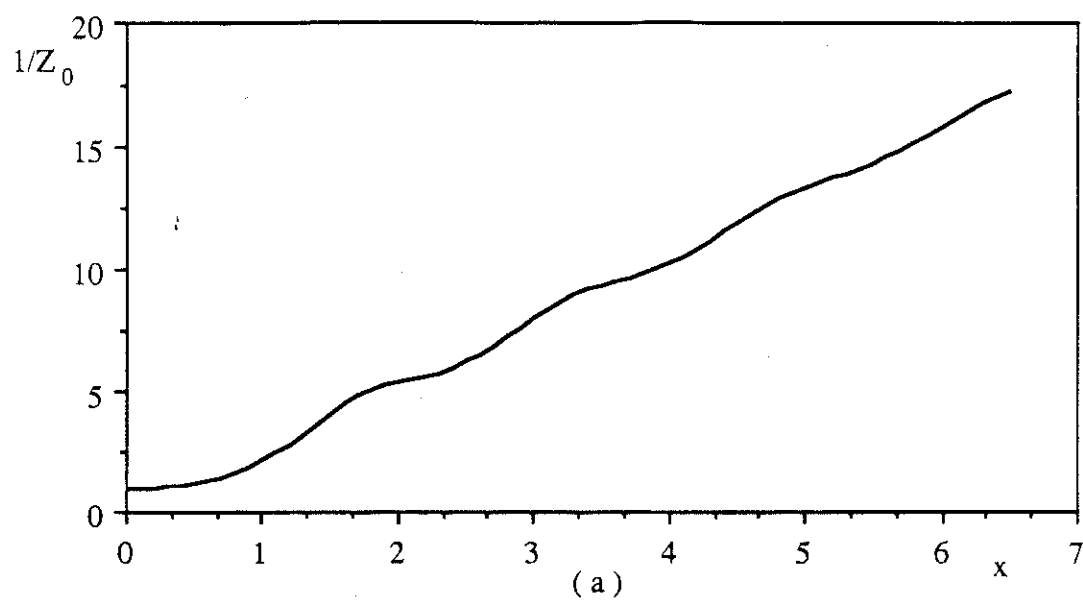


Fig. 6 $1/Z_0(x)$: a
 $Z_1(x), Z_2(x)$: b

(16) is therefore a fair approximation to the extinction factor, and can be easily incorporated in a refinement program.

Comparison with a perfect plate in the Laue geometry

It is interesting to compare the extinction factor for a sphere and a parallel plate of thickness l in the transmission geometry (fig. 7) :

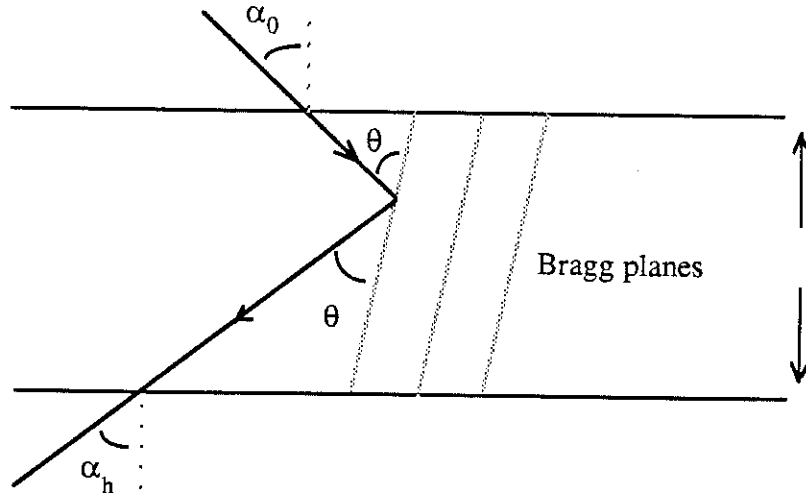


Fig. 7. : A parallel plate in transmission geometry : $\alpha_0 + \alpha_h = 2 \theta$

Let a and x be :

$$a = \frac{\chi l}{\sqrt{\cos \alpha_0 \cos \alpha_h}} \quad x = \chi l \quad (17)$$

A simple calculation gives :

$$y = \frac{1}{a} \int_0^a J_0(2u) du = \int_0^1 J_0(2at) dt \quad (18)$$

On Fig. 8a, we plot (x, y) as a function of x , for various Bragg angles, and for a symmetric case : $\alpha_0 = \alpha_h = \theta$. For comparison, we plot (x, y_p) for a sphere, for various values of the scattering angle (Fig. 8b).

It is apparent that the amplitude of the oscillations is strongly reduced in the case of a sphere, a consequence of the complicated boundary conditions for an incident plane wave.

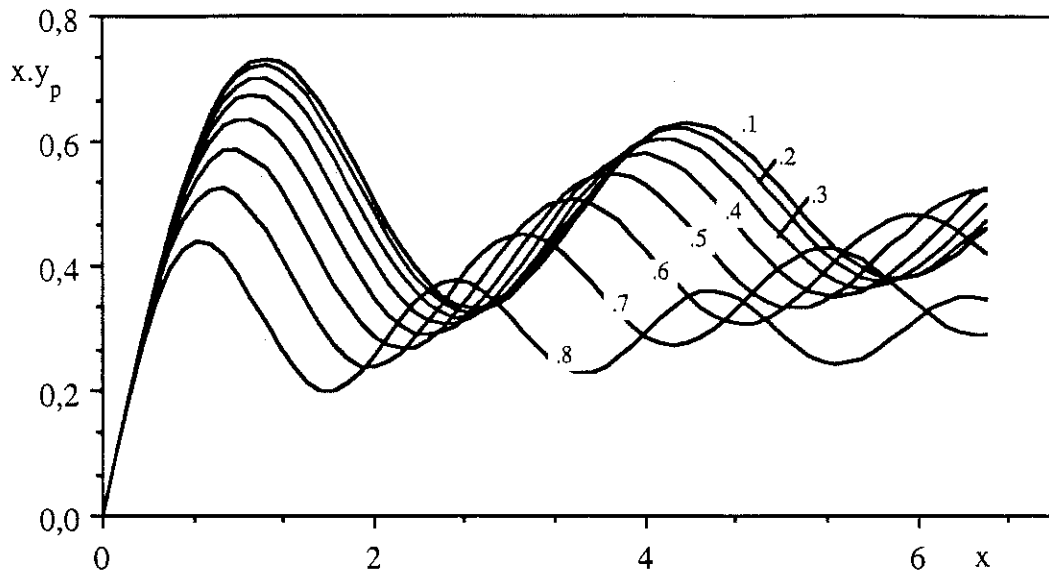


Fig. 8a. $x.y(x)$ for a plate, for different values of $\sin \theta$

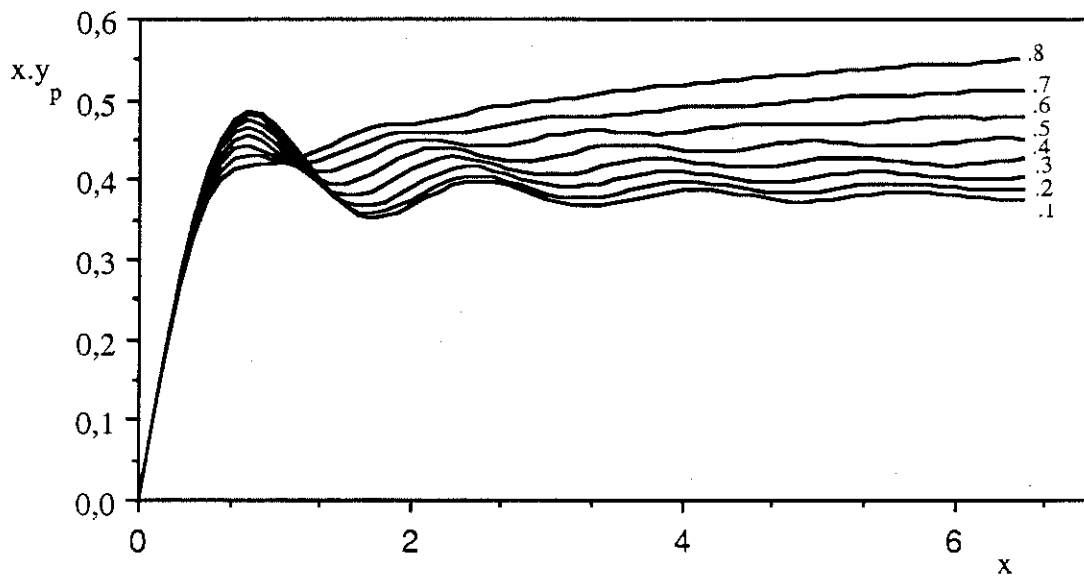


Fig. 8b. $x.y_p(x)$ for a sphere, for different values of $\sin \theta$

Comparison with BECKER-COPPENS approximation

BECKER and COPPENS (1974) proposed an approximation for the primary extinction in a spherical block, based of course on intensity coupling, and therefore physically questionable. For two values of $\sin \theta$, we compare in Fig. 9 : $1/y_p$ with

$1/y_{BC}$ where y_{BC} is the BECKER-COPPENS approximation. We observe that the oscillations are absent from y_{BC} , but that the average slope is correct. $\left| \frac{y_p - y_{BC}}{y_p} \right|$ can be of the order of 10 to 15% for some values of x . The correctness of the average slope of y_{BC} is certainly one of the reasons for the success of the BECKER-COPPENS correction for many types of crystals.

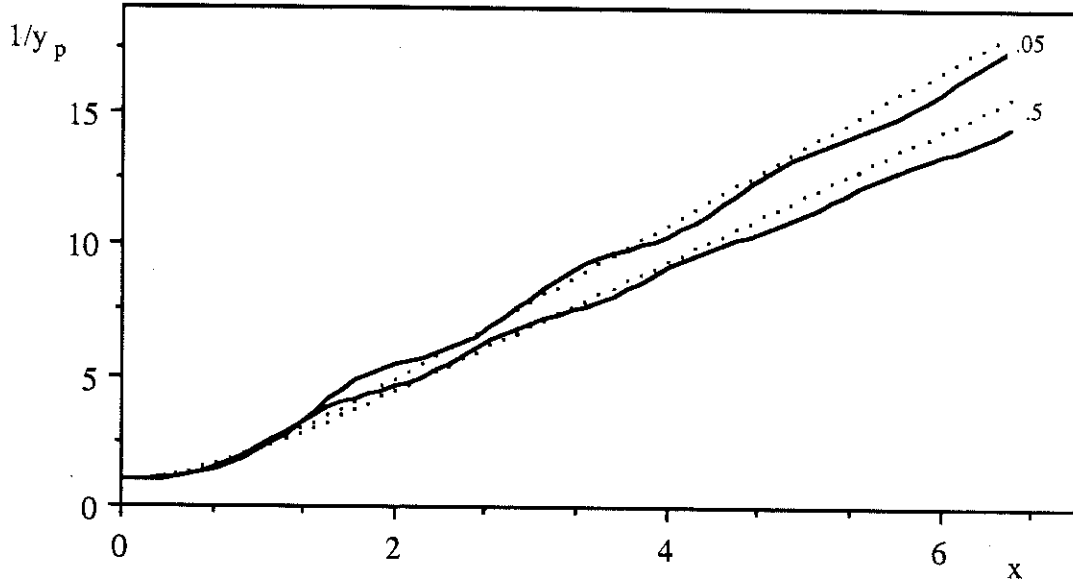


Fig. 9. ——— $1/y_p(x)$ $1/y_{BC}(x)$ for two values of $\sin \theta$.
 y_{BC} is based on a Lorentzian shape for the rocking curve.

ACCURATE SOLUTION FOR THE SCATTERED AMPLITUDE IN A FINITE CRYSTAL :

To overpass the Laue approximation implies the necessity to consider configurations (II) and (III) of Fig. 3. An explicit description of the intersection between the parallelogram $S_m M m'$ and the crystal surface is needed. The explicit solution can be obtained if this intersection is approximated by a sequence of segments respectively parallel to the incident and the scattered directions.

Configuration II

This configuration is represented on Fig. 10, where the crystal surface cab is approximated by any number of steps, respectively parallel to $\vec{s}_0$ and $\vec{s}_h$

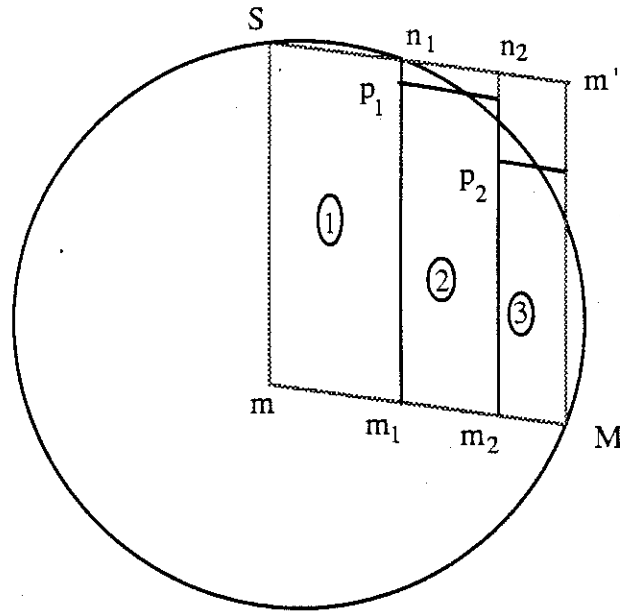


Fig. 10. Geometry associated with configuration II

We define the following lengths :

$$c_1 = \overline{mm_1} = \overline{Sn_1}$$

$$c_2 = \overline{mm_2} = \overline{Sn_2}$$

.....

$$b_1 = \overline{n_1p_1}$$

$$b_2 = \overline{n_2p_2}$$

.....

The amplitude $D_h(M)$ is calculated by an iteration procedure and involves the values of the amplitudes $D_0(M_i)$ and $D_h(M_i)$ at all points m_i inside the shaded domain of Fig

10.

By calculations similar to those developed by BECKER $\propto$ DUNSTETTER (1984), one finds :

for $M_1(x, y)$ in domain (1)

$$D_h^1(x, y) = i\chi J_0[2\chi\sqrt{xy}]$$

for $M_2(x, y)$ in domain (2)

$$D_h^2(x, y) = D_h^1(x, c_1) - \chi \int_{b_1}^x \sqrt{\frac{y-c_1}{x-u}} J_1[2\chi\sqrt{(x-u)(y-c_1)}] D_h^1(u, c_1) du \quad (19)$$

for $M_n(x, y)$ in domain (n)

$$D_h^n(x, y) = D_h^{n-1}(x, c_{n-1}) - \chi \int_{b_{n-1}}^x \sqrt{\frac{y-c_{n-1}}{x-u}} J_1[2\chi\sqrt{(x-u)(y-c_{n-1})}] D_h^{n-1}(u, c_{n-1}) du \quad (19')$$

Configuration III

Configuration (III) is depicted on Fig. 11, in parallel to situation (II).

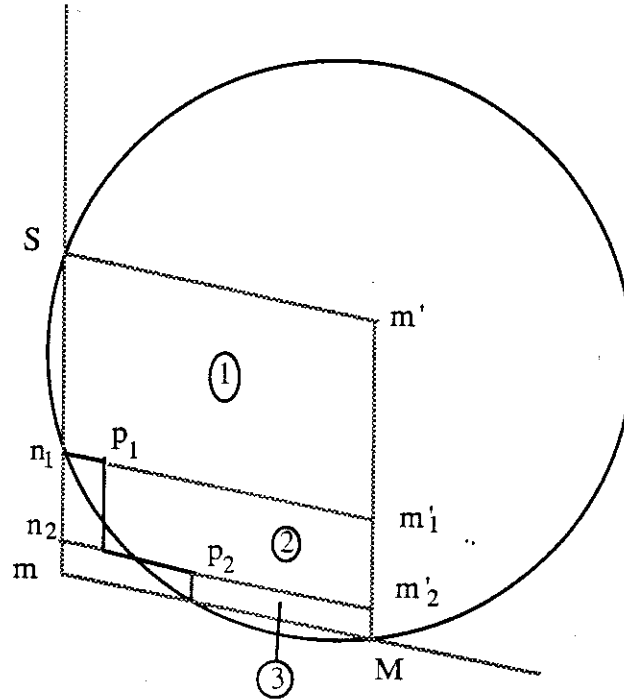


Fig. 11 Geometry for configuration (III)

If :

$$c_1 = n_1 \overline{p_1}$$

$$c_2 = n_2 \overline{p_2}$$

.....

$$b_1 = m \overline{m'}_1$$

$$b_2 = m \overline{m'}_2$$

.....

one obtains :

for M_1 in domain 1 :

$$D_0^1(x, y) = i \chi J_0[2 \chi \sqrt{xy}]$$

for M_2 in domain 2 :

$$D_0^2(x, y) = D_0^1(b_1, y)$$

$$- \chi \int_{c_1}^y \sqrt{\frac{x-b_1}{y-v}} J_1[2 \chi \sqrt{(x-b_1)(y-v)}] D_0^1(b_1, v) dv \quad (20)$$

for M_n in domain n :

$$D_0^n(x, y) = D_0^{n-1}(b_{n-1}, y)$$

$$- \chi \int_{c_{n-1}}^y \sqrt{\frac{x-b_{n-1}}{y-v}} J_1[2 \chi \sqrt{(x-b_{n-1})(y-v)}] D_0^{n-1}(b_{n-1}, v) dv \quad (20')$$

and

$$D_h^n = \frac{1}{i\chi} \frac{\partial D_0}{\partial x}$$

is finally given as :

$$D_h^n(x, y) = i \chi \int_{c_n}^y J_0[2 \chi \sqrt{(x-b_n)(y-v)}] D_0^{n-1}(b_n, v) dv \quad (21)$$

The expressions (19-21') can be used for any finite crystal of convex shape. We will apply them now to the case of an isotropic crystal, approximated by a sphere.

ACCURATE EXTINCTION FACTOR FOR A PERFECT SPHERE

We wish to apply the previous expressions for the amplitude to the case of a perfect sphere. It is possible to separate the domain into three regions (I), (II), (III), each corresponding to one of the fundamental configuration discussed above (Fig. 12).

The surface (Σ) separates (I) from (II) is the locus of points m such that point m' of $(SmMm')$ lies on the crystal surface.

Let v_1, v_2, v_3 be the three volumes associated with these regions. The extinction factor is :

$$y(x, \theta) = \frac{3}{4\pi\chi^2} \left[\int_{v_1} |D_h(I)|^2 dv + \int_{v_2} |D_h(II)|^2 dv + \int_{v_3} |D_h(III)|^2 dv \right] \quad (22)$$

where $D_h(i)$ is the appropriate expression for configuration (i).

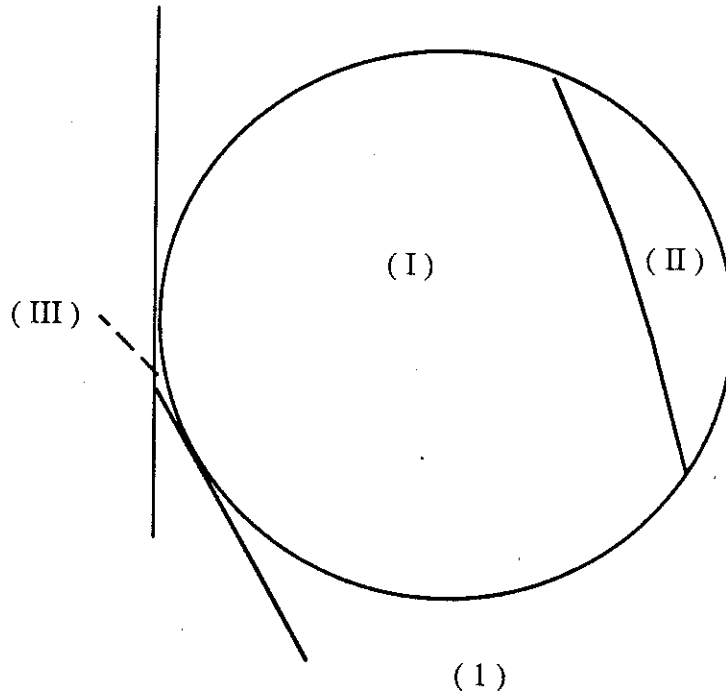


Fig. 12 The three regions corresponding to well defined configurations for the calculation of the diffracted amplitude, in the case of a sphere.

Let us for example choose a point m in the region (II) : Fig. 13. We propose the following procedure.

$\sin \theta$	0.05	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8
X									
0.0	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000	1.0000
0.1	0.9920	0.9920	0.9918	0.9915	0.9912	0.9907	0.9903	0.9901	0.9907
0.2	0.9685	0.9683	0.9677	0.9666	0.9652	0.9635	0.9618	0.9613	0.9637
0.3	0.9306	0.9303	0.9289	0.9267	0.9236	0.9201	0.9169	0.9162	0.9210
0.4	0.8803	0.8797	0.8775	0.8738	0.8689	0.8633	0.8587	0.8581	0.8678
0.5	0.8199	0.8191	0.8160	0.8109	0.8041	0.7969	0.7913	0.7924	0.8095
0.6	0.7524	0.7514	0.7475	0.7411	0.7329	0.7245	0.7193	0.7242	0.7506
0.7	0.6807	0.6796	0.6750	0.6677	0.6587	0.6504	0.6473	0.6579	0.6947
0.8	0.6080	0.6067	0.6018	0.5941	0.5852	0.5783	0.5791	0.5971	0.6438
0.9	0.5369	0.5356	0.5307	0.5232	0.5155	0.5113	0.5176	0.5438	0.5985
1.0	0.4699	0.4687	0.4641	0.4576	0.4520	0.4519	0.4649	0.4989	0.5582
1.1	0.4090	0.4080	0.4041	0.3992	0.3964	0.4015	0.4216	0.4619	0.5216
1.2	0.3556	0.3548	0.3519	0.3490	0.3499	0.3606	0.3873	0.4316	0.4876
1.3	0.3103	0.3098	0.3081	0.3076	0.3125	0.3287	0.3609	0.4063	0.4553
1.4	0.2734	0.2732	0.2728	0.2748	0.2837	0.3050	0.3408	0.3840	0.4245
1.5	0.2444	0.2445	0.2455	0.2499	0.2625	0.2878	0.3251	0.3633	0.3954
1.6	0.2226	0.2230	0.2252	0.2319	0.2475	0.2754	0.3118	0.3432	0.3686
1.7	0.2069	0.2075	0.2107	0.2192	0.2371	0.2660	0.2994	0.3232	0.3446
1.8	0.1959	0.1967	0.2007	0.2105	0.2297	0.2582	0.2869	0.3036	0.3236
1.9	0.1883	0.1892	0.1937	0.2043	0.2239	0.2506	0.2737	0.2848	0.3057
2.0	0.1829	0.1839	0.1886	0.1994	0.2186	0.2425	0.2598	0.2674	0.2902
2.1	0.1786	0.1796	0.1842	0.1948	0.2130	0.2334	0.2454	0.2519	0.2768
2.2	0.1746	0.1754	0.1798	0.1899	0.2066	0.2234	0.2312	0.2388	0.2645
2.3	0.1701	0.1709	0.1749	0.1843	0.1992	0.2126	0.2177	0.2278	0.2528
2.4	0.1650	0.1657	0.1692	0.1779	0.1911	0.2015	0.2056	0.2189	0.2415
2.5	0.1591	0.1596	0.1628	0.1708	0.1825	0.1908	0.1951	0.2114	0.2307
2.6	0.1525	0.1529	0.1558	0.1633	0.1739	0.1807	0.1864	0.2048	0.2205
2.7	0.1454	0.1458	0.1485	0.1557	0.1655	0.1717	0.1795	0.1985	0.2111
2.8	0.1383	0.1387	0.1413	0.1485	0.1579	0.1639	0.1739	0.1920	0.2031
2.9	0.1314	0.1318	0.1346	0.1419	0.1511	0.1575	0.1693	0.1854	0.1960
3.0	0.1251	0.1255	0.1285	0.1361	0.1453	0.1522	0.1652	0.1785	0.1895
3.1	0.1194	0.1199	0.1232	0.1313	0.1404	0.1478	0.1613	0.1716	0.1842
3.2	0.1147	0.1153	0.1189	0.1273	0.1364	0.1441	0.1573	0.1649	0.1790
3.3	0.1108	0.1115	0.1154	0.1241	0.1329	0.1407	0.1530	0.1589	0.1737
3.4	0.1078	0.1085	0.1127	0.1215	0.1298	0.1374	0.1484	0.1535	0.1683
3.5	0.1054	0.1061	0.1105	0.1192	0.1268	0.1340	0.1436	0.1489	0.1632
3.6	0.1034	0.1042	0.1087	0.1170	0.1237	0.1305	0.1388	0.1451	0.1581
3.7	0.1017	0.1025	0.1069	0.1148	0.1205	0.1268	0.1342	0.1418	0.1532
3.8	0.1001	0.1008	0.1051	0.1124	0.1172	0.1232	0.1299	0.1386	0.1487
3.9	0.0984	0.0991	0.1031	0.1097	0.1137	0.1196	0.1260	0.1358	0.1449
4.0	0.0964	0.0970	0.1009	0.1068	0.1101	0.1162	0.1225	0.1327	0.1413
4.1	0.0942	0.0948	0.0984	0.1037	0.1067	0.1131	0.1197	0.1296	0.1380
4.2	0.0918	0.0923	0.0957	0.1005	0.1034	0.1103	0.1171	0.1262	0.1347
4.3	0.0892	0.0897	0.0930	0.0974	0.1004	0.1078	0.1148	0.1227	0.1313
4.4	0.0865	0.0870	0.0902	0.0944	0.0978	0.1056	0.1125	0.1194	0.1283
4.5	0.0839	0.0844	0.0876	0.0917	0.0956	0.1036	0.1102	0.1162	0.1251
4.6	0.0814	0.0819	0.0853	0.0894	0.0938	0.1017	0.1078	0.1132	0.1219
4.7	0.0792	0.0797	0.0832	0.0873	0.0922	0.0998	0.1055	0.1107	0.1188
4.8	0.0772	0.0778	0.0814	0.0856	0.0908	0.0978	0.1031	0.1083	0.1161
4.9	0.0756	0.0762	0.0799	0.0841	0.0895	0.0958	0.1009	0.1063	0.1138
5.0	0.0742	0.0748	0.0786	0.0828	0.0882	0.0937	0.0986	0.1046	0.1116
5.1	0.0730	0.0737	0.0775	0.0815	0.0868	0.0915	0.0965	0.1026	0.1096
5.2	0.0721	0.0727	0.0765	0.0803	0.0853	0.0893	0.0947	0.1008	0.1078
5.3	0.0712	0.0718	0.0755	0.0790	0.0836	0.0872	0.0930	0.0989	0.1062
5.4	0.0703	0.0709	0.0744	0.0776	0.0819	0.0853	0.0914	0.0970	0.1043
5.5	0.0693	0.0699	0.0733	0.0760	0.0801	0.0835	0.0898	0.0951	0.1028
5.6	0.0683	0.0688	0.0720	0.0745	0.0783	0.0820	0.0883	0.0931	
5.7	0.0671	0.0676	0.0706	0.0728	0.0766	0.0806	0.0868	0.0913	
5.8	0.0658	0.0663	0.0691	0.0712	0.0750	0.0794	0.0851	0.0895	
5.9	0.0645	0.0650	0.0676	0.0697	0.0736	0.0784	0.0836	0.0880	
6.0	0.0631	0.0636	0.0662	0.0683	0.0723	0.0774	0.0820	0.0865	
6.1	0.0618	0.0622	0.0648	0.0670	0.0711	0.0764	0.0805	0.0855	
6.2	0.0605	0.0609	0.0635	0.0659	0.0701	0.0753	0.0790	0.0843	
6.3	0.0593	0.0598	0.0624	0.0649	0.0691	0.0742	0.0777	0.0834	
6.4	0.0582	0.0587	0.0614	0.0640	0.0682	0.0730	0.0764	0.0826	
6.5	0.0573	0.0579	0.0606	0.0632	0.0672	0.0718	0.0753	0.0818	

Table 3. y_{AB} as a function of x and $\sin \theta$

By this technique, it is possible to obtain a very precise value for the extinction factor. In what follows, we will call the result $y_{AB}(x, \theta)$. $1/y_{AB}$ is plotted versus x , for various $\sin \theta$ values, on Fig. 14, and numerical values are given in table 3.

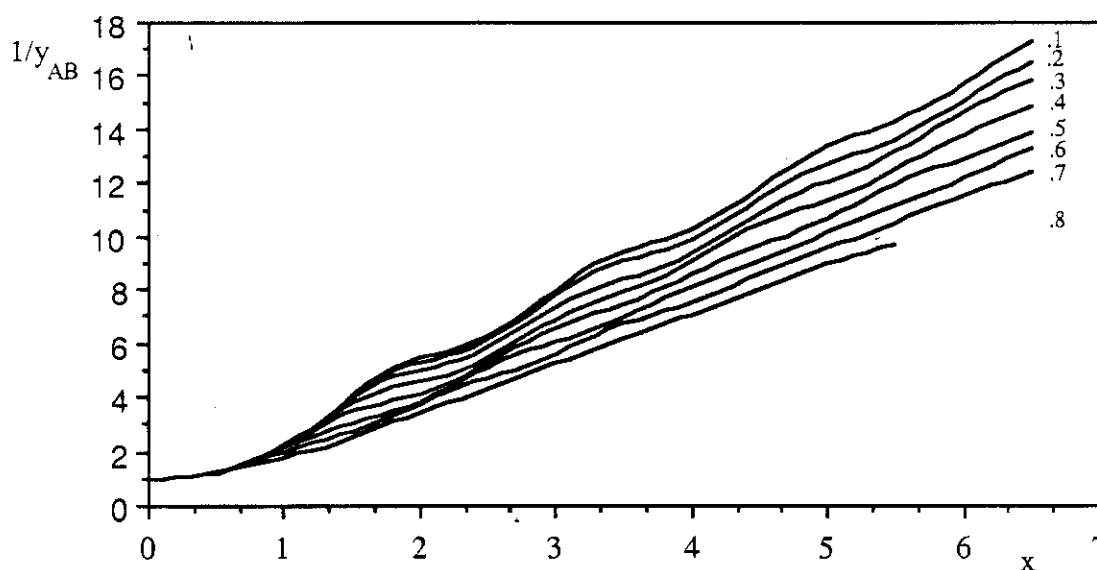


Fig. 14. $1/y_{AB}$ versus x , for different $\sin \theta$ values.

KAWAMURA and KATO's approximations

KAWAMURA and KATO (1983) proposed another method, more approximate but simple. This method is summarized on Fig. 15.

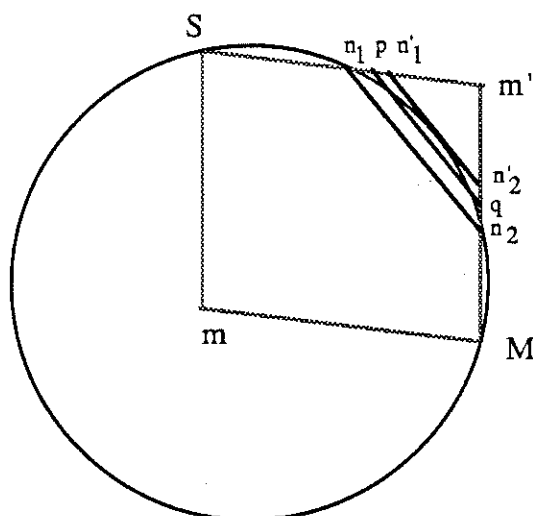


Fig. 15. KAWAMURA and KATO's geometrical approximation

They first approximate the boundary by the straight line n_1n_2 , then by the tangent $n'_1n'_2$ parallel to n_1n_2 , and finally by an intermediate line pq such that the area of (SpqMmS) is equal to the exact area limited by the crystal. We call the extinction correction for this approximation $y_K(x, \theta)$. The expressions for the amplitudes are given in the appendix

Practical expressions for y :

For y_{AB} and y_K , we adopt the same fitting procedure as the one used for the Laue approximation y_p .

By least squares adjustment we write :

$$\begin{aligned} y_{AB} &\sim Z'_0(x) + Z'_1(x) \sin^2(\theta) + Z'_2(x) \sin^4(\theta) \\ y_K &\sim Z''_0(x) + Z''_1(x) \sin^2(\theta) + Z''_2(x) \sin^4(\theta) \end{aligned} \quad ((25))$$

The resulting functions Z'_i and Z''_i are shown on Fig. 16, and compared with Z_i for the Laue approximation. Those functions are also given in table 4.

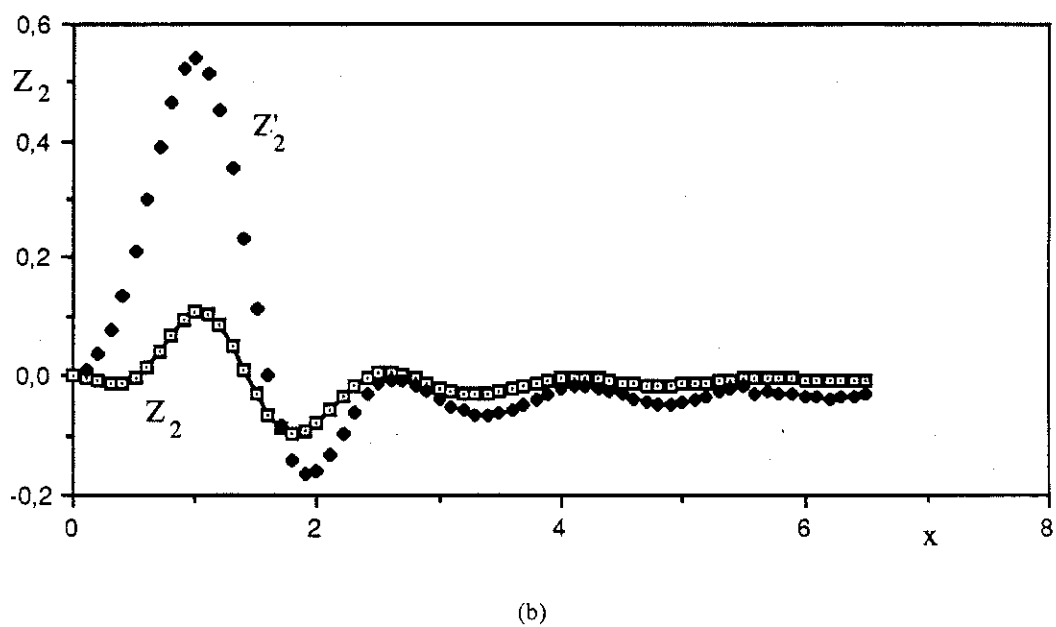
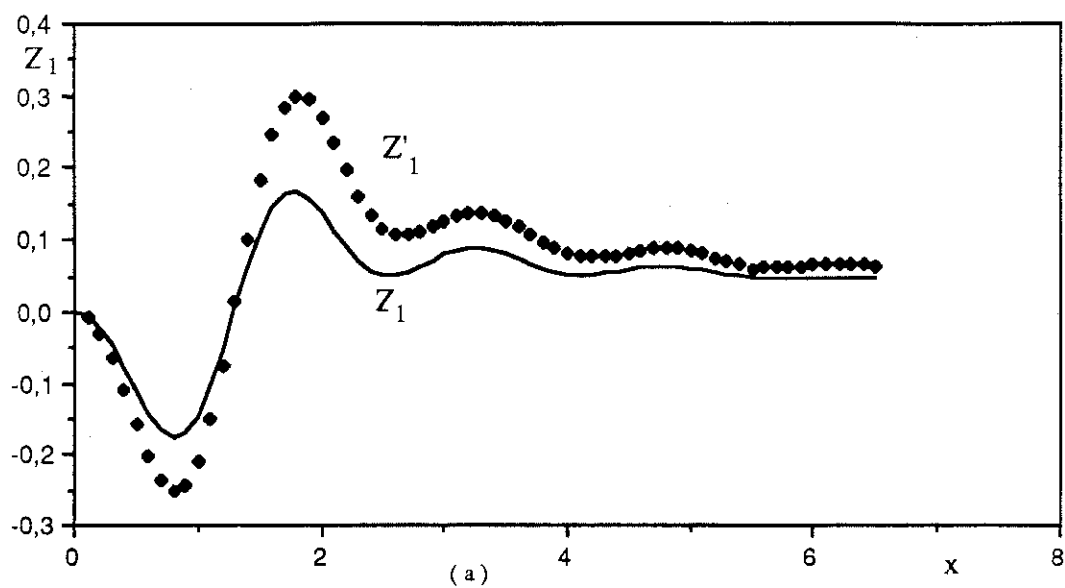


Fig 16. a: Z_1 , Z'_1 , Z''_1 .

b: Z_2 , Z'_2 , Z''_2

x	Z ₀ '	Z ₁ '	Z ₂ '	x	Z ₀ '	Z ₁ '	Z ₂ '
0.0	1.0000	0.0000	0.0000	3.3	0.1109	0.1369	-0.0645
0.1	0.9921	-0.0081	0.0090	3.4	0.1082	0.1333	-0.0663
0.2	0.9689	-0.0317	0.0359	3.5	0.1061	0.1263	-0.0630
0.3	0.9314	-0.0659	0.0760	3.6	0.1044	0.1176	-0.0570
0.4	0.8815	-0.1098	0.1349	3.7	0.1028	0.1080	-0.0490
0.5	0.8218	-0.1571	0.2110	3.8	0.1011	0.0984	-0.0400
0.6	0.7548	-0.2017	0.2994	3.9	0.0993	0.0891	-0.0292
0.7	0.6834	-0.2350	0.3889	4.	0.0972	0.0821	-0.0211
0.8	0.6106	-0.2504	0.4673	4.1	0.0948	0.0782	-0.0168
0.9	0.5391	-0.2429	0.5218	4.2	0.0922	0.0766	-0.0159
1.	0.4711	-0.2093	0.5398	4.3	0.0894	0.0776	-0.0192
1.1	0.4089	-0.1515	0.5161	4.4	0.0866	0.0799	-0.0236
1.2	0.3539	-0.0747	0.4514	4.5	0.0839	0.0830	-0.0303
1.3	0.3069	0.0133	0.3531	4.6	0.0815	0.0861	-0.0375
1.4	0.2686	0.1024	0.2344	4.7	0.0793	0.0886	-0.0439
1.5	0.2386	0.1830	0.1110	4.8	0.0775	0.0888	-0.0466
1.6	0.2164	0.2456	0.0000	4.9	0.0760	0.0875	-0.0466
1.7	0.2009	0.2850	-0.0860	5.	0.0748	0.0848	-0.0444
1.8	0.1907	0.3006	-0.1414	5.1	0.0737	0.0801	-0.0394
1.9	0.1842	0.2937	-0.1637	5.2	0.0729	0.0749	-0.0333
2.	0.1802	0.2697	-0.1586	5.3	0.0720	0.0692	-0.0261
2.1	0.1772	0.2345	-0.1323	5.4	0.0710	0.0650	-0.0215
2.2	0.1742	0.1968	-0.0973	5.5	0.0700	0.0604	-0.0155
2.3	0.1704	0.1617	-0.0613	5.6	0.0686	0.0643	-0.0291
2.4	0.1656	0.1342	-0.0321	5.7	0.0673	0.0627	-0.0276
2.5	0.1596	0.1165	-0.0133	5.8	0.0659	0.0626	-0.0289
2.6	0.1527	0.1083	-0.0056	5.9	0.0645	0.0636	-0.0313
2.7	0.1453	0.1086	-0.0084	6.	0.0631	0.0652	-0.0351
2.8	0.1378	0.1128	-0.0154	6.1	0.0617	0.0657	-0.0353
2.9	0.1307	0.1206	-0.0274	6.2	0.0604	0.0668	-0.0376
3.	0.1244	0.1285	-0.0409	6.3	0.0593	0.0664	-0.0366
3.1	0.1189	0.1341	-0.0509	6.4	0.0583	0.0654	-0.0341
3.2	0.1144	0.1368	-0.0589	6.5	0.0576	0.0628	-0.0293

a

x	Z'_0	Z'_1	Z'_2	x	Z'_0	Z'_1	Z'_2
0.0	1.0000	0.0000	0.0000	3.3	0.1096	0.1005	0.1533
0.1	0.9919	-0.0030	-0.0121	3.4	0.1071	0.1002	0.1487
0.2	0.9682	-0.0119	-0.0449	3.5	0.1051	0.0968	0.1477
0.3	0.9301	-0.0291	-0.0847	3.6	0.1034	0.0912	0.1501
0.4	0.8798	-0.0552	-0.1158	3.7	0.1018	0.0844	0.1551
0.5	0.8198	-0.0908	-0.1216	3.8	0.1002	0.0779	0.1605
0.6	0.7530	-0.1338	-0.0915	3.9	0.0983	0.0727	0.1652
0.7	0.6825	-0.1792	-0.0243	4.	0.0960	0.0700	0.1675
0.8	0.6110	-0.2206	0.0732	4.1	0.0935	0.0690	0.1677
0.9	0.5411	-0.2513	0.1872	4.2	0.0907	0.0713	0.1632
1.	0.475	-0.2644	0.2982	4.3	0.0878	0.0755	0.1560
1.1	0.4144	-0.2551	0.3866	4.4	0.0850	0.0804	0.1473
1.2	0.3606	-0.2229	0.4395	4.5	0.0823	0.0864	0.1364
1.3	0.3144	-0.1715	0.4518	4.6	0.0798	0.0915	0.1265
1.4	0.2762	-0.1071	0.4253	4.7	0.0777	0.0952	0.1185
1.5	0.2460	-0.0401	0.3724	4.8	0.0759	0.0970	0.1134
1.6	0.2231	0.0211	0.3069	4.9	0.0745	0.0966	0.1113
1.7	0.2067	0.0687	0.2439	5.	0.0734	0.0947	0.1112
1.8	0.1955	0.0976	0.1965	5.1	0.0725	0.0911	0.1138
1.9	0.1883	0.1069	0.1715	5.2	0.0716	0.0876	0.1159
2.	0.1836	0.0996	0.1691	5.3	0.0707	0.0840	0.1182
2.1	0.1800	0.0811	0.1849	5.4	0.0697	0.0820	0.1184
2.2	0.1766	0.0572	0.2119	5.5	0.0685	0.0812	0.1165
2.3	0.1724	0.0346	0.2406	5.6	0.0673	0.0807	0.1149
2.4	0.1671	0.0189	0.2626	5.7	0.0659	0.0810	0.1111
2.5	0.1607	0.0118	0.2745	5.8	0.0644	0.0834	0.1068
2.6	0.1533	0.0141	0.2743	5.9	0.0629	0.0853	0.1030
2.7	0.1454	0.0239	0.2638	6.0	0.0615	0.0873	0.0989
2.8	0.1374	0.0398	0.2444	6.1	0.0602	0.0887	0.0958
2.9	0.1299	0.0575	0.2213	6.2	0.0591	0.0892	0.0936
3.	0.1233	0.0736	0.1990	6.3	0.0580	0.0897	0.0913
3.1	0.1176	0.0869	0.1795	6.4	0.0571	0.0890	0.0901
3.2	0.1131	0.0959	0.1641	6.5	0.0564	0.0884	0.0888

b

Table 4. a: Z'_0 , Z'_1 , Z'_2 as functions of x

b: Z''_0 , Z''_1 , Z''_2 as functions of x

We observe that $Z_0 \sim Z'_0 \sim Z''_0$, as expected since it corresponds to the limit $\theta \sim 0$ (pure Laue). However the functions Z'_1 and Z'_2 for example are quite different from Z_1 since the corrections from Laue situation are of increasing importance when the Bragg angle is larger. y_{AB} is the most precise solution, but for most experimental situations, y_p is a reasonable and simple approximation.

CONCLUSION

It has been shown that we can approach very closely the exact dynamical results for a finite perfect crystal. For a sphere, the extinction correction is $y(x, \sin \theta)$ where $x = R/\Lambda$, R being the radius of the crystal and $\Lambda = 1/\chi$ the extinction length. Besides numerical calculation, it has been shown that, to an accuracy of at least 1%, y can be represented by the expression :

$$y(x, \sin \theta) \sim Z_0(x) + \sin^2(\theta) Z_1 + \sin^4(\theta) Z_2(x)$$

where $Z_i(x)$ are to be considered as numerical functions. This semi-analytical form is very well suited for applications in refinement procedures. We intend, in a forthcoming paper, to propose a similar expansion of the extinction factor for real crystals.

Appendix

The geometry adopted by KATO & KAWAMURA (1983) is depicted on Fig (A1) and (A2)

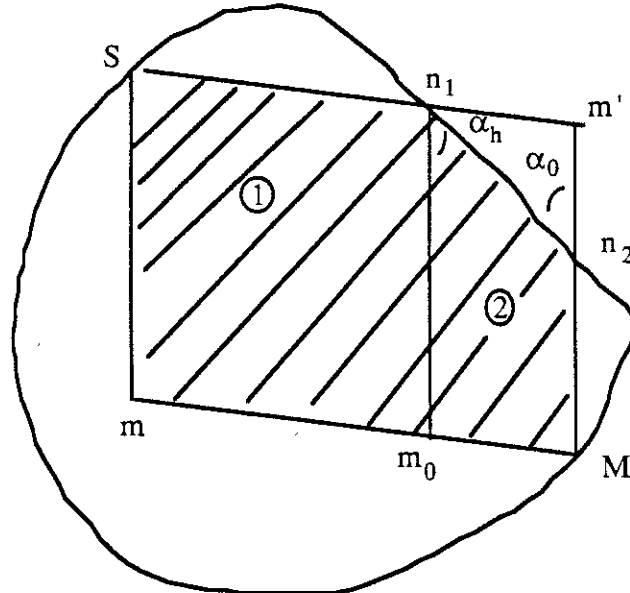


Fig. A1 KAWAMURA AND KATO's approximation of configuration II geometry

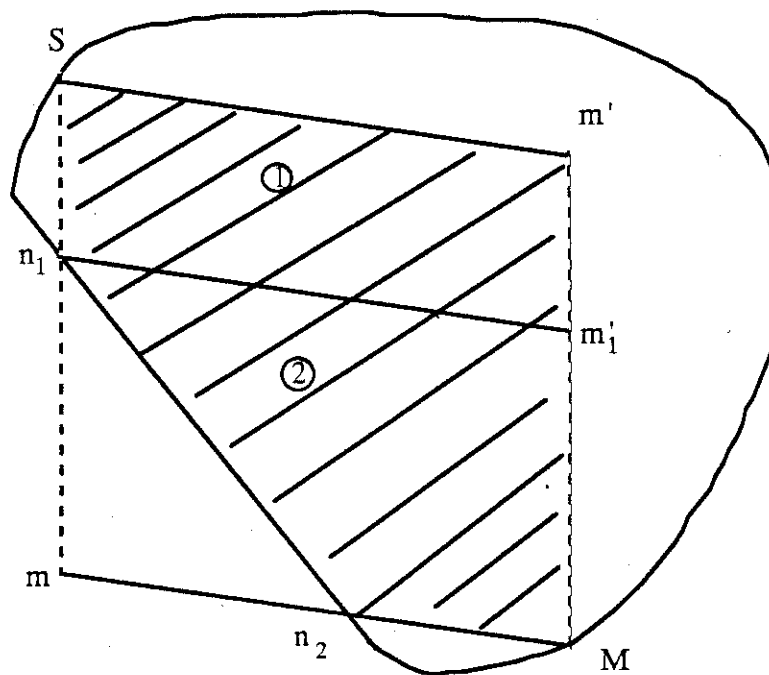


Fig. A2 KAWAMURA AND KATO's approximation of configuration III geometry

Configuration II

The geometry is shown in Fig. A1, where the intersection between $SmMm'$ and the crystal is approximated by a straight line : n_1n_2

The domain to be considered for scattering from S to M is divided into two regions. Let $c = \overline{Sn_1}$, $\beta_0 = \sin \alpha_0$, $\beta_h = \sin \alpha_h$.

By using the same procedure as that used by KAWAMURA and KATO (1983), BECKER and DUNSTETTER (1984), one finds :

For M_1 in domain 1

$$D_h^1(x, y) = i \chi J_0[2 \chi \sqrt{xy}]$$

For M_2 in domain 2

$$\begin{aligned} D_h^2(x, y) = & D_h^1(x, y) \\ & - i \chi \frac{\beta_h}{\beta_0} \frac{y - c}{x + \frac{\beta_h}{\beta_0} c} J_2 \left[2 \chi \sqrt{(y - c) \left(x + \frac{\beta_h}{\beta_0} c \right)} \right] \end{aligned} \quad (A1)$$

The derivation is similar to that of equation (21) of BECKER and DUNSTETTER (1984).

Configuration III

The geometry of configuration (III) is shown on Fig. A2 with $b = \overline{Sn_1}$.

One obtains :

For M_1 in domain 1

$$D_h^1 = i \chi J_0[2 \chi \sqrt{xy}]$$

For M_2 in domain 2

$$D_h^2(x, y) = D_h^1(x, y) - i \chi J_0 \left[2 \chi \sqrt{(x - b) \left(y + \frac{\beta_0}{\beta_h} b \right)} \right] \quad (A2)$$

Equation (A2) is obtained in the same way as equation (23) of BECKER and DUNSTETTER (1984).

References

- M. ALHADDAD μ P. BECKER (1988) Acta Cryst. A44, 262 - 270.
- P. BECKER (1977a) Acta Cryst. A33, 243–249
- P. BECKER (1977b) Acta Cryst. A33, 667–671
- P. BECKER μ M. AL HADDAD (1989a) Acta Cryst. A45, accepted
- P. BECKER μ M. AL HADDAD (1989a) Acta Cryst. A45, submitted for publication
- P. BECKER μ P. COPPENS (1974) Acta Cryst. A30, 129–147
- P. BECKER μ P. COPPENS (1975) Acta Cryst. A31, 417–425
- P. BECKER μ F. DUNSTETTER (1984) Acta Cryst. A40, 241–251
- Guigay J.P., (1989) Acta Cryst. A45, 241 - 244
- N. KATO (1973) Z. Naturforsch. Teil A, 28, 604–609
- N. KATO (1976) Acta Cryst. A32, 453 - 466.
- N. KATO (1980) Acta Cryst. A36, 763 - 778
- T. KAWAMURA μ N. KATO (1983) Acta Cryst. A39, 305–310

CHAPITRE IV

CRISTAL " IDEALEMENT " IMPARFAIT : EXTINCTION SECONDAIRE

CHAPTER IV

CRISTAL "PERALMENT" IMPROVED
EXTENSION METHOD

A – EXTINCTION SECONDAIRE : MODELE STATISTIQUE

Nous traitons ici le deuxième cas extrême de la théorie statistique de la diffraction, pour lequel le paramètre E d'ordre à grande distance est négligeable $E \sim 0$.

Donc la fonction de corrélation devient

$$f(t) \sim g(t) \sim \exp(-t/\tau) \quad (\text{IV-1})$$

L'intensité est totalement incohérente :

$$\langle D_0 \rangle = 0, \langle D_h \rangle = 0 \quad (\text{IV-2})$$

L'intensité des faisceaux incident et diffracté est donnée par :

$$I_0 = \langle |D_0|^2 \rangle, I_h = \langle |D_h|^2 \rangle \quad (\text{IV-3})$$

On prend en compte dans la moyenne tous les chemins possibles et les corrélations entre les facteurs de phase, Fig. IV-1.

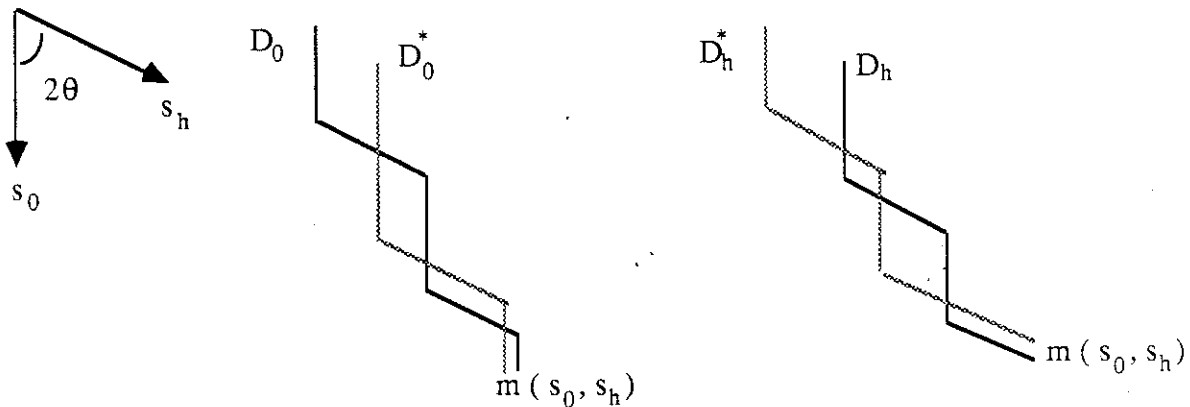


Fig. IV-1 : Deux chemins optiques intervenant dans le calcul de l'intensité I_0 et I_h .

Au lieu d'une solution numérique des équations de Takagi-Taupin, nous allons formuler les équations de transfert [P. Becker and M. Al Haddad, 1989 : Diffraction by a randomly distorted cristal. I : The case of short range order], traduisant la propagation de la moyenne de l'intensité.

Nous rappelons les équations de Takagi-Taupin :

$$\frac{\partial D_0}{\partial s_0} = i \chi_{\bar{h}} \varphi D_h, \quad \frac{\partial D_h}{\partial s_h} = i \chi_h \varphi^* D_0 \quad (\text{IV-4})$$

Nous considérons une onde incidente sphérique dans l'hypothèse d'une géométrie de Laue :

$$D_0^0 = \delta(s_h) \quad (\text{IV-5})$$

Donc, on peut transformer les équations (IV-4) sous la forme d'intégrales, en considérant la condition (IV-5) :

$$\begin{aligned} D_0(s_0, s_h) &= i \chi_{\bar{h}} \int_0^{s_0} \varphi(\xi, s_h) D_h(\xi, s_h) d\xi + \delta(s_h) \\ D_h(s_0, s_h) &= i \chi_h \int_0^{s_h} \varphi^*(s_0, \eta) D_0(s_0, \eta) d\eta \end{aligned} \quad (\text{IV-6})$$

Pour simplifier le calcul, nous considérons un cristal centrosymétrique et non absorbant.

Les variations d'intensité I_0 et I_h sont décrites par les équations de propagation suivantes :

$$\begin{aligned} \frac{\partial I_0}{\partial s_0} &= \langle D_0^* \frac{\partial D_0}{\partial s_0} \rangle + \text{C.C.} = i \chi \{ \langle D_0^* \varphi D_h \rangle - \langle D_h^* \varphi^* D_0 \rangle \} \\ \frac{\partial I_h}{\partial s_h} &= \langle D_h^* \frac{\partial D_h}{\partial s_h} \rangle + \text{C.C.} = i \chi \{ \langle D_h^* \varphi^* D_0 \rangle - \langle D_0 \varphi D_h \rangle \} \end{aligned} \quad (\text{IV-7})$$

où C. C. est le complexe conjugué du premier terme.

Si on tient compte des équations (IV-6) et en considérant toutes les corrélations de paires indépendantes sur le faisceau diffracté ou incident, les équations (IV-7) deviennent :

$$\begin{aligned} \frac{\partial I_0}{\partial s_0} &= 2 \chi^2 [B' - A'] \\ \frac{\partial I_h}{\partial s_h} &= 2 \chi^2 [A' - B'] \end{aligned} \quad (\text{IV-8})$$

où :

$$\begin{aligned}
 A' &= \int_0^{s_h} d\eta < D_0^* (s_0, s_h) D_0 (s_0, \eta) \varphi^* (s_0, \eta) \varphi (s_0, s_h) > \\
 B' &= \int_0^{s_0} d\xi < D_h (s_0, s_h) D_h^* (\xi, s_h) \varphi^* (\xi, s_h) \varphi (s_0, s_h) >
 \end{aligned}
 \tag{IV-9}$$

On peut représenter les équations (IV-8) par des diagrammes simples tels que :

$$\frac{\partial I_0}{\partial s_0} = - \frac{\partial I_h}{\partial s_h} = - 2 \chi^2$$

$$+ 2 \chi^2$$

(IV-10)

où $\bullet$: φ $\circ$: φ^*

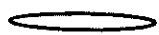
Si on considère seulement la corrélation de paire du facteur de phase entre les nœuds les plus proches voisins et prenant en compte (IV-2), on trouve :

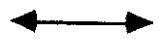
$$\begin{aligned}
 A' &= \int_0^{s_h} d\eta g (s_h - \eta) < D_0^* (s_0, s_h) D_0 (s_0, \eta) > \\
 B' &= \int_0^{s_0} d\xi g (s_0 - \xi) < D_h (s_0, s_h) D_h^* (\xi, s_h) >
 \end{aligned}
 \tag{IV-11}$$

Par conséquent, les équations (IV-10) peuvent s'écrire :

$$\frac{\partial I_0}{\partial s_0} = -2\chi^2 + 2\chi^2 \quad (IV-12)$$

où :

 : désigne un couplage du facteur de phase.

 : désigne un couplage d'amplitude.

A présent le problème consiste à expliciter les quantités A' et B' :

A - 1. Approximation de Kato

On définit la longueur de corrélation transverse d'amplitude Γ par les relations suivantes:

$$\begin{aligned} \Gamma &= \frac{1}{I_0} \int_0^{s_h} d\eta < D_0^* (s_0, s_h) D_0 (s_0, \eta) > \\ &= \frac{1}{I_h} \int_0^{s_0} d\xi < D_h (s_0, s_h) D_h^* (\xi, s_h) > \end{aligned} \quad (IV-13)$$

Kato en 1980 a supposé que la longueur de corrélation Γ est beaucoup plus grande que la longueur de corrélation de phase τ :

$$\Gamma \gg \tau \quad (IV-14)$$

Ceci permet de négliger la variation de l'amplitude D_0 (D_h) sur une distance τ dans la direction $\vec{s}_h$ ($\vec{s}_0$), ainsi :

$$A' = \tau I_0, \quad B' = \tau I_h \quad (IV-15)$$

on trouve alors que les intensités obéissent aux équations de transfert :

$$\begin{aligned}\frac{\partial I_0}{\partial s_0} &= 2 \chi^2 \tau [I_h - I_0] \\ \frac{\partial I_h}{\partial s_h} &= 2 \chi^2 \tau [I_0 - I_h]\end{aligned}\tag{IV-16}$$

Par contre, KATO (1976), en appliquant une méthode plus précise mais compliquée et très difficile à généraliser au cas où $E \neq 0$, a directement calculé les intensités incidente et diffractée en considérant tous les couplages possibles entre deux chemins optiques et a abouti aux équations suivantes :

$$\begin{aligned}\frac{\partial I_0}{\partial s_0} &= 2 \chi^2 \tau_2 [I_h - I_0] \\ \frac{\partial I_h}{\partial s_h} &= 2 \chi^2 \tau_2 [I_0 - I_h]\end{aligned}\tag{IV-17}$$

et la condition aux limites :

$$I_h^0 = \chi^2 \exp(-2 \chi^2 \tau_2 s_0)\tag{IV-18}$$

La différence entre les équations (IV-16) et (IV-17) vient seulement du fait que τ_2 apparait au lieu de τ . La différence est liée à l'approximation (IV-14).

Par une méthode plus simple que celle employée par KATO (1976), méthode généralisable au cas où $E \neq 0$ [chapitre suivant], nous allons confirmer le validité des équations (IV-17)

A - 2. Théorie correcte

Nous cherchons les équations de propagation sans faire aucune approximation à priori sur la longueur de corrélation Γ par rapport à τ .

Nous itérons le processus de diffraction, c'est à dire à l'aide des équations (IV-6), on exprime les amplitudes d'ondes apparaissant dans les équations (IV-8) en fonction de ces amplitudes à des positions de diffraction précédentes.

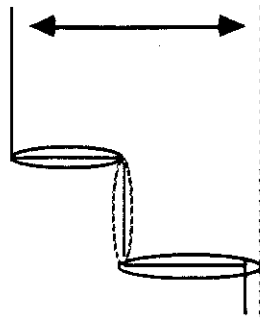
Les équations (IV-10) deviennent :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial I_0}{\partial s_0} &= 2\chi^4 \left[\begin{array}{c} \text{Diagram 1} \\ + 2\chi^4 \text{ Diagram 2} \end{array} \right] - 2\chi^4 \left[\begin{array}{c} \text{Diagram 3} \\ - 2\chi^4 \text{ Diagram 4} \end{array} \right] \\
 &= 2\chi^4 [X_1 + X_2 + X_3 + X_4] = -\frac{\partial I_h}{\partial s_h} \quad (\text{IV-19})
 \end{aligned}$$

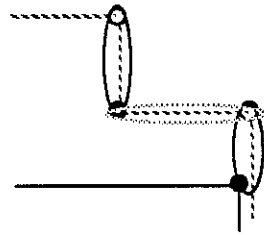
Nous allons calculer les divers termes X_i en limitant l'itération à ce stade. Considérons toutes les corrélations de paires possibles du facteur de phase entre les noeuds les plus proches voisins, on trouve facilement :

$$\begin{aligned}
 X_1 &= \left[\text{Diagram 1} \right] + \left[\text{Diagram 2} \right] \\
 X_2 &= - \left[\text{Diagram 3} \right] - \left[\text{Diagram 4} \right]
 \end{aligned}$$

$X_3 =$



$X_4 =$



(IV-20)

où  schématise le couplage entre deux paires de phase.

De plus, si on prend en compte les remarques suivantes [Chap. II] :

◇ $g(x + y) = g(x) \cdot g(y)$, $g(x, y) = g(x) \cdot g(y)$ pour $x, y \geq 0$

◇ l'existence d'une longue corrélation longitudinale d'amplitude : le crochet

$\langle D_0(s_0, \eta) D_0^*(\xi', \eta') \rangle$ ($\langle D_h^*(\xi', s_h) D_h(\xi, \eta) \rangle$) peut être remplacé par

$\langle D_0(\xi', \eta) D_0^*(\xi', \eta') \rangle$ ($\langle D_h^*(\xi', \eta) D_h(\xi, \eta) \rangle$), (P. Becker and M

Al Haddad, 1989 : Diffraction by a randomly distorted crystal I : the case of short range order : annexe de ce chapitre).

◇ La variation de A' et B' sur une distance τ est négligeable.

On obtient :

$$X_1 = 2 \tau_2 \int_0^{s_0} d\xi A'(\xi, s_h) + 2 \tau_2 \int_0^{s_h} d\eta A'(s_0, \eta)$$

$$X_2 = -2 \tau_2 \int_0^{s_0} d\xi B'(\xi, s_h) - 2 \tau_2 \int_0^{s_h} d\eta B'(s_0, \eta)$$

(IV-21)

Les expressions de X_3 et X_4 contiennent des couplages de phase en quatre positions de diffraction successives sur un seul chemin optique m_1, m_2, m_3 , et m_4 Fig (IV-2). Donc en

plus de couplage de paires $\langle m_1 m_2 \rangle$ et $\langle m_3 m_4 \rangle$ il y a un couplage entre ces deux paires :

$$\langle m_1 m_2 m_3 m_4 \rangle = \langle m_1 m_2 \rangle \langle m_3 m_4 \rangle G(t) \quad (\text{IV-22})$$

où $G(t)$ est une fonction de corrélation de deux paires $m_1 m_2$ et $m_3 m_4$ sur un seul chemin optique. La longueur de corrélation de $G(t)$ est de l'ordre de grandeur de τ .

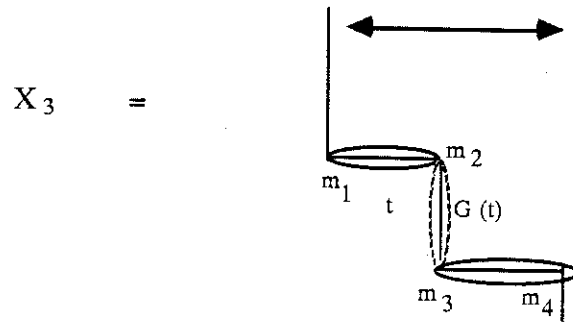


Fig IV-2 : Diagramme détaillé de X_3 :
deux paires de phase $m_1 m_2$ et $m_3 m_4$ séparées d'une distance t .

Donc: $X_3 \sim \tau^2 A'$ (IV-23)

de la même manière, on trouve : $X_4 \sim \tau^2 B'$ (IV-24)

A' et B' varient lentement avec s_0 et s_h et, comme s_0/τ et $s_h/\tau \gg 1$, on peut négliger respectivement X_3 et X_4 par rapport à X_1 et X_2 .

Finalement les équations (IV-19) deviennent :

$$\begin{aligned} \frac{\partial I_0}{\partial s_0} &= 4 \chi^4 \tau_2 \left\{ \int_0^{s_0} d\xi [A' - B'](\xi, s_h) + \int_0^{s_h} d\eta [A' - B'](s_0, \eta) \right\} \\ &= - \frac{\partial I_h}{\partial s_h} \end{aligned} \quad (\text{IV-25})$$

Si on insère les équations (IV-8) dans (IV-25), on obtient facilement les équations de propagation (IV-17).

Si on compare les équations (IV-8) avec les équations (IV-17), on obtient :

$$A' = \tau_2 I_0, \quad B' = \tau_2 I_h \quad (\text{IV-26})$$

L'hypothèse de Kato, formulée en (IV-14) est à l'origine de la différence entre (IV-15) et (IV-26) et n'est pas correcte. De ce fait, la longueur de corrélation Γ apparaît comme étant de l'ordre de τ .

Du point de vue pratique les formulations mathématiques dans les deux cas sont les mêmes, on affine $2\chi^2\tau_2$ à la place de $2\chi^2\tau$. Par contre dans le cas général ($E \neq 0$) cette hypothèse a une grande influence sur le résultat [chapitres V et VI].

B – LE FACTEUR D'EXTINCTION DANS LE MODELE STATISTIQUE EN GEOMETRIE DE LAUE :

Nous allons résoudre les équations (IV-17) sous la condition (IV-18) :

$$\begin{aligned}\frac{\partial I_0}{\partial s_0} &= -\sigma I_0 + \sigma I_h \\ \frac{\partial I_h}{\partial s_h} &= -\sigma I_h + \sigma I_0\end{aligned}\tag{IV-27}$$

où $\sigma = 2 |\chi|^2 \tau_2$

Si on fait le changement de fonctions :

$$I_0 = J_0 \exp(-\sigma (s_0 + s_h)) \quad I_h = J_h \exp(-\sigma (s_0 + s_h))\tag{IV-28}$$

les équations (IV-27) deviennent :

$$\frac{\partial J_0}{\partial s_0} = \sigma J_h \quad \frac{\partial J_h}{\partial s_0} = \sigma J_0\tag{IV-29}$$

et la condition à la limite :

$$J_h^0(s_0, 0) = |\chi|^2\tag{IV-30}$$

Si on intègre (IV-29), on obtient :

$$\begin{aligned}J_0 &= \sigma \int_0^{s_0} J_h(\xi, s_h) d\xi \\ J_h &= \sigma \int_0^{s_h} J_0(s_0, \eta) d\eta + |\chi|^2\end{aligned}\tag{IV-31}$$

Donc :

$$J_h = \sigma^2 \int_0^{s_0} \int_0^{s_h} J_h(\xi, \eta) d\xi d\eta + |\chi|^2\tag{IV-32}$$

Si on définit ainsi l'opérateur $\hat{L}$:

$$\hat{L} f = \sigma^2 \int_0^{s_0} \int_0^{s_h} f(\xi, \eta) d\xi d\eta \quad (\text{IV-33})$$

On peut écrire l'équation (IV-32) sous la forme :

$$(1 - \hat{L}) J_h = |\chi|^2 \quad (\text{IV-34})$$

Alors :

$$J_h = (1 - \hat{L})^{-1} |\chi|^2 = \sum_{n=0}^{\infty} \hat{L}^n |\chi|^2 \quad (\text{IV-35})$$

Où le terme $\hat{L}^n |\chi|^2$ correspond à un faisceau diffracté $(2n + 1)$ fois.

$$\begin{aligned} \hat{L}^0 |\chi|^2 &= |\chi|^2, \quad \hat{L} |\chi|^2 = \sigma^2 \int_0^{s_0} \int_0^{s_h} d\xi d\eta |\chi|^2 = |\chi|^2 \sigma^2 s_0 s_h, \dots \\ \hat{L}^n |\chi|^2 &= \sigma^{2n} \int_0^{s_0} d\xi_1 \int_0^{s_h} d\eta_1 \dots \int_0^{\xi_{n-1}} d\xi_n \int_0^{\eta_{n-1}} d\eta_n |\chi|^2 \\ &= |\chi|^2 \sigma^{2n} \frac{(s_0 s_h)^n}{(n!)^2} \end{aligned} \quad (\text{IV-36})$$

D'après (IV-35) et (IV-36), J_h peut être donnée par la relation :

$$J_h = |\chi|^2 I_0(2\sigma \sqrt{s_0 s_h})$$

et :

$$I_h = |\chi|^2 I_0(2\sigma \sqrt{s_0 s_h}) \exp(-\sigma(s_0 + s_h)) \quad (\text{IV-37a})$$

de la même manière, on trouve :

$$I_0 = |\chi|^2 \sqrt{\frac{s_0}{s_h}} I_1(2\sigma \sqrt{s_0 s_h}) \exp(-\sigma(s_0 + s_h)) \quad (\text{IV-37b})$$

où I_0 et I_1 sont les fonctions de Bessel modifiées d'ordre 0 et de 1^{er} ordre.

On utilise l'équation (I-75) pour obtenir l'intensité diffractée intégrée et notons qu'on remplace v' par v dans le cas de Laue ; on obtient le facteur d'extinction secondaire dans l'approximation statistique :

$$y_s = \frac{1}{v} \int_v dv \exp(-\sigma(s_0 + s_h)) I_0(2\sigma\sqrt{s_0 s_h}) \quad (\text{IV-38})$$

A ce stade, il est important de comparer les résultats de ce chapitre avec les modèles proposés antérieurement pour l'extinction secondaire. Ces traitements sont tous basés sur le modèle mosaïque et les équations de transfert de Darwin (I-26,27).

C - EXTINCTION SECONDAIRE : MODELE DU CRISTAL MOSAIQUE

Les équations de Darwin sont formellement identiques aux équations (IV-16,17), à ceci près que la connaissance préalable de la section efficace unitaire $\bar{\sigma}$ est nécessaire qui fait appel au modèle mosaïque.

C - 1. La fonction de diffraction $\bar{\sigma}$

Considérons le modèle d'un cristal mosaïque [paragraphe I - B] : un cristal est constitué de blocs parfaits (on suppose qu'ils ont la même forme moyenne), de dimension moyenne $\bar{l}$, juxtaposés et légèrement désorientés les uns par rapport aux autres, séparés par des régions très petites et fortement distordues. On néglige la diffraction par les régions distordues. Leur rôle est simplement d'affaiblir la cohérence de l'onde entre deux points qui appartiennent à deux blocs distincts, Fig. IV-3.

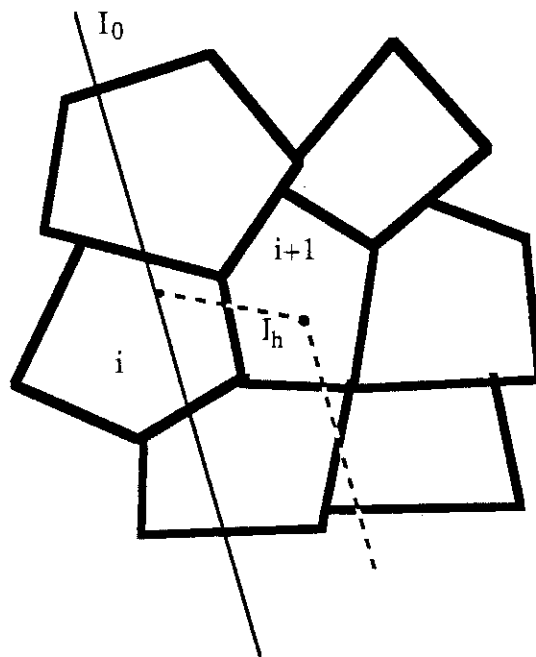


Fig. IV-3 : L'incohérence d'onde dans un cristal mosaïque

Dans le cas général, si l'onde est diffractée dans un bloc i , en plus de la possibilité qu'elle soit diffractée par un autre bloc (extinction secondaire), il peut y avoir diffraction multiple dans le bloc i (extinction primaire). On prend en compte la diffraction multiple dans l'expression de $\sigma(\epsilon)$ qui sera remplacée par une fonction moyenne $\bar{\sigma}(\epsilon)$ (la moyenne statistique est prise sur

toutes les orientations de domaines parfaits). Si $W(\eta)$ est la fonction de distribution angulaire de blocs par rapport à une direction moyenne, $\bar{\sigma}(\epsilon)$ est donnée par la relation :

$$\bar{\sigma}(\epsilon) \sim \sigma * W = \int \sigma(\epsilon + \eta) d\eta \quad (\text{IV-39})$$

où : $\epsilon + \eta$ est la direction du faisceau incident entrant dans un bloc (η est l'angle de désorientation) à la direction idéale de Bragg.

$\sigma(\epsilon + \eta)$: est la section efficace unitaire de diffraction à l'intérieur du bloc.

La relation (IV-39) montre que la raie de réflexion peut s'élargir par deux causes :

- ◊ La taille du bloc parfait σ , exprimée par une demi largeur η_0 inversement proportionnelle à la taille effective des blocs $\langle l \sin 2\theta \rangle$,
- ◊ la désorientation dans W , exprimée par une demi largeur η_w .

On distingue deux cas limites importants (Zachariasen, 1967 ; P. Becker and P. Coppens, 1974) :

Si $\eta_w \ll \eta_0$, Fig. IV-4a, c'est à dire la dimension du bloc est très petite (l'extinction primaire est négligeable) :

$$\bar{\sigma}(\epsilon) \sim \sigma(\epsilon) \quad (\text{IV-40})$$

Ce type du cristal est appelé type II.

Si au contraire $\eta_w \gg \eta_0$, Fig. IV-4b, l'extinction est dominée par la distribution des blocs (cristal de type I) :

$$\bar{\sigma}(\epsilon) \sim Q W(\epsilon) \quad (\text{IV-41})$$

Si les dimensions des blocs parfaits sont importantes, il peut être nécessaire de considérer la diffraction multiple (extinction primaire), donc Q est affaiblie par le facteur d'extinction primaire y_p dans le bloc parfait et $\bar{\sigma}(\epsilon)$ devient :

$$\bar{\sigma}(\epsilon) \sim Q y_p W(\epsilon)$$

plus généralement :

$$\bar{\sigma}(\epsilon) \sim y_p \sigma * W(\epsilon)$$

(IV-42)

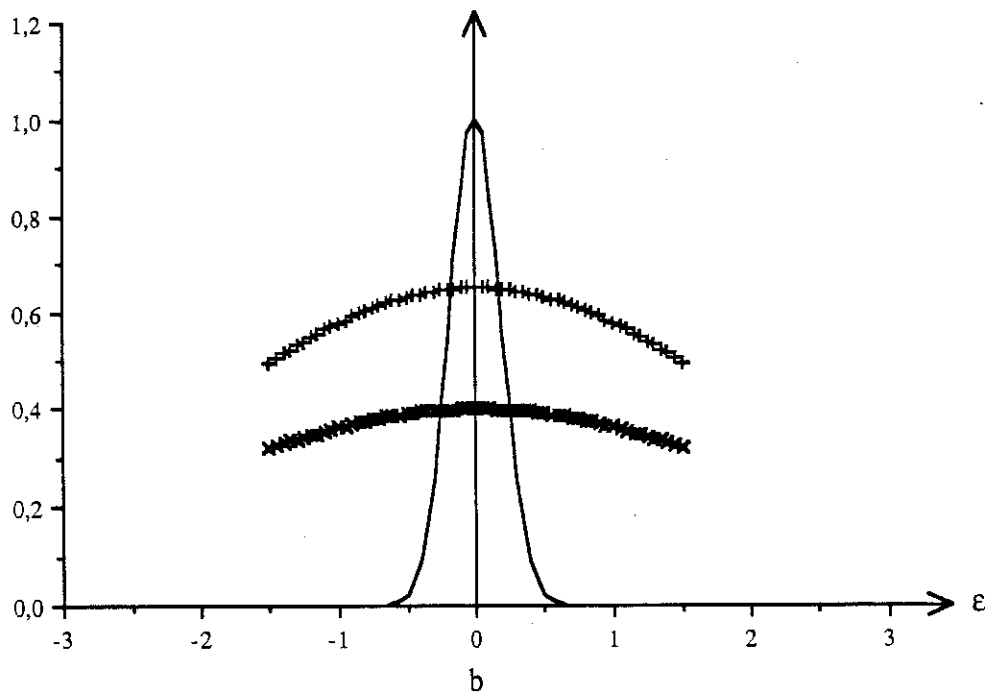
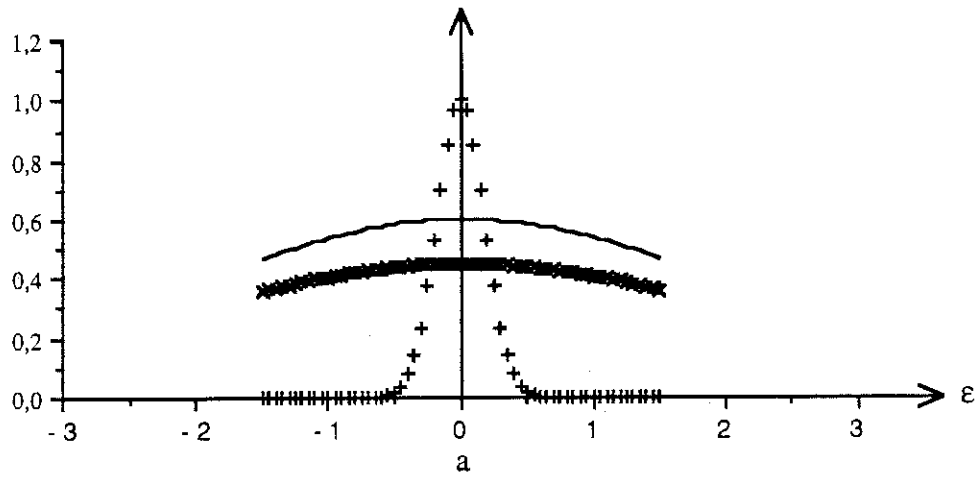


Fig. IV-4 : Forme de W , σ et $\bar{\sigma}$ dans les deux types: a) type II b) type I.

Où : xxxxx $\bar{\sigma}(\epsilon)$
 ——— $\sigma(\epsilon)$
 +++++ $W(\epsilon)$

$\sigma(\epsilon)$ peut être calculé à partir de la relation (I-14), (Zachariasen, 1967-Cooper et Rouse, 1970-P. Becker et Coppens, 1974) puis $\bar{\sigma}$ peut être calculée analytiquement ou numériquement après avoir donné une expression à $W(\eta)$. Mais l'expression de $\bar{\sigma}$ devient très compliquée. Donc souvent, on fait une approximation de $\sigma(\epsilon)$ par une Lorentzienne ou Gaussienne (P. Becker et Coppens, 1974); selon que W est pris Lorentzienne ou Gaussienne :

$$\begin{aligned}\sigma_L(\epsilon) &= \frac{\frac{4}{3} Q \alpha}{1 + \left(\frac{4}{3} \pi \epsilon \alpha\right)^2} \\ \sigma_G(\epsilon) &= Q \alpha \exp(-\pi \epsilon^2 \alpha^2)\end{aligned}\tag{IV-43}$$

où :

$$\alpha = \frac{1 \sin 2\theta}{\lambda}\tag{IV-44}$$

$W(\eta)$ peut être donnée aussi par une Lorentzienne ou Gaussienne.

$$\begin{aligned}W_L(\epsilon) &= \frac{2 g}{1 + 4 \pi^2 \epsilon^2 g^2} \\ W_G(\epsilon) &= \sqrt{2} g \exp(-2 \pi \epsilon^2 g^2)\end{aligned}\tag{IV-45}$$

si on prend $\bar{\sigma}(\epsilon)$ comme :

$$\begin{aligned}\bar{\sigma}_L &= \sigma_L * W_L \\ \bar{\sigma}_G &= \sigma_G * W_G\end{aligned}\tag{IV-46}$$

on obtient (P. Becker et Coppens, 1974) :

$$\begin{aligned}\bar{\sigma}_L(\epsilon) &= \frac{\frac{4}{3} Q \alpha_L}{1 + \left(\frac{4}{3} \pi \epsilon \alpha_L\right)^2} \\ \bar{\sigma}_G(\epsilon) &= Q \alpha_G \exp(-\pi \epsilon^2 \alpha_G^2)\end{aligned}\tag{IV-47}$$

où:

$$\alpha_L = \frac{\alpha}{1 + \frac{2}{3} \frac{\alpha}{g}} \quad \alpha_G = \frac{\alpha}{\left(1 + \frac{\alpha^2}{2g^2}\right)^{1/2}} \quad (\text{IV-48})$$

C-2. Le facteur d'extinction dans le modèle mosaïque en géométrie de Laue :

Dans ce cas on remplace dans les équations de transfert d'énergie (I-26) σ par $\bar{\sigma}$:

$$\begin{aligned} \frac{\partial I_0}{\partial s_0} &= -\bar{\sigma}(\epsilon) I_0 + \bar{\sigma}(\epsilon) I_h \\ \frac{\partial I_h}{\partial s_h} &= -\bar{\sigma}(\epsilon) I_h + \bar{\sigma}(\epsilon) I_0 \end{aligned} \quad (\text{IV-49})$$

On considère la condition aux limites :

$$I_0 = \delta(s_h) \quad (\text{IV-50})$$

Par analogie avec (IV-27), on trouve :

$$\begin{aligned} I_h &= \bar{\sigma}(\epsilon) I_0 \left(2\bar{\sigma}(\epsilon) \sqrt{s_0 s_h} \right) \exp(-\bar{\sigma}(\epsilon) (s_0 + s_h)) \\ I_0 &= \bar{\sigma}(\epsilon) \sqrt{\frac{s_0}{s_h}} I_1 \left(2\bar{\sigma}(\epsilon) \sqrt{s_0 s_h} \right) \exp(-\bar{\sigma}(\epsilon) (s_0 + s_h)) \end{aligned} \quad (\text{IV-51})$$

On remplace I_h par sa valeur donnée en (IV-51) dans l'équation (I-62) pour obtenir l'intensité diffractée intégrée dans le cas de Laue, on obtient le facteur d'extinction secondaire dans l'approximation de cristal mosaïque :

$$y_s = \frac{1}{Q_v} \int d\epsilon \bar{\sigma}(\epsilon) \int_v dv \exp(-\bar{\sigma}(\epsilon) (s_0 + s_h)) I_0 \left(2\bar{\sigma}(\epsilon) \sqrt{s_0 s_h} \right) \quad (\text{IV-52})$$

Il faut bien noter que l'expression de y dans un modèle mosaïque fait intervenir une intégration sur le profil de la réflexion, représenté par l'angle ϵ .

La validité de ce modèle est limitée par la validité des équations de transfert d'énergie de Darwin, mais aussi par celle de l'approximation sur les domaines fortement distordus et leur rôle.

Becker et Coppens (1974) ont considéré un cristal sphérique contenant des domaines sphériques idéaux pour calculer le facteur d'extinction secondaire y_s .

C - 3. Comparaison entre le modèle statistique de l'extinction secondaire et le modèle mosaïque

Si on compare (IV-38) et (IV-52), on voit que la seule différence "physique" vient de l'existence dans (IV-52) d'un profil dépendant d'un angle ϵ .

Ce problème a été longuement étudié dans la littérature [Becker and Coppens, 1974 ; Becker, 1977 ; Kato, 1980 ; Becker and Dunstetter, 1984]. Dans le cas d'une plaquette, Becker et Dunstetter ont montré que pour une extinction très sévère, y_s (IV-52) $\sim 1/F$, le pouvoir réflecteur ayant une dépendance en F qui simule un comportement dynamique.

Afin de concilier (IV-38) et (IV-52), on pouvait invoquer une cohérence de phase bien définie entre les ondes émanant de deux points sources S et S' sur la surface d'entrée, cela serait vrai si l'onde incidente était parfaitement cohérente, mais en général ceci n'est pas bien réalisé. Ce problème a été discuté [Becker, 1980-1981].

L'application pratique de (IV-38) à des données de diffraction, est en général un échec assez net, alors que le modèle (IV-52) est actuellement utilisé très généralement en cristallographie.

La base physique conduisant à (IV-52) est très discutable, nous pensons que dans la plupart des cristaux étudiés, E est assez grand, de façon à avoir une forte contribution "cohérente", la seule conduisant à un pouvoir proportionnel à F .

Donc, même si du point de vue des affinements, (IV-52) est satisfaisante, les erreurs dues au modèle mosaïque risquent d'avoir induit une interprétation très erronée de la "physique" des imperfections présentes dans les cristaux usuels. Ceci sera vu plus en détail à l'issue des chapitres suivants.

ARTICLE

***" Diffraction by a randomly distorted crystal. I :
Case of a short range order "***

Acta Cryst. (1989). A45, Accepté

Diffraction by a randomly distorted crystal. I : the case of short range order

Pierre BECKER * and Mostafa AL HADDAD†

Laboratoire de Cristallographie, associé à l'Université J. Fourier,
CNRS, 166X, 38042 Grenoble Cédex, France.

Abstract

KATO's statistical theory of diffraction is reformulated in a self consistent manner. The local displacement field $\underline{u}(\underline{r})$ occurs through the phase factor $\varphi(\underline{r}) = e^{2\pi i \underline{h} \cdot \underline{u}(\underline{r})}$. The present paper is concerned with the limiting case where $\langle \varphi(\underline{r}) \rangle = E = 0$: this corresponds to the situation where only secondary extinction is present.

There are two correlation lengths in the problem, the first one τ for the phase factor φ , the second one Γ for the wave field amplitudes. Kato (Acta Cryst. A36, 763-778, 1980) assumed $\Gamma \gg \tau$.

It is shown in the present paper that $\Gamma \sim \tau$, a property which has important consequences for the general theory, where $E \neq 0$, to be discussed in the second paper of this series.

I. INTRODUCTION

KATO (1980) has proposed a statistical theory that describes the propagation of X Rays and neutrons in a distorted crystal. This theory covers the whole range of perfection from purely dynamical (perfect crystal) to purely kinematical (mosaic crystal) diffraction. It thus fills the gap between secondary and primary extinction, that were treated independently in previous approaches.

* Permanent adress : Laboratoire de Minéralogie-Cristallographie, Université Pierre et Marie Curie, Tour 16, 4 place Jussieu, 75252 Paris Cédex 05, France.

† Permanent adress : Atomic Energy Commission, Po Box 6091, Damascus, Syria

The application of this theory has been discussed by KATO (1980) and an improved solution was recently proposed by the authors (AL HADDAD and BECKER, 1988), that led to a fair description of experimental data on Silicon (OLEKHNOVICH N.M., KARPEI A.L, OLEKHNOVICH A.I, PUZENKOVA L.D, 1983). This modification was confirmed by GUIGAY (1989).

The theory involves long range and short range order parameters. The effective short range correlation length introduced by KATO has been questioned in the literature (OLEKHNOVICH et. al. , 1983) and relies on non trivial assumptions.

In this series of papers, we intend to discuss the statistical hypothesis in detail, and to propose an improved self-consistent formulation of the problem. In order to separately discuss the various approximations, we shall start in the present paper by the particular case where long range order is negligible (secondary extinction only). The general theory will be presented in a second paper, together with a practical solution.

II. TAKAGI'S EQUATIONS AND THE STATISTICAL HYPOTHESIS

For simplicity, we shall consider a non absorbing and centrosymmetric crystal.

A. Let s_0 be a coordinate along the direction of the incident beam. Let us assume Bragg scattering to occur at the reciprocal lattice point $\underline{h}$. We denote the coordinate along the scattered direction by s_h . If D_0 and D_h are the amplitudes of the waves in the incident and scattered directions respectively, their propagation obeys TAKAGI's equations:

$$\begin{aligned}\frac{\partial D_0}{\partial s_0} &= i \chi \varphi D_h \\ \frac{\partial D_h}{\partial s_h} &= i \chi \varphi^* D_0\end{aligned}\tag{1}$$

where

$$\chi = \frac{\lambda a C}{V} F = \frac{1}{\Lambda}\tag{2}$$

F is the structure factor for the Bragg reflection $\underline{h}$, supposed here to be real (centrosymmetric crystal). λ is the wave length, V the volume of the unit cell, a equals 10^{-12}cm for neutrons, $0.28 \cdot 10^{-12}\text{cm}$ for X Rays. Λ is the "extinction length", the distance

above which multiple scattering (dynamical effects) becomes important, C = polarization factor for X Rays.

ϕ is a phase shift which accounts for the local displacement from perfection. If $\underline{u}(\underline{r})$ is the displacement field in the crystal :

$$\phi = e^{2\pi i \underline{h} \cdot \underline{u}(\underline{r})} \quad (3)$$

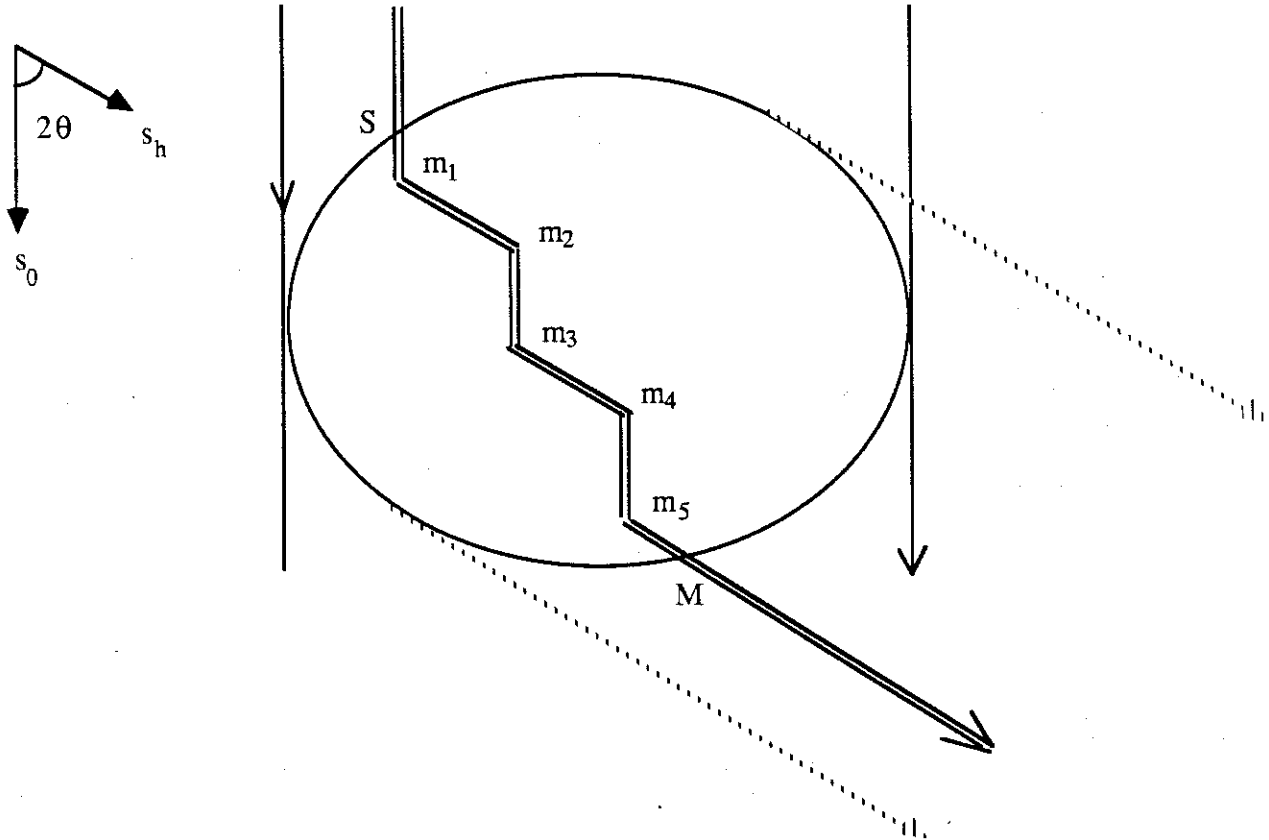


Fig. 1. Schematic representation of the scattering processes

- : incident beam
- : scattered beam
- ==== : a typical optical path through the crystal.
- θ : Bragg angle

The situation is depicted on Fig 1. We assume a crystal to be totally illuminated by an incident beam. A typical optical route is shown in this figure; the beam enters the crystal at S and exits at M. The amplitude at M will depend on the phases ϕ_i at the points m_i where scattering has occurred.

The practical solution of eqns (1) is impossible in the general case, even if $\underline{u}(\underline{r})$ would be known at each point. In most situations, the displacement field $\underline{u}(\underline{r})$ is unknown and some assumptions have to be formulated before (1) can be solved.

Equations (1) have been proved by TAKAGI (1962- 1969; TAUPIN, 1964) and reformulated by KATO (1973).

They can be viewed as very general propagation equations for waves in the presence of a scattering potential. χ is the amplitude of the scattering process, and ϕ a local phase shift, that will be considered as a random quantity.

B. Given a crystal, it is possible to analyse the displacement field $\underline{u}$ in terms of its probability distribution function $P(\underline{u})$. (BECKER and AL HADDAD, 1989, a).

It is possible to consider ϕ as a random variable. KATO introduced the quantity:

$$E = \langle \phi(\underline{r}) \rangle_{\underline{r}} = \int_V \phi(\underline{r}) dV \quad (4)$$

Where V is the volume of the crystal

which can also be written as:

$$E = \int P(\underline{u}) e^{2\pi i \underline{h} \cdot \underline{u}} d\underline{u} \quad (5)$$

E is the "long range " order parameter of the problem. It is equivalent to a static Debye-Waller factor. It is reasonable to assume a gaussian distribution for $P(\underline{u})$, if the displacements are random enough. Assuming an isotropic distribution, one gets :

$$E = e^{-\frac{2\pi^2}{3} h^2 \langle u^2 \rangle} \quad (6)$$

where $\langle u^2 \rangle$ is the mean square displacement over the crystal under study. (6) also shows the dependence of E on the Bragg angle ($|\underline{h}| = 2 \sin \theta / \lambda$,if 2θ is the scattering angle).

For a perfect crystal, $E = 1$.

If $\langle u^2 \rangle^{1/2}$ becomes larger than the reticular plane interspacing $d = 1/h$, E becomes very small and will often be neglected. The limit $E \rightarrow 0$ corresponds to the purely "mosaic" crystal.

KATO also introduced a short range order parameter through the pair correlation function :

$$f(\underline{t}) = \langle \varphi^*(\underline{r} + \underline{t}) \varphi(\underline{r}) \rangle_{\underline{r}} \quad (7)$$

This function is assumed to be real and symmetric. If we write :

$$\varphi = E + \delta\varphi \quad (8)$$

where $\delta\varphi$ is the phase fluctuation, we get :

$$f(\underline{t}) = E^2 + \langle \delta\varphi^*(\underline{r} + \underline{t}) \delta\varphi(\underline{r}) \rangle_{\underline{r}}$$

Since $f(0) = 1$:

$$f(\underline{t}) = E^2 + (1 - E^2) g(\underline{t}) \quad (9)$$

where $g(0) = 1$ and $g(\underline{t})$ is a decreasing function that describes the phase correlation between two points separated by the vector $\underline{t}$.

We are interested in the solution of eqns (1) in the case where $\underline{u}(\underline{r})$ has an known distribution. The statistical hypothesis is thus introduced at this particular stage : the diffracted power does not depend on the details of the displacement field $\{ \underline{u}(\underline{r}) \}$.

One may expect that there exist many hypothetical crystals with different displacement fields $\{ \underline{u}_1 \} \dots \{ \underline{u}_p \}$ but having the same diffraction spectrum. These crystals must have the same distribution function $p(\underline{u})$ and the same correlation function $g(\underline{t})$.

If such an assumption is valid, it becomes possible to describe the intensities of the incident and diffracted beams as an ensemble average over all the crystals that would give the same diffraction spectrum: this would also correspond to studying the scattering by an homogeneously distorted crystal defined as an average among crystal 1, crystal 2, crystal p.

It is obvious that one of the conditions to be fulfilled is that the actual dimension ℓ of the sample be large compared to any characteristic length, such as Λ or τ ,

$$\begin{aligned} \ell &\gg \tau \\ \ell &\gg \Lambda \end{aligned} \quad (10)$$

We write the intensities in the incident and diffracted directions as :

$$I_0 = \langle |D_0|^2 \rangle, \quad I_h = \langle |D_h|^2 \rangle \quad (11)$$

the brackets having the meaning of an ensemble average.

If the phase sequence along an optical route such as shown on Fig. 1 can be approximated by a Markov chain, and if $\underline{t} = x \underline{u} + y \underline{u}_h$ (where $\underline{u}$ and $\underline{u}_h$ are the unit vectors along the incident and diffracted beams), one can show (BECKER and ALHADDAD, 1989a) that :

$$g(\underline{t}) = e^{-\underline{a} \cdot \underline{t}} \quad (12a)$$

If moreover the incident and diffracted directions are supposed to be equivalent for the correlation

$$g(\underline{t}) = e^{-(x+y)/\tau} \quad (12b)$$

we note that :

$$\begin{aligned} g(x, y) &= g(x) g(y) \\ g(0, y) &= g(y), \quad g(x, 0) = g(x) \end{aligned} \quad (12c)$$

Correlation lengths τ_n are defined as :

$$\begin{aligned} \tau_n &= \int_0^\infty [g(t)]^n dt \\ \tau_1 &= \tau \end{aligned} \quad (13)$$

τ measures the width of the pair correlation function g , and represents the distance over which two routes lose their mutual phase coherence.

Higher order correlation functions can be introduced but the present theory will only take pair - correlation into consideration. The implications of such a constraint will be discussed at the end.

C. In the present paper, we shall restrict the discussion to the case where E is very small, thus neglecting long range order: we shall use the following simplifications:

$$\begin{aligned} \langle \varphi \rangle &= 0 \\ \langle \varphi^*(\underline{r} + \underline{t}) \varphi(\underline{r}) \rangle &= f(\underline{t}) = g(\underline{t}) \end{aligned} \quad (14)$$

The second paper of these series will deal with the general case.

Before solving (1) under the conditions (14), we shall make a further assumption concerning the scattering geometry and boundary conditions for the beams. This is summarized in Fig. 2 .

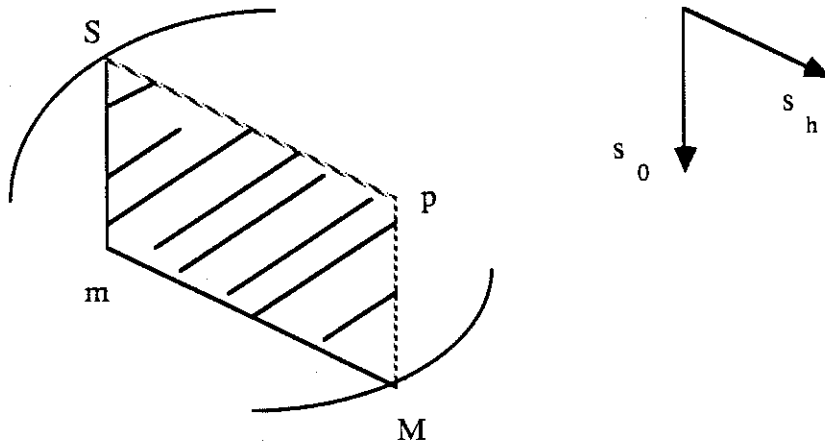


Fig. 2 : Assumed geometry for the diffraction

Let S be a point illuminated on the crystal surface. S can be considered as a point source, emitting a spherical wave.

Suppose the diffracted beam to exit at M . Let

$$\overline{Sm} = s_0, \quad \overline{mM} = s_h$$

We suppose that the parallelogram ($SmMp$) is totally inside the crystal (transmission geometry).

This approximation has been shown to be fair in many situations (BECKER & COPPENS, 1974; BECKER & DUNSTETTER, 1984), especially for small scattering angles (the most important situations for multiple scattering). We assume a unit intensity for the incident beam, which leads to the boundary condition :

$$D_0^0 = \delta(s_h) \quad (15)$$

One calculates the solution for this point source (Green function of the problem). It is then necessary to integrate over the exit surface from the crystal, and over all the source points, in order to get the integrated diffracted power that is recorded in an experiment.

The integrated diffracted power for an homogeneous incident beam is shown to be (KATO, 1976; BECKER, 1977) :

$$P = \frac{\lambda}{\sin 2\theta} \int_v I_h (m) dv \quad (16)$$

where $I_h (m)$ is the intensity in the diffracted beam at M originating from the source S : notice that any point m inside the crystal defines uniquely the pair (S , M) .

III. PROPAGATION EQUATIONS FOR THE INTENSITIES

TAKAGI's equations can be transformed into integral equations, as proposed by KATO:

$$D_h (s_0 , s_h) = i \chi \int_0^{s_h} \varphi^* (s_0 , \eta) D_0 (s_0 , \eta) d\eta \quad (17a)$$

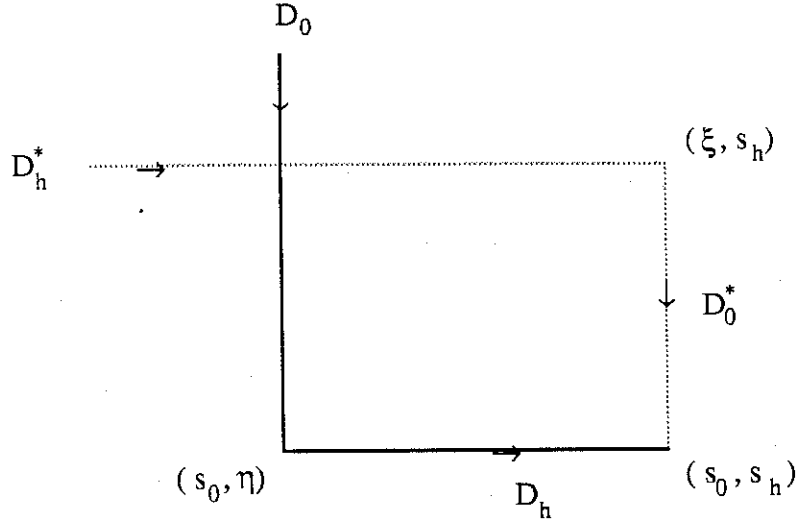
$$D_0 (s_0 , s_h) = \delta (s_h) + i \chi \int_0^{s_0} \varphi (\xi , s_h) D_h (\xi , s_h) d\xi \quad (17b)$$

It is easy to write the propagation equations for I_0 or I_h :

$$\frac{\partial I_0}{\partial s_0} = - \frac{\partial I_h}{\partial s_h} = i \chi \{ \langle D_0^* \varphi D_h \rangle - \langle D_h^* \varphi^* D_0 \rangle \} \quad (18)$$

(18) correlates D_0 and D_h at the same point. In order to estimate this quantity, we must take into account the fact that the actual values of D_0 and D_h at a given point are defined by the scattering events which have occurred at preceding points : this is achieved by the use of (17). The situation is schematized on the following diagram where horizontal lines refer to the diffracted direction and vertical lines to the incident direction : the two routes join at (s_0 , s_h)

and correspond to the evaluation of $D_0^* (s_0 , s_h) D_h (s_0 , s_h)$



Let us consider the term $\langle D_0^* \varphi D_h \rangle$.

Through equation (17a), one creates a correlation between $D_0^*(s_0, s_h)$ and $D_0(s_0, \eta)$.

Through (17b), one gets a correlation between $D_h(s_0, s_h)$ and $D_h^*(\xi, s_h)$.

Since those two correlations are independent, one must add the two processes. The term $\delta(s_h)$ in (17b) does not correspond to a scattering event and can be discarded. We get

$$\begin{aligned} \frac{\partial I_0}{\partial s_0} &= \chi^2 \int_0^{s_0} d\xi \langle D_h^*(\xi, s_h) D_h(s_0, s_h) \varphi^*(\xi, s_h) \varphi(s_0, s_h) \rangle \\ &\quad + \text{c. c.} \\ &\quad - \chi^2 \int_0^{s_h} d\eta \langle D_0^*(s_0, s_h) D_0(s_0, \eta) \varphi^*(s_0, \eta) \varphi(s_0, s_h) \rangle \\ &\quad + \text{c. c.} \end{aligned} \quad (19)$$

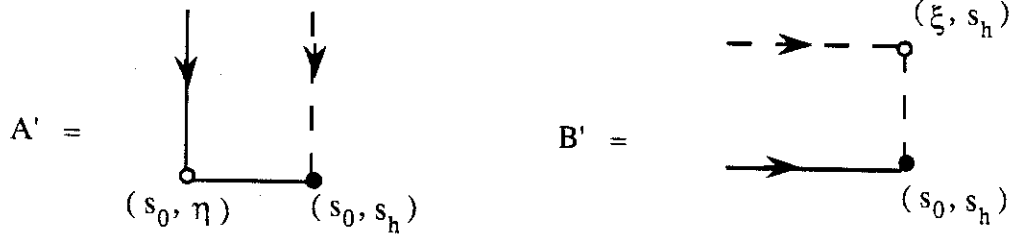
Assuming the brackets to be real, we get :

$$\frac{\partial I_0}{\partial s_0} = -\frac{\partial I_h}{\partial s_h} = 2\chi^2 [B' - A'] \quad (20)$$

with

$$\begin{aligned}
A' &= \int_0^{s_h} d\eta < D_0^* (s_0, s_h) D_0 (s_0, \eta) \varphi^* (s_0, \eta) \varphi (s_0, s_h) > \\
B' &= \int_0^{s_0} d\xi < D_h (s_0, s_h) D_h^* (\xi, s_h) \varphi^* (\xi, s_h) \varphi (s_0, s_h) >
\end{aligned} \tag{21}$$

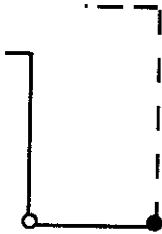
A' and B' can be represented with the following diagrams :



where $\bullet : \varphi$ $\circ : \varphi^*$.

It should be recalled that D_0 or D_h only change their value at a scattering point.

$(D_0^* (s_0, s_h) D_0 (s_0, \eta))$ is defined by scattering events taking place earlier on the routes, for example :



We wish now to evaluate (21). We will restrict the discussion to the pair-correlation assumption. Therefore (FELLER, 1970) the average of the product of an even number of random quantities, each of which has a zero mean value, can be written as the sum of all the independant products of pair correlations. Take $< a_1 a_2 a_3 a_4 >$. It can be written, in the pair correlation approximation :

$$\begin{aligned}
\langle a_1 a_2 a_3 a_4 \rangle &= \langle a_1 a_2 \rangle \langle a_3 a_4 \rangle + \langle a_1 a_3 \rangle \langle a_2 a_4 \rangle \\
&+ \langle a_1 a_4 \rangle \langle a_2 a_3 \rangle
\end{aligned}
\quad (22)$$

if $\langle a_i \rangle = 0$

this expression is exact where the random variables a_i have a Gaussian multivariate distribution.

Furthermore, equation (17) can be used iteratively and leads to

$$D_h(s_0, s_h) = i\chi \varphi^*(s_0, 0) + \hat{L} D_h$$

where

$$\hat{L} f = -\chi^2 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta \varphi^*(s_0, \eta) \varphi(\xi, \eta) f(\xi, \eta) \quad (23)$$

From this, we get

$$\begin{aligned}
\langle D_h \rangle &= \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n \langle \hat{L}^n [i\chi \varphi^*(s_0, 0)] \rangle \\
&= \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n i\chi (-\chi^2)^n \int_0^{s_0} d\xi_1 \int_0^{s_h} d\eta_1 \dots \int_0^{\xi_{n-1}} d\xi_n \int_0^{\eta_{n-1}} d\eta_n \\
&\quad \langle \varphi^*(s_0, \eta_1) \varphi(\xi_1, \eta_1) \dots \varphi^*(\xi_{n-1}, \eta_{n-1}) \varphi(\xi_n, \eta_n) \varphi^*(\xi_n, 0) \rangle
\end{aligned}$$

The bracket involves the average of a product of an odd number of quantities whose mean value is zero.

If the displacement field is such that $[\hat{h}_u(r_1) \dots \hat{h}_u(r_n)]$ has approximately a multivariate Gaussian distribution, (FELLER, 1970 - BECKER and AL HADDAD, 1989a) each term in the preceding expansion is zero and we conclude that

$$\langle D_h \rangle = 0 \quad (24a)$$

similarly, if we consider only the part of the incident beam which corresponds to multiple scattering, $\langle D_0 \rangle = 0$ (24b)

There is a total lost of phase coherence along a given route. As a result, the only contribution to the intensity must come from the correlation between different routes originating from S and joining at (s_0, s_h) . That is equivalent to saying that the only non vanishing terms

in (21) are $\langle D_0^*(s_0, s_h) D_0(s_0, \eta) \rangle \langle \varphi^*(s_0, \eta) \varphi(s_0, s_h) \rangle$ and

$\langle D_h(s_0, s_h) D_h^*(\xi, s_h) \rangle \langle \varphi^*(\xi, s_h) \varphi(s_0, s_h) \rangle$.

The term $\langle D_0^*(s_0, s_h) \varphi(s_0, s_h) \rangle \langle D_0(s_0, \eta) \varphi^*(s_0, \eta) \rangle$ would be zero since each bracket is proportional to $\frac{\partial}{\partial s_h} \langle D_h^* \rangle$ and $\frac{\partial}{\partial \eta} \langle D_h \rangle$: remember that $\langle D_h \rangle = 0$ the term $\langle D_0^*(s_0, s_h) \varphi^*(s_0, \eta) \rangle \langle D_0(s_0, \eta) \varphi(s_0, s_h) \rangle$ would, by the use of (17)

involve non first neighbour phase correlation, which are neglected in the present approach. Thus, phase and amplitude couplings can be separated, and one gets :

$$\begin{aligned} A' &= \int_0^{s_h} d\eta g(s_h - \eta) \langle D_0^*(s_0, s_h) D_0(s_0, \eta) \rangle \\ B' &= \int_0^{s_0} d\xi g(s_0 - \xi) \langle D_h(s_0, s_h) D_h^*(\xi, s_h) \rangle \end{aligned} \quad (25)$$

the diagrammatic version of (25) is :

$$\frac{\partial I_0}{\partial s_0} = -2\chi^2 \quad + \quad 2\chi^2$$

where stands for a phase correlation

and stands for a transverse amplitude correlation.

III-a. KATO's approximation.

To estimate A' and B' , KATO made the assumption that the transverse correlation length (Γ) of the amplitude is much larger than τ , the phase correlation length. Γ is the distance over which $\langle D_0^*(s_0, s_h) D_0(s_0 - \Gamma) \rangle$ becomes negligible.

Then $\langle D_0^*(s_0, s_h) D_0(s_0, \eta) \rangle$ can thus be replaced by $I_0(s_0, s_h)$ in (25). This leads to a very simple solution :

$$\begin{aligned} A' &= \tau I_0(s_0, s_h) \\ B' &= \tau I_h(s_0, s_h) \end{aligned} \quad (26)$$

Thus, the propagation equations take the simple form :

$$\frac{\partial I_0}{\partial s_0} = - \frac{\partial I_h}{\partial s_h} = 2 \chi^2 \tau [I_h - I_0] \quad (27)$$

which is familiar in secondary extinction theories (ZACHARIASEN, 1967 - BECKER & COPPENS 1974), where the quantity $(2 \chi^2 \tau)$ plays the role of a specific scattering cross section.

Earlier, KATO (1976) proposed a theory for secondary extinction, based on a detailed study of all the possible coupling schemes between two optical routes. This theory, precise but quite complicated, cannot be generalized if $E \neq 0$.

It leads to :

$$\frac{\partial I_0}{\partial s_0} = - \frac{\partial I_h}{\partial s_h} = 2 \chi^2 \tau_2 [I_h - I_0] \quad (28)$$

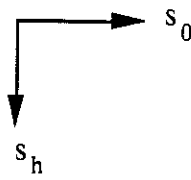
The only difference with (27) is the occurrence of τ_2 instead of τ and seems minor.

In fact, we shall see that it is related to the approximation leading to (26), which has to be critically discussed. The difference between (27) and (28) will be shown to be quite fundamental in terms of the physics behind.

III-b. Self-consistent approach

We must consider A' and B' without making any a priori approximation. If we wish to calculate them directly, this will involve quantities such as:

$\langle D_0^*(s_0, s_h) D_0(s_0, \eta) \rangle$, which has to be expanded in terms of preceding scattering events. We must therefore consider an expansion of $\partial I_0 / \partial s_0$ at least to order χ^4 .



$$\begin{aligned}
 \frac{\partial I_0}{\partial s_0} = & 2\chi^4 \left[\text{Diagram 1} - 2\chi^4 \text{Diagram 2} + 2\chi^4 \text{Diagram 3} - 2\chi^4 \text{Diagram 4} \right] \\
 = & 2\chi^4 [X_1 + X_2 + X_3 + X_4]
 \end{aligned}
 \tag{29}$$

The diagrams are:

- Diagram 1:** A square loop with vertices at the origin, s_0 , $s_0 + s_h$, and s_h . Arrows indicate a clockwise path: down from origin, right to s_0 , up to $s_0 + s_h$, and left to s_h .
- Diagram 2:** A square loop with vertices at the origin, s_0 , $s_0 + s_h$, and s_h . Arrows indicate a counter-clockwise path: right from origin, up to s_0 , left to $s_0 + s_h$, and down to s_h .
- Diagram 3:** A square loop with vertices at the origin, s_0 , $s_0 + s_h$, and s_h . Arrows indicate a clockwise path: down from origin, right to s_0 , up to $s_0 + s_h$, and left to s_h .
- Diagram 4:** A square loop with vertices at the origin, s_0 , $s_0 + s_h$, and s_h . Arrows indicate a counter-clockwise path: right from origin, up to s_0 , left to $s_0 + s_h$, and down to s_h .

In evaluating X_1 , we will again separate phase and amplitude correlations, following arguments leading to equation (22). Taking into account all the pair correlations leads to:

$$X_1 = \text{Diagram 1} = \text{Diagram 2} + \text{Diagram 3}$$

The diagrams are:

- Diagram 1:** A square loop with vertices at the origin, s_0 , $s_0 + s_h$, and s_h . Arrows indicate a clockwise path: down from origin, right to s_0 , up to $s_0 + s_h$, and left to s_h .
- Diagram 2:** A square loop with vertices at the origin, s_0 , $s_0 + s_h$, and s_h . Arrows indicate a clockwise path: down from origin, right to s_0 , up to $s_0 + s_h$, and left to s_h .
- Diagram 3:** A square loop with vertices at the origin, s_0 , $s_0 + s_h$, and s_h . Arrows indicate a clockwise path: down from origin, right to s_0 , up to $s_0 + s_h$, and left to s_h .

$$X_1 = \int_0^{s_h} d\eta \int_0^{s_0} d\xi' \int_0^{s_h} d\eta' \{ g(s_h - \eta) g(s_h - \eta') + g(s_0 - \xi') g(s_0 - \xi', \eta - \eta') \} \langle D_0(s_0, \eta) D_0^*(\xi', \eta') \rangle \quad (30)$$

We shall use two more approximations :

- it is shown in the appendix that the bracket $\langle D_0(\xi, \eta) D_0^*(\xi', \eta') \rangle$ can be replaced by $\langle D_0(\xi', \eta) D_0^*(\xi', \eta') \rangle$ (long longitudinal amplitude correlation)

$$\text{- If } x, y > 0 \quad g(x+y) \sim g(x)g(y) \quad (31)$$

(BECKER P. and AL HADDAD M., 1989a).

$$\begin{aligned}
X_1 &= 2 \int_0^{s_h} g^2(s_h - \eta) d\eta \int_0^{s_0} d\xi' \int_0^\eta d\eta' g(\eta - \eta') \\
&\quad \langle D_0(\xi', \eta) D_0^*(\xi', \eta') \rangle \\
&+ 2 \int_0^{s_0} d\xi' g^2(s_0 - \xi') \int_0^{s_h} d\eta \int_0^\eta d\eta' g(\eta - \eta') \\
&\quad \langle D_0(\xi', \eta) D_0^*(\xi', \eta') \rangle \\
&= 2 \tau_2 \int_0^{s_0} d\xi A'(\xi, s_h) + 2 \tau_2 \int_0^{s_h} d\eta A'(s_0, \eta)
\end{aligned} \tag{32}$$

where use was made of the fact that A' has slow variations on a distance of order τ .

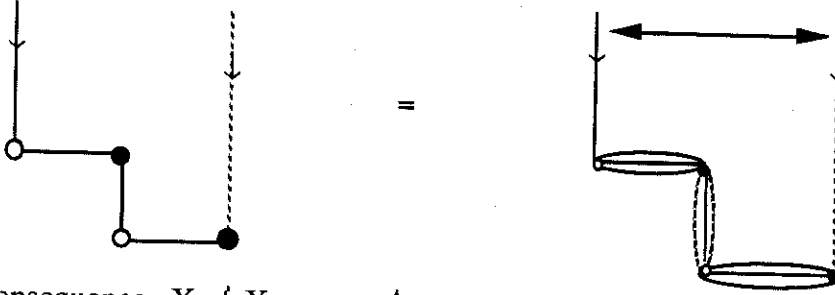
By similar arguments :

$$X_2 = -2\tau_2 \int_0^{s_0} d\xi B'(\xi, s_h) - 2\tau_2 \int_0^{s_h} d\eta B'(s_0, \eta) \quad (33)$$

We then consider X_3 . We notice that the former scattering events occur on the same optical route and correlations between adjacent pairs cannot be factored out.

$$\begin{aligned}
& \langle \varphi(s_0, s_h) \varphi^*(s_0, \eta) \varphi(\xi', \eta) \varphi^*(\xi', \eta') \rangle \\
& = g(s_h - \eta) g(\eta - \eta') G(s_0 - \xi')
\end{aligned}$$

where $G(s_0 - \xi')$ correlates the two horizontal pairs on a distance of order τ :



as a consequence, $X_3 / X_1 \sim \tau / s_0$

X_3 can be neglected. Similarly X_4 is neglected.

Finally, we get :

$$\frac{\partial I_0}{\partial s_0} = 4 \chi^4 \tau_2 \left\{ \int_0^{s_0} d\xi [A' - B'](\xi, s_h) + \int_0^{s_h} d\eta [A' - B'](s_0, \eta) \right\} \quad (34)$$

From (20), this can be transformed into :

$$\begin{aligned}
\frac{\partial I_0}{\partial s_0} &= 2 \chi^2 \tau_2 \left[- \int_0^{s_0} \frac{\partial I_0}{\partial s_0}(\xi, s_h) d\xi + \int_0^{s_h} \frac{\partial I_h}{\partial s_h}(s_0, \eta) d\eta \right] \\
&= 2 \chi^2 \tau_2 [I_h - I_0]
\end{aligned}$$

and

$$\frac{\partial I_h}{\partial s_h} = 2 \chi^2 \tau_2 [I_0 - I_h] \quad (35)$$

The correlation length τ_2 is retrieved and we find agreement with KATO's 1976 theory.

The previous results can be written as :

$$\begin{aligned}
A' &= \tau_2 I_0 \\
B' &= \tau_2 I_h
\end{aligned} \quad (36)$$

as can be seen by an expansion of (22) :

$$\begin{aligned}
 A' &= -2\chi^2 & + 2\chi^2 \\
 B' &= -2\chi^2 & + 2\chi^2
 \end{aligned}
 \quad (37)$$

(36) shows that the transverse amplitude correlation length Γ is of the same order as the phase correlation length τ , a result which differs significantly from KATO's predictions.

This difference will have also a strong influence on the theory when there is long range order ($E \neq 0$).

IV. SOLUTION

The solution of (28 or 35) is well known (BECKER, 1977 - KATO, 1976, 1980b): it depends on the boundary values for I_0 and I_h .

A simple use of (15) and (17) would lead to

$$\begin{aligned}
 I_0(\epsilon, s_h) &\sim 0 \\
 I_h(s_0, \epsilon) &\sim \chi^2
 \end{aligned}
 \quad (38)$$

for $\epsilon \ll s_0, s_h$ but $\epsilon \gg \tau$.

(38) are the effective boundary conditions for kinematical theory (single scattering)

However, this simple scattering can occur at any $x < s_0$: the incident beam at s_0 is thus reduced by an effective absorption factor $\exp(-2\chi^2 \tau_2 s_0)$. The effective boundary values have to be taken as (AL HADDAD and BECKER 1988):

$$\begin{aligned}
 I_0(\epsilon, s_h) &\sim 0 \\
 I_h(s_0, \epsilon) &\sim \chi^2 e^{-2\chi^2 \tau_2 s_0}
 \end{aligned}
 \quad (39)$$

The solution is then:

$$\begin{aligned} I_0(s_0, s_h) &= \chi^2 \sqrt{\frac{s_0}{s_h}} \mathbb{I}_1(2\sigma \sqrt{s_0 s_h}) e^{-\sigma(s_0 + s_h)} \\ I_h(s_0, s_h) &= \chi^2 \mathbb{I}_0(2\sigma \sqrt{s_0 s_h}) e^{-\sigma(s_0 + s_h)} \end{aligned} \quad (40)$$

$$\text{Where :} \quad \sigma = 2\chi^2 \tau_2 \quad (41)$$

is the specific scattering cross section
and $\mathbb{I}_0, \mathbb{I}_1$ stand for modified Bessel functions of the first kind.

The kinematical diffracted power (16) is :

$$P_k = \frac{\lambda}{\sin 2\theta} \chi^2 v \quad (42)$$

The measured power is :

$$P = P_k y \quad (43)$$

where y is the extinction factor. We get :

$$y = v^{-1} \int_v e^{-\sigma(s_0 + s_h)} \mathbb{I}_0(2\sigma \sqrt{s_0 s_h}) dv \quad (44)$$

an expression of great use in secondary extinction theory.

V. CONCLUSION

We have discussed the statistical basis of the theory of multiple scattering by crystals with a local displacement field $\underline{u}(\underline{r})$. We have shown, in the case of negligible long range order, that the correlation functions for the amplitudes in the transverse direction can be calculated without any a priori approximation. The correlation length of the amplitudes is of the same order as the correlation length for the phases, a result which is consistent with the detailed calculation of KATO (1976), but which discards KATO's assumptions of 1980 concerning the general statistical theory. This result is important for the general theory to be presented in a following paper.

APPENDIX

Longitudinal correlation of the beams

Let us consider the quantity :

$$a = \int_0^{s_h} < D_h^* (s_0, s_h) D_0 (s_0, \eta) \varphi^* (s_0, \eta) > d\eta \quad (A1)$$

We take its derivative with respect to s_h applying the same method as in the text :

$$\begin{aligned} \frac{\partial a}{\partial s_h} &= < D_h^* \varphi^* D_0 > - i \chi \int_0^{s_h} < D_0^* (s_0, s_h) D_0 (s_0, \eta) > g (s_h - \eta) d\eta \\ &= i \chi [B' - 2 A'] \end{aligned} \quad (A2)$$

$$\text{since } < D_h^* \varphi^* D_0 > = i \chi [B' - A']$$

We can also expand (A1) as:

$$\begin{aligned} a &= i \chi \int_0^{s_h} d\eta \int_0^{s_0} d\xi < D_h^* (s_0, s_h) D_h (\xi, \eta) > g (s_0 - \xi) \\ &\quad - i \chi \int_0^{s_h} d\eta \int_0^{s_h} d\eta' < D_0^* (s_0, \eta') D_0 (s_0, \eta) > g (\eta - \eta') \end{aligned} \quad (A3)$$

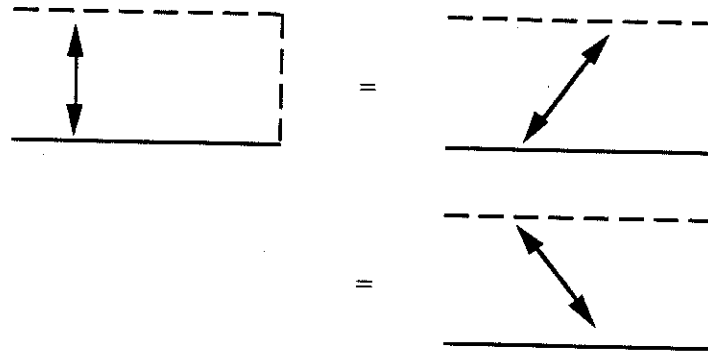
$$\text{the second term is } -2 i \chi \int_0^{s_h} d\eta A' (s_0, \eta)$$

If we replace $< D_h^* (s_0, s_h) D_h (\xi, \eta) >$ by $< D_h^* (s_0, \eta) D_h (\xi, \eta) >$ in the first term, we get :

$$a = i \chi \int_0^{s_h} d\eta [B' (s_0, \eta) - 2 A' (s_0, \eta)] \quad (A4)$$

and $\partial a / \partial s_h = i \chi [B' - 2 A']$ a result similar to (A2).

It seen therefore legitimate to replace $\langle D_h^* (s_0, s_h) D_h (\xi, \eta) \rangle$ by $\langle D_h^* (s_0, \eta) D_h (\xi, \eta) \rangle$. Thus we can consider that the longitudinal correlation of the amplitudes is large and only the transverse correlation plays an important role in the theory. This is related to the fact that the amplitudes change only their values due to scattering.



The amplitude correlation function between two parallel routes only depends on the distance between the two routes, and not on the particular position on each route

REFERENCES

- AL HADDAD M., BECKER P. (1988) Acta Cryst. (A. 44, 262-270).
- BECKER P., AL HADDAD M., (1989a) Acta Cryst. (A45, 333-337)
- BECKER P., AL HADDAD M., (1989b) Acta Cryst. (to be published
- BECKER P. (1977) Acta Cryst. A33 , 667 - 671
- BECKER P. (1980) in Electron and Magnetisations Densities in Molecules and Crystals, ed. by P.BECKER New York; Plenum p213 - 230
- BECKER P., COPPENS P. (1974) Acta Cryst. A30, 129 - 153
- BECKER P., DUNSTETTER F. (1984) Acta Cryst. A40, 241 - 251
- FELEER W. (1970) An Introduction to probability Theory and its Applications New York : John Wiley.
- GUIGAY J.P., (1989) Acta Cryst. A45, 241 - 244
- KATO N. (1973) Z. Naturforsch. Teil A 28, 604 - 609
- KATO N. (1976) Acta Cryst. A32 453 - 466
- KATO N. (1980a) Acta Cryst. A36 763 - 769
- KATO N. (1980b) Acta Cryst. A36 770 - 778
- OLEKHNOVICH N.M., KARPEI A.L, OLEKHNOVICH A.I, PUZENKOVA L.D., (1983) Acta Cryst. A39, 116 - 122
- TAKAGI S. (1962) Acta Cryst. 15, 1311 - 1312
- TAKAGI S. (1969) J. Phys. Soc. Japan 26, 1239 - 1253
- TAUPIN D. (1964) Bull. Soc. Franç. Minér. Crist. 87, 469 - 511
- ZACHARIASEN W.H., (1967) Acta Cryst. 23, 558 - 564

CHAPITRE V

CRISTAL REEL : THEORIE GENERALE

INTRODUCTION

Nous avons déjà vu que lorsque le cristal est parfait, l'intensité est complètement cohérente [chap. III] et dans le cas d'un cristal totalement imparfait ($E = 0$), l'intensité est totalement incohérente [chap. IV] ; par contre dans un cristal réel les deux contributions sont en présence :

– Les composantes cohérentes :

$$I_h^c = |\langle D_h \rangle|^2, \quad I_0^c = |\langle D_0 \rangle|^2 \quad (V-1)$$

– Les composantes incohérentes :

$$I_h^i = I_h - I_h^c = \langle |\delta D_h|^2 \rangle, \quad I_0^i = I_0 - I_0^c = \langle |\delta D_0|^2 \rangle \quad (V-2)$$

où I_0 et I_h sont les intensités totales (II-2) dans la direction incidente et dans la direction diffractée.

δD_0 (δD_h) est la fluctuation de D_0 (D_h) autour de sa moyenne :

$$\delta D_0 = D_0 - \langle D_0 \rangle, \quad \delta D_h = D_h - \langle D_h \rangle \quad (V-3)$$

Pour simplifier la discussion, nous considérons dans ce chapitre un cristal non absorbant et centrosymétrique. Comme dans le chapitre V, en se basant sur la validité du modèle présenté au chapitre II, nous cherchons les équations de propagation de diverses composantes à partir des équations de Takagi-Taupin :

$$\begin{aligned} \frac{\partial D_0}{\partial s_0} &= i \chi \varphi D_h \\ \frac{\partial D_h}{\partial s_h} &= i \chi \varphi^* D_0 \end{aligned} \quad (V-4)$$

en prenant le cas d'une onde incidente sphérique :

$$D_0^0 = \delta(s_h) \quad (V-5)$$

les équations de Takagi-Taupin sont réécrites sous forme intégrale :

$$\begin{aligned} D_0(s_0, s_h) &= \delta(s_h) + i\chi \int_0^{s_0} \varphi(\xi, s_h) D_h(\xi, s_h) d\xi \\ D_h(s_0, s_h) &= i\chi \int_0^{s_h} \varphi^*(s_0, \eta) D_0(s_0, \eta) d\eta \end{aligned} \quad (V-6)$$

A. - L'ONDE COHERENTE

D'après les relations (V-1), pour calculer les intensités cohérentes I_0^c et I_h^c , il suffit de trouver les amplitudes $\langle D_0 \rangle$ et $\langle D_h \rangle$.

A - 1. Les équations de propagation de $\langle D_0 \rangle$ et $\langle D_h \rangle$

On peut écrire le facteur de phase φ comme la somme d'une moyenne $\langle \varphi \rangle$ et sa fluctuation $\delta \varphi$ autour de la moyenne :

$$\varphi = \langle \varphi \rangle + \delta \varphi, \quad \langle \varphi \rangle = E \quad (V-7)$$

D'après la définition de la fonction de corrélation $g(t)$, on peut écrire :

$$\begin{aligned} \langle \partial \varphi(s_0, s_h) \partial \varphi^*(s_0, s_h + t) \rangle &= \\ \langle \partial \varphi(s_0, s_h) \partial \varphi^*(s_0 + t, s_h) \rangle &= (1 - E^2) g(t) \end{aligned} \quad (V-8)$$

Si on prend la moyenne des équations de propagation (V-4) en utilisant la décomposition (V-7), on obtient :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \langle D_0 \rangle}{\partial s_0} &= i \chi E \langle D_h \rangle + i \chi \langle \delta \varphi D_h \rangle \\ \frac{\partial \langle D_h \rangle}{\partial s_h} &= i \chi E \langle D_0 \rangle + i \chi \langle \delta \varphi^* D_0 \rangle \end{aligned} \quad (V-9)$$

On limite la corrélation de phase aux nœuds les proches voisins et, comme la moyenne est prise sur un seul chemin optique de l'onde D_0 ou D_h , il suffit d'itérer le processus de diffraction une seule fois. Donc, on remplace dans les équations (V-9) D_0 et D_h par leurs valeurs données par les équations (V-6). Si on néglige la variation de D_0 (D_h) sur une distance τ ($\tau \ll \Lambda$), on obtient les équations de propagation des moyennes des amplitudes $\langle D_0 \rangle$ et $\langle D_h \rangle$:

$$\begin{aligned}\frac{\partial \langle D_0 \rangle}{\partial s_0} &= -\frac{1}{2} \mu_e \langle D_0 \rangle + i \chi E \langle D_h \rangle \\ \frac{\partial \langle D_h \rangle}{\partial s_h} &= -\frac{1}{2} \mu_e \langle D_h \rangle + i \chi E \langle D_0 \rangle\end{aligned}\tag{V-10}$$

Où $\mu_e = 2 \chi^2 \tau (1 - E^2)$ est le coefficient d'absorption effective de l'intensité cohérente.

Conditions aux limites

Les équations (V-10) ne sont valables que pour $s_0, s_h \gg \tau$. Nous calculons $\langle D_h \rangle$ au point (s_0, ε) Où $\tau < \varepsilon \ll \Lambda$. Dans ces conditions, on peut négliger la diffraction multiple, et les équations (V-10) prennent la forme simplifiée :

$$\begin{aligned}\frac{\partial \langle D_0^0 \rangle}{\partial s_0} &= -\frac{1}{2} \mu_e \langle D_0^0 \rangle \\ \frac{\partial \langle D_h \rangle}{\partial s_h} &= i \chi E \langle D_0^0 \rangle\end{aligned}\tag{V-11}$$

dont l'intégration conduit à :

$$\langle D_h (s_0, \varepsilon) \rangle = i \chi E \exp \left(-\frac{1}{2} \mu_e s_0 \right)\tag{V-12}$$

On obtient les conditions aux limites approchées suivantes (Kato, 1980 ; M. Al Haddad and P. Becker, 1988 ; P. Becker and M. Al Haddad, 1989) :

$$\begin{aligned}\langle D_0 (0, s_h) \rangle &= 0 \\ \langle D_h (s_0, 0) \rangle &= i \chi E \exp \left(-\frac{1}{2} \mu_e s_0 \right)\end{aligned}\tag{V-13}$$

A - 2. L'intensité cohérente

Nous résolvons les équations de propagation (V-10) en utilisant les conditions aux limites (V-13).

Si on fait le changement de fonction suivante :

$$\begin{aligned} \langle D_0 \rangle &= \psi_0 \exp\left(-\frac{1}{2} \mu_e (s_0 + s_h)\right) \\ \langle D_h \rangle &= \psi_h \exp\left(-\frac{1}{2} \mu_e (s_0 + s_h)\right) \end{aligned} \quad (V-14)$$

les équations (V-10) deviennent :

$$\frac{\partial \psi_0}{\partial s_0} = i \chi E \psi_h, \quad \frac{\partial \psi_h}{\partial s_h} = i \chi E \psi_0 \quad (V-15)$$

et les conditions aux limites :

$$\psi_0(0, s_h) = 0, \quad \psi_h(s_0, 0) = i \chi E \quad (V-16)$$

Les équations (V-15) ressemblent aux équations (III-1) relatives au cristal parfait χ étant remplacé par χE , D_0 et D_h par ψ_0 et ψ_h : la solution est donnée par (III-8). Donc d'après (V-1 et 14), on trouve facilement les intensités cohérentes :

$$\begin{aligned} I_h^c &= E^2 |\chi^2| J_0 \left(2 \chi \sqrt{s_0 s_h} \right)^2 \exp(-\mu_e (s_0 + s_h)) \\ I_0^c &= E^2 |\chi^2 \frac{s_0}{s_h}| J_1 \left(2 \chi \sqrt{s_0 s_h} \right)^2 \exp(-\mu_e (s_0 + s_h)) \end{aligned} \quad (V-17)$$

On remarque dans ces équations que le paramètre χ dans le cas d'un cristal parfait est remplacé par χE , donc la longueur d'extinction Λ par une autre longueur effective Λ/E , plus grande que Λ .

La présence du coefficient d'absorption apparente μ_e se traduit par le transfert progressif d'une partie de l'énergie cohérente en un faisceau incohérent. A l'entrée dans le cristal, la propagation se fait de façon totalement cohérente. La présence d'imperfections entraîne un déphasage progressif, donc une réduction de l'intensité cohérente. L'énergie ainsi perdue sert de "source" pour la propagation incohérente. Ce mécanisme est le cœur de la théorie originellement présentée par Kato et résout physiquement l'ambiguïté qui existait dans les théories phénoménologiques qui considéraient de façon indépendante l'extinction primaire et secondaire.

B – APPROXIMATION DE KATO POUR LES INTENSITES INCOHERENTES

Nous allons généraliser la méthode ébauchée dans le cas d'un cristal imparfait [chapitre IV] à un cristal "réel".

B – 1. Equations de propagation

Un calcul élémentaire montre que la propagation des intensités incohérentes est régie par les équations suivantes :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial I_0^i}{\partial s_0} &= \mu_e I_0^c + i \chi E \{ \langle \delta D_0^* \delta D_h \rangle - \langle \delta D_0 \delta D_h^* \rangle \} \\
 &\quad + i \chi \{ \langle D_0^* \delta \varphi D_h \rangle - \langle D_0 \delta \varphi^* D_h^* \rangle \} \\
 \frac{\partial I_h^i}{\partial s_h} &= \mu_e I_h^c + i \chi E \{ \langle \delta D_0 \delta D_h^* \rangle - \langle \delta D_0^* \delta D_h \rangle \} \\
 &\quad + i \chi \{ \langle D_0 \delta \varphi^* D_h^* \rangle - \langle D_0^* \delta \varphi D_h \rangle \}
 \end{aligned}
 \tag{V-18}$$

Dans l'approximation de Kato [développée au chapitre IV] on développe le processus de diffraction en deux points. Si on considère seulement les corrélations possibles entre les différents nœuds et leurs plus proches voisins, les équations (V-18) deviennent :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial I_0^i}{\partial s_0} &= \mu_e I_h^c + 2\chi^2 E^2 [B - A] + 2\chi^2 (1 - E^2) [B' - A'] \\
 \frac{\partial I_h^i}{\partial s_h} &= \mu_e I_0^c + 2\chi^2 E^2 [A - B] + 2\chi^2 (1 - E^2) [A' - B']
 \end{aligned}
 \tag{V-19}$$

où :

$$A(s_0, s_h) = \int_0^{s_h} d\eta \langle \delta D_0^*(s_0, s_h) \delta D_0(s_0, \eta) \rangle$$

$$= \frac{1}{E^2} \quad \begin{array}{c} \text{---} \longleftrightarrow \text{---} \\ | \quad | \\ \text{---} \quad \text{---} \\ | \quad | \end{array}$$

$$B(s_0, s_h) = \int_0^{s_0} d\xi \langle \delta D_h(s_0, s_h) \delta D_0^*(\xi, s_h) \rangle$$

$$= \frac{1}{E^2} \quad \begin{array}{c} \text{---} \text{---} \text{---} \\ | \quad | \\ \text{---} \quad \text{---} \\ | \quad | \end{array}$$

$$A' = \int_0^{s_h} d\eta \langle g(s_h - \eta) \delta D_0^*(s_0, s_h) \delta D_0(s_0, \eta) \rangle$$

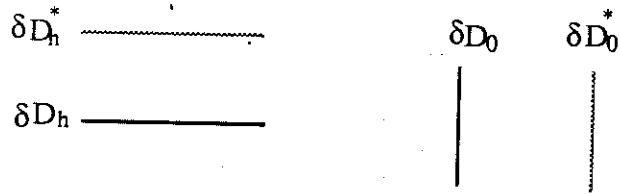
$$= \frac{1}{(1 - E^2)} \quad \begin{array}{c} \text{---} \longleftrightarrow \text{---} \\ | \quad | \\ \text{---} \quad \text{---} \\ | \quad | \end{array}$$

$$B'(s_0, s_h) = \int_0^{s_0} d\xi \langle g(s_0 - \xi) \delta D_h(s_0, s_h) \delta D_h^*(\xi, s_h) \rangle$$

$$= \frac{1}{(1 - E^2)} \quad \begin{array}{c} \text{---} \text{---} \text{---} \\ | \quad | \\ \text{---} \quad \text{---} \\ | \quad | \end{array}$$

(V-20)

où ■ : $\langle \varphi \rangle$ □ : $\langle \varphi^* \rangle$
 ● : $\delta\varphi$ ○ : $\delta\varphi^*$



Kato en 1980 a défini une longueur de corrélation transversale des fluctuations d'amplitude supposée constante et la même pour les deux composantes d'ondes incidente et diffractée :

$$\Gamma = \frac{A}{I_0} = \frac{B}{I_h} \quad (V-21)$$

(Nous verrons en réalité dans le paragraphe [V-E] que Γ n'est pas un nouveau paramètre). Par contre Kato a pris Γ de l'ordre de grandeur de $\frac{\Lambda}{E}$ (longueur de corrélation effective de la moyenne d'amplitude) :

$$\Gamma \sim \Lambda / E \quad (V-22 a)$$

donc

$$\Gamma \gg \tau \quad (V-22 b)$$

ce qui revient à négliger la variation de la quantité δD_0 (δD_h) sur la distance τ . Par conséquent :

$$A' = \tau I_0^i, \quad B' = \tau I_h^i \quad (V-23)$$

Les équations de propagation (V-19) se réduisent aux équations suivantes :

$$\begin{aligned}\frac{\partial I_0^i}{\partial s_0} &= \mu_e I_h^c + \tilde{\mu}_e [I_h^i - I_0^i] \\ \frac{\partial I_h^i}{\partial s_h} &= \mu_e I_0^c + \tilde{\mu}_e [I_0^i - I_h^i]\end{aligned}\quad (V-24)$$

où $\tilde{\mu}_e$ est le coefficient d'absorption effective de la partie incohérente de l'intensité :

$$\tilde{\mu}_e = 2 \chi^2 \tau_e \quad (V-25)$$

τ_e est la longueur de corrélation effective :

$$\tau_e = \tau (1 - E^2) + \Gamma E^2 \quad (V-26)$$

Nous allons discuter la validité des équations (V-24) au paragraphe [V-D].

A cause des couplages des phases appartenant aux deux chemins optiques, une partie de l'énergie cohérente est transformée en énergie incohérente. d'après les équations (V-24), on voit que l'intensité I_h^c (I_0^c) est une source d'intensité incohérente I_0^i (I_h^i).

Conditions aux limites

Si on considère dans les équations de Takagi-Taupin une onde incidente sphérique (V-5), on trouve sans difficulté, par une procédure analogue à celle conduisant à (V-13) :

$$D_h(s_0, \varepsilon) = i\chi\varphi(s_0, \varepsilon)$$

donc

$$I_h^i(s_0, \varepsilon) = (1 - E^2) \chi^2 \quad (V-27)$$

Si on prend en compte le facteur d'absorption effective de la partie incohérente $\tilde{\mu}_e$, on adopte les relations suivantes comme conditions aux limites pour les intensités incohérentes

$$I_0^i(0, s_n) = 0, \quad I_h^i(s_0, 0) = \chi^2(1 - E^2) \cdot \exp(-\tilde{\mu}_e s_0) \quad (V-28)$$

B - 2. Les intensités incohérentes

Nous résolvons les équations (V-24) sous les conditions aux limites (V-28) :

Si on fait le changement suivant de fonctions :

$$\begin{aligned}
 I_0^i &= J_0^i \exp(-\tilde{\mu}_e (s_0 + s_h)) \\
 I_h^i &= J_h^i \exp(-\tilde{\mu}_e (s_0 + s_h)) \\
 I_0^c &= J_0^c \exp(-\tilde{\mu}_e (s_0 + s_h)) \\
 I_h^c &= J_h^c \exp(-\tilde{\mu}_e (s_0 + s_h))
 \end{aligned}
 \tag{V-29}$$

les équations (V-24) deviennent :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial J_0^i}{\partial s_0} &= \tilde{\mu}_e J_h^i + \mu_e J_h^c \\
 \frac{\partial J_h^i}{\partial s_h} &= \tilde{\mu}_e J_0^i + \mu_e J_0^c
 \end{aligned}
 \tag{V-30}$$

et les conditions aux limites s'écrivent :

$$J_0^i(0, s_h) = 0, \quad J_h^i(s_0, 0) = \chi^2 (1 - E^2)
 \tag{V-31}$$

Si on définit l'opérateur $\hat{L}$ par la relation suivante :

$$\hat{L}f = \tilde{\mu}_e \int_0^{s_0} \int_0^{s_h} f(u, v) \, du \, dv
 \tag{V-32}$$

et si on prend en compte le théorème suivant (M. Al Haddad and P. Becker, 1988 : On the statistical dynamical theory of diffraction : Application to silicon) :

$$\hat{L}(f * g) = \hat{L}f * g = f * \hat{L}g \quad (V-33)$$

où

$$f * g = \int_0^{s_0} \int_0^{s_h} f(x, y) g(s_0 - x, s_h - y) dx dy \quad (V-34)$$

on obtient les intensités incohérentes :

$$\begin{aligned} I_h^i &= I_h^{i0} + I_h^{i1} + I_h^{i2} \\ I_0^i &= I_0^{i0} + I_0^{i1} + I_0^{i2} \end{aligned} \quad (V-35)$$

où I_0^{i0} et I_h^{i0} sont les parties purement incohérentes

$$\begin{aligned} I_0^{i0} &= \chi^2 (1 - E^2) \sqrt{\frac{s_0}{s_h}} I_1 \left(2 \tilde{\mu}_e \sqrt{s_0 s_h} \right) \exp(-\tilde{\mu}_e (s_0 + s_h)) \\ I_h^{i0} &= \chi^2 (1 - E^2) I_0 \left(2 \tilde{\mu}_e \sqrt{s_0 s_h} \right) \exp(-\tilde{\mu}_e (s_0 + s_h)) \end{aligned} \quad (V-36)$$

I_0^{i1} , I_0^{i2} , I_h^{i1} et I_h^{i2} sont les parties mixtes [elles sont transformées à partir de l'intensité cohérente en faisceau incohérent à partir des points (u, v) , (Fig. V-1)] :

$$\begin{aligned} I_h^{i1} &= 2 \tau \tilde{\mu}_e I_h^c * I_h^{i0} \\ I_h^{i2} &= \mu_e \int_0^{s_h} dv I_0^c(s_0, v) \exp(-\tilde{\mu}_e (s_0 + v)) + 2 \tau \tilde{\mu}_e I_0^c * \left[\left(\frac{s_h}{s_0} \right) I_0^{i0} \right] \\ I_0^{i1} &= 2 \tau \tilde{\mu}_e I_0^c * I_h^{i0} \\ I_0^{i2} &= \mu_e \int_0^{s_0} du I_h^c(u, s_h) \exp(-\tilde{\mu}_e (u + s_h)) + 2 \tau \tilde{\mu}_e I_h^c * I_0^{i0} \end{aligned} \quad (V-37)$$

Les termes I_h^{i1} , I_0^{i2} , I_0^{i1} et I_h^{i2} correspondent à la transformation de la partie cohérente de l'intensité diffractée (incidente) à la partie incohérente de l'intensité diffractée (incidente) : le premier terme de I_h^{i2} et I_0^{i2} est négligé par Kato.

C - INTENSITE DIFFRACTEE INTEGREE POUR UNE PLAQUETTE INFINIE (APPROXIMATION DE KATO)

Nous écrivons la puissance diffractée intégrée P comme la somme de deux termes, incohérent P^i et purement cohérent P^c correspondant respectivement aux intensités I_h^i et I_h^c :

$$P = P^c + P^i \quad (V-38)$$

C - 1. La partie cohérente P^c

Pour calculer la puissance intégrée P^c dans la géométrie de Laue symétrique, nous intégrons tout d'abord l'intensité I_h^c sur la partie de la surface de sortie excitée par une source S , Fig. V-2, (la région a b). Puis, nous intégrons sur toutes les sources possibles. La première intégrale est indépendante de la position de S . Donc, on peut ignorer la somme sur les sources S :

$$P^c = \frac{\lambda \gamma}{\sin^2 2\theta} \int_a^b I_h^c(s_0, s_h) dx \quad (V-39)$$

où $\gamma = \cos \theta$

Après un calcul simple, on obtient :

$$P^c = E^2 Q T W \left(\frac{2 E T}{\Lambda} \right) \exp \left(-2 (1 - E^2) \frac{\tau T}{\Lambda^2} \right) \quad (V-40)$$

où :

$$T = t/\gamma, \quad Q = \frac{\lambda}{\sin 2\theta} |\chi|^2$$

$$W(x) = \int_0^1 J_0(x\rho) d\rho \quad (V-41)$$

t est l'épaisseur de la plaquette.

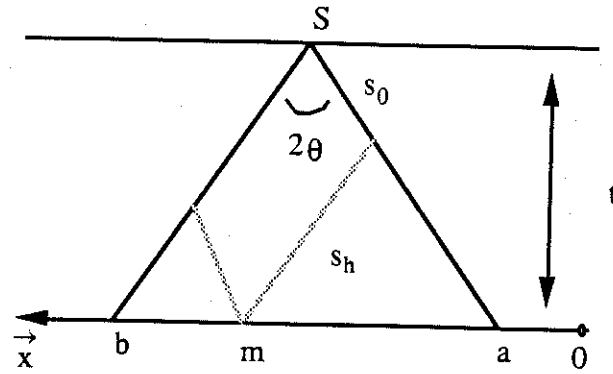


Fig. V-2 : Une géométrie pour l'intégrale de P_c

C - 2. La partie incohérente P_i

La puissance intégrée incohérente dans l'approximation de Kato $P_i(K)$ se définit ainsi :

$$P_i(K) = P_i^0 + m, \quad m = P_i^1 + P_i^2 \quad (V-42)$$

où P_i^0 est la puissance intégrée purement incohérente correspondant à I_h^{i0} et m est la partie mixte de la puissance diffractée intégrée qui correspond à $I_h^{i1} + I_h^{i2}$.

On calcule P_i^0 , de la même façon que l'on a obtenu P_c :

$$P_i^0 = (1 - E^2) \left[\frac{\Lambda Q \Lambda}{2 \tau_e} \right] \sinh [2 \tau_e T / \Lambda^2] \exp (-2 \tau_e T / \Lambda^2) \quad (V-43)$$

Calcul de m :

Les composants qui interviennent dans l'expression de la partie mixte m sont I_h^{i1} et I_h^{i2} (appelons les dans le cas général f). f est un produit de convolution entre une intensité cohérente (f^c) et incohérente (f^i) :

$$f = f^c * f^i \quad (V-44)$$

L'origine de f^c est la source S ; par contre f^i apparait seulement à partir d'une position m' à l'intérieur du cristal : m' a pour coordonnées ξ' et η' .

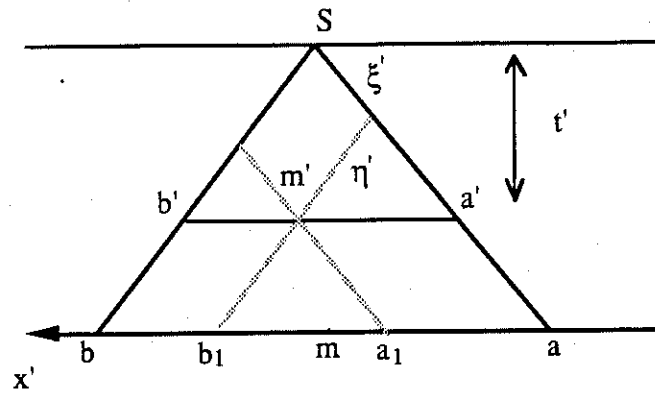


Fig. V-3 : Géométrie pour calculer la partie mixte m .

Pour calculer l'intensité intégrée F correspondant à f , au lieu de calculer successivement les intégrales sur m' , puis sur $[a b]$, enfin sur S , on fixe m' (ξ', η') et on intègre sur la partie de la surface de sortie excitée par le point m' ($a b$), on fait le changement des variables ($\xi', \eta' \rightarrow x', t'$), où les axes $\vec{x'}$ et $\vec{t'}$ sont respectivement parallèle et perpendiculaire aux surfaces de la plaquette ($d\xi' d\eta' = \frac{1}{\sin 2\theta} dx' dt'$). Ensuite, on laisse glisser m' sur ($a' b'$) enfin on laisse varier t' ($0 \rightarrow t$):

$$F = \frac{\lambda \gamma^2}{\sin^3 2\theta} \left\{ \left[\int_{a'}^{b'} f^c(t, x') dx' \right] * \left[\int_a^b f^i(t, x) dx \right] \right\}_t \quad (V-45)$$

où $\{ \}_t$ signifie le produit de convolution par rapport à t .

Si on remplace dans (V-45) f par I_h^{i1} et I_h^{i2} , on trouve :

$$m = E(1 - E^2) H[1/2(m_1 + m_2) - n_2] \quad (V-46)$$

où :

$$H = \frac{1}{2} (\sin 2\theta)^{-1} (\lambda/\Lambda)$$

$$m_i = (L/Y_i) [(2Zt) - (2Z/Y_i)(1 - \exp(-Y_i t))]$$

$$n_i = \frac{2ZtL}{Y_i} [W(2Zt) - \exp(-Y_i t) W_i(2Zt)] \exp(-\mu_e t/\gamma)$$

$$W_i(2Zt) = \int_0^1 J_0(2Zt\rho) \exp(Y_i t\rho) d\rho$$

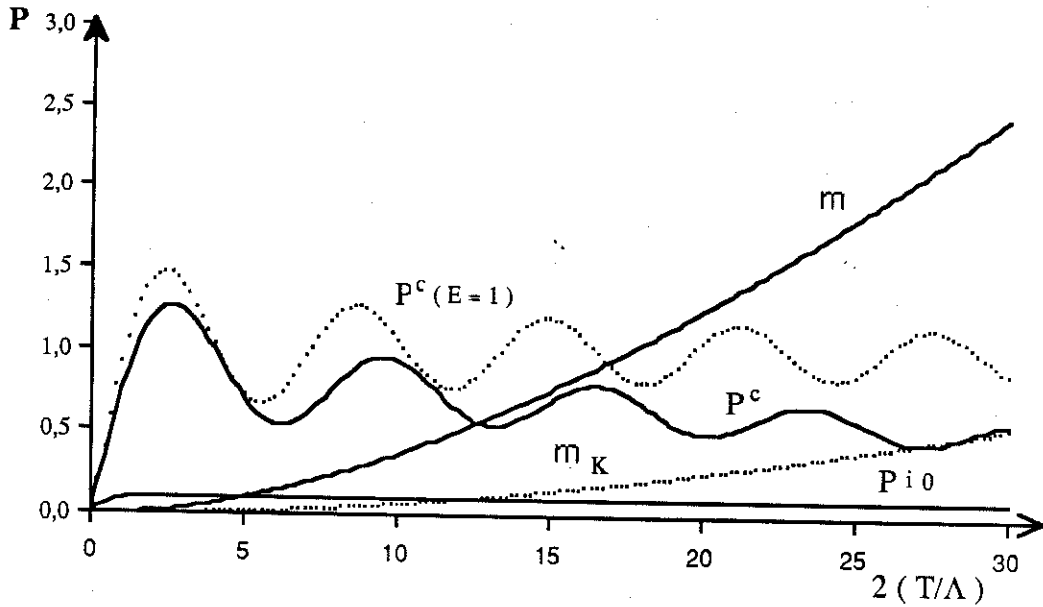
$$L = 2 \operatorname{Re}(\chi^2) \tau/\gamma, \quad Z = \chi E/\gamma$$

$$Y_1 = -(1 - E^2)L, \quad Y_2 = (1 - E^2)L + 4Z, \quad Y_3 = 2Z \quad (\text{V-47})$$

La formule (V-46) est différente de celle trouvée par Kato en 1980 (M. Al Haddad and P. Becker, 1988) et J.P. Guigay en 1989 par une méthode différente a confirmé notre résultat, (Fig. V-4).

$$m_k = \frac{1}{4} E(1 - E^2) H \left\{ \frac{1}{2} (m_1 + m_2) - m_3 - n_2 + n_3 \right\} \quad (\text{V-48})$$

La Fig. V-4 montre que même pour des cristaux légèrement déformés l'intensité mixte m domine sur les autres composantes de l'intensité incohérente pour des valeurs de T/Λ assez élevées ; par contre dans les cas d'un cristal presque imparfait, c'est la partie purement incohérente qui est la plus importante.



(a)

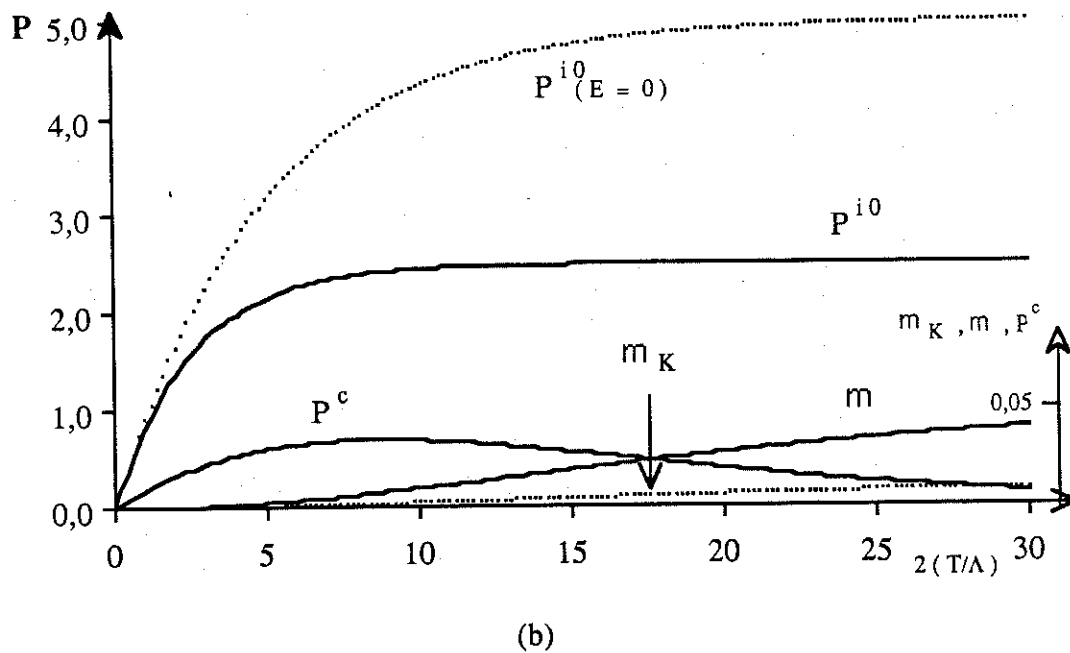


Fig. V-4 : intensité diffractée intégrée (dévisée par H) en fonction de $2(T/\Lambda)$, où $T = t/\gamma$
 (a) : $E = 0.9$, $\tau/\Lambda = 0.1$ (b) : $E = 0.1$, $\tau/\Lambda = 0.1$

C - 3. Application au silicium à haut degré de perfection

Nous allons appliquer l'approximation de Kato aux mesures d'intensité diffractée par Olekhovich et al., 1983, pour deux plaquette de silicium (I et II) qui ont des densités de dislocations (N_d) différentes et faibles (en utilisant la radiation $\text{CuK}\alpha$).

$N_d = 30 \text{ mm}^{-2}$ pour l'échantillon I

$N_d = 100 \text{ mm}^{-2}$ pour l'échantillon II

On définit l'intensité diffractée intégrée théorique réduite R_{th} , par la relation suivante :

$$R_{th} = 2 A (P_{th} / P_K) \quad (V-49)$$

où P_{th} est l'intensité diffractée intégrée théorique, $A = T/\Lambda$.

Dans le cas d'un cristal presque parfait, en considérant la formule non corrigée m_K , Fig. V-4 a, la partie cohérente est toujours la plus importante par rapport aux autres parties. Par conséquent, Olekhovich et al. ont pris en compte la correction de l'absorption et la diffusion anormale seulement sur la partie cohérente P^c . Ils ont donc considéré l'intensité diffractée intégrée réduite expérimentale comme la suivante :

$$R_{exp} = (2 A / P_K) [P_{exp} - P_{an}] \quad (V-50)$$

où P_{exp} est l'intensité diffractée intégrée expérimentale. P_{an} est la partie correspondant à la correction de l'effet anormal.

Nous présentons dans la Fig. V-5 le meilleur ajustement obtenu par Olekhnovich et al. par rapport aux résultats expérimentaux (V-50) : la formule théorique (V-49) ($P_{th} = P^c + m_K$) a été utilisée pour la réflexion 333 de l'échantillon II et conduit aux valeurs :

$$E = 0.97 \quad \text{et} \quad \tau / \Lambda = 0.2 \quad (V-51)$$

Nous définissons un paramètre η caractérisant la précision d'affinement par la relation :

$$\eta = \frac{1}{N} \sum_k^N \frac{|R_{th} - R_{exp}|}{R_{exp}} \quad (V-52)$$

où N est le nombre de points expérimentaux. On obtient $\eta \sim 25\%$ pour les valeurs trouvées en (V-51); même en variant Γ (entre 0 et Λ/E), Olekhnovich et al. n'ont pas pu améliorer l'accord de façon significative.

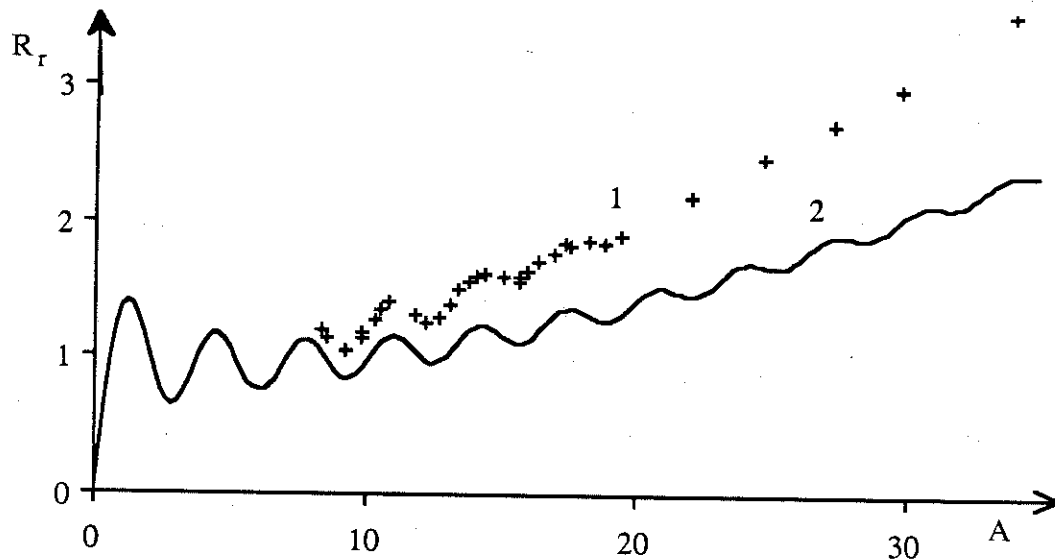


Fig. V-5 : L'intensité réduite pour la réflexion 333 du silicium en fonction de A :

- (1) sont les points expérimentaux
- (2) est le meilleur affinement de la formule non corrigée de la théorie de Kato (Olekhnovich et al., 1983)

Pour essayer de mieux décrire ces résultats expérimentaux, nous allons utiliser la formule corrigée de P_{th} :

$$P_{th} = P^c + m + P^{i0} \quad (V-38)$$

où m est la partie mixte donnée par (V-46).

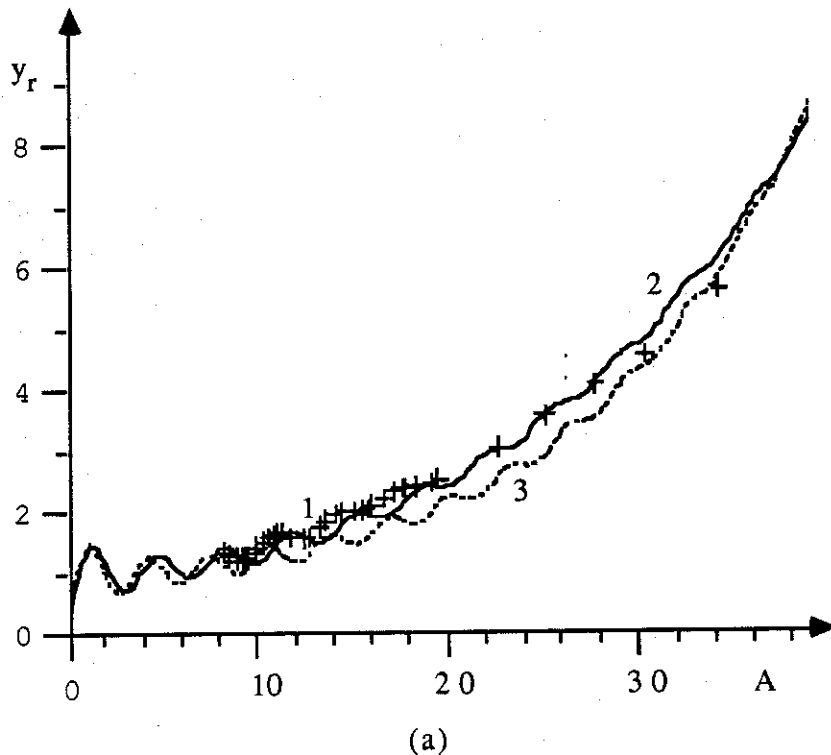
On ne peut plus négliger l'effet de l'absorption et de la diffusion anormale dans la partie mixte [paragraphe précédent]. Nous remplaçons le facteur de diffusion atomique f_0 par $f = f_0 + \delta f + i \delta f'$ où $\delta f = 0.244$ et $\delta f' = 0.33$ pour la réflexion 333.

Nous avons appliqué notre résultat théorique aux valeurs expérimentales du facteur d'extinction réduite $y_r = 2 A (P/P_K)$ pour la réflexion 333 de deux échantillons I et II.

Nous avons obtenu $\eta \sim 7.8\%$ pour l'échantillon II pour $E = 0.91$ et $\tau/\Lambda = 0.0134$, Fig. V-6. En faisant varier Γ , η diminue jusqu'à 6.7%. Et pour l'échantillon I, nous avons trouvé $\eta \sim 4.7\%$ pour $E = 0.95$ et $\tau/\Lambda = 0.011$, Fig. V-7. En variant Γ , η tombe à 4%.

Si on se restreint à la théorie dynamique dans les deux cas précédents, on trouve $\eta \sim 17\%$ et 11% respectivement pour le deuxième et le premier échantillons.

Donc, bien que la théorie de Kato ne soit pas dans sa forme optimale (voir chapitre suivant) elle a pu reproduire des résultats expérimentaux pour des cristaux presque parfaits avec une précision nettement meilleure que celle correspondant à la théorie dynamique.



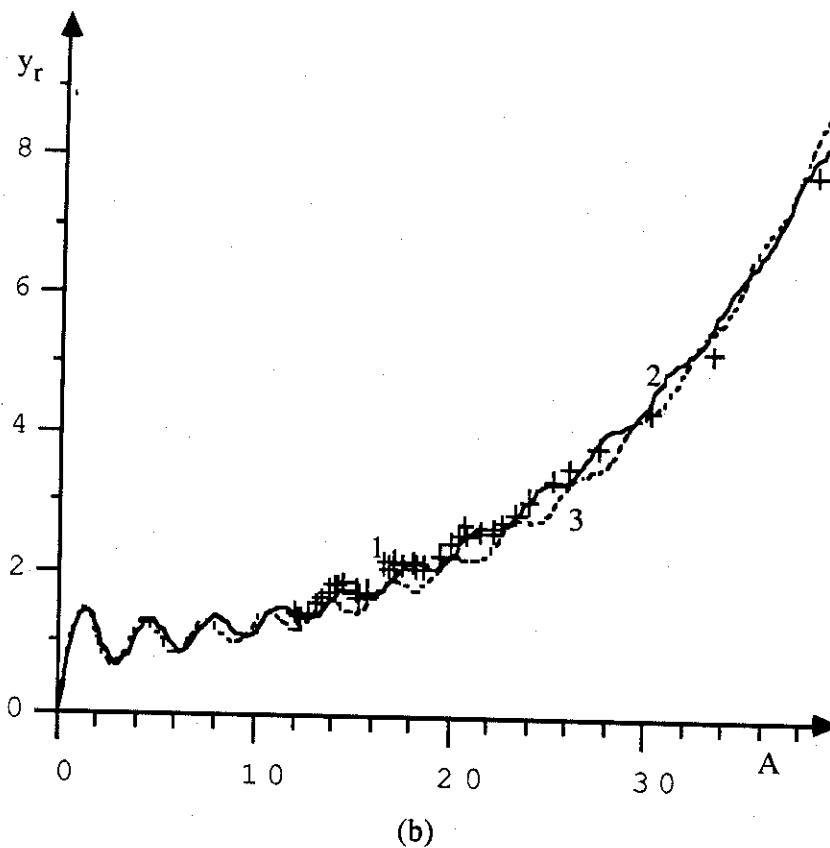


Fig. V-6 (a): Le facteur d'extinction réduit y_r en fonction de A pour l'échantillon II :

- (1) points expérimentaux
- (2) l'affinement par la méthode de moindres carrés par la formule corrigée
- (3) le facteur d'extinction primaire réduit

(b) : Le facteur d'extinction réduit y_r en fonction de A pour l'échantillon I :

- (1) points expérimentaux
- (2) l'affinement par la méthode de moindres carrés par la formule corrigée
- (3) le facteur d'extinction primaire réduit

ARTICLE

*" On the statistical dynamical theory of diffraction :
application to silicon "*

Acta Cryst. (1988). A44, 262-270

On the Statistical Dynamical Theory of Diffraction: Application to Silicon

BY M. AL HADDAD* AND P. J. BECKER

Laboratoire de Cristallographie, CNRS and Université Scientifique et Médicale de Grenoble,
166X, 38042 Grenoble CEDEX, France

(Received 15 September 1987; accepted 23 November 1987)

Abstract

A detailed solution of Kato's equations describing the propagation of X-rays or neutrons in a crystal containing a statistical distribution of imperfections is presented: this solution makes use of propagation operators to describe multiple scattering events. Corrections to Kato's original solution are given which have a significant effect, even in the case of crystals with a high degree of long-range perfection. The present modified solution is applied to experimental measurement on parallel plates of silicon with different dislocation densities by Olekhovich, Karpei, Olekhovich & Puzenkova [*Acta Cryst.* (1983), A39, 116-122]. The theory reproduces observations quite well, in contrast to conclusions reached by Olekhovich *et al.* on the basis of the original solution. It can be inferred that the basic ideas of Kato allow for a correct interpretation of diffraction reflectivities in highly perfect crystals, where a significant contribution from incoherent components of scattered intensities must be incorporated. However, the theory has to be modified for the case of lower long-range perfection: this involves the modification of the expressions for the effective correlation lengths that enter the theory.

* Permanent address: Atomic Energy Commission, PO Box 6091, Damascus, Syria.

1. Introduction

Until 1980, extinction was treated by two very different approaches. Following the ideas of Darwin (1914, 1922), the mosaic model was introduced. In such a model, one considers perfectly coherent multiple scattering within perfect mosaic block, the so-called *primary extinction*, and totally incoherent multiple scattering between adjacent blocks, the so-called *secondary extinction*.

Secondary extinction is therefore described by *energy coupling* equations between the incident and diffracted beams (Zachariasen, 1967; Becker & Coppens, 1974; Kato, 1976), the solution of which is difficult due to the boundary conditions imposed by the sample. Primary extinction, on the other hand, is commonly dealt with through the *amplitude coupling* equations of dynamical theory (Zachariasen, 1945; Batterman & Cole, 1964; Authier, 1970) for perfect crystals.

Mosaic theory is quite popular in crystallography, and has been successfully applied to many practical situations, according in particular to the solution of Becker & Coppens (1974, 1975). Despite this success, it is physically doubtful, since it separates various regions of space discontinuously and arbitrarily. It is clear that distortions from perfect periodicity are much more subtle. A correct model should contain as extreme limits perfect-crystal and mosaic-crystal

theories, and should fill the gap between those two extremes.

The gap between pure dynamical and mosaic-crystal theories has been filled by Kato (1980*a, b*), hereafter denoted by Ka, b , in a series of two papers in which crystal imperfections are treated on a statistical basis. This theory is based on Takagi-Taupin equations for wave propagation in an imperfect crystal (see, for example, Takagi, 1969; Kato, 1973):

$$\begin{aligned} \partial D_0 / \partial s_0 &= i\kappa_{-h}\varphi(s_0, s_h)D_h(s_0, s_h) \\ \partial D_h / \partial s_h &= i\kappa_h\varphi^*(s_0, s_h)D_0(s_0, s_h), \end{aligned} \quad (1)$$

where D_0 and D_h are the amplitudes of the incident and scattered waves respectively,

$$\kappa_h = (\lambda a C / V) F_h. \quad (2)$$

λ is the wavelength, C the polarization factor, V the unit-cell volume, a is 10^{-14} m for neutrons and 0.28×10^{-14} m for X-rays. F_h is the structure factor and s_0 and s_h are the coordinates along the incident- and scattered-beam directions. The phase term φ depends on the local distortion $u(\mathbf{r})$ as

$$\varphi(s_0, s_h) = \exp(2\pi i \mathbf{h} \cdot \mathbf{u}), \quad (3)$$

where $\mathbf{h}$ is the reciprocal-lattice vector.

One may write

$$\kappa_h = \kappa'_h + i\kappa''_h, \quad A = 1/|\kappa'_h|,$$

where κ''_h is the imaginary anomalous part, and A the extinction length.

Kato introduces two order parameters E and τ :

$$E = \langle \varphi(s_0, s_h) \rangle \quad (4)$$

is a long-range-order parameter, which plays the role of a static Debye-Waller factor. $\langle \dots \rangle$ means an ensemble average over a small volume. τ , the short-range-order parameter, is a measure of the phase fluctuations, and is defined as follows. We write

$$\varphi = \langle \varphi \rangle + \delta\varphi = E + \delta\varphi.$$

The autocorrelation function of the phase φ is

$$\begin{aligned} \langle \varphi^*(s_0 - z, s_h) \varphi(s_0, s_h) \rangle &= \langle \varphi^*(s_0, s_h - z) \varphi(s_0, s_h) \rangle \\ &= E^2 + (1 - E^2)g(z). \end{aligned}$$

$g(z)$ is the intrinsic correlation function, with $g(0) = 1$. It is assumed to be real and symmetric in z and to decay rapidly.

$$\tau = \int_0^\infty g(z) dz \quad (5)$$

is the correlation length of the phase fluctuations, the distance above which the phase correlation is lost. τ_n , the n th-order correlation length, is defined by

$$\tau_n = \int_0^\infty [g(z)]^n dz$$

with

$$\tau_n \leq \tau_{n-1} \leq \dots \leq \tau_2 \leq \tau.$$

Higher-order correlation functions can be defined, but at the present stage of theory one only takes into consideration pair correlations. More advanced treatments seem to be at present intractable.

Taking into consideration only pair correlations, Kato obtains two sets of propagation equations.

(1) The coherent part of the intensities is

$$I_0^c = |\langle D_0 \rangle|^2, \quad I_h^c = |\langle D_h \rangle|^2,$$

where the coherent waves $\langle D_0 \rangle$ and $\langle D_h \rangle$ satisfy the following propagation equations:

$$\begin{aligned} \partial \langle D_0 \rangle / \partial s_0 &= -\frac{1}{2}\mu_e \langle D_0 \rangle + i\kappa_{-h} E \langle D_h \rangle \\ \partial \langle D_h \rangle / \partial s_h &= -\frac{1}{2}\mu_e \langle D_h \rangle + i\kappa_h E \langle D_0 \rangle. \end{aligned} \quad (6)$$

The effective absorption coefficient μ_e is given by

$$\mu_e = \mu_0 + 2 \operatorname{Re}(\kappa^2)(1 - E^2)\tau, \quad (7)$$

μ_0 is the usual absorption coefficient and $\kappa^2 = \kappa_h \kappa_{-h}$.

(2) The intensities of the incoherent beams are defined as follows:

$$\begin{aligned} I_0^i &= \langle |D_0|^2 \rangle - |\langle D_0 \rangle|^2 = I_0 - I_0^c \\ I_h^i &= \langle |D_h|^2 \rangle - |\langle D_h \rangle|^2 = I_h - I_h^c \end{aligned} \quad (8)$$

and satisfy the propagation equations:

$$\begin{aligned} \partial I_0^i / \partial s_0 &= -\tilde{\mu}_e I_0^i + \tilde{\sigma}_{-h} I_h^i + \sigma_{-h}(1 - E^2)I_0^c \\ \partial I_h^i / \partial s_h &= -\tilde{\mu}_e I_h^i + \tilde{\sigma}_h I_0^i + \sigma_h(1 - E^2)I_0^c. \end{aligned} \quad (9)$$

In equations (9), the symbols have the following meaning:

$$\tilde{\mu}_e = \mu_0 + 2 \operatorname{Re}(\kappa^2)\tau_c \quad (10)$$

is the effective absorption for incoherent beams, τ_c being the effective correlation length of the phases; if I is the correlation length for the fluctuations of the beams:

$$\delta D_h = D_h - \langle D_h \rangle, \quad \delta D_0 = D_0 - \langle D_0 \rangle \quad (11)$$

$$I I_h^i = \int_0^\infty \langle \delta D_h^*(s_0 - z, s_h) \delta D_h(s_0, s_h) \rangle dz \quad (12)$$

$$\tau_c = (1 - E^2)\tau + E^2 I$$

and Kato takes for I the value A/E .

The coupling constants that appear in (9) are defined as follows:

$$\begin{aligned} \tilde{\sigma}_h &= 2|\kappa_h|^2 \tau_c, & \tilde{\sigma}_{-h} &= 2|\kappa_{-h}|^2 \tau_c, \\ \sigma_h &= 2|\kappa_h|^2 \tau, & \sigma_{-h} &= 2|\kappa_{-h}|^2 \tau, \\ \tilde{\sigma}^2 &= \tilde{\sigma}_h \tilde{\sigma}_{-h}, & \sigma^2 &= \sigma_h \sigma_{-h}. \end{aligned} \quad (13)$$

These six symbols are different in the presence of anomalous scattering. If this can be neglected, only two quantities remain: σ and $\tilde{\sigma}$.

The incoherent part of the intensities measures the fluctuations of the beams around their average amplitude.

Equations (6) and (9) are not mutually independent; the coherent intensities I_0^c and I_h^c are effective sources for the incoherent processes described by (9). Though some modifications to the original Kato theory will be necessary in the future, it contains a crucial idea: the fact that incoherence occurs from the coherent beam due to the local imperfections. In this paper, the validity of (6) and (9) will not be questioned.

Kato's theory has been applied to silicon crystals of various dislocation densities (Olekhnovich *et al.*, 1983). These authors conclude that even for samples of high perfection the theory is inadequate. As the Becker-Coppens approach does not work either, Olekhnovich *et al.* conclude that no available theory can properly explain integrated intensities for real crystals with strong primary extinction.

It is our purpose to prove that this conclusion is based on some inadequacies in Kato's solution to (6) and (9). A correct solution, given here, reproduces the observations of Olekhnovich *et al.* rather closely.

In § II, we consider the properties of the solution to (6) and (9). Its application to the experiment of Olekhnovich *et al.* is reported in § III. (We finally discuss some general conclusions which arise from this study.)

II. Solution for a real crystal

II.1. Boundary conditions

The boundary conditions for the beams at the surface of the crystal are crucial.

It has been shown (Kato, 1976; Becker, 1977) that starting from a point source at various points on the surface of the crystal one can easily obtain the integrated intensities for extended sources by optical transforms from spherical to plane waves.

We therefore consider a point source at the surface, and take this point S as origin, for an incident beam of unit intensity

$$D_0 = \delta(s_h). \quad (14)$$

It follows from (6) and (9) that the effective absorption coefficients are μ_c and $\tilde{\mu}_c$ for the coherent and incoherent beams respectively. With this notation, we get

$$\begin{aligned} \langle D_0(\epsilon, s_h) \rangle &= 0 \\ \langle D_h(s_0, \epsilon) \rangle &= i\kappa_h E \exp(-\frac{1}{2}\mu_c s_0) \\ I_0^i(\epsilon, s_h) &= 0 \\ I_h^i(s_0, \epsilon) &= |\kappa_h|^2 (1 - E^2) \exp(-\tilde{\mu}_c s_0), \end{aligned} \quad (15)$$

where ϵ is a distance small with respect to Λ , but at least of dimension τ . In other words, $\tau/\Lambda \ll 1$, an implicit assumption of Kato's theory.

Boundary values (15) are simply the result of kinematic theory, averaged over a distance of order

τ . This is why μ_0 is replaced by an effective value μ_c or $\tilde{\mu}_c$. Equations (15) are fully consistent with (6) and (9), but this result is far from being obvious.

Furthermore, we shall assume pure Laue-type geometry. Let M be the point at which a beam originating at S will exit from the crystal (Fig. 1).

We will suppose that the whole parallelogram $SmMn$ belongs to the sample. This approximation has been discussed in various circumstances (Becker & Coppens, 1974; Becker, 1977; Becker & Dunstetter, 1984): it is the only case where a general tractable solution is possible. The error this assumption introduces increases with growing scattering angle, but for most applications is reasonably small. Moreover, for a parallel plate in transmission geometry, the situation of Fig. 1 is always true and there is no error.

II.2. Two limit cases

II.2(a). We suppose $E = 0$, thus a complete lack of coherence.

$$\langle D_h \rangle = 0.$$

Equations (9) become

$$\begin{aligned} \partial I_0 / \partial s_0 &= -[\mu_0 + 2 \operatorname{Re}(\kappa^2) \tau] I_0 + 2|\kappa_h|^2 \tau I_h \\ \partial I_h / \partial s_h &= -[\mu_0 + 2 \operatorname{Re}(\kappa^2) \tau] I_h + 2|\kappa_h|^2 \tau I_0. \end{aligned} \quad (16)$$

These propagation equations are equivalent to mosaic propagation equations (Kato, 1976), and differ from the conventional equations for secondary extinction (Zachariasen, 1967; Becker & Coppens, 1974). This difference was discussed by Becker & Dunstetter (1984). In fact, the secondary-extinction theory of Kato (1976) contains the correlation length τ_2 rather than τ (see equations 5): this difference leads to one of the difficulties with the present Kato statistical formulation.

II.2(b). At the opposite limit, $E = 1$, with a perfect coherence. We retrieve perfect-crystal theory.

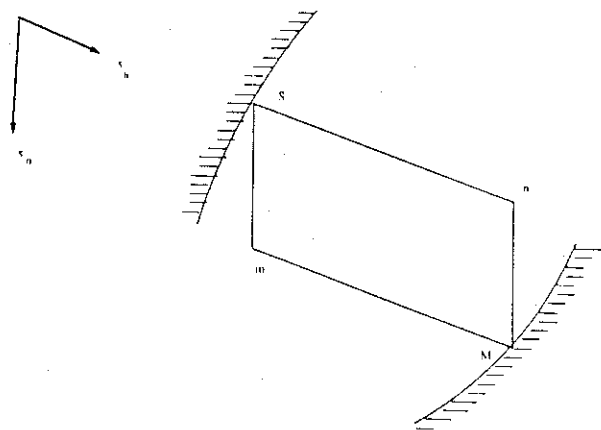


Fig. 1. Assumed simplified geometry for Bragg diffraction.

As a consequence of this discussion, we believe Kato's theory to be far more adequate for crystals with large E than small E .

11.3. Definitions

Let us define the quantities ψ_0 , ψ_h , $\mathcal{J}_0$, $\mathcal{J}_h$, $\mathcal{J}_0^c$ and $\mathcal{J}_h^c$:

$$\begin{aligned} \langle D_0 \rangle &= \psi_0 \exp \left[-\frac{1}{2} \mu_e (s_0 + s_h) \right] \\ \langle D_h \rangle &= \psi_h \exp \left[-\frac{1}{2} \mu_e (s_0 + s_h) \right] \\ I_0^i &= \mathcal{J}_0^i \exp \left[-\tilde{\mu}_e (s_0 + s_h) \right] \\ I_h^i &= \mathcal{J}_h^i \exp \left[-\tilde{\mu}_e (s_0 + s_h) \right] \\ I_0^c &= \mathcal{J}_0^c \exp \left[-\tilde{\mu}_e (s_0 + s_h) \right] \\ I_h^c &= \mathcal{J}_h^c \exp \left[-\tilde{\mu}_e (s_0 + s_h) \right]. \end{aligned} \quad (17)$$

Equations (6) and (9) simplify as

$$\begin{aligned} \partial \psi_0 / \partial s_0 &= i \kappa_{-h} E \psi_h \\ \partial \psi_h / \partial s_h &= i \kappa_h E \psi_0 \end{aligned} \quad (18)$$

$$\begin{aligned} \partial \mathcal{J}_0^i / \partial s_0 &= \tilde{\sigma}_{-h} \mathcal{J}_h^i + \sigma_{-h} (1 - E^2) \mathcal{J}_h^c \\ \partial \mathcal{J}_h^i / \partial s_h &= \tilde{\sigma}_h \mathcal{J}_0^i + \sigma_h (1 - E^2) \mathcal{J}_0^c. \end{aligned} \quad (19)$$

Equations (18) are equivalent to the perfect-crystal Takagi-Taupin equations, where F_h has been replaced by $(F_h E)$. We expect E to be a Gaussian in (hkl) , inseparable from the usual temperature factor. The occurrence of this term might be related to the well known observed discrepancy between Debye-Waller factors obtained by neutron and X-ray diffraction, since E values are expected to be different for the samples used in the X-ray and neutron experiments. It seems that E could only be separated out from data analysis by varying the temperature, since, in contrast to Debye-Waller factors, it should not depend strongly on temperature.

The solution of (18) leads to

$$\begin{aligned} I_0^c &= E^2 |\kappa|^2 (s_0/s_h) J_0 [2\kappa E (s_0 s_h)^{1/2}]^2 \\ &\quad \times \exp \left[-\mu_e (s_0 + s_h) \right] \\ I_h^c &= E^2 |\kappa|^2 J_0 [2\kappa E (s_0 s_h)^{1/2}]^2 \\ &\quad \times \exp \left[-\mu_e (s_0 + s_h) \right], \end{aligned} \quad (20)$$

where J_0 and J_1 are Bessel functions of order 0 and 1.

11.4. Solving equations (19)

We now solve equations (19) with the help of propagation operators (Becker, 1977).

The solution can be written as follows: $\hat{L}$ is a linear operator (propagator) such that

$$g(s_0, s_h) = \hat{L}(f) = \tilde{\sigma}^2 \int_0^{s_0} du \int_0^{s_h} dv f(u, v).$$

The action of L is to propagate the scattering events from (u, v) to (s_0, s_h) .

$$\begin{aligned} \mathcal{J}_h^i &= \tilde{\sigma}^2 \int_0^{s_0} \int_0^{s_h} du dv \mathcal{J}_h^i(u, v) \\ &= [1 - \hat{L}] \mathcal{J}_h^i \\ &= |\kappa_h|^2 (1 - E^2) + \tilde{\sigma}_h \sigma_{-h} (1 - E^2) \int_0^{s_0} \int_0^{s_h} du dv \mathcal{J}_h^c(u, v) \\ &\quad + \sigma_h (1 - E^2) \int_0^{s_h} \mathcal{J}_0^c(s_0, v) dv \\ &= f^0 + f^1 + f^2. \end{aligned}$$

Thus,

$$\mathcal{J}_h^i = [1 - \hat{L}]^{-1} (f^0 + f^1 + f^2) \quad (21)$$

and the solution is the sum of three terms:

$$\begin{aligned} \mathcal{J}_h^i &= \mathcal{J}_h^0 + \mathcal{J}_h^1 + \mathcal{J}_h^2 \\ \mathcal{J}_h^p &= \sum_{n=0}^{\infty} \hat{L}^n [f^p], \quad p=0, 1, 2. \end{aligned} \quad (22)$$

For $\mathcal{J}^0$ (Kato, 1976, 1980c; Becker, 1977), one finds

$$\mathcal{J}_h^0 = |\kappa_h|^2 (1 - E^2) I_0 [2\tilde{\sigma} (s_0 s_h)^{1/2}], \quad (23a)$$

which corresponds to the neglect of coherent contribution, i.e. pure mosaic theory. The intensity in the incident beam at s_0, s_h is obtained as

$$\mathcal{J}_0^0 = \tilde{\sigma} / \tilde{\sigma}_h |\kappa_h|^2 (1 - E^2) (s_0/s_h)^{1/2} I_1 [2\tilde{\sigma} (s_0 s_h)^{1/2}], \quad (23b)$$

where I_0 and I_1 are modified Bessel functions.

In order to evaluate $\mathcal{J}_h^{1,2}$, we will make use of a theorem which is proved in Appendix A.

Theorem: Consider the equation

$$\begin{aligned} (1 - \hat{L}) \mathcal{J} &= f * g \\ &= \int_0^{s_0} \int_0^{s_h} f(u, v) g(s_0 - u, s_h - v) du dv. \end{aligned}$$

We get

$$\hat{L}[f * g] = \hat{L}f * g = f * \hat{L}g$$

and finally

$$\mathcal{J} = f * \left[\sum_{n=0}^{\infty} \hat{L}^n(g) \right] = \left[\sum_{n=0}^{\infty} \hat{L}^n(f) \right] * g. \quad (24)$$

We first consider f^1 . We may write

$$f^1 = (\tilde{\sigma}_h \sigma_{-h} / |\kappa_h|^2) \mathcal{J}_h^c * f^0.$$

As a consequence, we immediately obtain

$$\mathcal{J}_h^1 = (\tilde{\sigma}_h \sigma_{-h} / |\kappa_h|^2) \mathcal{J}_h^c * \mathcal{J}_h^0. \quad (25)$$

Similarly for f^2 :

$$f^2 = \sigma_h (1 - E^2) \mathcal{J}_0^c * \delta(s_0)$$

$$\sum_{n=0}^{\infty} \hat{L}^n [\delta(s_0)] = \delta(s_0) + \tilde{\sigma} (s_h/s_0)^{1/2} I_1 [2\tilde{\sigma} (s_0 s_h)^{1/2}]$$

and

$$\mathcal{I}_h^2 = \sigma_h(1 - E^2) \int_0^{s_h} \mathcal{I}_0^c(s_0, v) dv + (\sigma_h \tilde{\sigma}_h / |\kappa_h|^2) \mathcal{I}_0^c * [\mathcal{I}_0^0 s_h / s_0]. \quad (26)$$

The first term in (26) was neglected by Kato.

11.5. The physical picture

Let us try to find a physical picture to the solution for the incoherent intensity. It can be decomposed as

$$I_h^i = I_h^{i0} + I_h^{i1} + I_h^{i2}. \quad (27)$$

The first term I_h^{i0} corresponds to a purely incoherent propagation from the surface. This means that some phase coherence is lost in the immediate vicinity of S .

$$I_h^{i0} = |\kappa_h|^2 (1 - E^2) I_0 [2\tilde{\sigma}(s_0 s_h)^{1/2}] \times \exp[-\tilde{\mu}_c(s_0 + s_h)]. \quad (28a)$$

With a similar expression for the incident beam

$$I_0^{i0} = |\kappa_h|^2 (\tilde{\sigma}/\tilde{\sigma}_h) (1 - E^2) (s_0/s_h)^{1/2} I_1 [2\tilde{\sigma}(s_0 s_h)^{1/2}] \times \exp[-\tilde{\mu}_c(s_0 + s_h)], \quad (28b)$$

I_h^{i1} can be written as

$$I_h^{i1} = (2\sigma_h \tau_c) I_h^c * I_h^{i0} \quad (29)$$

and has the following meaning (Fig. 2).

At the point (u, v) , the diffracted coherent beam $I_h^c(u, v)$ is scattered into the incident direction and we assume phase coherence to be lost over a distance $2\tau_c$. At a point within a distance $2\tau_c$ from (u, v) along the incident beam, a new scattering occurs where phase coherence is lost and from that point the beam travels incoherently. I_h^{i1} is the sum of all these events for variable (u, v) . Since we assume $\tau_c \ll s_0, s_h$, the quantity I_h^{i2} is expressed by

$$I_h^{i2} = \sigma_h(1 - E^2) \int_0^{s_h} dv I_0^c(s_0, v) \exp[-\tilde{\mu}_c(s_0 + v)] + [2\sigma_h \tau_c] I_0^c * [(s_h/s_0) I_0^0]. \quad (30)$$

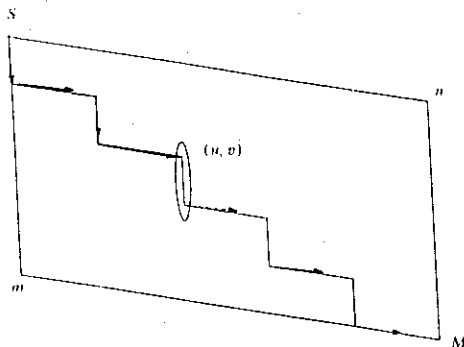


Fig. 2. Transformation of coherent diffracted into incoherent process, at point (u, v) .

The second term in (30) corresponds to the following situation (Fig. 3). The incident coherent beam is scattered at (u, v) into the diffracted direction. We assume coherence to be lost over a distance of order $2\tau_c$. From a point within a distance $2\tau_c$ from (u, v) along the diffracted beam, the propagation is incoherent. We notice that

$$(s_h/s_0) I_0^{i0}(s_0, s_h) = I_0^{i0}(s_h, s_0),$$

which corresponds to an interchange of incident and diffracted directions. $I_0^{i0}(s_h - v, s_0 - u)$ corresponds to a diffracted beam at M originating from a unit intensity in the diffracted direction at (u, v) .

The first term in (30) corresponds to the case where a coherent beam in the incident direction reaches mM , is scattered and cannot be rescattered, thus simply propagating in the diffracted direction.

We notice that $2\tau_c$ is the apparent coherence length in (29) and (30); this cannot be guessed from the Takagi-Taupin equations. It involves the parameter I , and this difficult part of the theory will be discussed in detail in a forthcoming paper.

11.6. Integrated intensity—case of a parallel plate

It has been shown (Kato, 1976; Becker, 1977) that the integrated intensity for an extended incident beam can be easily obtained from the intensity corresponding to a point source.

$I(m)$ denotes the intensity at m from a point source at S , the beam exiting at M . Remember that the pair (S, M) is unambiguously defined by the point m inside the crystal. The integrated power in the reflected beam, P , is given by

$$P = [\lambda / \sin(2\theta)] \int_v I(m) dv_m, \quad (31)$$

where

$$I(m) = I_h^c + I_h^i, \quad I_h^i = I_h^{i0} + I_h^{i1} + I_h^{i2}.$$

Thus

$$P = P^c + P^i, \quad P^i = P^{i0} + m, \quad (32)$$

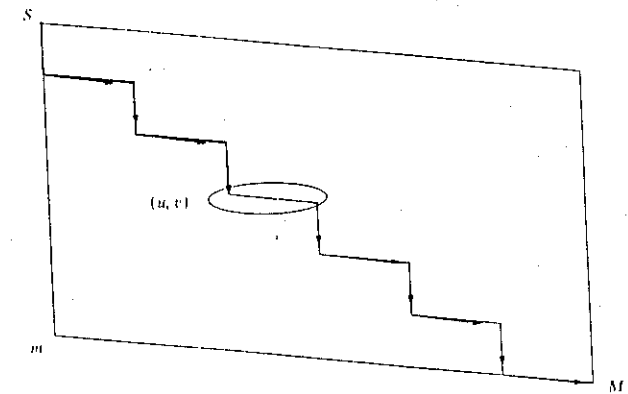


Fig. 3. Transformation of coherent incident into incoherent process, at point (u, v) .

where m corresponds to the mixed components $I_h^{(1)}$ and $I_h^{(2)}$.

The calculation of (31) is done by numerical integration for a crystal of general shape, but an analytical solution can be obtained for a parallel plate in transmission geometry.

As the detailed integration of (31) is quite similar to Kb , it will not be repeated here. Our values for P^c and $P^{(0)}$ are equivalent to Kato's result. However, the value of m turns out to be rather different. For a parallel plate, we find

$$P^{(1)} = (4/\gamma_h) M_h^{(2)}, \quad (33)$$

where $M_h^{(2)}$ is a quantity defined by Kato (Kb , equation 19d) and

$$P^{(2)} = (4/\gamma_h) M_h^{(1)} + P^{(1)}. \quad (34)$$

$M_h^{(1)}$ is given in Kb , equation (19c) and $P^{(1)}$ corresponds to a term not included by Kato. With Kato's notation,

$$P^{(1)} = 2E^2(1-E^2)\kappa^2\tau Q[\gamma_0(\gamma_0\gamma_h)^{1/2}]^{-1} \times \{\exp[-(\bar{M}-\bar{N})_r] * L_0\}_r. \quad (35)$$

Finally, in symmetrical Laue cases, the mixed power is

$$m = E(1-E^2)H_h\{\frac{1}{2}(m_1+m_2)-n_2\} \quad (36)$$

to be compared with Kb equation (36b).

We have checked this difference by three methods: analytical integration, numerical calculation and integration by the procedure developed by Kato.

Equations (33) and (34) summarize the modifications from Kato's original solution in the case of a parallel plate. Similar modifications, to be incorporated in a solution for a crystal of general shape, will be given in a forthcoming publication.

Let us finally discuss the influence of this modification on the integrated power in the diffracted beam. In Fig. 4 various components are plotted, for

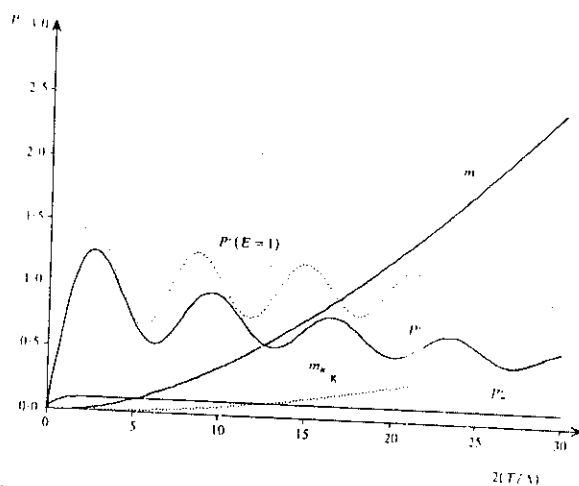


Fig. 4. Diffracted power (divided by H_h , non-absorbing case) as a function of $2(T/A)$, for $E=0.9$, $\tau/A=0.1$.

a non-absorbing case, and with the conditions used by Kato [$E=0.9$, $\tau/A=0.1$], versus $2(T/A)$, where T is the effective crystal thickness, for a non-absorbing case.

The mixed component m is increased by a factor of 4, compared with the original value m_K (see also Fig. 3 in Kb). The consequence is a much larger contribution of incoherence even for crystals of high long-range perfection (high E).

In Fig. 5, we give the same plot for $E=0.1$, $\tau/A=0.1$ and though the same qualitative change occurs, the effect of the mixed component remains small. The smallness of the modification for the case of $E \ll 1$ does not in fact mean that (6) and (9) in their present form are well adapted to this situation.

Thus, we expect a very delicate balance between coherent and incoherent components in the case of crystals with a high degree of perfection, i.e. for severe primary extinction effects.

We will discuss the case of silicon in the next section.

III. Application to silicon crystals with high degree of perfection

III.1. Experimental and original analysis

Olekhovich *et al.* (1983) have measured diffracted power from various parallel plates of silicon, using $\text{Cu K}\alpha$ radiation, with samples of various dislocation densities. They worked in the symmetrical Laue geometry and varied the apparent thickness by rotating the sample around the reciprocal-lattice vector.

These authors used samples with low dislocation density: $N_d = 30 \text{ mm}^{-2}$ for sample I, $N_d = 100 \text{ mm}^{-2}$ for sample II, and also samples with high dislocation density ($N_d > 5000 \text{ mm}^{-2}$). In the present study, we shall discuss samples I and II, for which primary extinction is important.

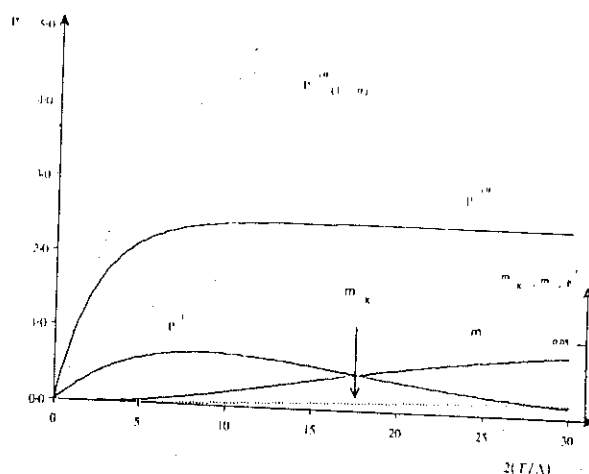


Fig. 5. Diffracted power (divided by H for non-absorbing case) as a function of $2(T/A)$, for $E=0.1$, $\tau/A=0.1$.

If t is the effective thickness of the plate in the plane defined by the incident and diffracted beams, the optical length is $T = t/\cos \theta$.

For sample II, Olekhovich *et al.* results for the 333 reflection are shown in Fig. 6, where the 'reduced intensity' is plotted versus $A = T/\lambda$. Curve (1) corresponds to experimental points, and curve (2) to the best agreement with Kato's theory. The 'reduced theoretical intensity' is defined as

$$R_{\text{th}} = 2\lambda(P_{\text{th}}/P_k), \quad (37)$$

where P_k is the kinematical diffracted power and P_{th} is the theoretical diffracted power as defined in (31). This definition of R_{th} is such that $R_{\text{th}} \rightarrow 1$ for a large perfect crystal (dynamical limit). R_{th} corresponds to curve (2). Absorption, anomalous Borrmann absorption and anomalous scattering play a significant role in this study.

Because of the smallness of incoherent and mixed components in Kato's expression, Olekhovich *et al.* assumed that only the coherent component is affected by anomalous scattering and absorption: they corrected for it using a method proposed by Kato (1968). As a consequence, the experimental points on curve (1) of Fig. 6 correspond to

$$R_{\text{exp}} = (2\lambda/P_k)[P_{\text{exp}} - P_{\text{an}}], \quad (38)$$

where P_{exp} is the experimental power and P_{an} is the calculated correction for the anomalous effect in the coherent part.

We observe that oscillations are highly visible, attesting the high E value. In fact, the best fit was found by Olekhovich *et al.* for $E \sim 0.97$ and $\tau/\lambda \sim 0.20$. We can estimate the accuracy of the fit by

$$\eta = \frac{1}{N} \sum_k \frac{|R_{\text{th}} - R_{\text{exp}}|}{R_{\text{exp}}},$$

in which N is the number of experimental points. Olekhovich *et al.*'s study leads to $\eta \sim 25\%$. Kato's original theory strongly underestimates reduced intensities, in particular for large values of A . The strong deviation of R from 1 for large A shows that

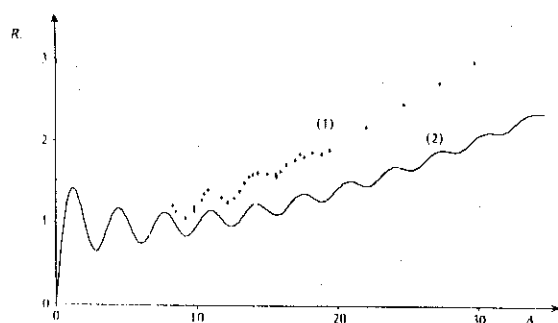


Fig. 6. Reduced intensity for the 333 reflection of Si, as a function of A . Curve (1) experimental points; curve (2) best fit from Kato's theory. (From Olekhovich *et al.*, 1983.)

even slight distortions rapidly destroy coherence. Olekhovich *et al.* also varied Γ in the definition of τ , (equations 11 and 12) but this leads only to a very small improvement.

III.2. Modified analysis

We reconsidered this analysis with the modifications in § II of this paper. A proper integration of propagation equations leads to a strong increase of the mixed component for large A , even in the case of high E values. One can no longer neglect anomalous effects in the mixed component.

Thus, we directly introduce anomalous dispersion in the equations for the diffracted power replacing the atomic scattering factor f_0 by $f = f_0 + \delta f' + i\delta f''$. $\delta f'$ and $\delta f''$ are taken respectively as 0.244 and 0.33 (*International Tables for X-ray Crystallography*, 1974).

Fig. 7 shows the influence of anomalous scattering on the 333 reflection intensity. This example corresponds to $E = 0.97$ and $\tau/\lambda = 0.20$. In curve (1), the Borrmann effect is totally neglected ($f = f_0$). In curve (2), only the coherent component is corrected for the Borrmann effect, while curve (3) corresponds to the correct calculation, where all components include anomalous contributions. The effect is very significant for large values of A .

Fig. 8 shows our results for the 333 reflection and sample II. As experimental values we take $y = P_{\text{exp}}/P_k$ measured by Olekhovich *et al.* (Fig. 2 from Olekhovich *et al.*, 1983). In Fig. 8, we plot $Y = 2\lambda y$ as a function of A . Curve (1) represents the experimental points. Curve (2) corresponds to the least-squares fit that led to $E = 0.91$ and $\tau/\lambda = 0.0134$. The agreement factor η is now 7.8%. A variation of Γ even leads to $\eta \sim 6.7\%$. We observe a very significant improvement if we compare this with Fig. 6.

In Fig. 9 we present similar results for sample I. The optimization leads to $E = 0.95$ and $\tau/\lambda = 0.011$. η is 4.7% and reduces to 4% if Γ is varied.

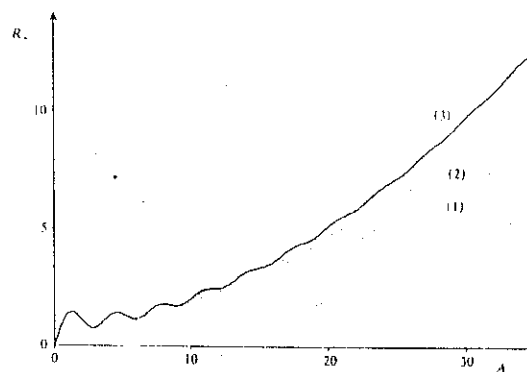


Fig. 7. Influence of anomalous scattering on the reduced intensity, for $E = 0.97$, $\tau/\lambda = 0.20$. Curve (1) neglect of Borrmann effect; curve (2) Borrmann effect only in the coherent component; curve (3) complete calculation.

III.3. Conclusions

We conclude that Kato's theory is well adapted to crystals of high long-range-order perfection. One can well reproduce the oscillations for small A as well as the observed increase of the intensity for large A .

Anomalous scattering can be included in the theory. The importance of mixed components to the diffracted intensity is clearly demonstrated. Moreover, for cases of low dislocation density, it would be incorrect to consider that extinction is only of primary type. For instance, curve (3) of Figs. 8 and 9 shows the behaviour of a pure primary-extinction correction: both the pseudoperiod of the oscillations and the average slope are wrong: the agreement factor η would be 17% for sample II and 11% for sample I.

IV. Concluding remarks

IV.1. Kato's approach

We have seen that Kato's approach fills the gap between pure dynamical theory and 'secondary-extinction theory'. For crystals with a very low dislocation density, one cannot apply pure dynamical theory. 'Mixed terms' which represent the occurrence of incoherence somewhere in the bulk of the sample have to be taken into account, in addition to the purely coherent and purely incoherent components.

The influence of the anomalous-scattering effect is very important.

Our first conclusion is that, with a careful solution of Kato's statistical propagation equations, extinction effects for highly perfect crystals can be reproduced. Experience with other examples is needed. The integration of (6) and (9) has been performed for

crystals of general convex shape and this will be the object of a forthcoming publication, where the solution will be given in terms of a programmable expression where the parameters for a least-squares routine are E and τ (in fact their h, k, l dependence).

IV.2. Problems with new formulation

However, there are some difficulties with the present formulation of (6) and (9); and especially with the incoherent part of the intensity. We recast the effective correlation length as

$$\tau_c = (1 - E^2)\tau + E^2 I', \quad (39)$$

where I' is the correlation length of the incoherent part of the beams. Obviously, I' is not independent of τ and A . Kato discusses this point and proposes that $I' = A/E$, which leads to

$$\tau_c = (1 - E^2)\tau + EA. \quad (40)$$

If the crystal is composed of completely randomly distributed perfect blocks ($E \neq 0$ and $\tau \rightarrow 0$), Takagi-Taupin equations can be directly solved, leading to

$$I_h = |\kappa_h|^2 \{ E^2 |J_0[2\kappa E(s_0 s_h)^{1/2}]|^2 + (1 - E^2) \}.$$

Integration of (9) would lead to this result only if $\tau_c \rightarrow 0$, which means $I' \rightarrow 0$, in contradiction with (40).

The only way to improve the theory is to make an assumption concerning the shape of the correlation function $g(z)$ and to try to derive a plausible expression for τ_c and the propagation equation for the incoherent part of the beam: see for instance Kulda (1984).

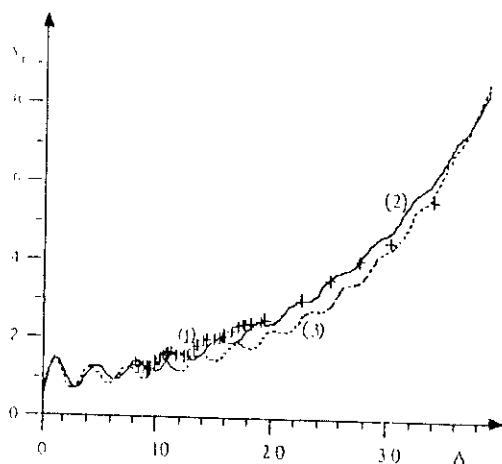


Fig. 8. Reduced extinction y as a function of A , for sample II. Curve (1) experimental points (+); curve (2) best least-squares fit (—); curve (3) primary extinction (-----).

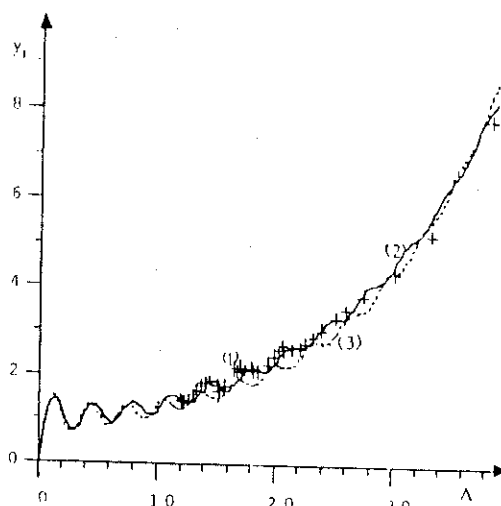


Fig. 9. Reduced extinction y as a function of A , for sample I. Curve (1) experimental points (+); curve (2) best least-squares fit (—); curve (3) primary extinction (-----).

We thank Professor Philip Coppens for very helpful discussions and a critical reading of this paper.

APPENDIX A

We want to prove that

$$\hat{L}[f * g] = [\hat{L}f] * g = f * [\hat{L}g].$$

Let

$$h(x, y) = f * g = \int_0^x du \int_0^y dv f(u, v) g(x - u, y - v)$$

$$\hat{L}(h) = \hat{\sigma}^2 \int_0^x du \int_0^y dv h(u, v).$$

If h is expanded into its components f and g :

$$\begin{aligned} \hat{L}(h) = \hat{\sigma}^2 \int_0^x du \int_0^y dv' \int_0^u du' \int_0^{v'} dv'' f(u', v') \\ \times g(u - u', v - v'), \end{aligned}$$

we change variables (u, u') into $(u', \xi = u - u')$, (v, v') into $(v', \eta = v - v')$ and get

$$\begin{aligned} \hat{L}(h) = \hat{\sigma}^2 \int_0^x du' \int_0^y dv' f(u', v') \\ \times \int_0^{u'} d\xi \int_0^{v'} d\eta g(\xi, \eta) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} &= \int_0^x du' \int_0^y dv' f(u', v') \hat{L}g(x - u', y - v') \\ &= f * [\hat{L}g] \\ &= [\hat{L}f] * g. \end{aligned}$$

References

- AUTHIER, A. (1970). *Advances in Structure Research by Diffraction Methods*, pp. 1-52. Oxford: Pergamon Press.
- BATTERMANN, B. W. & COLE, H. (1964). *Rev. Mod. Phys.* **36**, 681-717.
- BECKER, P. (1977). *Acta Cryst.* **A33**, 667-671.
- BECKER, P. J. & COPPENS, P. (1974). *Acta Cryst.* **A30**, 129-153.
- BECKER, P. J. & COPPENS, P. (1975). *Acta Cryst.* **A31**, 417-425.
- BECKER, P. & DUNSTETER, F. (1984). *Acta Cryst.* **A40**, 241-251.
- DARWIN, C. G. (1914). *Philos. Mag.* **27**, 315-333.
- DARWIN, C. G. (1922). *Philos. Mag.* **43**, 800-824.
- International Tables for X-ray Crystallography* (1974). Vol. IV. Birmingham: Kynoch Press. (Present distributor D. Reidel, Dordrecht.)
- KATO, N. (1968). *J. Appl. Phys.* **39**, 2225-2237.
- KATO, N. (1973). *Z. Naturforsch. Teil A*, **28**, 604-609.
- KATO, N. (1976). *Acta Cryst.* **A32**, 453-466.
- KATO, N. (1980a). *Acta Cryst.* **A36**, 763-769.
- KATO, N. (1980b). *Acta Cryst.* **A36**, 770-778.
- KATO, N. (1980c). In *Electron and Magnetisation Densities in Molecules and Crystals*, edited by P. BECKER, pp. 237-250. New York: Plenum.
- KUHDA, J. (1984). *Acta Cryst.* **A40**, 120-126.
- OLEKHNOVICH, N. M., KARPEI, A. L., OLEKHNOVICH, A. I. & PUZENKOVA, L. D. (1983). *Acta Cryst.* **A39**, 116-122.
- TAKAGI, S. (1969). *J. Phys. Soc. Jpn*, **26**, 1239-1253.
- ZACHARIASEN, W. H. (1945). *Theory of X-ray Diffraction in Crystals*. New York: John Wiley.
- ZACHARIASEN, W. H. (1967). *Acta Cryst.* **23**, 558-564.

D - CRITIQUE DE L'APPROXIMATION DE KATO

◇. Le modèle de Kato ne peut permettre de reproduire des résultats expérimentaux obtenus par Olekhovich et al. (1983) et Guigay (1988).

◇. Dans sa solution Kato a supposé pour la longueur de corrélation d'amplitude $\Gamma \sim \Lambda/E$. Prenons le cas particulier d'un cristal pour lequel ($E \neq 0, \tau \rightarrow 0$). On obtient directement la solution des équations de Takagi-Taupin (V-4) suivante:

$$I_h = |\chi^2| (1 - E^2) + |\chi^2| E^2 |J_0(2\chi E \sqrt{s_0 s_h})|^2 \quad (V-52)$$

Ce résultat ne peut être obtenu à partir du modèle de Kato (V-17, 35) que si on suppose que $\Gamma = 0$. Par suite Γ doit dépendre de τ et l'ordre de grandeur supposé par Kato est fort discutable.

◇. Nous avons vu, de plus, pour un cristal imparfait ($E = 0$) que la supposition $\Gamma \gg \tau$ est incorrecte.

Il est donc nécessaire de reprendre totalement le problème de la corrélation d'amplitudes, représentée par les fonctions A, B, A', B' .

E - LES INTENSITES INCOHERENTES : APPROXIMATION AMELIOREE

E - 1. Calcul de (B-A) et (B'-A')

L'insuffisance du modèle de Kato pour un cristal réel, vient de l'approximation (V-22). Pour surmonter cette approximation, de même que dans le cas d'un cristal totalement imparfait, nous itérons le processus de diffraction en développant les expressions de $\frac{\partial I_0^i}{\partial s_0} \left(\frac{\partial I_h^i}{\partial s_h} \right)$ jusqu'à χ^4 et nous considérons seulement les couplages de paires entre les nœuds les plus proches voisins. Nous obtenons :

$$\frac{\partial I_0^i}{\partial s_0} = \mu_e I_h^c + \chi^4 [X + Y] \quad (V-53)$$

où X et Y sont données par les tableaux V-1 et V-2 respectivement :

$$X = \sum x_i - \sum x'_i, \quad Y = \sum y_i - \sum y'_i. \quad (V-54)$$

Pour calculer X et Y nous utilisons les remarques et les approximations qui ont été discutées aux chapitres II et IV et que nous rappelons :

1. On considère le modèle simple présenté au chapitre II. Donc, la fonction de corrélation $g(t)$ vérifie, Fig V-7 :

$$\begin{aligned} g(t) &= g(u + u_1) = g(u) g(u_1) \\ g(u, v) &= g(u) g(v) \end{aligned} \quad (V-55)$$

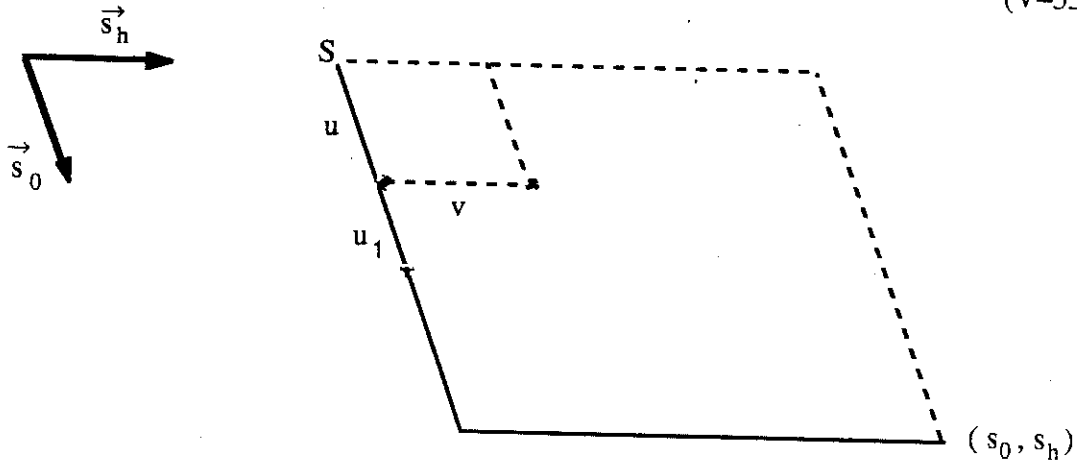


Fig. V-7 : Décomposition de la fonction de corrélation

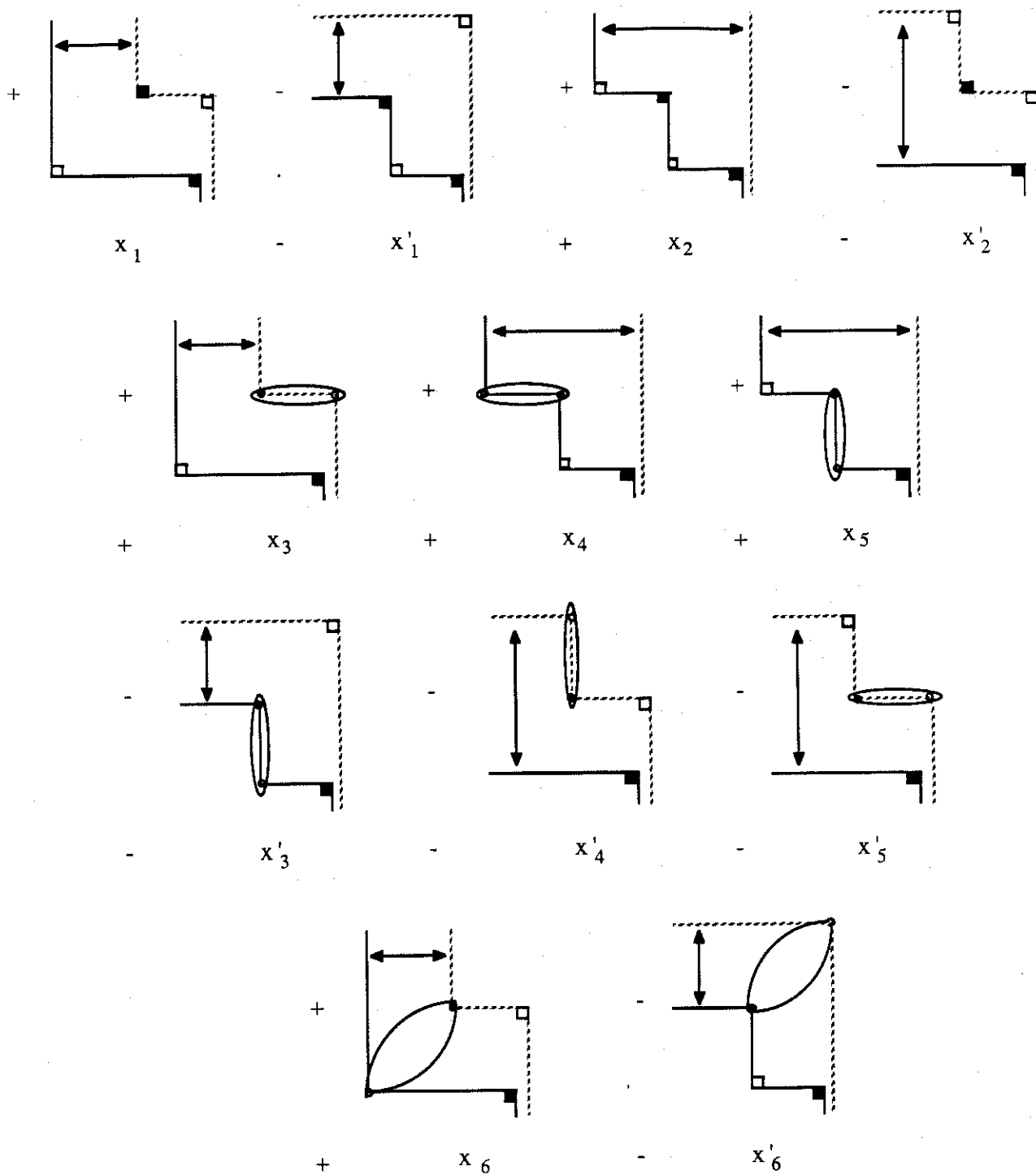


Table V-1 : Expansion de X en termes de chemins optiques indépendants

$$X = \sum x_i - \sum x'_i$$

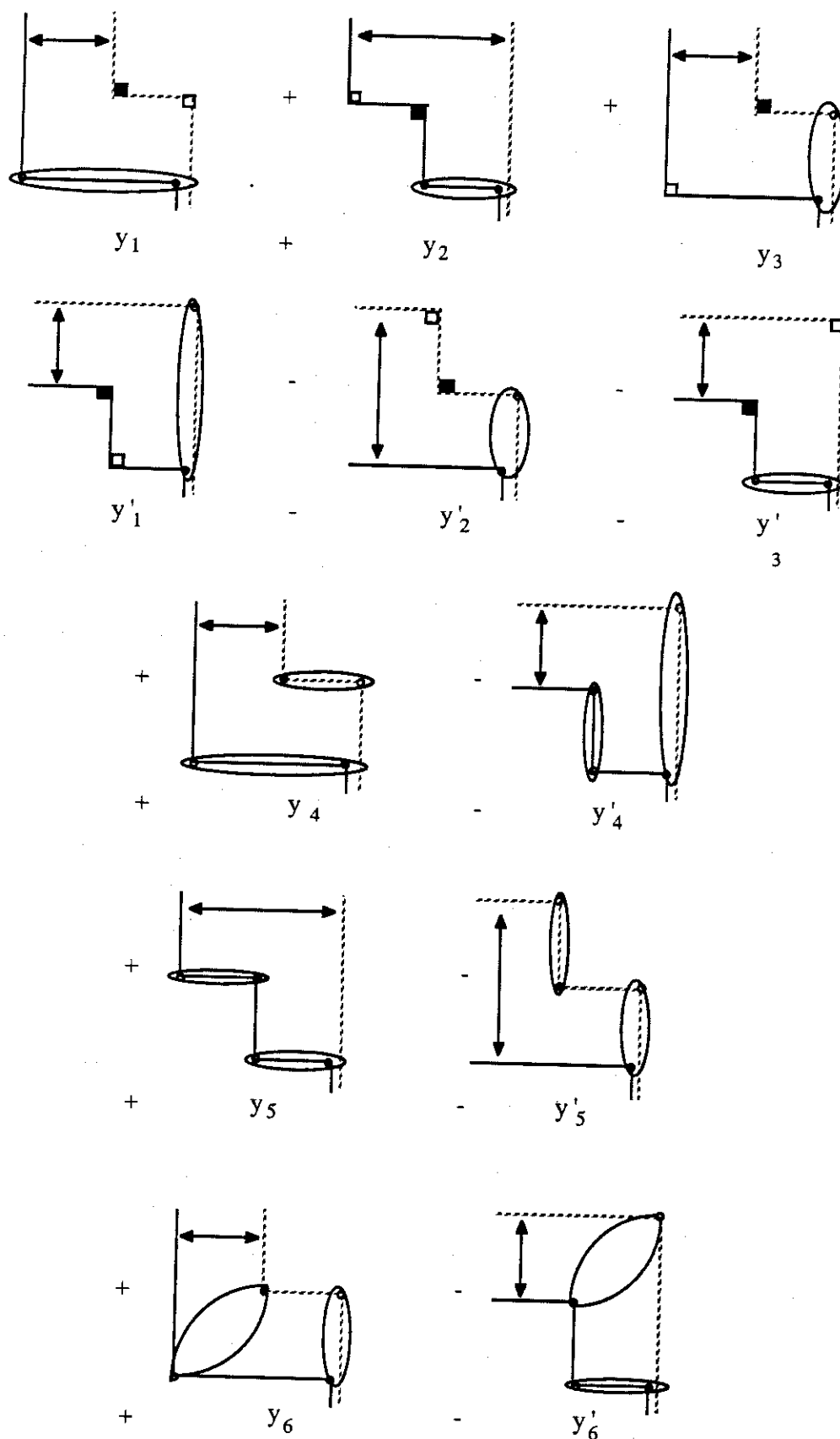


Table V-2 : Expansion de Y en termes de chemins optiques indépendants, $Y = \sum y_i - \sum y'_i$

2. Le couplage d'amplitude de l'onde incidente δD_0 entre deux points (ξ, η) et (s_0, η') dans le cristal est équivalent à ce couplage entre les deux points (ξ, η) et (ξ, η') , Fig V-8 : longue corrélation dans la direction de propagation de l'onde. Un argument symétrique s'applique à δD_h .

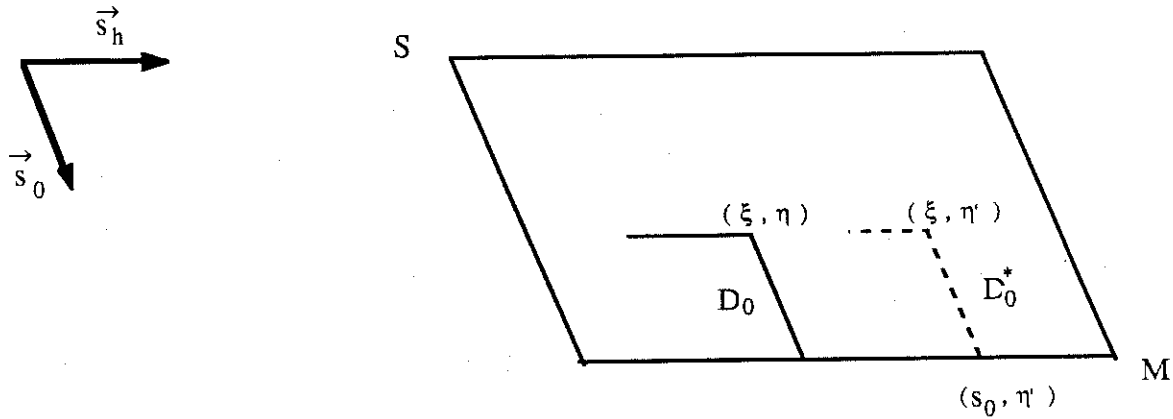


Fig. V - 8 : couplage de δD_0 .

3. Les variations de A' et B' sont supposées négligeables sur une distance τ .

4. Le transfert de l'énergie cohérente en énergie incohérente se produit par le couplage de phase entre deux points appartenant à deux chemins optiques différents. Donc, les seuls termes pour lesquels il y a transfert d'énergie cohérente en énergie incohérente, sont : x_6 , x'_6 , y_6 et y'_6 (Tabl. V-1, 2).

5. Si on a une variable $Z \gg \tau$ et $Z > z_1 > 0$, on prend (Fig. V-9) :

$$\int_0^Z g(z - z_1) dz = 2\tau \quad (V-56)$$

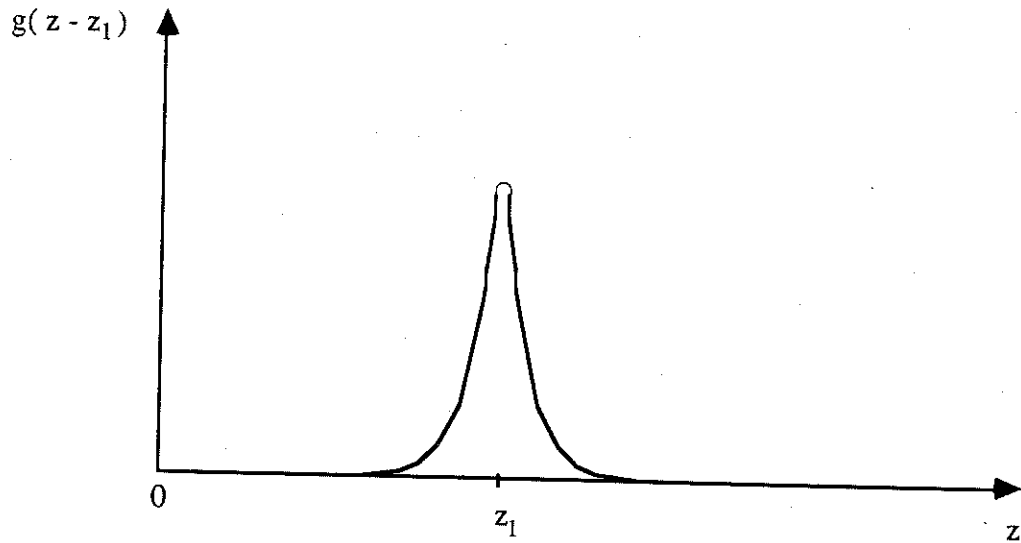


Fig. V-9 : Fonction de corrélation $g(z - z_1)$

Calcul de X :

Nous pouvons écrire l'expression mathématique de chaque quantité x_i , $x'_i(y_i, y'_i)$ à partir du diagramme présenté dans le tableau (V-1(2)) :

$$\begin{aligned} x_1 &= E^4 \int_0^{s_h} d\eta \int_0^{s_0} d\xi' \int_0^{s_h} d\eta' < \delta D_0(s_0, \eta) \delta D_0^*(\xi', \eta') > \\ &= 2 E^4 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta A(\xi, \eta) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} x'_1 &= E^4 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_0} d\xi' \int_0^{s_h} d\eta < \delta D_h(\xi, \eta) \delta D_h^*(\xi', s_h) > \\ &= 2 E^4 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta B(\xi, \eta) \end{aligned}$$

(V-57)

$$x_2 = E^4 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta \int_0^\eta d\eta_1 < \delta D_0(\xi, \eta_1) \delta D_0^*(s_0, s_h) >$$

Si on fait l'échange entre les variables η et η_1 , en plus de la remarque (2), x_2 devient :

$$\begin{aligned}
x_2 &= E^4 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta_1 [s_h - \eta_1] < \delta D_0(\xi, \eta_1) \delta D_0^*(\xi, s_h) > \\
&\sim E^4 \Gamma \int_0^{s_0} d\xi A(\xi, s_h)
\end{aligned} \tag{V-58a}$$

Compte tenu des remarques antérieures, nous admettons que $\Gamma < \Lambda$. Donc $x_2/x_1 < \Lambda/s_h \ll 1$.

De la même façon, on peut calculer x'_2 , x_5 et x'_5 :

$$x'_2 \sim \Gamma \int_0^{s_h} d\eta B(s_0, \eta) \tag{V-58b}$$

Par conséquent, on peut négliger x_2 et x'_2 par rapport aux termes x_1 et x'_1 .

On montre facilement que :

$$\begin{aligned}
x_5 &= \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta \int_0^{s_h} d\eta_1 g(s_0 - \xi) < \delta D_0(\xi, \eta) \cdot \delta D_0^* > \\
&= E^2 (1 - E^2) \tau \Gamma A
\end{aligned}$$

et

$$x'_5 = E^2 (1 - E^2) \tau \Gamma B$$

Pour calculer x_3 on écrit (Remarque 1) :

$$g(s_h - \eta) = g(s_h - \eta') g(\eta' - \eta) \quad \text{pour } s_h > \eta' > \eta \tag{V-60}$$

donc :

$$x_3 = E^2 (1 - E^2) \int_0^{s_h} d\eta \int_0^{s_0} d\xi' \int_0^{s_h} d\eta' g(s_h - \eta) < \delta D_0(\xi', \eta) \delta D_0^*(\xi', \eta') >$$

$$\begin{aligned}
&= E^2 (1 - E^2) \int_0^{s_0} d\xi \left[\int_0^{s_h} d\eta g(s_h - \eta) \int_0^\eta d\eta' < \delta D_0(\xi', \eta) \delta D_0^*(\xi', \eta') > \right. \\
&\quad \left. + \int_0^{s_h} d\eta' \int_0^{\eta'} d\eta g(s_h - \eta) < \delta D_0(\xi', \eta) \delta D_0^*(\xi', \eta') > \right] \\
&= E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_0} d\xi [A(\xi, s_h) + A'(\xi, s_h)]
\end{aligned} \tag{V-61}$$

$$x_4 = E^2 (1 - E^2) \int_0^{s_h} d\eta \int_0^\eta d\eta_1 \int_0^{s_0} d\xi' g(\eta - \eta_1) < \delta D_0(\xi', \eta_1) \delta D_0^*(\xi', s_h) >$$

Comme le couplage de phase est supposé symétrique, et $s_h > \eta > \eta_1$ l'échange entre η_1 et s_h dans la quantité $\{ g(\eta - \eta_1) < \delta D_0(\xi', \eta_1) \delta D_0^*(\xi', s_h) > \rightarrow g(s_h - \eta) < \delta D_0(\xi', s_h) \cdot \delta D_0^*(\xi', \eta_1) > \}$ laisse x_4 inchangée.

On trouve :

$$x_4 = E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_0} d\xi [A(\xi, s_h) - A'(\xi, s_h)] \tag{V-62}$$

On obtient donc de (V-61 et 62) :

$$\begin{aligned}
x_3 + x_4 &= 2 E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_0} d\xi A(\xi, s_h) \\
x'_3 + x'_4 &= 2 E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_h} d\xi B(\xi, s_h)
\end{aligned} \tag{V-63}$$

Si on fait la comparaison entre les équations (V-59) et (V-63), on constate que l'on peut négliger x_5 et x'_5 par rapport aux $x_3 + x_4$ et $x'_3 + x'_4$.

En s'aidant de la remarque (4), on obtient :

$$\begin{aligned}
x_6 &= E^2 (1 - E^2) \int_0^{s_h} d\eta \int_0^{s_0} d\xi' \int_0^{s_h} d\eta' g(\eta - \eta') < D_0^*(\xi', \eta') D_0(\xi', \eta) > \\
x_6 &= 2 E^2 (1 - E^2) \tau^2 \int_0^{s_h} I_0^c(s_0, \eta) d\eta \\
&\quad + 2 E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_h} d\eta A'(s_0, \eta)
\end{aligned}$$

et :

$$\begin{aligned}
 x'_6 &= 2 E^2 (1 - E^2) \tau^2 \int_0^{s_0} I_h^c (\xi, s_h) d\xi \\
 &+ 2 E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_0} B' (\xi, s_h) d\xi
 \end{aligned} \tag{V-64}$$

Finalement :

$$\begin{aligned}
 \frac{1}{\chi^2} \{ B - A \} &= 2 E^2 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta [A - B] (\xi, \eta) \\
 &+ 2 (1 - E^2) \tau \left\{ \int_0^{s_0} d\xi A (\xi, s_h) - \int_0^{s_h} d\eta B (s_0, \eta) \right\} \\
 &+ 2 (1 - E^2) \tau \left\{ \int_0^{s_h} d\eta A' (s_0, \eta) - \int_0^{s_0} d\xi B' (\xi, s_h) \right\} \\
 &+ 2 (1 - E^2) \tau^2 \left\{ \int_0^{s_h} d\eta I_0^c (s_0, \eta) - \int_0^{s_0} d\xi I_h^c (\xi, s_h) \right\}
 \end{aligned} \tag{V-65}$$

Calcul de Y :

$$(1 - E^2) [B' - A'] = \chi^2 Y \tag{V-66}$$

Calcul de Y (B' - A') : Si on fait la comparaison entre les diagrammes qui définissent x_i, x'_i et y_i, y'_i , on constate que :

$$\begin{aligned}
 y_1 + y_2 &= x_3 + x_4 \\
 y'_1 + y'_2 &= x'_3 + x'_4
 \end{aligned} \tag{V-67}$$

$$\begin{aligned}
 y_3 &= E^2 (1 - E^2) \int_0^{s_h} d\eta \int_0^{s_0} d\xi' \int_0^{s_h} d\eta' g(s_0 - \xi') < \delta D_0 (\xi', \eta) \delta D_0^* (\xi', \eta') > \\
 &= 2 E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_h} d\eta A (s_0, \eta)
 \end{aligned}$$

$$y'_3 = 2 E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_0} d\xi B(\xi, s_h) \quad (V-68)$$

Si on considère l'équation (V-60) on peut calculer facilement y_4 :

$$\begin{aligned} y_4 &= (1 - E^2)^2 \int_0^{s_h} d\eta \int_0^{s_h} d\eta' \int_0^{s_0} d\xi g(s_h - \eta) g(s_h - \eta') \\ &\quad < \delta D_0(\xi', \eta) \delta D_0^*(\xi', \eta') > \\ &= 2(1 - E^2)^2 \tau_2 \int_0^{s_0} d\xi A'(\xi, s_h) \end{aligned}$$

et :

$$y'_4 = 2(1 - E^2)^2 \tau_2 \int_0^{s_h} d\eta B'(s_0, \eta) \quad V-69)$$

Les termes y_5 et y'_5 ressemblent respectivement aux X_3 et X_4 présentés dans le Chapitre IV (IV-20c, 20d) pour un cristal totalement imparfait et sont négligeables.

$$\begin{aligned} y_6 &= (1 - E^2)^2 \int_0^{s_0} d\xi' \int_0^{s_h} d\eta' \int_0^{s_h} d\eta g(s_0 - \xi') g(s_0 - \xi', \eta - \eta') \\ &\quad < D_0(s_0, \eta) D_0^*(\xi', \eta') > \\ &= 2(1 - E^2)^2 \tau \tau_2 \int_0^{s_h} d\eta I_0^c(s_0, \eta) + 2(1 - E^2)^2 \tau_2 \int_0^{s_h} d\eta A'(s_0, \eta) \end{aligned}$$

et

$$\begin{aligned} y'_6 &= 2(1 - E^2)^2 \tau \tau_2 \int_0^{s_0} d\xi I_h^c(\xi, s_h) \\ &\quad + 2(1 - E^2)^2 \tau_2 \int_0^{s_0} d\xi B'(\xi, s_h) \end{aligned} \quad (V-70)$$

Si on remplace y_i, y'_i par leurs valeurs dans l'équation (V-66), on obtient :

$$\begin{aligned}
\frac{1}{\chi^2} \{ B' - A' \} = & 2 E^2 \tau \int_0^{s_0} d\xi [A - B] (\xi, s_h) \\
& + 2 E^2 \tau \int_0^{s_h} d\eta [A - B] (s_0, \eta) \\
& + 2 (1 - E^2) \tau_2 \int_0^{s_0} d\xi (A' - B') (\xi, s_h) \\
& + 2 (1 - E^2) \tau_2 \int_0^{s_h} d\eta (A' - B') (s_0, \eta) \\
& + 2 (1 - E^2) \tau \tau_2 \left\{ \int_0^{s_h} d\eta I_0^c (s_0, \eta) - \int_0^{s_0} d\xi I_h^c (\xi, s_h) \right\} \quad (V-71)
\end{aligned}$$

Si on laisse les expressions de $B-A$ et $B'-A'$ inchangées dans les équations (V-65 et V-71), on arrive à des équations très difficiles à résoudre.

E - 2. Equations de propagation modifiées des intensités incohérentes

Nous restons dans le cas d'un cristal pour lequel le paramètre d'ordre à grande distance est important, c'est à dire :

$$(1 - E^2) / E^2 < 1 \quad (V-72)$$

- Calculons tout d'abord $(B - A)$

Rappelons que $s_0, s_h \gg \tau$; alors dans notre cas :

$$E^2 s_0, E^2 s_h \gg (1 - E^2) \tau \quad (V-73)$$

De plus $x_3 + x_4$ (V-63a) peut se réécrire sous la forme suivante :

$$x_3 + x_4 = 2 E^2 (1 - E^2) \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta A(\xi, \eta) g(s_h - \eta) \quad (V-74)$$

Donc :

$$x_3 + x_4 \ll x_1$$

de la même façon, on peut démontrer que :

$$\begin{aligned} x'_3 + x'_4 &\ll x'_1 \\ x_6 &\ll x_1 \\ x'_6 &\ll x'_1 \end{aligned} \quad (V-75)$$

Ce qui revient à négliger les termes suivants : $x_3 + x_4$, $x'_3 + x'_4$, x_6 et x'_6 .

Dans ce cas, $(B - A)$ se simplifie :

$$\begin{aligned} [B - A] &= 2\chi^2 E^2 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta [A - B](\xi, \eta) \\ &\quad + 2\chi^2 (1 - E^2) \tau^2 \left[\int_0^{s_h} d\eta I_0^c(s_0, \eta) - \int_0^{s_0} d\xi I_h^c(\xi, s_h) \right] \end{aligned} \quad (V-76)$$

Si on définit un opérateur de propagation $\hat{L}$ par la relation suivante :

$$\hat{L} f = 2\chi^2 E^2 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta f(\xi, \eta) \quad (V-77)$$

et en l'utilisant dans l'équation (V-76), on obtient :

$$\begin{aligned} (B - A) &= [1 + \hat{L}]^{-1} F \\ &= \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n \hat{L}^n (F) \end{aligned} \quad (V-78)$$

où :

$$F = 2\chi^2 (1 - E^2) \tau^2 \left[\int_0^{s_h} d\eta I_0^c(s_0, \eta) - \int_0^{s_0} d\xi I_h^c(\xi, s_h) \right] \quad (V-79)$$

- La signification physique de l'équation (V-78)

Deux ondes cohérentes de même origine S (Fig. V-10) suivent deux chemins optiques différents jusqu'au point I , sans couplage de phase entre ces deux ondes, entre S et I . Au voisinage de I , ces deux chemins optiques sont diffractés à distance assez faible pour qu'un couplage de phase non parfait intervienne, créant de l'énergie incohérente. Entre I et M , la propagation continue sans nouveau couplage significatif entre les deux chemins optiques. Ce mécanisme n'est pas unique, mais apparaît prépondérant du fait qu'il permet une intégration sur tout le domaine hachuré entre I et M .

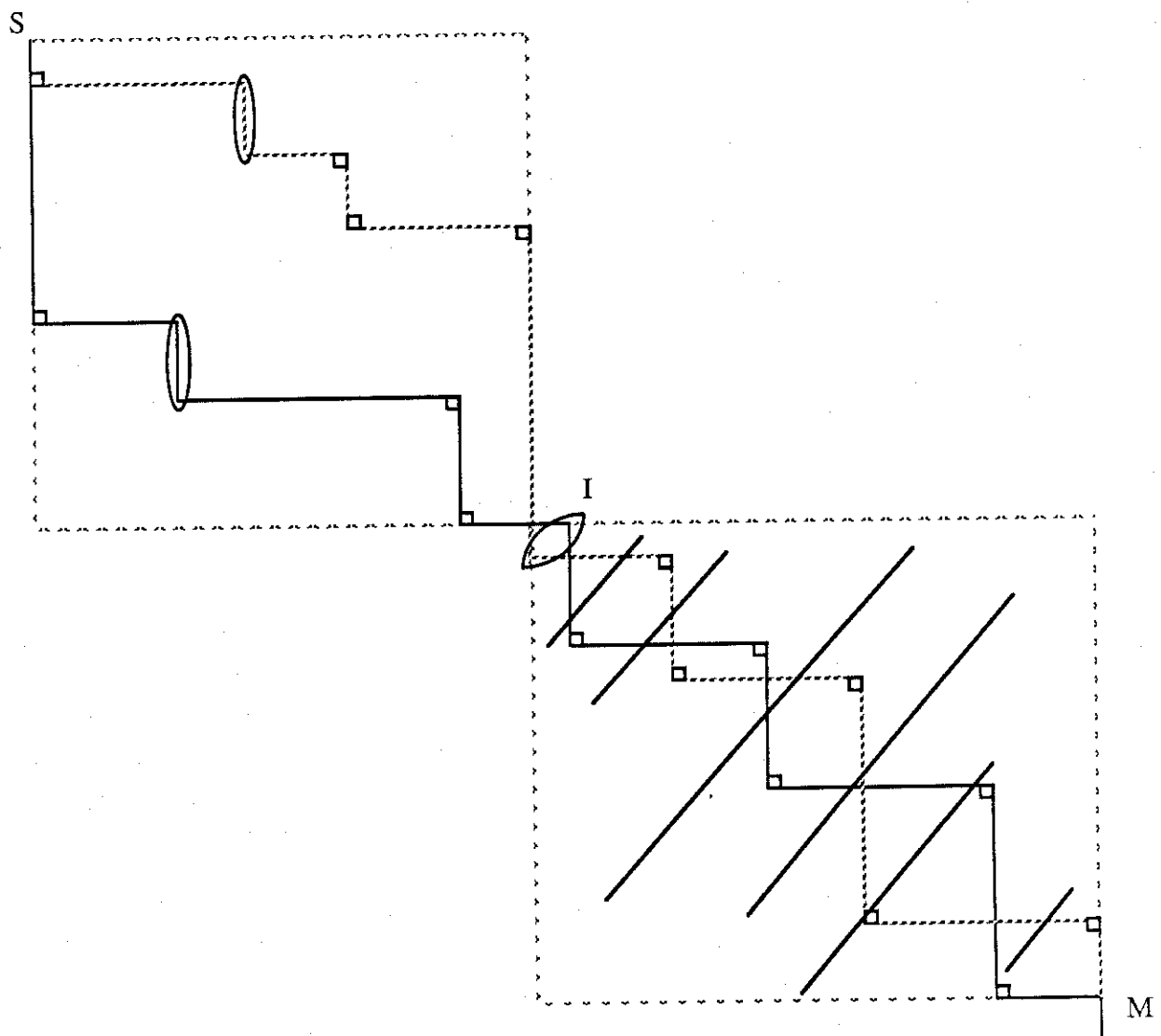


Fig. V-10 : Un diagramme montrant la signification physique de $(B - A)$

En ce qui concerne le terme $B' - A'$, on peut également l'écrire en faisant apparaître $I_h^i - I_0^i$ selon :

$$B' - A' = \tau_2 [I_h^i - I_0^i] + 2\chi^2 E^2 (\tau - \tau_2) \left\{ \int_0^{s_0} [A - B](\xi, \eta) d\xi + \int_0^{s_h} [A - B](s_0, \eta) d\eta \right\} \quad (V-80)$$

Si on remplace (V-78) et (V-80) dans les équations (V-19), les deux intégrales intervenant dans l'expression de $B' - A'$ (V-80) peuvent être négligeables par rapport à $\hat{L} [A - B]$. Les équations de propagation des intensités incohérentes deviennent alors :

$$\begin{aligned} \frac{\partial I_0^i}{\partial s_0} &= 2\chi^2 (1 - E^2) \tau I_h^c + 2\chi^2 E^2 [1 + \hat{L}]^{-1} F \\ &\quad + 2\chi^2 (1 - E^2) \tau_2 [I_h^i - I_0^i] \\ \frac{\partial I_h^i}{\partial s_h} &= 2\chi^2 (1 - E^2) \tau I_0^c - 2\chi^2 E^2 [1 + \hat{L}]^{-1} F \\ &\quad + 2\chi^2 (1 - E^2) \tau_2 [I_0^i - I_h^i] \end{aligned} \quad (V-81)$$

Simplifications physiques

On peut conclure des équations de propagation (V-81) qu'il y a trois sources possibles pour les intensités incohérentes :

♦ Soit tout de suite au voisinage du point S situé à la surface d'entrée, Fig. V-10. L'intensité devient alors incohérente, la composante correspondante est appelée purement incohérente $I_0^{i,0}$ et $I_h^{i,0}$.

♦ Ou l'intensité incohérente peut être créée en un point tel que I , Fig. V-10, à cause du couplage entre les deux chemins optiques. La partie correspondante est $2\chi^2 E^2 [1 + \hat{L}]^{-1} F$.

♦ Enfin, les parties cohérentes peuvent se propager jusqu'au point (s_0, s_h) conduisant aux termes incohérents : $\mu_e I_0^c$ et $\mu_e I_h^c$. En fait, cette seule contribution est considérée comme source effective dans l'approximation de Kato (V-24).

La Fig. V-10', montre la signification physique de la partie $\mu_2 |I_h^i - I_0^i|$: s'il y a deux couplages de phases successifs entre les deux chemins optiques, le couplage de phase sur une seule chemin (partie cohérente) devient alors négligeable.

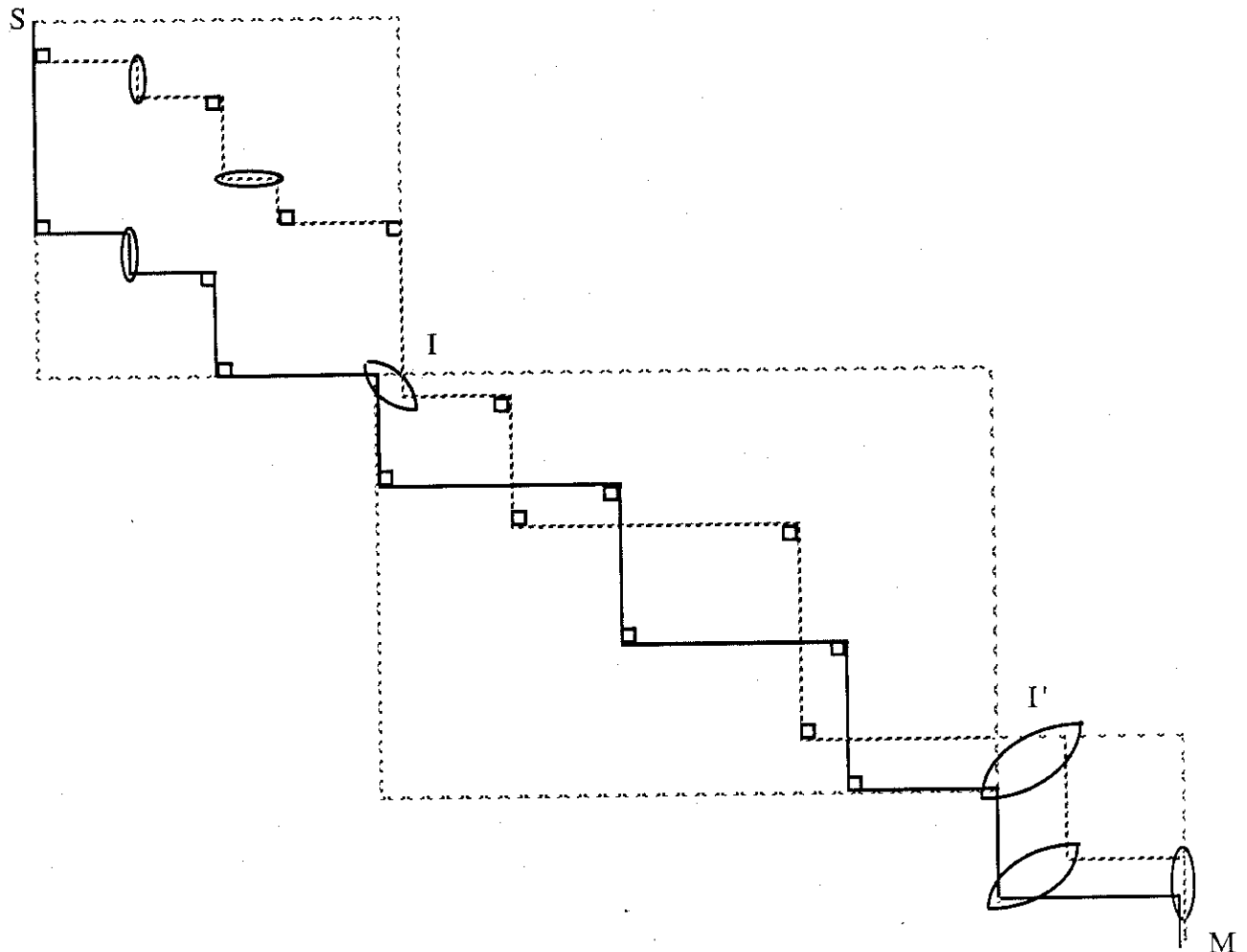


Fig. V-10' : diagramme présentant la signification physique de $\mu_e |I_h^i - I_0^i|$

Conditions aux limites :

Pour des valeurs de s_h de l'ordre de grandeur de τ ($s_h > \tau$) le terme : $2\chi^2 (1 - E^2) \tau_2 (I_0^i - I_h^i)$ est prépondérant donc on prend comme condition aux limites

(V-28) en remplaçant le coefficient d'absorption effective $\tilde{\mu}$ par $2\chi^2 (1 - E^2) \tau_2$:

$$\begin{aligned} I_0^i(0, s_h) &= 0 \\ I_h^i(s_0, 0) &= \chi^2 (1 - E^2) \exp(-2 \chi^2 (1 - E^2) \tau_2 s_0) \end{aligned} \quad (V-82)$$

On remarque que les équations de propagation (V-81) et les conditions aux limites (V-82) sont aussi valables dans le cas d'un cristal totalement imparfait ($E \rightarrow 0$).

E - 3. Les intensités incohérentes : solution des équations de propagation (V-81)

En utilisant la théorie améliorée, c'est à dire la résolution des équation (V-81) sous les conditions aux limites (V-82), nous trouvons les intensités diffractée et incidente.

On peut réécrire les équations (V-81) sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} \frac{\partial I_0^i}{\partial s_0} &= \mu_e I_h^c + \mu_2 (I_h^i - I_0^i) \\ \frac{\partial I_h^i}{\partial s_h} &= \mu_e I_0^c + \mu_2 (I_0^i - I_h^i) \end{aligned} \quad (V-83)$$

où :

$$\mu_2 = 2 \chi^2 (1 - E^2) \tau_2 \quad (V-84)$$

I_0^c et I_h^c sont les sources totales des intensités incohérentes, on peut les écrire :

$$\begin{aligned} I_0^c &= I_0^c - \alpha^2 \tau f_1 * I_0^c + \alpha^2 \tau f_2 * I_h^c \\ I_h^c &= I_h^c - \alpha^2 \tau f_2 * I_h^c + \alpha^2 \tau f_1 * I_0^c \end{aligned} \quad (V-85)$$

où :

$$\alpha^2 = 2 \chi^2 E^2 \quad (V-86)$$

$$f_1 = \delta(s_0) - \alpha \sqrt{\frac{s_h}{s_0}} J_1(2 \alpha \sqrt{s_0 s_h})$$

$$f_2 = \delta(s_h) - \alpha \sqrt{\frac{s_0}{s_h}} J_1(2 \alpha \sqrt{s_0 s_h}) \quad (V-87a)$$

Nous aurons besoin plus tard de la fonction : $f_0 = \alpha J_0 (2 \alpha \sqrt{s_0 s_h})$ (V-87b)

Les équations (V-83) sont semblables aux équations (V-24). Pour obtenir leur solution, on remplace dans les formules (V-35, 36 et 37) $\tilde{\mu}_e$ par μ_2 , I_0^c et I_h^c par I_0^c et I_h^c respectivement.

En utilisant (V-85), on arrive à la forme finale :

$$\begin{aligned} I_0^i &= I_0^{i,0} + \sum_{n=1}^5 I_0^{i,n} \\ I_h^i &= I_h^{i,0} + \sum_{n=1}^5 I_h^{i,n} \end{aligned} \quad (V-88)$$

où

$I_0^{i,0}$ et $I_h^{i,0}$ sont les composantes purement incohérentes créées à partir du point de la source S :

$$\begin{aligned} I_0^{i,0} &= (1 - E^2) \chi^2 \sqrt{\frac{s_0}{s}} I_1 \left(2 \mu_2 \sqrt{s_0 s_h} \right) \exp(-\mu_2 (s_0 + s_h)) \\ I_h^{i,0} &= (1 - E^2) \chi^2 I_0 \left(2 \mu_2 \sqrt{s_0 s_h} \right) \exp(-\mu_2 (s_0 + s_h)) \end{aligned} \quad (V-89)$$

$I_h^{i,0}$, $I_h^{i,h}$, ($n = 1, \dots, 5$) sont les parties mixtes :

$$\begin{aligned} I_0^{i,1} &= \sigma (1 - E^2) \left(1 + \frac{\alpha^2 \tau}{\mu_2} \right) g_0 * I_0^c \\ I_0^{i,2} &= \sigma (1 - E^2) g_2 * I_h^c \\ I_0^{i,3} &= -\sigma (1 - E^2) \frac{\tau \alpha^3}{\mu_2} g_0 * f_0 * I_0^c \\ I_0^{i,4} &= -\tau \alpha^2 \sigma (1 - E^2) g_2 * f_2 * I_h^c \\ I_0^{i,5} &= \tau \alpha^2 \sigma (1 - E^2) \tau \alpha^2 g_0 * f_2 * I_h^c \end{aligned}$$

et

$$I_h^{i,1} = \sigma (1 - E^2) g_1 * I_0^c$$

$$I_h^{i,2} = \sigma (1 - E^2) \left[1 + \frac{\alpha^2 \tau}{\mu_2} \right] g_0 * I_h^c$$

$$I_h^{i,3} = -\tau \alpha^2 \sigma (1 - E^2) [g_1 * f_1] * I_0^c$$

$$I_h^{i,4} = \sigma (1 - E^2) \tau \alpha^2 [g_0 * f_0] * I_0^c$$

$$I_h^{i,5} = -\frac{\tau \alpha^3}{\mu_2} \sigma (1 - E^2) [g_0 * f_0] * I_h^c$$

(V-90)

où :

$$\sigma = 2 \chi^2 \tau$$

$$f_0 = J_0 \left(2\alpha \sqrt{s_0 s_h} \right)$$

$$g_0 = \mu_2 I_0 \left(2 \mu_2 \sqrt{s_0 s_h} \right) e^{-\mu_2 (s_0 + s_h)}$$

$$g_1 = \left[\delta(s_0) + \mu_2 \sqrt{\frac{s_h}{s_0}} I_1 \left(2 \mu_2 \sqrt{s_0 s_h} \right) \right] e^{-\mu_2 (s_0 + s_h)}$$

$$g_2 = \left[\delta(s_h) + \mu_2 \sqrt{\frac{s_0}{s_h}} I_1 \left(2 \mu_2 \sqrt{s_0 s_h} \right) \right] e^{-\mu_2 (s_0 + s_h)}$$

F – INTENSITE DIFFRACTEE INTEGREE POUR UNE PLAQUETTE INFINIE (APPROXIMATION AMELIOREE) : GEOMETRIE SYMETRIQUE DE LAUE

Nous calculons la puissance diffractée par la formule :

$$P = P^c + P^i \quad (V-38)$$

Où P^c est la partie purement cohérente donnée par les équations (V-40) et P^i la partie incohérente correspondant à l'intensité I_h^i donnée par (V-87) :

F – 1. Calcul de P^i

Parallèlement à l'expression de I_h^i , on peut écrire :

$$P^i = P^{i,0} + M, \quad M = \sum_{i=1}^5 M_i \quad (V-91)$$

Où :

$P^{i,0}$ est la composante purement incohérente correspondante à $I_h^{i,0}$

M : la partie mixte. Et enfin, M_n est la composante mixte correspondant à l'intensité $I_h^{i,n}$.

$P^{i,0}$ est donnée par l'équation (V-43) en remplaçant τ_e par $(1 - E^2) \tau_2$:

$$P^{i,0} = \frac{\Lambda Q \Lambda}{2 \tau_2} \sinh [2 (1 - E^2) \tau_2 / \Lambda (T/\Lambda)] \exp(-2 (1 - E^2) \tau T / \Lambda^2) \quad (V-92)$$

Les intensités $I_h^{i,1}$ et $I_h^{i,2}$ sont des produits de convolution de deux fonctions. Donc, on utilise l'équation (V-45) pour obtenir les composantes M_1 et M_2 .

Par contre, si N est des composantes soit M_1 , M_2 ou M_3 , elle correspond à l'intensité incohérente mixte $I : I_h^{i,3}$, $I_h^{i,4}$, ou $I_h^{i,5}$. I est un produit de convolution de trois fonctions f^c , f^1 et f^2 :

$$I = f^c * f^1 * f^2 \quad (V-93)$$

f^c se rapporte à une composante cohérente : I_0^c ou I_h^c . Par contre, f^1 et f^2 apparaissent aux positions m'' (ξ'' , η'') et m' (ξ' , η'), Fig. V-II, et sont liées à la création d'incohérence.

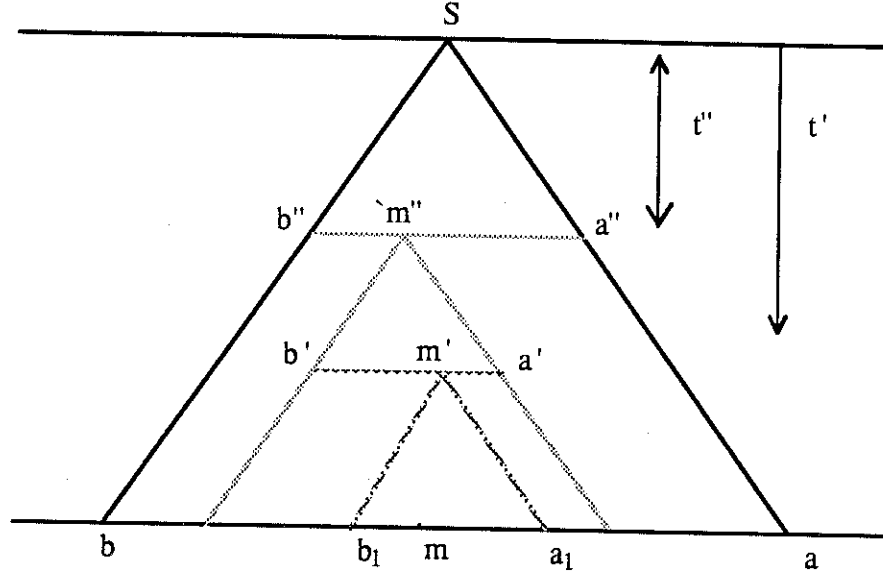


Fig. V-II : Une géométrie pour calculer M_3 , M_4 et M_5

Nous calculons N par la même méthode utilisée pour obtenir l'équation (V-45) :

$$N = \frac{\lambda \gamma^3}{\sin^4 2\theta} \left\{ \left[\int_{a''}^{b''} dx'' f^c(t, x'') \right] * \left[\int_{a'}^{b'} dx' f^1(t, x') \right] * \left[\int_a^b dx f^2(t, x) \right] \right\} \quad (V-94)$$

M_1 et M_2 sont données par les équations (V-83) et M_3 , M_4 et M_5 par (86) dans l'article [P. Becker and M. Al Haddad, 1989 ; Diffraction by a randomly distorted crystal II : General theory].

Après un calcul purement mathématique détaillé dans l'article ci-joint, on obtient :

$$M = \frac{1}{2} \sigma (1 - E^2) E^2 Q \left[4 \mu_2 a \left(Z_1 + \frac{1}{2} Z_2 \right) + \gamma Z_3 \right. \\ \left. - a (2 \mu_2 n_1 + \alpha n_2) + (1 + 2 \mu_2 a) n_3 + n_4 \right] \quad (V-95)$$

où :

$$a = \frac{2 \tau \alpha^2}{\alpha^2 + 4 \mu_2^2}, \quad \gamma = \frac{a (\alpha^2 - 4 \mu_2^2) - 2 \tau \alpha^2}{2 \mu_2} - 2 \quad (V-96)$$

et :

$$Z_1 = \frac{1}{\alpha^2 + \mu_e^2} \{ [(\exp(-\mu_e t) J_0(2 \chi E t) * (\mu_e \cos(\alpha t) - \alpha \sin(\alpha t)))]_T \\ - \mu_e T \exp(-\mu_e T) W(2 \chi E T) \}$$

$$Z_2 = \frac{1}{\alpha^2 + \mu_e^2} \{ [(\exp(-\mu_e t) J_0(2 \chi E t) * (\mu_e \sin(\alpha t) - \alpha \cos(\alpha t)))]_T \\ + \alpha T \exp(-\mu_e T) W(2 \chi E T) \}$$

$$Z_3 = \frac{T}{2 \mu_2 - \mu_e} [\exp(-\mu_e T) W(2 \chi E T) - \exp(-2 \mu_2 T) W_e((2 \mu_2 - \mu_e) T, 2 \chi E T)]$$

Où :

$$W_e(x, y) = \int_0^1 \exp(-x \rho) J_0(y \rho) d\rho$$

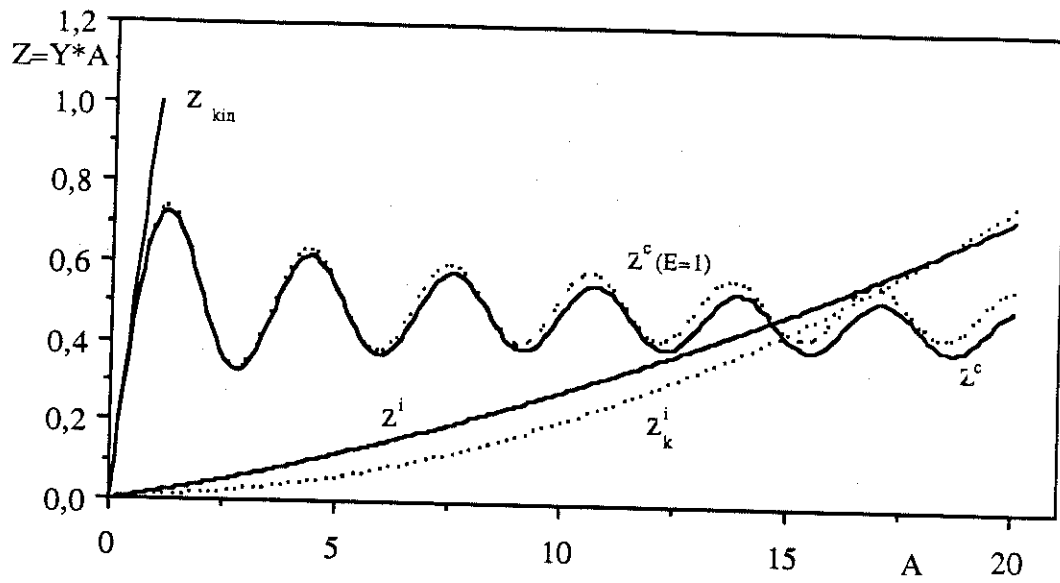
$$Z_4 = \frac{T}{\mu_e} [W_e(-\mu_e T, 2 \chi E T) - \exp(-\mu_e T) W(2 \chi E T)]$$

$$n_1 = \frac{1}{(\alpha^2 + \mu_e^2)^2} [(\mu_e^2 - \alpha^2) \cos(\alpha T) + 2 \mu_e \alpha \sin(\alpha T) \\ - (\mu_e^2 - \alpha^2) \exp(-\mu_e T) - \mu_e T (\mu_e^2 + \alpha^2) \exp(-\mu_e T)]$$

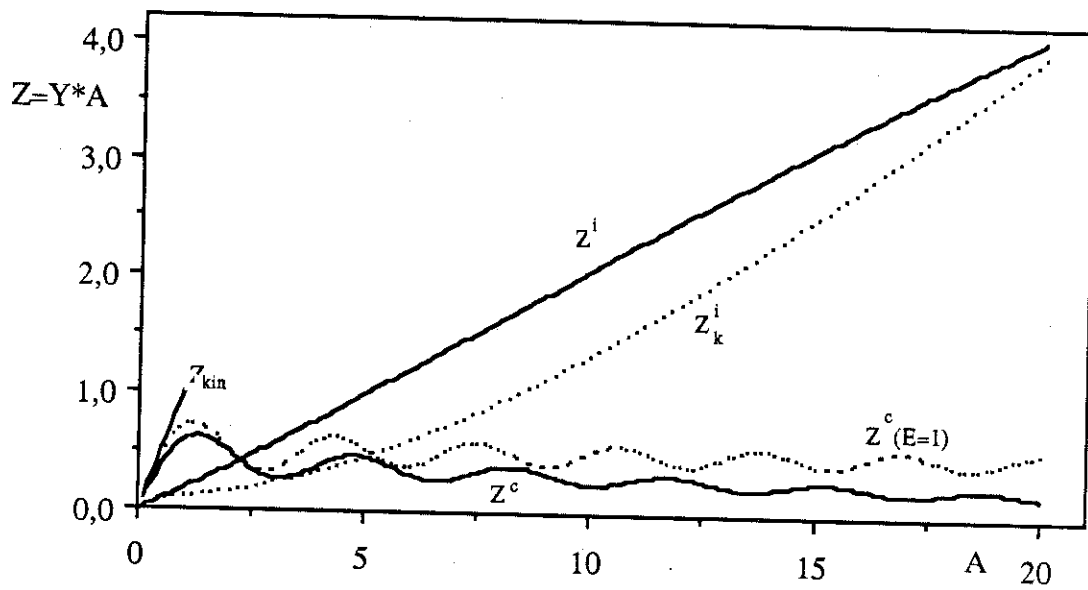
$$n_2 = \frac{1}{(\alpha^2 + \mu_e^2)^2} [(\mu_e^2 - \alpha^2) \sin(\alpha T) - 2 \mu_e \alpha \cos(\alpha T) \\ + 2 \mu_e \alpha \exp(-\mu_e T) + \alpha T (\mu_e^2 + \alpha^2) \exp(-\mu_e T)]$$

$$n_3 = \frac{1}{(2 \mu_2 - \mu_e)^2} \{ \exp(-\mu_2 T) + [(2 \mu_2 - \mu_e) T - 1] \exp(-\mu_2 T) \}$$

$$n_4 = \frac{1}{\mu_e^2} - \left(\frac{T}{\mu_e} + \frac{1}{\mu_e^2} \right) \exp(-\mu_e T) \quad (V-97)$$



(a)



(b)

Fig. V-2 : $Z = P/Q\Lambda$ en fonction de $A = T/\Lambda$:

(a) : $E = 0.99$, $\tau/\Lambda = 0.1$ (b) : $E = 0.9$, $\tau/\Lambda = 0.1$

Z^c : est la partie cohérente , $Z^c (E = 1)$ théorie purement dynamique.

Z^i : partie incohérente (V-92 et 95).

Z_K^i : partie incohérente dans l'approximation de Kato.

$Z_{kin} = A$: correspondant à la théorie cinématique.

Nous présentons dans la Fig. V-12, les différentes composantes de $Z = Y A$ en fonction de $A = T/\Lambda$ (γ est le facteur d'extinction) dans deux cas :

$$\diamond E = 0.99 \quad \tau/\Lambda = 0.1$$

$$\diamond E = 0.9 \quad \tau/\Lambda = 0.1$$

Nous remarquons que même pour un cristal presque parfait, Fig. V-12a, la partie incohérente Z^i ne peut pas être négligeable par rapport à la partie cohérente Z^c et dès que la perfection diminue, Fig. V-12b, Z^i devient beaucoup plus importante que Z^c .

L'écart entre Z^i et celle calculée à partir de l'approximation de Kato, Z_R^i , augmente avec le degré d'imperfection.

F - 2. Application au silicium à haut degré de perfection

Schneider et al. (1988) ont étudié à l'aide de rayos γ ($\lambda = 0.092 \text{ \AA}$) des plaquettes de silicium (obtenues par la méthode de Czochralski) ayant la forme de disques de 10 cm de diamètre et 1 cm d'épaisseur qui contiennent de 5.10^{17} à 5.10^{18} d'oxygène par cm^3 ; ces échantillons sont recuits sous des températures et durées différentes.

L'intensité diffractée intégrée est mesurée en fonction de l'épaisseur effective pour chaque échantillon.

Nous avons choisi un échantillon à haut degré de perfection (les oscillations de Pendellösung sont importantes). Les mesures sont prises dans la direction (220), Fig. V-13.

Sur cette figure on voit que la théorie dynamique est incapable de reproduire l'intensité diffractée intégrée mesurée P_{ex} en fonction de $A = T/\Lambda$, la puissance diffractée dynamique P_{dyn} est environ 50% inférieure à P_{ex} .

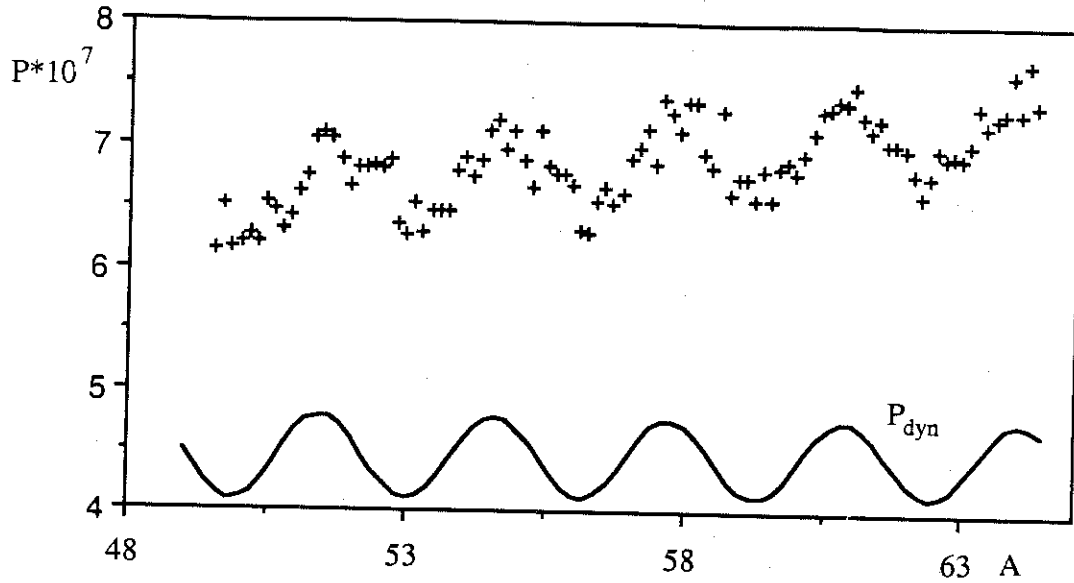


Fig. V-13 : Intensité intégrée diffractée en fonction de A pour la réflexion (220) d'un cristal de silicium préparé par Schneider et al. (1988) qui contient $7.7 \cdot 10^{17}$ atomes d'oxygène/cm³, recuit à 770° C pendant 70 h :

◇ + + + : points expérimentaux P_{ex}

◇ — : résultats de la théorie dynamique P_{dyn}

Schneider et al ont supposé que la puissance diffractée P_{sh} est la somme de l'intensité diffractée intégrée calculée pour un cristal parfait ($E = 1$) P_{dyn} et un autre terme, correspondant à la diffusion par les impuretés, proportionnel à l'épaisseur T :

$$P_{sh} = P_{dyn} + C A$$

$$P_{dyn} = P^c (E = 1)$$

(V-98)

Où C est un coefficient à optimiser par l'ajustement de P_{ex} .

Pour caractériser la précision d'affinement, ils ont pris deux paramètres :

◇ Le facteur de confiance :

$$R = 100 \left[\chi_R^2 / \sum_{i=1}^N (P_i^{obs} / \sigma_i^{obs})^2 \right]^{1/2}$$

(V-99)

où :

$$\chi_R^2 = \sum_{i=1}^N \left| \frac{P_i^{\text{obs}} - P_i^{\text{th}}}{\sigma_i^{\text{obs}}} \right|^2 \quad (\text{V-100})$$

N est le nombre des mesures,

P_i^{obs} : est la puissance observée,

P_i^{th} : la puissance calculée

σ_i^{obs} : l'écart type

"Goodness of fit" :

$$\text{GOF} = \chi_R^2 / (N - p) \quad (\text{V-101})$$

où p est le nombre des paramètres. La valeur optimum de GOF est égale à 1.

La Fig IV-14, montre le meilleur résultat d'ajustement, est correspondant à :

$$\begin{aligned} C &= 4.28(2) \cdot 10^{-9} \\ R &= 2.3\% \quad \text{GOF} = 2.4 \end{aligned} \quad (\text{V-102})$$

Maintenant, nous ajustons P_{ex} par le nouveau modèle :

$$P_{\text{BA}} = P^c + M + P^{i,0} \quad (\text{V-103})$$

où P^c , M et $P^{i,0}$ sont données respectivement par les équations (V-40, 95, 92).

On obtient :

$$\begin{aligned} E &= 0.998 & \tau/\Lambda &= 0.01 \\ R &= 2.19\% & \text{GOF} &= 2.3 \end{aligned} \quad (\text{V-104})$$

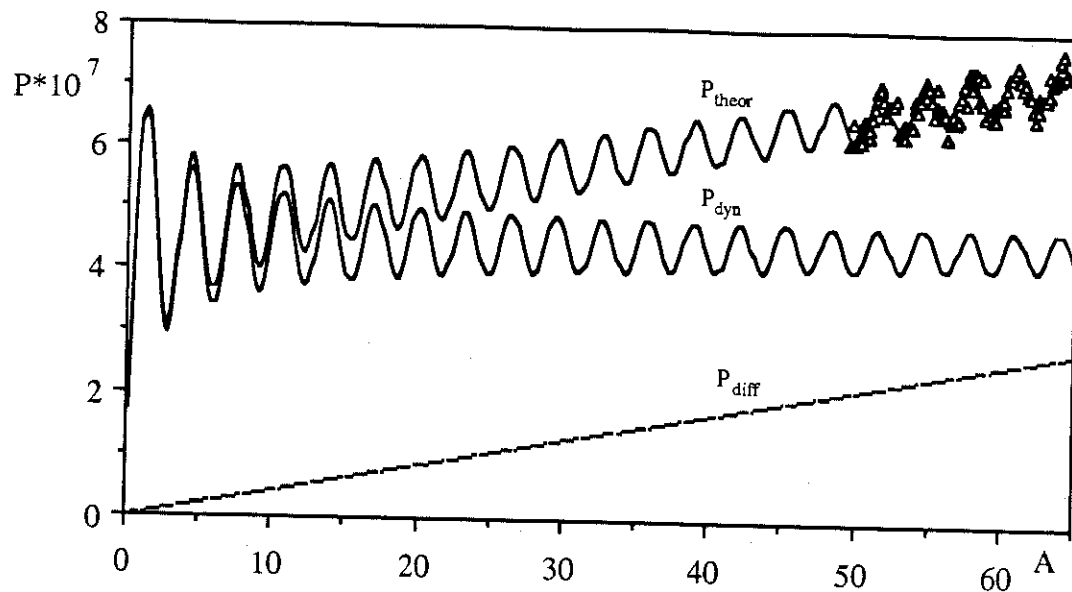


Fig. V-14 : Le résultat d'ajustement de P_{ex} par le modèle de Schneider et al. :

$$P_{theor} = P_{sh} \quad (I-98)$$

$$P_{diff} = C A, \text{ où } C = 4.28 \cdot 10^{-9}$$

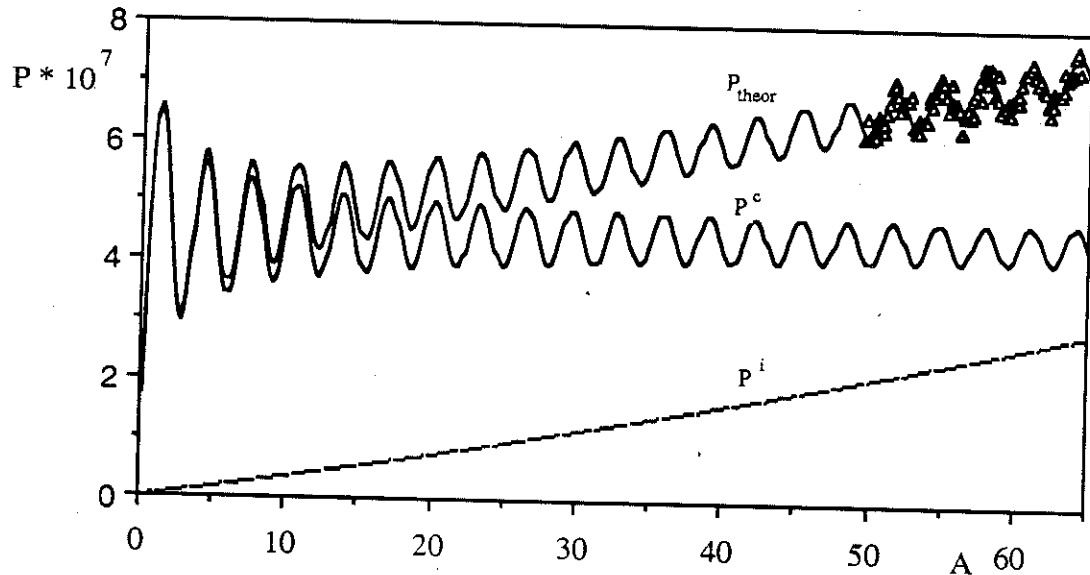


Fig. V-15 : P_{er} est ajusté par le nouveau modèle $P_{theor} = P_{BA}$:

$$E = 0.998$$

$$\tau/\Lambda = 0.01$$

Le paramètre τ/Λ est très petit, donc nous sommes très proches de la limite où $\tau/\Lambda \rightarrow 0$ (la partie mixte $M \rightarrow 0$) :

$$\begin{aligned} P_{BA} &\sim P^c + P^{i,0} \\ &= Q T E^2 W(2 E T/\Lambda) + [Q \Lambda(1 - E^2)] A \end{aligned} \quad (V-105)$$

Le résultat est présenté dans la Fig. V-15

En fait, si on utilise le résultat théorique de l'approximation de Kato P_K pour affiner P_{ex} quand $\tau/\Lambda \rightarrow 0$, on obtient :

$$P_K = Q [T E^2 W(2 E T/\Lambda) + \frac{(1 - E^2)}{2 E} \sinh(2 E A) e^{-2 E A}] \quad (V-106)$$

On trouve : $E = 0.367$

$R = 5\%$

$GOF = 11.8$

La Fig. V-16 montre que P_K reproduirait seulement la moyenne dans de P_{ex} ce cas là.

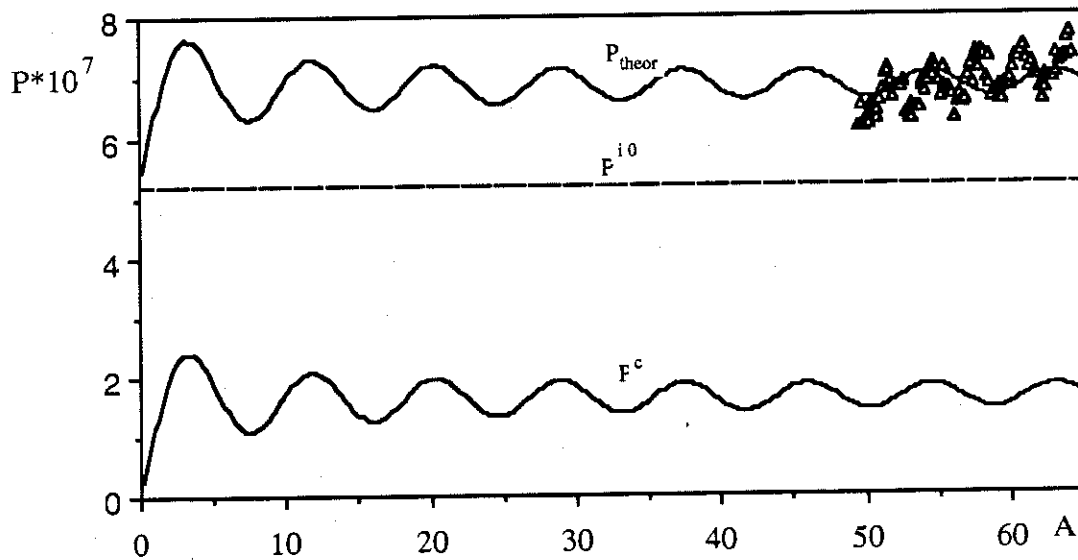


Fig. V-16 : Application de l'approximation de Kato pour la réflexion

$$/220/ \quad P_{ex} : P_{theor} = P_K$$

Si on limite E dans l'intervalle $[0.95, 1]$ (pour reproduire la même périodicité et en fixant τ/Λ sur une valeur entre 0 et 1, on obtiendra plusieurs valeurs de E et τ/Λ pour ajuster P_{ex} pour les quelles les valeurs de R et GOF sont très proches. Par contre, les valeurs obtenues à partir de nouveaux modèles (V-104) sont uniques [communication privée de Schneider].

ARTICLE

" Diffraction by a randomly distorted crystal. II : General theory "

Soumis à Acta Cryst. (1989).

Diffraction by a randomly distorted Crystal. III: General theory

Pierre Becker* and Mostafa Al Haddad†

Laboratoire de Cristallographie, associé à l' Université
J. Fourier, CNRS, 166X, 38042 Grenoble Cedex, France

Abstract

A method is presented to deal with the propagation of X rays or neutrons in a statistically distorted crystal, in the general case where both short range and long range order are present .

The main difference with Kato's formulation is concerned with the correlation length Γ of the incoherent beams. The present formulation shows that Γ is variable within the sample under study, and is of the same order of magnitude as the correlation length τ of the phase factor $\langle e^{i \underline{h} \cdot \underline{u}} \rangle$ (where $\underline{u}$ is the distortion field). This is a main difference with Kato's approach where Γ was considered as $\gg \tau$.

A detailed solution to the propagation equations is proposed and is applied to the case of silicon crystals containing a variable amount of oxygen, using measurements by SCHNEIDER et al. (1988a), using γ - ray diffraction. The present theory is in fair agreement with the observed intensities, though KATO's original prescription does not work.

I. INTRODUCTION

The present authors discussed the statistical basis of dynamical diffraction by a randomly distorted crystal in a previous paper (BECKER $\propto$ AL HADDAD, 1989a see also GUIGAY, 1989), hereafter referred to as I. Statistical theory was first introduced by KATO (1976, 1980) who proposed propagation equations for the intensities of the incident and diffracted beams,

* Permanent address : Laboratoire de Minéralogie et Cristallographie, Université Pierre $\propto$ Marie Curie Tour 16, 4 place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05, France.

† Permanent address : Atomic Energy Commission, Po Box 6091, Damascus, Syria.

derived from Takagi's equations. The object of (I) and of the present paper is to improve Kato's approach, by using a self consistent theory.

Theory: Crystals are distorted by various causes, such as interstitial atoms etc. The distortion field is denoted as $\{ \underline{u}(\underline{r}) \}$ indicating that an atom at $\underline{r}$ is displaced over a distance $\underline{u}(\underline{r})$. Let φ be the phase factor :

$$\varphi = e^{2\pi i \underline{h} \cdot \underline{u}} \quad (1)$$

$$\text{If } \langle \varphi \rangle = E \quad (2)$$

the fluctuation of the phase is defined through the equation :

$$\varphi = \langle \varphi \rangle + \delta \varphi \quad (3)$$

E is the long range order parameter (static Debye-Waller factor). Phase correlation is introduced by :

$$\begin{aligned} \langle \varphi^*(\underline{r} + \underline{t}) \varphi(\underline{r}) \rangle &= E^2 + \langle \delta \varphi^*(\underline{r} + \underline{t}) \delta \varphi(\underline{r}) \rangle \\ &= E^2 + (1 - E^2) g(\underline{t}) \end{aligned} \quad (4)$$

$g(\underline{t})$ being the pair-correlation function of the phase factor.

Two correlation lengths are needed:

$$\begin{aligned} \tau &= \int_0^\infty g(t) dt \\ \tau_2 &= \int_0^\infty g^2(t) dt \end{aligned} \quad (5)$$

As discussed in detail in I and in (BECKER & AL HADDAD, 1989a,b), we assume that :

$$\begin{aligned} \text{for } x, y > 0 \quad g(x, y) &\sim g(x) g(y) \\ g(x + y) &\sim g(x) g(y) \end{aligned} \quad (6)$$

Takagi's equations are written in the form :

$$\frac{\partial D_0}{\partial s_0} = i \chi \varphi D_h$$

$$\frac{\partial D_h}{\partial s_h} = i \chi \varphi^* D_0$$

(7)

D_0 and D_h are the amplitudes for the incident and diffracted beams, propagating in the directions s_0 and s_h respectively (Fig. 1.) $\chi = 1/\Lambda$ and Λ is the extinction length :

$$1/\Lambda = \frac{\lambda a C}{V} F$$

where λ is the wavelegth

$a = 10^{-12}\text{cm}$ for neutrons

$= 0.28 \cdot 10^{-12}\text{cm}$ for X Rays

C: polarisation factor

V: volume of the unit cell

F: structure factor

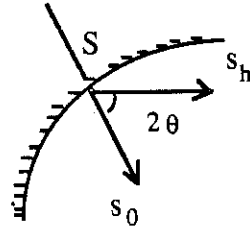


Fig. 1. Incident and diffracted directions

It will be assumed that the crystal is centrosymmetric and non absorbing, and that its dimension $\ell \gg \tau, \Lambda$.

The case of a spherical incident wave (a point source, emitting in direction s_0) of unit intensity will be discussed in this paper :

$$D_0^0 = \delta(s_h)$$

(8)

Equations (7) can be transformed into :

$$\begin{aligned} D_0(s_0, s_h) &= \delta(s_h) + i\chi \int_0^{s_0} D_h(\xi, s_h) \varphi(\xi, s_h) d\xi \\ D_h(s_0, s_h) &= i\chi \int_0^{s_h} \varphi^*(s_0, \eta) D_0(s_0, \eta) d\eta \end{aligned} \quad (9)$$

The previous study, (I) was devoted to the special case where $E = 0$ (no significant long range order). We wish, in the present paper, to extend the theory to the case where E can take any value between 0 and 1. Notice that $E = 1$ corresponds to the perfect crystal.

It is convenient to decompose D_0 and D_h in the following way :

$$\begin{aligned} D_0 &= \langle D_0 \rangle + \delta D_0 \\ D_h &= \langle D_h \rangle + \delta D_h \end{aligned} \quad (10)$$

where $\langle D_0 \rangle$ and $\langle D_h \rangle$ are ensemble averages of the wave amplitudes, and $\delta D_0, \delta D_h$ are amplitude fluctuations. According to (10), the intensities are :

$$\begin{aligned} I_0 &= \langle |D_0|^2 \rangle = \langle |\langle D_0 \rangle|^2 + \langle |\delta D_0|^2 \rangle \\ &= I_0^c + I_0^i \\ I_h &= \langle |D_h|^2 \rangle = \langle |\langle D_h \rangle|^2 + \langle |\delta D_h|^2 \rangle \\ &= I_h^c + I_h^i \end{aligned} \quad (11)$$

Following familiar concepts in optics, $|\langle D_{0,h} \rangle|^2$ is the coherent part of the beam and $\langle |\delta D_{0,h}|^2 \rangle$ the incoherent part.

E plays the role of a static Debye-Waller factor. In analogy with time dependent fluctuations (vibrations), we expect the coherent intensities to be proportional to E^2 , the incoherent ones to be proportional to $(1 - E^2)$. In a perfect crystal, the beams are purely coherent (AL HADDAD and BECKER 1989). In a mosaic crystal ($E = 0$, see (I)) the beams are totally incoherent.

II. THE COHERENT WAVE

Following the discussion by KATO (1980), we start by studying the propagation mechanism for the coherent waves. Taking the ensemble average of (7), we get :

$$\begin{aligned}\frac{\partial \langle D_0 \rangle}{\partial s_0} &= i \chi \langle \varphi D_h \rangle \\ &= i \chi E \langle D_h \rangle + i \chi \langle \delta \varphi D_h \rangle\end{aligned}\quad (12)$$

Inserting (9) in (12) :

$$\begin{aligned}i \chi \langle \delta \varphi D_h \rangle &= -\chi^2 E \int_0^{s_h} \langle \delta \varphi(s_0, s_h) D_0(s_0, \eta) \rangle d\eta \\ &\quad - \chi^2 \int_0^{s_h} \langle D_0(s_0, \eta) \delta \varphi(s_0, s_h) \delta \varphi^*(s_0, \eta) \rangle d\eta\end{aligned}\quad (13)$$

The values of $D_0(s_0, \eta)$ depends on scattering events at preceeding positions (ξ, η) : only nearest neighbour phase correlation is involved and so we neglect the first term in (13).

We then assume $\langle D_0 \rangle$ and $\langle D_h \rangle$ to have negligible variations on a distance τ , which allows for the following simplification :

$$i \chi \langle \delta \varphi D_h \rangle = -\chi^2 (1 - E^2) \tau \langle D_0 \rangle \quad (14)$$

We get the propagation equations for the coherent waves in the form :

$$\begin{aligned}\frac{\partial \langle D_0 \rangle}{\partial s_0} &= i \chi E \langle D_h \rangle - \chi^2 (1 - E^2) \tau \langle D_0 \rangle \\ \frac{\partial \langle D_h \rangle}{\partial s_h} &= i \chi E \langle D_0 \rangle - \chi^2 (1 - E^2) \tau \langle D_h \rangle\end{aligned}\quad (15)$$

These statistical equations differ from the original Takagi's equations by two effects. In the first place, χ is replaced by χE : the effective extinction length becomes Λ/E . The structure factor is damped by E . In the second place, an effective absorption factor $[2 \chi^2 (1 - E^2) \tau]$ occurs for the propagation of the coherent intensities. Energy is lost by the coherent component of the beam during its propagation through the crystal: this lost energy must appear in the form of incoherent beams (Fig. 2). This is the basic mechanism of

conversion between coherent and incoherent intensities. At the entrance into the sample, the beam is essentially coherent and through the imperfect phase -correlation at various points where scattering occurs, the incoherent beam is gradually created.

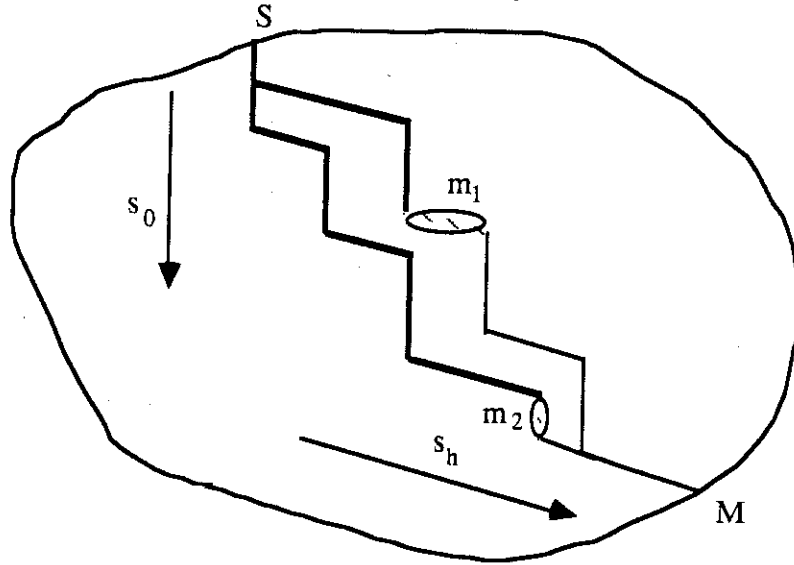


Fig. 2. Three possibilities for transformation of coherent into incoherent process at m_1 or m_2

The condition of validity of (14) and then (15) is :

$$\tau \ll \frac{\Lambda}{E} \quad (16)$$

The smaller E , the less stringent this condition is.

To get an explicit solution to (15), boundary conditions have to be discussed for $\langle D_0 \rangle$ and $\langle D_h \rangle$. Equations (15) are only valid for $s_0, s_h \gg \tau$.

Let us consider a distance ϵ such that $\tau < \epsilon \ll s_0, s_h$.

The amplitude of the incoherent beam at $(s, 0)$ is weakened by scattering events that have taken place before. The effective incident amplitude $\langle D_0^0 \rangle$ thus obeys the equation:

$$\frac{\partial \langle D_0^0 \rangle}{\partial s_0} = -\chi^2 (1 - E^2) \tau \langle D_0^0 \rangle$$

the solution of which is:

$$\langle D_0^0 \rangle = \delta(s_h) e^{-\chi^2(1-E^2)\tau s_0} \quad (17)$$

$\langle D_h(s_0, \epsilon) \rangle$ is such that:

$$\frac{\partial \langle D_h \rangle}{\partial s_h} = i\chi E \langle D_0^0 \rangle$$

so that, after a single scattering

$$\begin{aligned} \langle D_h(s_0, \epsilon) \rangle &= i\chi E e^{-\chi^2(1-E^2)\tau s_0} \int_0^\epsilon \delta(\eta) d\eta \\ &= i\chi E e^{-\chi^2(1-E^2)\tau s_0} \end{aligned} \quad (18)$$

We can thus adopt the following boundary values for (15):

$$\begin{aligned} \langle D_0(0, s_h) \rangle &= 0 \\ \langle D_h(s_0, 0) \rangle &= i\chi E e^{-\chi^2(1-E^2)\tau s_0} \end{aligned} \quad (19)$$

where only the part of the incident beam which is involved in the scattering is considered.

Let us define

$$\mu_e = 2\chi^2(1-E^2)\tau \quad (20)$$

as an effective absorption. The solution can be found (BECKER, 1977 - KATO, 1980) :

$$\begin{aligned} \langle D_h \rangle &= i\chi E \mathcal{J}_0 \left[2\chi E \sqrt{s_0 s_h} \right] e^{-\frac{1}{2}\mu_e(s_0 + s_h)} \\ \langle D_0 \rangle &= i\chi E \sqrt{\frac{s_0}{s_h}} \mathcal{J}_1 \left[2\chi E \sqrt{s_0 s_h} \right] e^{-\frac{1}{2}\mu_e(s_0 + s_h)} \end{aligned} \quad (21)$$

$\mathcal{J}_0$ and $\mathcal{J}_1$ are Bessel functions.

The oscillatory nature of the coherent amplitudes is maintained, Λ being replaced by Λ/E , and the beam being damped by the absorption μ_e .

Finally, we notice that

$$\frac{\partial I_0^c}{\partial s_0} + \frac{\partial I_h^c}{\partial s_h} = -\mu_e [I_0^c + I_h^c] \quad (22)$$

This equation gives the rate at which incoherent energy is created from the coherent beam.

III. THE INCOHERENT INTENSITY. KATO'S APPROXIMATION

By subtracting $\frac{\partial I_0^c}{\partial s_0}$ and $\frac{\partial I_h^c}{\partial s_h}$ from $\frac{\partial I_0}{\partial s_0}$ and $\frac{\partial I_h}{\partial s_h}$ respectively, one gets the basic propagation equations for the incoherent intensities I_0^i and I_h^i :

$$\begin{aligned} \frac{\partial I_0^i}{\partial s_0} &= \mu_e I_0^c + i\chi E \{ \langle \delta D_0^* \delta D_h \rangle - \langle \delta D_0 \delta D_h^* \rangle \} \\ &\quad + i\chi \{ \langle D_0^* \delta \varphi D_h \rangle - \langle D_0 \delta \varphi^* D_h^* \rangle \} \\ \frac{\partial I_h^i}{\partial s_h} &= \mu_e I_h^c + i\chi E \{ \langle \delta D_0 \delta D_h^* \rangle - \langle \delta D_0^* \delta D_h \rangle \} \\ &\quad + i\chi \{ \langle D_0 \delta \varphi^* D_h^* \rangle - \langle D_0^* \delta \varphi D_h \rangle \} \end{aligned} \quad (23)$$

Insertion of the expansion (9) into the brackets allows for phase and amplitude correlations, by a method similar to that used in I.

$$\begin{aligned} i\chi E \langle \delta D_0^* \delta D_h \rangle &= \chi^2 E \int_0^{s_0} d\xi \langle D_h^* (\xi, s_h) \varphi^* (\xi, s_h) \delta D_h (s_0, s_h) \rangle \\ &\quad - \chi^2 E \int_0^{s_h} d\eta \langle \delta D_0^* (s_0, s_h) \varphi^* (s_0, \eta) D_0 (s_0, \eta) \rangle \end{aligned} \quad (24)$$

Stopping the expansion at second order in χ , and defining the transverse amplitude correlation functions:

$$\begin{aligned}
A(s_0, s_h) &= \int_0^{s_h} d\eta \langle \delta D_0^*(s_0, s_h) \delta D_0(s_0, \eta) \rangle \\
B(s_0, s_h) &= \int_0^{s_0} d\xi \langle \delta D_h^*(s_0, s_h) \delta D_h(\xi, s_h) \rangle
\end{aligned} \tag{25}$$

we get

$$\begin{aligned}
i\chi E \{ \langle \delta D_0^* \delta D_h \rangle - \langle \delta D_0 \delta D_h^* \rangle \} &= \\
2\chi^2 E^2 [B - A] &= \\
= 2\chi^2 \left\{ \begin{array}{c} \text{Diagram 1: A rectangle with a solid left vertical line, a solid bottom horizontal line, and a dashed right vertical line. A double-headed arrow is on the top horizontal line. A solid square is at the bottom-left corner, and an open square is at the bottom-right corner.} \\ \text{Diagram 2: A rectangle with a dashed top horizontal line, a solid bottom horizontal line, and a dashed right vertical line. A double-headed arrow is on the left vertical line. A solid square is at the bottom-right corner, and an open square is at the top-right corner.} \end{array} \right\}
\end{aligned}$$

where $\blacksquare : \langle \varphi \rangle$

$\square : \langle \varphi^* \rangle$ (26)

(For simplicity reasons we assume A and B to be real)

Similarly, we write

$$\begin{aligned}
i\chi \langle D_0^* \delta \varphi D_h \rangle &= \chi^2 \int_0^{s_0} d\xi \langle D_h^*(\xi, s_h) D_h(s_0, s_h) \delta \varphi(s_0, s_h) \varphi^*(\xi, s_h) \rangle \\
&\quad - \chi^2 \int_0^{s_h} d\eta \langle D_0^*(s_0, s_h) D_0(s_0, \eta) \delta \varphi(s_0, s_h) \varphi^*(s_0, \eta) \rangle
\end{aligned} \tag{27}$$

If the expansion is stopped at second order in χ :

$$\begin{aligned}
i \chi \langle D_0^* \delta \varphi D_h \rangle &= \chi^2 (1 - E^2) \int_0^{s_0} d\xi g(s_0 - \xi) \langle D_h^*(\xi, s_h) D_h(s_0, s_h) \rangle \\
&= \chi^2 (1 - E^2) \int_0^{s_h} d\eta g(s_h - \eta) \langle D_0^*(s_0, s_h) D_0(s_0, \eta) \rangle \\
&= \chi^2 (1 - E^2) \tau [I_h^c - I_0^c] + \chi^2 (1 - E^2) [B' - A'] \quad (28)
\end{aligned}$$

where A' and B' are mixed phase and amplitude correlation functions (defined in I) :

$$\begin{aligned}
A'(s_0, s_h) &= \int_0^{s_h} d\eta g(s_h - \eta) \langle \delta D_0^*(s_0, s_h) \delta D_0(s_0, \eta) \rangle \\
B'(s_0, s_h) &= \int_0^{s_0} d\xi g(s_0 - \xi) \langle \delta D_h^*(s_0, s_h) \delta D_h(\xi, s_h) \rangle \quad (29)
\end{aligned}$$

Thus, it is possible to write :

$$\begin{aligned}
\mu_e I_0^c + i \chi \{ \langle D_0^* \delta \varphi D_h \rangle - \langle D_0 \delta \varphi^* D_h^* \rangle \} &= \\
\mu_e I_h^c + 2 \chi^2 (1 - E^2) [B' - A'] &=
\end{aligned}$$

$$\mu_e I_h^c + 2 \chi^2 \left(\text{Diagram 1} \right) - 2 \chi^2 \left(\text{Diagram 2} \right) \quad (30)$$

If we consider the conversions from coherent beams to the incoherent intensity, we observe that incoherence can only occur through a partial phase coupling between two different waves. From (30) we see that the first diagram is compatible with such a process. But this is not true for the second diagrams where the correlation involves two points on the same optical path. The diagrams show clearly the intensity at (s_0, s_h) as resulting from the coupled amplitudes at preceding positions, either along the incident or diffracted direction.

Summing up the previous results, one gets :

$$\begin{aligned}\frac{\partial I_0^i}{\partial s_0} &= \mu_e I_h^c + 2\chi^2 E^2 [B - A] + 2\chi^2 (1 - E^2) [B' - A'] \\ \frac{\partial I_h^i}{\partial s_h} &= \mu_e I_0^c + 2\chi^2 E^2 [A - B] + 2\chi^2 (1 - E^2) [A' - B']\end{aligned}\quad (31)$$

I_h^c is the source for I_0^i , I_0^c the source for I_h^i . We also observe that (31) reduces to (I. 20) when $E \rightarrow 0$.

KATO's approximation. : KATO (1980) made the following intuitive simplification. He defined Γ as the common width of $\langle \delta D^{*,0}(s_0, s_h) \delta D_0(s_0, \eta) \rangle$ and $\langle \delta D^{*,h}(s_0, s_h) \delta D_h(\xi, s_h) \rangle$. Γ was supposed to be constant. Assuming $\Gamma \ll s_0, s_h$, one gets :

$$\begin{aligned}A(s_0, s_h) &\sim \Gamma I_0^i(s_0, s_h) \\ B(s_0, s_h) &\sim \Gamma I_h^i(s_0, s_h)\end{aligned}\quad (32)$$

In principle, Γ is derivable from the theory, but KATO proposed an order of magnitude:

$$\Gamma \sim \frac{\Lambda}{E} \quad (33)$$

$$\text{and thus} \quad \Gamma \gg \tau. \quad (34)$$

This last inequality leads to the following simplification for A' and B' (already discussed in I).

$$\begin{aligned}A'(s_0, s_h) &\sim \tau I_0^i(s_0, s_h) \\ B'(s_0, s_h) &\sim \tau I_h^i(s_0, s_h)\end{aligned}\quad (35)$$

If the effective correlation length τ_e :

$$\tau_e = (1 - E^2)\tau + E^2\Gamma \quad (35)$$

is introduced, the propagation equations reduce to:

$$\begin{aligned}\frac{\partial I_0^i}{\partial s_0} &= \mu_e I_h^c + 2 \chi^2 \tau_e [I_h^i - I_0^i] \\ \frac{\partial I_h^i}{\partial s_h} &= \mu_e I_0^c + 2 \chi^2 \tau_e [I_0^i - I_h^i]\end{aligned}\quad (37)$$

A solution can be obtained to those equations (KATO, 1980). The present authors proposed some improvements to that solution (AL HADDAD $\propto$ BECKER, 1988). Though mathematically complex, it is feasible to use such a theory for refining extinction, as long as E and τ_e are modeled in terms of their h - dependence (BECKER $\propto$ AL HADDAD 1988).

Despite its simplicity, KATO's approximation seems questionable. This point was the object of paper I, in the case where E is very small. We were able to show that, for $E \ll 1$,

$$A' = \tau_2 I_0^i \quad B' = \tau_2 I_h^i \quad (I.32)$$

This modification from (35) means that (33) is not valid for small E . We can infer from (I.32) that, for small E , Γ is of the order of τ .

Furthermore, it is not obvious that Γ be a constant, nor be the same for A and B .

These questions are related to the practical difficulties encountered when trying to use (37) and its solution on experimental data. It is for those reasons that the theory will be extended further, by an expansion of $\frac{\partial I_0^i}{\partial s_0}$ and $\frac{\partial I_h^i}{\partial s_h}$ of equations (23) to fourth order in χ , in order to find self-consistent equations satisfied by A, B, A', B' .

IV. IMPROVED THEORY FOR THE INCOHERENT INTENSITIES

The expansion of $\frac{\partial I_0^i}{\partial s_0}$ (or $\frac{\partial I_h^i}{\partial s_h}$) to fourth order in χ can be represented by the diagrams shown in table I and II :

$$\frac{\partial I_0^i}{\partial s_0} = \chi^4 [X + Y] + \mu_e I_h^c \quad (38)$$

Table I: expansion of X in terms of independent scattering schemes. $X = \sum x_i - \sum x'_i$

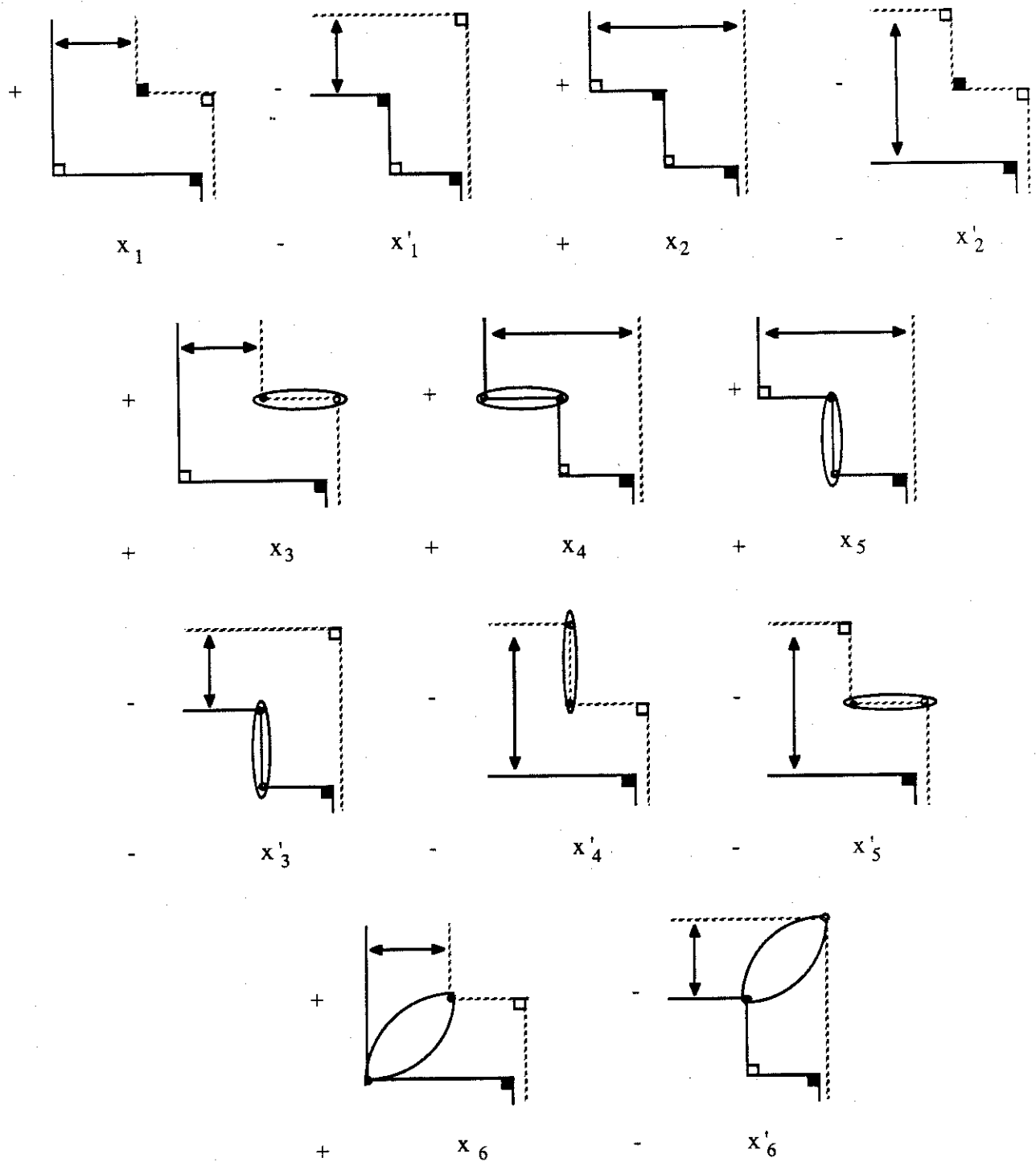
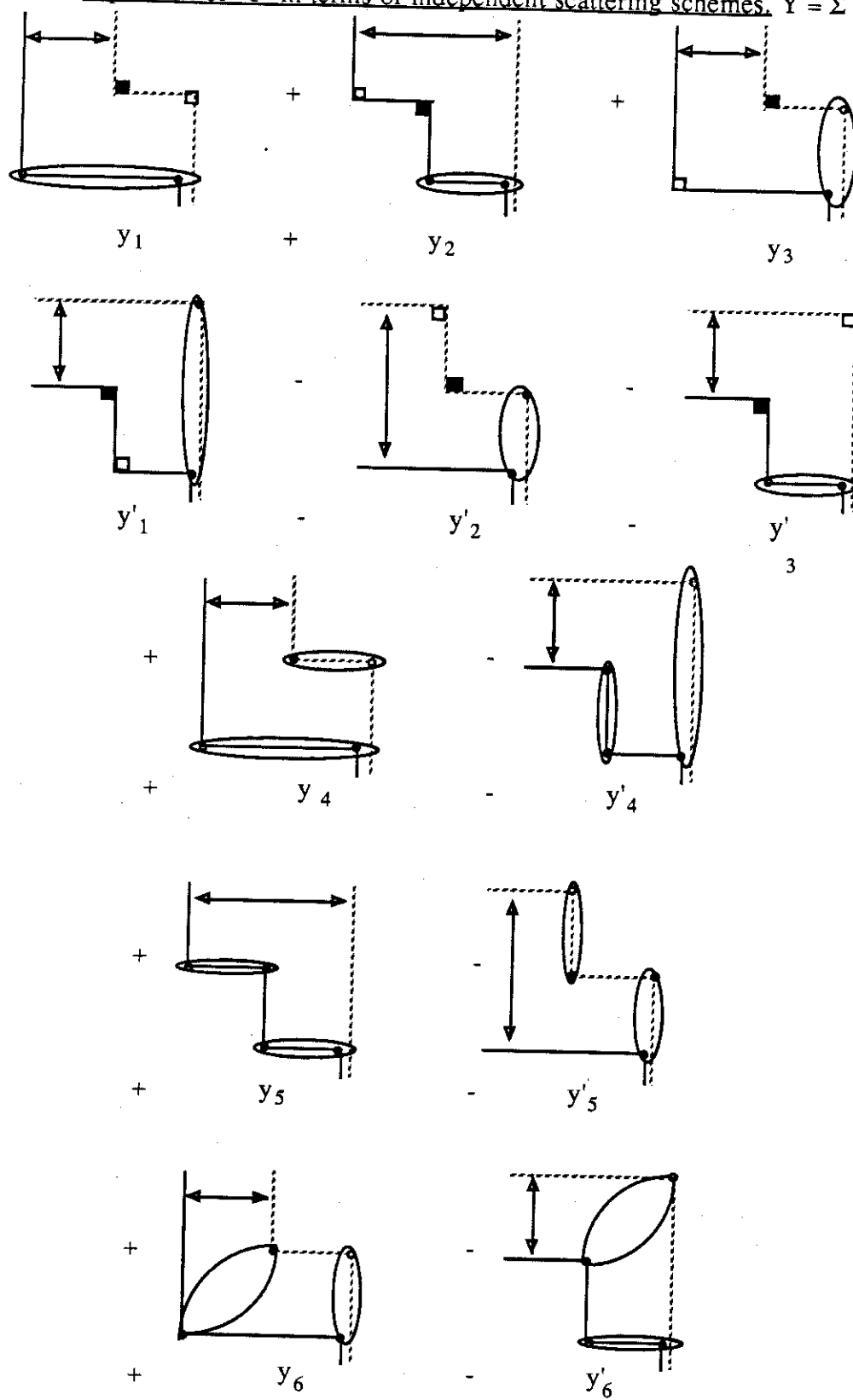


Table II: expansion of Y in terms of independent scattering schemes. $Y = \Sigma (y_i - y'_i)$



Some of these terms represent conversion of coherent into incoherent intensity. Since a coherent beam can only become incoherent by phase coupling between two different waves, the diagrams that correspond to this coherent-incoherent conversion are x_6, x'_6, y_6, y'_6 .

a. We can write :

$$\begin{aligned} x_1 &= E^4 \int_0^{s_h} d\eta \int_0^{s_0} d\xi' \int_0^{s_h} d\eta' < \delta D_0^* (\xi', \eta') \delta D_0 (s_0, \eta) > \\ &= E^4 \int_0^{s_h} d\eta \int_0^{s_0} d\xi' \int_0^{s_h} d\eta' < \delta D_0^* (\xi', \eta') \delta D_0 (\xi', \eta) > \end{aligned}$$

owing to the long correlation of the amplitudes in the longitudinal direction (see appendix of I).

Finally we get :

$$x_1 = 2 E^4 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta A (\xi, \eta) \quad (39)$$

and similarly

$$\begin{aligned} x'_1 &= 2 E^4 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta B (\xi, \eta) \\ x_2 &= E^4 \int_0^{s_h} d\eta \int_0^\eta d\eta' \int_0^{s_0} d\xi' < \delta D_0^* (\xi', s_h) \delta D_0 (\xi', \eta') > \\ &= E^4 \int_0^{s_0} d\xi' \int_0^{s_h} d\eta' [s_h - \eta'] < \delta D_0^* (\xi', s_h) \delta D_0 (\xi', \eta') > \end{aligned}$$

x_2 is of the order of: $\int_0^{s_0} \Gamma A (\xi', s_h) d\xi'$ where Γ is the width of the amplitude correlation function. We expect Γ to be smaller than Λ . If we assume

$s_h \gg \Lambda$, we get that

$$x_2/x_1 < \Lambda/s_h \ll 1$$

therefore, we can neglect x_2 and x'_2 .

$$\begin{aligned}
b. \quad x_3 &= E^2 (1 - E^2) \int_0^{s_h} d\eta \int_0^{s_0} d\xi' \int_0^{s_h} d\eta' g(s_h - \eta) < \delta D_0^*(\xi', \eta') \delta D_0(\xi', \eta) > \\
&= E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_0} d\xi [A(\xi, s_h) + A'(\xi, s_h)] \quad (40)
\end{aligned}$$

where we used the approximation:

$$\begin{aligned}
g(s_h - \eta') &\sim g(s_h - \eta) g(\eta - \eta') \quad \text{if } \eta > \eta' \\
x_4 &= E^2 (1 - E^2) \int_0^{s_h} d\eta \int_0^\eta d\eta' \int_0^{s_0} d\xi' g(\eta - \eta') < \delta D_0^*(\xi', s_h) \delta D_0(\xi', \eta') > \\
&\# E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_0} d\xi [A(\xi, s_h) - A'(\xi, s_h)] \quad (41)
\end{aligned}$$

becomes exact if we assume $g(\xi) = e^{-\xi/\tau}$.

As a result

$$x_3 + x_4 \sim 2 E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_0} d\xi A(\xi, s_h) \quad (42)$$

We now consider x_5 :

$$\begin{aligned}
x_5 &= E^2 (1 - E^2) \int_0^{s_h} d\eta \int_0^\eta d\eta' \int_0^{s_0} d\xi' g(s_0 - \xi') < \delta D_0^*(\xi', s_h) \delta D_0(\xi', \eta') > \\
&\sim E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_h} d\eta' [s_h - \eta'] < \delta D_0^*(s_0, s_h) \delta D_0(s_0, \eta') > \\
&\sim E^2 (1 - E^2) \tau \Gamma A \ll (x_3 + x_4)
\end{aligned}$$

We can then neglect x_5 and x'_5 . This latter simplification allows one to say that

$$E^2 [B - A] = \chi^2 X \quad (43)$$

Obviously :

$$x'_3 + x'_4 = 2 E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_h} d\eta B(s_0, \eta) \quad (44).$$

c. Finally we calculate x_6 and x'_6 .

$$\begin{aligned} x_6 &= E^2 (1 - E^2) \int_0^{s_h} d\eta \int_0^{s_0} d\xi' \int_0^{s_h} d\eta' g(\eta - \eta') < D_0^*(\xi', \eta') D_0(\xi', \eta) > \\ x_6 &= 2 E^2 (1 - E^2) \tau^2 \int_0^{s_h} I_0^c(s_0, \eta) d\eta \\ &\quad + 2 E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_h} d\eta A'(s_0, \eta) \\ x'_6 &= 2 E^2 (1 - E^2) \tau^2 \int_0^{s_0} I_h^c(\xi, s_h) d\xi \\ &\quad + 2 E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_0} B'(\xi, s_h) d\xi \end{aligned} \quad (45)$$

In (45), the contribution from the coherent source is apparent. We see finally that

$$\begin{aligned} \frac{1}{\chi^2} \{ B - A \} &= 2 E^2 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta [A - B](\xi, \eta) \\ &\quad + 2 (1 - E^2) \tau \left\{ \int_0^{s_0} d\xi A(\xi, s_h) - \int_0^{s_h} d\eta B(s_0, \eta) \right\} \\ &\quad + 2 (1 - E^2) \tau \left\{ \int_0^{s_h} d\eta A'(s_0, \eta) - \int_0^{s_0} d\xi B'(\xi, s_h) \right\} \\ &\quad + 2 (1 - E^2) \tau^2 \left\{ \int_0^{s_h} d\eta I_0^c(s_0, \eta) - \int_0^{s_0} d\xi I_h^c(\xi, s_h) \right\} \end{aligned} \quad (46)$$

d. We shall now proceed in a similar way for Y. From table II, we can write

$$(1 - E^2) [B' - A'] = \chi^2 Y \quad (47)$$

It is easily shown that :

$$\begin{aligned}
 y_1 + y_2 &= x_3 + x_4 = \\
 &2 E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_0} d\xi A(\xi, s_h) \\
 y'_1 + y'_2 &= x'_3 + x'_4 = \\
 &2 E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_h} d\eta B(s_0, \eta)
 \end{aligned} \tag{48}$$

$$\begin{aligned}
 y_3 &= 2 E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_h} d\eta A(s_0, \eta) \\
 y'_3 &= 2 E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_0} d\xi B(\xi, s_h)
 \end{aligned} \tag{49}$$

e. We now calculate y_4 and y'_4 .

$$y^4 = (1 - E^2)^2 \int_0^{s_0} d\xi' \int_0^{s_h} d\eta \int_0^{s_h} d\eta' g(s_h - \eta) g(s_h - \eta') < \delta D^*_0(\xi', \eta') \delta D_0(\xi', \eta) >$$

Again we make the assumption:

$$g(s_h - \eta') \sim g(s_h - \eta) g(\eta - \eta') \quad \text{for } \eta > \eta'$$

and we get :

$$y_4 = 2 (1 - E^2)^2 \tau_2 \int_0^{s_0} d\xi A'(\xi, s_h)$$

and

$$y'_4 = 2 (1 - E^2)^2 \tau_2 \int_0^{s_h} d\eta B'(s_0, \eta) \tag{50}$$

f. It has been shown in I that y_5 and y'_5 are negligible. The argument, which was developed for $E \rightarrow 0$, holds for any value of E .

g. We finally consider y_6 and y'_6 :

$$\begin{aligned}
y_6 &= 2(1 - E^2)^2 \tau \tau_2 \int_0^{s_h} d\eta I_0^c(s_0, \eta) \\
&\quad + 2(1 - E^2)^2 \tau_2 \int_0^{s_h} d\eta A'(s_0, \eta) \\
y'_6 &= 2(1 - E^2)^2 \tau \tau_2 \int_0^{s_0} d\xi I_h^c(\xi, s_h) \\
&\quad + 2(1 - E^2)^2 \tau_2 \int_0^{s_0} d\xi B'(\xi, s_h)
\end{aligned} \tag{51}$$

(51) are obtained in the same way as (45).

h. We summarize the previous results and obtain:

$$\begin{aligned}
\frac{1}{\chi^2} \{ B' - A' \} &= 2E^2 \tau \int_0^{s_0} d\xi [A - B](\xi, s_h) \\
&\quad + 2E^2 \tau \int_0^{s_h} d\eta [A - B](s_0, \eta) \\
&\quad + 2(1 - E^2) \tau_2 \int_0^{s_0} d\xi (A' - B')(\xi, s_h) \\
&\quad + 2(1 - E^2) \tau_2 \int_0^{s_h} d\eta (A' - B')(s_0, \eta) \\
&\quad + 2(1 - E^2) \tau \tau_2 \left\{ \int_0^{s_h} d\eta I_0^c(s_0, \eta) - \int_0^{s_0} d\xi I_h^c(\xi, s_h) \right\} \tag{52}
\end{aligned}$$

V. MODIFIED PROPAGATION EQUATIONS FOR THE INCOHERENT BEAMS

Equations (31),(46),(52) are in fact very difficult to solve directly. Some simplifications are needed in order to get practical propagation equations for the incoherent intensities.

A. We shall first assume that $E^2 s_0 \gg (1 - E^2) \tau$, i. e. there is significant long range order.

Let us discuss the relative magnitude of the difficult diagrams contributing to A and B .

$$x_3 + x_4 = 2 E^2 (1 - E^2) \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta A(\xi, \eta) g(s_h - \eta)$$

If $\tau \ll s_0, s_h$, we may write :

$$x_3 + x_4 \ll x_1 \quad x'_3 + x'_4 \ll x'_1$$

In any case,

$$\frac{x_3 + x_4}{x_2} \sim \frac{(1 - E^2) \tau}{E^2 \tau}$$

If this ratio is not large compared to 1, which means that E is not too small, it is legitimate to neglect x_3 and x_4 in addition to x_2 .

Similarly the term (in x_6) :

$$\begin{aligned} 2 E^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_h} d\eta A'(s_0, \eta) &\sim 2 E^2 (1 - E^2) \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta g(s_0 - \xi) A'(\xi, \eta) \\ &< 2 E^2 (1 - E^2) \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta g(s_0 - \xi) A(\xi, \eta) \ll x_1 \end{aligned}$$

With those simplifications, we get :

$$\begin{aligned} [B - A] &= 2 \chi^2 E^2 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta [A - B](\xi, \eta) \\ &+ 2 \chi^2 (1 - E^2) \tau^2 \left[\int_0^{s_h} d\eta I_0^c(s_0, \eta) - \int_0^{s_0} d\xi I_h^c(\xi, s_h) \right] \end{aligned} \quad (53)$$

We define the propagator $\hat{L}$ by the equation :

$$\hat{L} f = 2 \chi^2 E^2 \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta f(\xi, \eta) \quad (54)$$

F is the source function :

$$F = 2\chi^2(1-E^2)\tau^2 \left[\int_0^{s_h} d\eta I_0^c(s_0, \eta) - \int_0^{s_0} d\xi I_h^c(\xi, s_h) \right] \quad (55)$$

uniquely defined by the coherent beam. Equation (53) can be written as :

$$[1 + \hat{L}](B - A) = F \quad (56)$$

the solution of which is :

$$\begin{aligned} (B - A) &= [1 + \hat{L}]^{-1} F \\ &= \sum_{n=0}^{\infty} (-1)^n \hat{L}^n(F) \end{aligned} \quad (57)$$

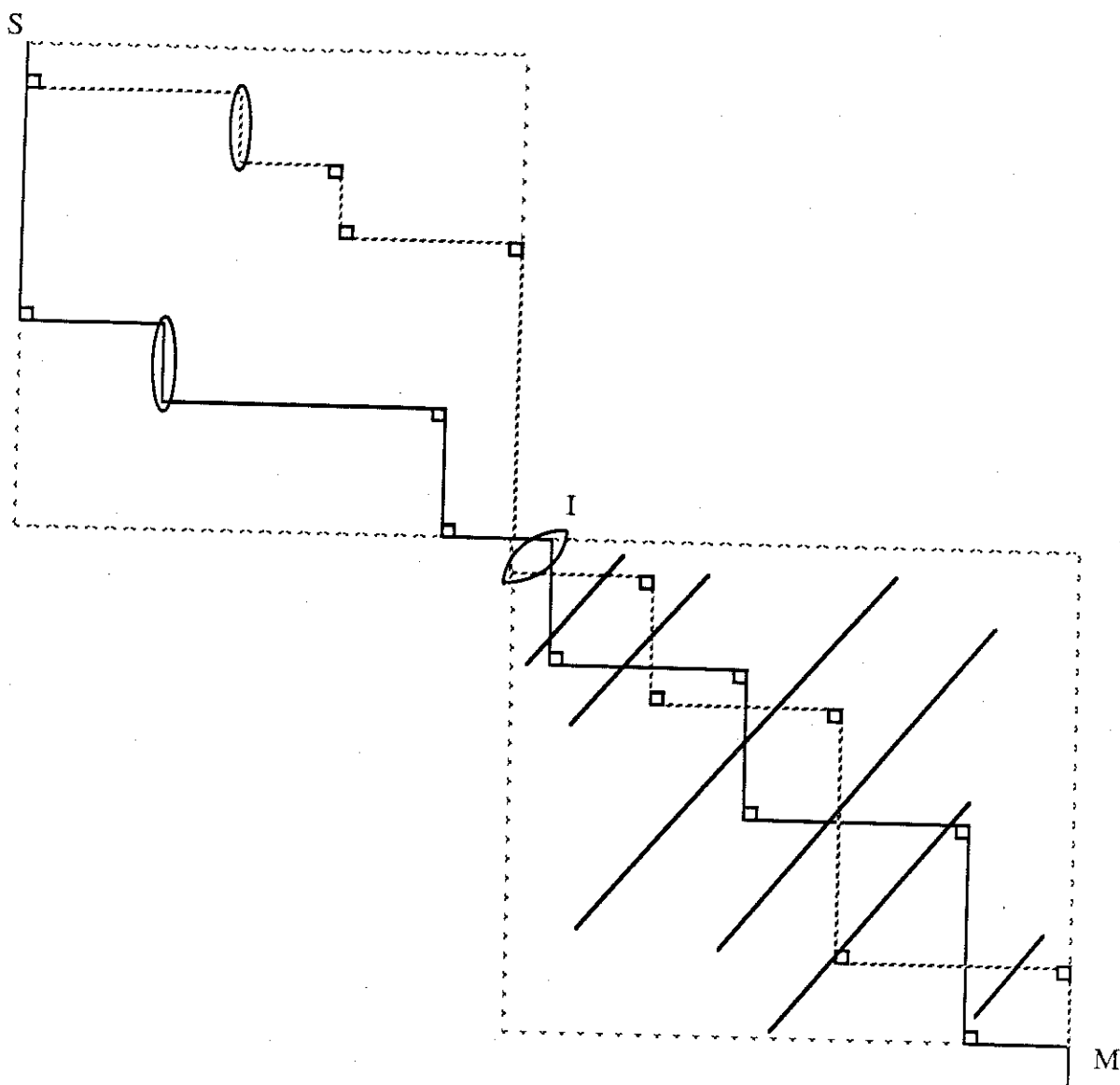


Fig 3. Diagram showing the physical origin of the term $(B - A)$

The physical meaning of (57) is depicted on Fig 3. Let us consider two routes originating at S and joining at $M (s_0, s_h)$. The two routes propagate according to (15) from S to the neighbourhood of I where a phase partial correlation generates incoherent intensity. From I to M the two routes propagate without any correlation between them. This mechanism is of course not unique, as seen from (46), but it is the leading contribution because, from I to M , the two routes can cover the whole of the shaded domain. All other contributions would restrict the domain of one route with respect to the other.

B. We now turn our attention to (52) and table II. It is easily seen that :

$$B' - A' = \tau_2 [I_h^i - I_0^i] + 2\chi^2 E^2 (\tau - \tau_2) \left\{ \int_0^{s_0} [A - B](\xi, s_h) d\xi + \int_0^{s_h} [A - B](s_0, \eta) d\eta \right\} \quad (58)$$

By use of (31). It is seen that the two integrals are negligible compared to $\hat{L} [A - B]$. As a consequence, we get the following propagation equations :

$$\begin{aligned} \frac{\partial I_0^i}{\partial s_0} &= 2\chi^2 (1 - E^2) \tau I_h^c + 2\chi^2 E^2 [1 + \hat{L}]^{-1} F \\ &\quad + 2\chi^2 (1 - E^2) \tau_2 [I_h^i - I_0^i] \\ \frac{\partial I_h^i}{\partial s_h} &= 2\chi^2 (1 - E^2) \tau I_0^c - 2\chi^2 E^2 [1 + \hat{L}]^{-1} F \\ &\quad + 2\chi^2 (1 - E^2) \tau_2 [I_0^i - I_h^i] \end{aligned} \quad (59)$$

The meaning of the term $2\chi^2 (1 - E^2) \tau_2 [I_h^i - I_0^i]$ is the following. Assume that a second phase correlation between the two routes occurs in the region I' between I and M . It is assumed that after two such phase couplings, the propagation will essentially proceed through similar phase couplings between two different routes. In other words, two phase couplings will affect the coherence enough for individual scattering effects on each route to become negligible. The situation is depicted on Fig 4.

C. Remark. : By use of (31) in (46), one could alternatively have written :

$$\begin{aligned}
 (B - A) &= \hat{L} [A - B] + \tau [I_h^i - I_0^i] \\
 &+ 2\chi^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_0} (A - A')(\xi, s_h) d\xi \\
 &- 2\chi^2 (1 - E^2) \tau \int_0^{s_h} (B - B')(s_0, \eta) d\eta \\
 &+ 2\chi^2 E^2 \tau \int_0^{s_0} (A - B)(\xi, s_h) d\xi
 \end{aligned} \tag{61}$$

where the integrals are negligible compared to $\hat{L} A$ or $\hat{L} B$ if $\frac{E^2}{1 - E^2}$ is not too small. This approximation would lead to :

$$[B - A] = \tau [1 + \hat{L}]^{-1} (I_h^i - I_0^i) \tag{62}$$

and thus we would obtain :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial I_0^i}{\partial s_0} &= 2\chi^2 (1 - E^2) I_h^c + 2\chi^2 \{ E^2 \tau [1 + \hat{L}]^{-1} + (1 - E^2) \tau_2 \} (I_h^i - I_0^i) \\
 \frac{\partial I_h^i}{\partial s_h} &= 2\chi^2 (1 - E^2) I_0^c + 2\chi^2 \{ E^2 \tau [1 + \hat{L}]^{-1} + (1 - E^2) \tau_2 \} (I_0^i - I_h^i)
 \end{aligned} \tag{63}$$

If we define the operator :

$$\hat{\tau}_e = E^2 \hat{\Gamma} + (1 - E^2) \tau_2 \tag{64}$$

$$\hat{\Gamma} = \tau (1 + \hat{L})^{-1} = \tau \sum_0^{\infty} (-1)^n \hat{L}^n \tag{65}$$

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial I_0^i}{\partial s_0} &= 2\chi^2 (1 - E^2) I_h^c + 2\chi^2 \hat{\tau}_e [I_h^i - I_0^i] \\
 \frac{\partial I_h^i}{\partial s_h} &= 2\chi^2 (1 - E^2) I_0^c + 2\chi^2 \hat{\tau}_e [I_0^i - I_h^i]
 \end{aligned} \tag{66}$$

(66) are a generalization of KATO's equations (37), where $\hat{\Gamma}$ is an operator and not a constant anymore. Equations (66) are obviously more difficult to solve than (59). (65) can be written

$$\hat{\Gamma} = \Gamma_0 + \hat{\Gamma}' \quad (67)$$

with $\Gamma_0 = \tau$

$$\hat{\Gamma}' = \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \tau \hat{L}^n \quad (68)$$

Since the series is alternate, we may expect that Γ_0 is an important part of $\hat{\Gamma}$, and its value is drastically different from (Λ/E) , the expression proposed by KATO. The natural boundary values associated with (66) are :

$$\begin{aligned} I_0^i &= 0 \\ I_h^i(s_0, 0) &= \chi^2 (1 - E^2) e^{-\chi^2 [E^2 \tau + (1 - E^2) \tau_2] s_0} \end{aligned} \quad (69)$$

which is different from (60).

A discussion of the two models (66) and (59) is necessary, in order to see the range of E and τ values for which they are similar within a given accuracy

VI. SOLUTION FOR THE INCOHERENT PART OF THE BEAM

The purpose of this section is to find the solution to (59), together with the boundary conditions (60). Equations (59) can be written as:

$$\begin{aligned} \frac{\partial I_0^i}{\partial s_0} &= \sigma (1 - E^2) I_h^c + \mu_2 (I_h^i - I_0^i) \\ \frac{\partial I_h^i}{\partial s_h} &= \sigma (1 - E^2) I_0^c + \mu_2 (I_0^i - I_h^i) \end{aligned} \quad (70)$$

$$\begin{aligned} \text{Where } \sigma &= 2 \chi^2 \tau \\ \mu_2 &= 2 \chi^2 (1 - E^2) \tau_2 \end{aligned} \quad (71)$$

I_0^c and I_h^c are the effective sources for the incoherent beams, and are given by :

$$\begin{aligned}\sigma(1 - E^2) I_0^c &= \sigma(1 - E^2) I_0^c - 2\chi^2 E^2 [1 + \hat{L}]^{-1} F \\ \sigma(1 - E^2) I_h^c &= \sigma(1 - E^2) I_h^c + 2\chi^2 E^2 [1 + \hat{L}]^{-1} F\end{aligned}\quad (72)$$

By the use of (54) and (55), (72) can be transformed into :

$$\begin{aligned}I_0^c &= I_0^c - \alpha^2 \tau f_1 * I_0^c + \alpha^2 \tau f_2 * I_h^c \\ I_h^c &= I_h^c - \alpha^2 \tau f_2 * I_h^c + \alpha^2 \tau f_1 * I_0^c\end{aligned}\quad (73)$$

in which (*) stands for the convolution product

$$f * g = \int_0^{s_0} d\xi \int_0^{s_h} d\eta f(\xi, \eta) g(s_0 - \xi, s_h - \eta)$$

α is defined by :

$$\alpha^2 = 2\chi^2 E^2$$

and

$$\begin{aligned}f_1 &= \delta(s_0) - \alpha \sqrt{\frac{s_h}{s_0}} J_1(2\alpha \sqrt{s_0 s_h}) \\ f_2 &= \delta(s_h) - \alpha \sqrt{\frac{s_0}{s_h}} J_1(2\alpha \sqrt{s_0 s_h})\end{aligned}\quad (74)$$

Equations (70) are similar to (37), except for the change of some constants and the replacement of $I_{0,h}^c$ by $I_{0,h}^i$. Their solution has been discussed by KATO (1980) and AL HADDAD $\propto$ BECKER (1988), (section II.4). By the same technique, one gets :

$$\begin{aligned}I_h^i &= (1 - E^2) \left[\sigma g_1 * I_0^c + \sigma g_0 * I_h^c + \frac{\chi^2}{\mu_2} g_0 \right] \\ I_0^i &= (1 - E^2) [\sigma g_2 * I_h^c + \sigma g_0 * I_0^c + \chi^2 g_3]\end{aligned}\quad (75)$$

Where :

$$\begin{aligned}
 g_0 &= \mu_2 \Pi_0 \left(2 \mu_2 \sqrt{s_0 s_h} \right) e^{-\mu_2 (s_0 + s_h)} \\
 g_1 &= \left[\delta(s_0) + \mu_2 \sqrt{\frac{s_h}{s_0}} \Pi_1 \left(2 \mu_2 \sqrt{s_0 s_h} \right) \right] e^{-\mu_2 (s_0 + s_h)} \\
 g_2 &= \left[\delta(s_h) + \mu_2 \sqrt{\frac{s_0}{s_h}} \Pi_1 \left(2 \mu_2 \sqrt{s_0 s_h} \right) \right] e^{-\mu_2 (s_0 + s_h)} \\
 g_3 &= \sqrt{\frac{s_0}{s_h}} \Pi_1 \left(2 \mu_2 \sqrt{s_0 s_h} \right) e^{-\mu_2 (s_0 + s_h)}
 \end{aligned} \tag{76}$$

Π_0, Π_1 are modified Bessel functions.

By use of (73) the incoherent intensities are finally written as :

$$\begin{aligned}
 I_0^i &= (1 - E^2) \left\{ \sigma \left[\left(1 + \frac{\alpha^2 \tau}{\mu_2} \right) g_0 - \frac{\tau \alpha^3}{\mu_2} g_0 * f_0 \right] * I_0^c \right. \\
 &\quad \left. + \sigma [g_2 - \tau \alpha^2 g_2 * f_2 + \tau \alpha^2 g_0 * f_2] * I_h^c + \chi^2 g_3 \right\} \\
 I_h^i &= (1 - E^2) \left\{ \sigma [g_1 - \tau \alpha^2 g_1 * f_1 + \tau \alpha^2 g_0 * f_1] * I_0^c \right. \\
 &\quad \left. + \sigma \left[\left(1 + \frac{\alpha^2 \tau}{\mu_2} \right) g_0 - \frac{\tau \alpha^3}{\mu_2} g_0 * f_0 \right] * I_h^c + \frac{\chi^2}{\mu_2} g_0 \right\}
 \end{aligned} \tag{77}$$

where :

$$f_0 = \alpha J_0 (2\alpha \sqrt{s_0 s_h})$$

Like in AL HADDAD $\propto$ BECKER (1988), one finds that I_h^i contains a purely incoherent part :

$$I_h^{i0} = (1 - E^2) \frac{\chi^2}{\mu_2} g_0 = (1 - E^2) \chi^2 \Pi_0 \left(2 \mu_2 \sqrt{s_0 s_h} \right) e^{-\mu_2 (s_0 + s_h)}$$

This part becomes the leading contribution in the limit of $E \rightarrow 0$, it corresponds to pure secondary extinction.

The other terms are the "mixed components" corresponding to the fact that incoherence is generated from the coherent beams, through incomplete phase correlation, at various depths in the sample.

VII. INTEGRATED INTENSITY FOR A PARALLEL PLATE IN THE SYMMETRICAL TRANSMISSION GEOMETRY.

If one writes :

$$I_h = I_h^c + I_h^i \quad I_h^i = I_h^{i,0} + \sum_{n=1}^5 I_h^{i,n} \quad (78)$$

I_h^c and $I_h^{i,0}$ are the purely coherent and incoherent contributions and the 5 other terms correspond to the mixed contributions:

$$\begin{aligned} I_h^{i,1} &= \sigma (1 - E^2) g_1 * I_0^c \\ I_h^{i,2} &= \sigma (1 - E^2) \left[1 + \frac{\alpha^2 \tau}{\mu_2} \right] g_0 * I_h^c \\ I_h^{i,3} &= -\tau \alpha^2 \sigma (1 - E^2) [g_1 * f_1] * I_0^c \\ I_h^{i,4} &= \sigma (1 - E^2) \tau \alpha^2 [g_0 * f_0] * I_0^c \\ I_h^{i,5} &= -\frac{\tau \alpha^3}{\mu_2} \sigma (1 - E^2) [g_0 * f_0] * I_h^c \end{aligned} \quad (79)$$

The integrated power (KATO,1976 - BECKER,1977 - AL HADDAD $\propto$ BECKER,1988) can be decomposed as

$$\begin{aligned} P &= P^c + P^i \\ P^i &= P^{i,0} + M \\ M &= \sum_{l=1}^5 M_l \end{aligned} \quad (80)$$

M_l is the integrated intensity corresponding to $I_h^{i,l}$.

VII-1. Calculation of P^c and $P^{i,0}$.

For a parallel plate, in symmetrical Laue geometry, P^c and $P^{i,0}$ have been calculated by KATO (1980b), but τ_e has to be replaced by τ_2 . The result is:

$$\begin{aligned} P^c &= E^2 Q T W \left(\frac{2 E T}{\Lambda} \right) e^{-2(1-E^2)\tau T/\Lambda^2} \\ P^{i,0} &= \frac{\Lambda Q \Lambda}{2 \tau_2} \sinh [2(1-E^2)\tau_2/\Lambda T/\Lambda] e^{-2(1-E^2)\tau T/\Lambda^2} \end{aligned} \quad (81)$$

With $T = t / \cos \theta$, t being the thickness of the plate.

$$Q = \frac{\lambda}{\sin 2\theta} |\chi|^2.$$

and the function $W(x)$ is given by :

$$W(x) = \int_0^1 J_0(x\rho) d\rho \quad (82)$$

In order to obtain (81), one first integrates the intensity on the portion of the exit surface excited by the point source S (ab region on Fig. 5), then one sums over the various possible source points S .

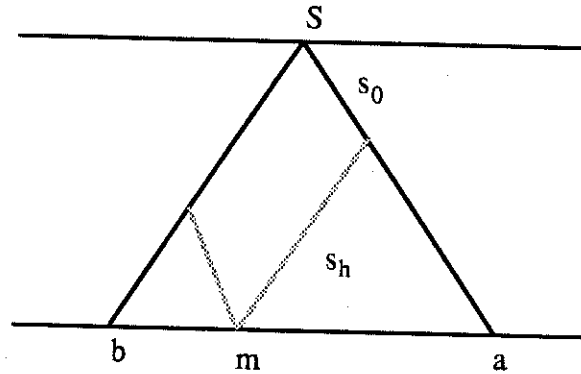


Fig. 5. Geometry for the integration of P^c or $P^{i,0}$

VII - 2. Calculation of M_1 and M_2 .

$I_h^{i,1}$ and $I_h^{i,2}$ are convolutions between an incoherent and a coherent intensity. The coherent part originates from S , and the incoherent phenomenon grows from an intermediate position m' in the sample (Fig. 6)

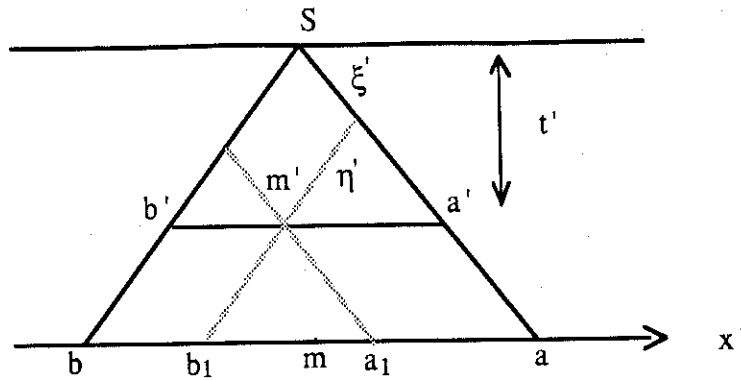


Fig. 6. Geometry for the calculation of m_1 and m_2

To calculate M_1 or M_2 one first chooses a point m' and thus integrates the intensity over $(a_1 b_1)$. Then one varies the depth t' of m' (variables x', t' parallel and orthogonal to the plate are used for m' , rather than ξ' and η' . Notice that $\sin 2\theta d\xi' d\eta' = dx' dt'$). Finally it is necessary to vary S along the entrance surface. One gets :

$$M_1 = \sigma (1 - E^2) E^2 Q [G_1 * L_0]_T$$

$$M_2 = \sigma (1 - E^2) E^2 \left[1 + \frac{E^2 \tau}{(1 - E^2) \tau_2} \right] Q [G_0 * L_h]_T \quad (83)$$

With :

$$G_i(t) = \frac{1}{2} t \int_{-1}^1 g_i(\xi, t) d\xi \quad i = 0, 1, 2$$

$$E^2 \chi^2 L_v(t) = \frac{1}{2} t \int_{-1}^1 I_v^c(\xi, t) d\xi \quad i = 0, h \quad (84)$$

Therefore, G_0, G_1, L_0, L_h are given by :

$$G_0(t) = e^{-\mu_2 t} \sinh(\mu_2 t)$$

$$G_1(t) = e^{-\mu_2 t} \cosh(\mu_2 t)$$

$$L_0(t) = t [1 - W(2\chi E t)] e^{-\mu_e}$$

$$L_h(t) = t W(2\chi E t) e^{-\mu_e t} \quad (85)$$

μ_e being given by (20).

VII - 3. Calculation of M_3 and M_4 and M_5 :

We employ a method similar to that used for M_1 and M_2 , but now $I_h^{i,3}$, $I_h^{i,4}$, $I_h^{i,5}$ are convolution products between three functions. One needs two points m' and m'' (Fig. 7)

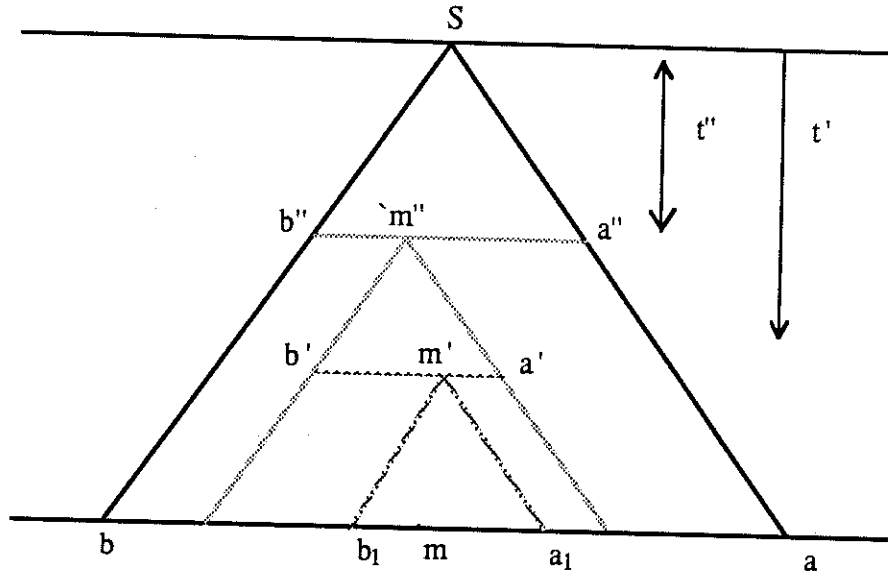


Fig. 7. Geometry for calculating m_3 , m_4 , m_5 .

First one fixes m' and m'' , and integrates the intensity over a_1 b_1 . Then one varies m' along $a' b'$, m'' being fixed. One then varies m'' along $a'' b''$, and finally S along the entrance surface. One finds :

$$\begin{aligned} M_3 &= -\tau \alpha^2 \sigma E^2 (1 - E^2) Q [G_1 * F_1 * L_0]_T \\ M_4 &= \tau \alpha^2 \sigma E^2 (1 - E^2) Q [G_0 * F_1 * L_0]_T \\ M_5 &= -\frac{\tau \alpha^3 \sigma}{\mu_2} E^2 (1 - E^2) Q [G_0 * F_0 * L_h]_T \end{aligned} \quad (86)$$

With

$$F_i(t) = \frac{t}{2} \int_{-1}^1 f_i(\xi, t) d\xi \quad i = 0, 1, 2$$

i. e. :

$$F_0 = \sin(\alpha t) \quad F_1 = \cos(\alpha t) \quad (87)$$

VII - 4. Final expressions for M

It is possible, using notations that generalize KATO (1980) :

$$m = \frac{1}{2} \sigma (1 - E^2) E^2 Q \left[4 \mu_2 a \left(Z_1 + \frac{1}{2} Z_2 \right) + \gamma Z_3 - a (2 \mu_2 n_1 + \alpha n_2) + (1 + 2 \mu_2 a) n_3 + n_4 \right] \quad (88)$$

Where :

$$a = \frac{2 \tau \alpha^2}{\alpha^2 + 4 \mu_2^2}, \quad \gamma = \frac{a (\alpha^2 - 4 \mu_2^2) - 2 \tau \alpha^2}{2 \mu_2} - 2 \quad (89)$$

and :

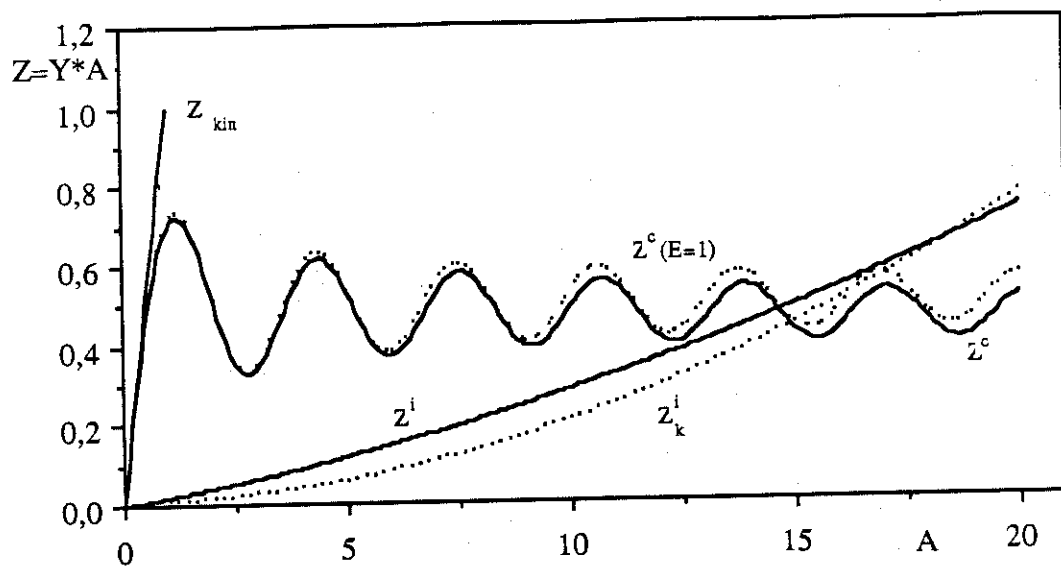
$$\begin{aligned} Z_1 &= F_1 * L_h \\ &= \frac{1}{\alpha^2 + \mu_e^2} \{ [(e^{-\mu_e t} J_0(2 \chi E t) * (\mu_e \cos(\alpha t) + \alpha \sin(\alpha t)))]_T \\ &\quad - \mu_e T e^{-\mu_e t} W(2 \chi E T) \} \\ Z_2 &= F_0 * L_h \\ &= \frac{1}{\alpha^2 + \mu_e^2} \{ [(e^{-\mu_e t} J_0(2 \chi E t) * (\mu_e \sin(\alpha t) - \alpha \cos(\alpha t)))]_T \\ &\quad + \alpha T e^{-\mu_e t} W(2 \chi E T) \} \\ Z_3 &= e^{-2 \mu_2 t} * L_h \\ &= \frac{T}{2 \mu_2 - \mu_e} [e^{-\mu_e T} W(2 \chi E T) - e^{-2 \mu_2 T} W_e(2 \mu_2 - \mu_e) T, 2 \chi E T)] \\ W_e(x, y) &= \int_0^1 e^{-x \rho} J_0(y \rho) d\rho \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
Z_4 &= \int_0^T L_h(t) dt \\
&= \frac{T}{\mu_e} [W_e(-\mu_e T, 2\chi E T) - e^{-\mu_e T} W(2\chi E T)] \\
n_1 &= [(t e^{-\mu_e t}) * F_1]_T \\
&= \frac{1}{(\alpha^2 + \mu_e^2)^2} [(\mu_e^2 - \alpha^2) \cos(\alpha T) + 2\mu_e \alpha \sin(\alpha T) \\
&\quad - (\mu_e^2 - \alpha^2) e^{-\mu_e T} - \mu_e T (\mu_e^2 + \alpha^2) e^{-\mu_e T}] \\
n_2 &= [(t e^{-\mu_e t}) * F_0]_T \\
&= \frac{1}{(\alpha^2 + \mu_e^2)^2} [(\mu_e^2 - \alpha^2) \sin(\alpha T) - 2\mu_e \alpha \cos(\alpha T) \\
&\quad + 2\mu_e \alpha e^{-\mu_e T} + \alpha T (\mu_e^2 + \alpha^2) e^{-\mu_e T}] \\
n_3 &= [e^{-2\mu_2 t} * (t e^{-\mu_e t})]_T \\
&= \frac{1}{(2\mu_2 - \mu_e)^2} \{e^{-\mu_2 T} + [(2\mu_2 - \mu_e)T - 1] e^{-\mu_e T}\} \\
n_4 &= \frac{1}{\mu_e^2} - \left(\frac{T}{\mu_e} + \frac{1}{\mu_e^2} \right) e^{-\mu_e T}
\end{aligned} \tag{90}$$

We present two examples on Fig. 8, corresponding to $E = 0.99$ and $\tau/\Lambda = 0.1$ for Fig. 8. a, $E = 0.9$ and $\tau/\Lambda = 0.1$ for Fig 8. b. $Z = Y A$ is plotted as a function of A , where $A = T/\Lambda$ and Y is the extinction factor, equal to (P/P_{kin}) . Z^c corresponds to the coherent contribution, $Z^c(E = 1)$ to the pure dynamical result (perfect crystal), Z^i is the incoherent part resulting from the present theory, Z_k^i the incoherent part using KATO's equations (37) with the solution of AL HADDAD $\propto$ BECKER (1988). The deviation from dynamical theory is apparent. But the more important observation is the significant modification of the incoherent part, which is larger with the present theory than from KATO's equations (Z_k^i is already significantly larger than the original result of KATO; AL HADDAD $\propto$ BECKER, 1988).

It is observed that, even with strong values for E , the incoherent contribution dominates where the thickness is large enough. For $E = 0.9$, the crossing occurs for $T/\Lambda = 2.5$.

This fact is striking and mixed terms are important in the crossing region, which shows the importance of using this new theory which does not introduce an arbitrary separation between secondary and primary extinction.



a.

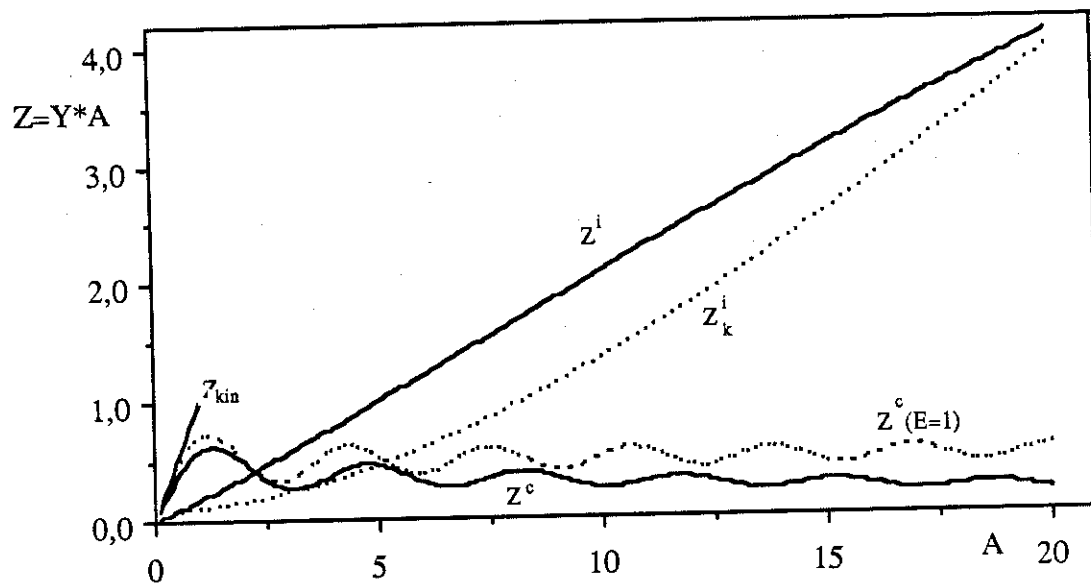


Fig. 8. $Z = P/Q\Lambda$ plotted as a function of $A = T/\Lambda$.

a. $E = 0.99$ $\tau/\Lambda = 0.1$

b. $E = 0.9$ $\tau/\Lambda = 0.1$

Z^c : coherent term (—) Z^i : incoherent term (—)

$Z^c(E=1)$: purely dynamical theory (.....)

Z_k^i : incoherent term with KATO's equations (.....)

Notice that $Z_{kin} = A$

VIII. APPLICATION: ANNEALED CZOCHRALSKI GROWN SILICON WITH A HIGH DEGREE OF PERFECTION.

SCHNEIDER et al. (1988a) have studied by γ - Ray diffraction (wavelength of the incident radiation $\lambda = 0,00392 \text{ \AA}$) various crystals of silicon grown by the Czochralski method. They used dishaped samples 10 cm in diameter and 1cm thick. The oxygen content varied between $7.5 \cdot 10^{17}$ and $1.8 \cdot 10^{18}$ atoms per cm^3 . (approximated 10 to 30 atomic p.p.m). Various samples were prepared, corresponding to different annealing temperature and duration. For each sample, the integrated diffracted power was measured in Laue geometry as a function of the effective thickness (which was varied by rotating the crystal around the reciprocal lattice vector $\underline{h}$ under study).

An example is given in Fig. 9, corresponding to $\underline{h} : 220$. Pendellösung oscillations are well resolved, indicating the high degree of perfection of the sample. However, dynamical theory is unable to reproduce the observed intensities, which are about 50% higher than predicted for a perfect crystal.

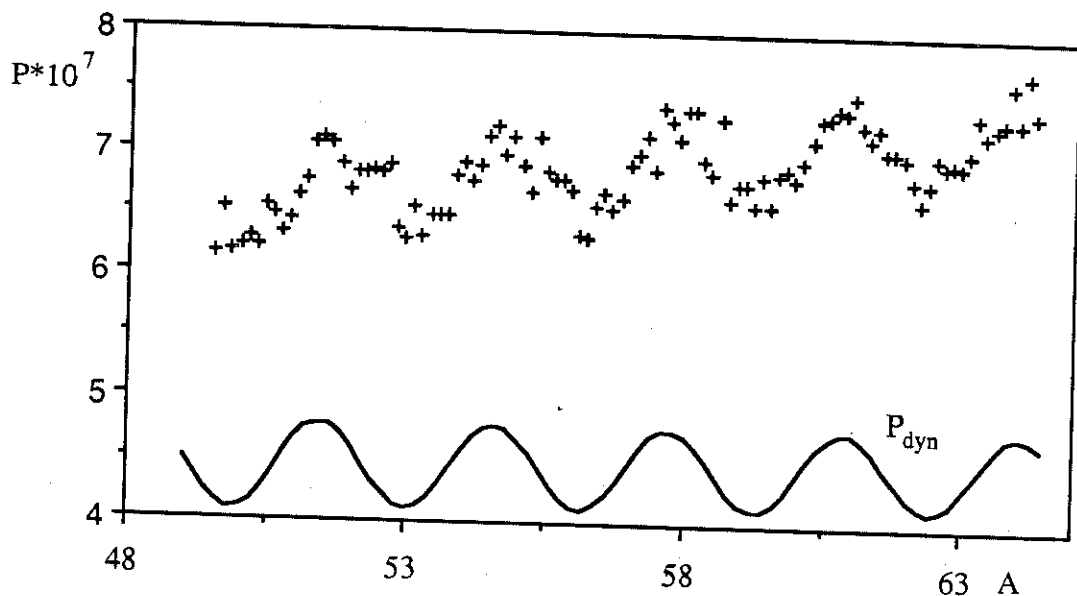


Fig. 9 Integrated diffracted power for the 220 reflection of a silicon crystal (from SCHNEIDER et al. 1988) containing $7.7 \cdot 10^{17}$ oxygen atoms/ cm^3 , after annealing for 70 hours at 770°C . Solid line: The result obtained by dynamical theory.(perfect crystal).

VIII. 1. In order to explain the deviation from P_{dyn} , SCHNEIDER et al. (1988a) have proposed the following model: one represents the diffracted power as the sum of the perfect crystal contribution (which does not depend on the thickness for values larger than Λ) and a term that corresponds to the scattering around the SiO₂ precipitates formed during annealing at 770°C. Therefore, they write :

$$\begin{aligned} P &= P_{\text{dyn}} + C \cdot A \\ P_{\text{dyn}} &= P^c (E = 1) \end{aligned} \quad (91)$$

This assumption has been recently conformed by neutron small angle scattering experiments by Messolaras et al. (1988-89)

The constant C is determined by the best fit to the observations.

The validity of the model is estimated via the reliability factor R and the goodness of fit, GOF, (see SCHNEIDER et al., 1988b) :

$$R = 100 \left[\chi_R^2 / \sum_{i=1}^N (P_i^{\text{obs}} / \sigma_i^{\text{obs}})^2 \right]^{1/2} \quad (\text{V-99})$$

and

$$\text{GOF} = \chi_R^2 / (N - p)$$

Where

$$\chi_R^2 = \sum_{i=1}^N \left| \frac{P_i^{\text{obs}} - P_i^{\text{th}}}{\sigma_i^{\text{obs}}} \right|^2 \quad (\text{V-100})$$

N : the number of observations.

P_i^{obs} : the integrated reflecting power observed

P_i^{th} : the integrated reflecting power calculated

σ_i^{obs} : the standard deviation of P_i^{obs}

p : the number of parameters

For the example shown in Fig. 9, the result is :

$$\begin{aligned} C &= 4.28(2) \cdot 10^{-9} \\ R &= 2.3\% \quad \text{GOF} = 2.4 \end{aligned}$$

Fig. 10, shows that (91) leads to a fair representation of the experimental results.

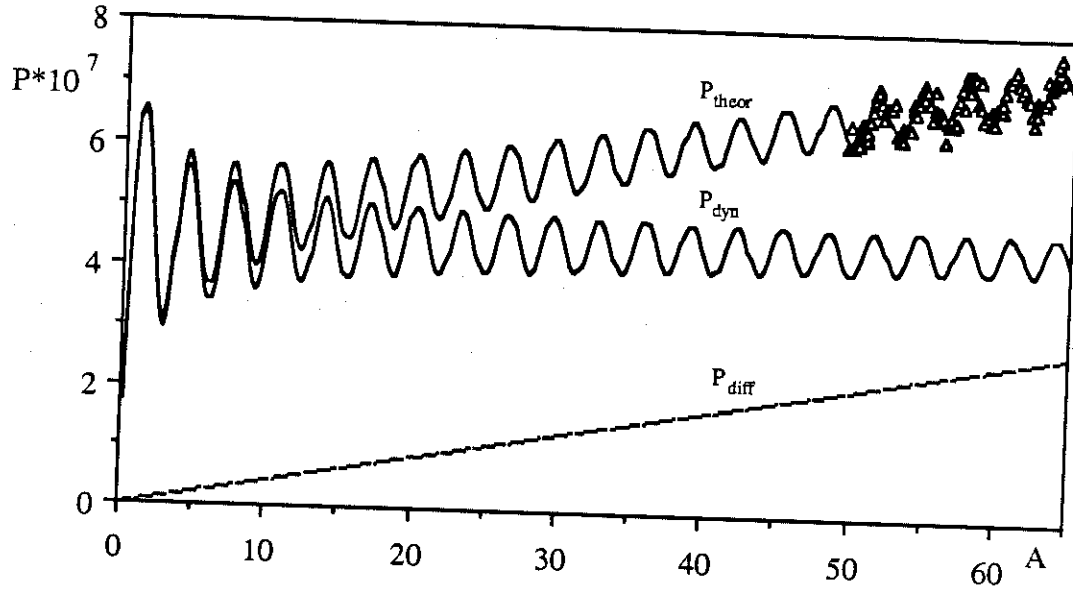


Fig. 10. Diffracted power for the (220) reflexion of Si (from SCHNEIDER et al. 1988). Same sample as Fig. 7. P_{theor} corresponds to equation (91), with $C = 4.28 \cdot 10^{-9}$. $P_{\text{diff}} = C A$

VIII 2. The same data can be analysed using the theory developed in the present paper (as well as Kato's original approach, 1980).

A fit of the equations obtained in section III of this paper to the experimental data provides.

The following values :

$$\begin{aligned} E &= 0.998, & \tau/\Lambda &= 0.01 \\ R &= 2.19\% & \text{GOF} &= 2.3 \end{aligned}$$

Thus, τ/Λ is very small, and we may look at the limit of the theory when $\tau/\Lambda \rightarrow 0$, in which case M becomes very small. One obtains the asymptotic formula :

$$\begin{aligned}
 P &\sim P^c + P^{i,0} \\
 &= QT[E^2 W(2ET/\Lambda) + (1 - E^2)] \quad (92)
 \end{aligned}$$

The results are shown on Fig. 11, and are very similar to those of SCHNEIDER et al. (1988a).

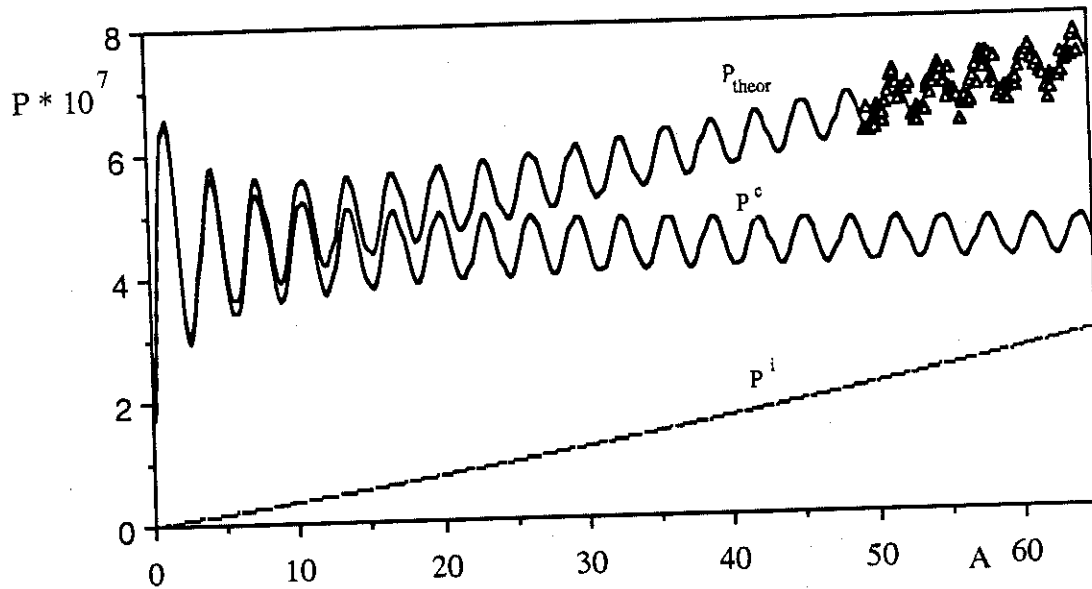


Fig. 11. Diffracted power for the (220) reflexion of Si (from the present theory).
 $E = 0.998 \quad \tau/\Lambda = 0.01$

Finally, it is important to compare the present theory with KATO's original expression. In this particular case where $\tau/\Lambda \rightarrow 0$, $\tau \rightarrow E\Lambda$ and differs strongly from zero. The diffracted power is given by:

$$P_K = Q[TE^2 W(2ET/\Lambda) + \frac{(1 - E^2)}{2E} \sinh(2EA) e^{-2EA}] \quad (93)$$

The best fit without constraint to the experimental data leads to $E = 0.367$, with $R = 5\%$ and $GOF = 11.8$. The result is shown on Fig. 12.

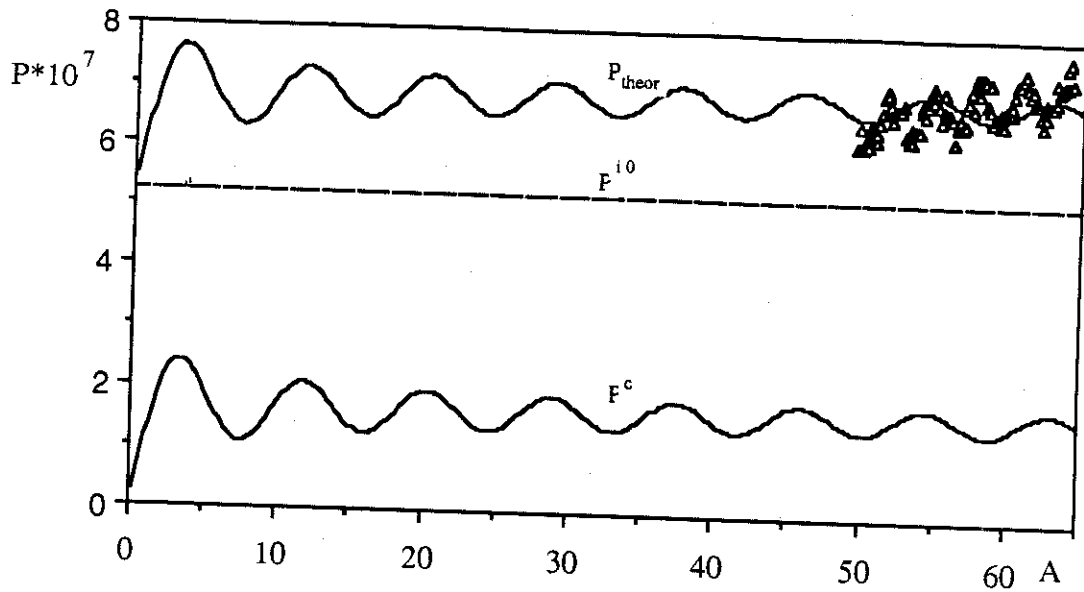


Fig. 12. Application of KATO's theory to the (220) reflexion of Si .

This approximation turns out to be poor. The reason for its failure is obviously the approximation made by Kato concerning the parameter τ_e .

If absolutely no limitations are made on τ/Λ or E , one can find some values of these parameters for which R and GOF are nearly constant (J. SCHNEIDER).

IX. CONCLUSION

In this paper, we have presented a formulation of kato's statistical dynamical theory which overpasses the approximations (33) – (35) concerning correlation lengths made by Kato. It turns out that the hypothesis of a constant effective correlation length τ_e must be abandoned.

The resulting modifications to the theory are rather complex and lead to the definition of a variable correlation length, fluctuating around the value $\Gamma \sim \tau$, which is defined by operation (67) : this is an important alteration from KATO's original theory. The propagation equations for the incoherent intensities can be solved in the new scheme. We have presented the explicit solution for the diffracted integrated power for a parallel plate, with the application to annealed Si crystals (Czochvalski Grown). In the following paper we present a solution that can be used in refinement procedures, for finite crystals.

Aknowledgments

We thank D. Feil for a careful reading of the manuscript and for helpful discussions

REFERENCES

- AL HADDAD M. and BECKER P. (1989) Acta Cryst. A45 accepted
- AL HADDAD M. & BECKER P. J. (1988) Acta Cryst. A44, 262 - 270.
- BECKER P. (1977) Acta Cryst. A33, 667 - 671.
- BECKER P. & AL HADDAD M. (1989a) Acta Cryst. A45, 333 - 337.
- BECKER P. & AL HADDAD M. (1989b) Acta Cryst. A45, accepted.
- GUIGAY J.P. (1989) Acta Cryst. A45, 241 - 244.
- KATO N. (1976) Acta Cryst. A32, 453 - 466.
- KATO N. (1980a) Acta Cryst. A36, 763 - 769.
- KATO N. (1980a) Acta Cryst. A36, 770 - 778.
- MESSOROLAS S., SCHNEIDER R. J., STEWART R. J. and ZULEHNER W. (1988) Nature, 336, N° 6197, 364 - 365.
- SCHNEIDER J.R. (private communication).
- SCHNEIDER J. R., GONÇALVES O. D., ROLLASON A. J., BONSE U., LAUER J. & ZULEHNER W. (1988) Nucl. Instrum. methods Phys. Res. B29, 661 - 674.
- SCHNEIDER J. R., GONÇALVES O. D., & H. A. GRAF. (1988b) Acta Cryst. A44, 461 - 467.

CHAPITRE VI

CRISTAL REEL: APPLICATION A UNE SPHERE

INTRODUCTION

Jusqu'à maintenant, on utilise dans le programme d'affinement uniquement des modèles pour des cristaux parfaits ou imparfaits. Nous avons vu dans le chapitre précédent que même pour un cristal presque parfait la théorie purement dynamique ne suffit pas à reproduire des données expérimentales.

Nous allons rendre le nouveau modèle présenté au chapitre V, exploitable par les cristallographes, pour un cristal réel de forme sphérique.

Dans le chapitre III, nous avons calculé le facteur d'extinction y_p pour un cristal parfait de forme sphérique et discuté l'approximation de la géométrie de diffraction par la géométrie de Laue, Fig. III-1. Nous admettons les raisonnements de ce chapitre pour un cristal réel et nous limitons au cas du cristal non absorbant : $\chi = 1/\Lambda$

A - LES TROIS COMPOSANTES DE L'INTENSITE DIFFRACTEE

L'intensité diffractée peut s'écrire comme la somme de deux termes purement cohérent I_h^c et incohérent $I_h^{i,0}$ et d'un troisième que l'on appelle l'intensité mixte $I_h^{i,m}$.

$$I_h = I_h^c + I_h^{i,0} + I_h^{i,m} \quad (\text{VI-1})$$

Nous définissons les variables :

$$s_1 = s_0/R, \quad s_2 = s_h/R \quad (\text{VI-2a})$$

où R est le rayon de la sphère.

Ainsi que les paramètres suivants :

$$x_e = x E, \quad x = R/\Lambda, \quad \beta = \frac{\tau}{\Lambda} \frac{1 - E^2}{E} \quad (\text{VI-2b})$$

Nous prenons la fonction $g(t)$ pour laquelle [Chap. III] :

$$\tau_2 = \tau/2 \quad (\text{VI-3})$$

Nous allons introduire ces nouvelles variables et paramètres dans l'expression de I_h^i [chap. V].

A - 1 L'intensité purement cohérente I_h^c

I_h^c donnée par l'équation (V-17), peut se réécrire comme suit :

$$I_h^c = E^2 \chi^2 J_0^2 \left(2 x_e \sqrt{s_1 s_2} \right) \exp(-2 \beta x_e (s_1 + s_2)) \quad (\text{VI-4})$$

A - 2 L'intensité purement incohérente $I_h^{i,0}$

Si on introduit les changements (VI-2) dans l'expression de $I_h^{i,0}$ (V-36b), on obtient :

$$I_h^{i,0} = \chi^2 (1 - E^2) I_0 \left(2 \beta x_e \sqrt{s_1 s_2} \right) \exp(-\beta x_e (s_1 + s_2)) \quad (\text{VI-5})$$

A - 3 L'intensité mixte $I_h^{i,m}$

Si on fait les changements de variables dans l'expression de $I_h^{i,m}$ pour lesquels toutes les limites des intégrales qui interviennent dans les produits de convolution deviennent 0 et 1 et si on prend en compte (VI-2), on peut écrire :

$$I_h^{i,m} = \sum_{n=1}^5 I_h^{i,n} \quad (\text{VI-6})$$

où $I_h^{i,n}$ sont données par les équations (V-90), $I_h^{i,m}$ devient :

$$I_h^{i,m} = \sigma E^2 (1 - E^2) \chi \{ x [T_1 + \beta x_e (T_2 + T_9)] + 2 \tau / \Lambda x_e^2 [T_9 - T_3 + x_e (-\beta T_4 + \sqrt{2} T_5 + \beta T_7) + x_e^2 (\sqrt{2} \beta T_6 - \sqrt{2} \beta T_8 - 2 T_{10})] \} \quad (\text{VI-7})$$

où :

$$T_1 = \int_0^1 d\eta \left(\frac{s_1}{\eta} \right) \exp(-\beta x_e s_2 (1 - \eta)) J_1^2 \left(2 x_e \sqrt{s_1 s_2 \eta} \right) \exp(-2 \beta x_e (s_1 + s_2 \eta))$$

$$T_2 = \int_0^1 d\eta \int_0^1 d\xi \left(s_1 \sqrt{s_1 s_2} \right) \exp(-\beta x_e (s_1 (1 - \xi) + s_2 (1 - \eta))) \sqrt{\frac{1 - \eta}{1 - \xi}} I_1 \left(2 \beta x_e \sqrt{s_1 s_2 (1 - \xi) (1 - \eta)} \right) \frac{\xi}{\eta} J_1^2 \left(2 x_e \sqrt{s_1 s_2 \xi \eta} \right) \exp(-2 \beta x_e (s_1 \xi + s_2 \eta))$$

$$T_3 = \int_0^1 d\xi \int_0^1 d\eta \frac{s_1 s_2}{\eta} \exp(-\beta x_e s_2 \eta_1 (1 - \eta)) J_1^2 \left(2 x_e \sqrt{s_1 s_2 \eta_1 \eta} \right) \exp(-2 \beta x_e (s_1 + s_2 \eta_1 \eta))$$

$$T_4 = \int_0^1 d\xi \int_0^1 d\eta \int_0^1 d\eta_1 (s_1 s_2 \sqrt{s_1 s_2}) \exp(-\beta x_e(s_1(1-\xi) + s_2 \eta_1(1-\eta))) \sqrt{\frac{\eta_1(1-\eta)}{1-\xi}}$$

$$I_1(2\beta x_e \sqrt{s_1 s_2} \sqrt{\eta_1(1-\xi)(1-\eta)}) \frac{\xi}{\eta} J_1^2(2x_e \sqrt{s_1 s_2 \xi \eta_1 \eta}) \exp(-2\beta x_e(s_1 \xi + s_2 \eta_1 \eta))$$

$$T_5 = \int_0^1 d\xi \int_0^1 d\eta \int_0^1 d\eta_1 (s_1 s_2 \sqrt{s_1 s_2}) \exp(-\beta x_e(s_2 \eta_1(1-\eta))) \sqrt{\frac{1-\eta_1}{1-\xi}}$$

$$J_1(2\sqrt{2} x_e \sqrt{s_1 s_2} \sqrt{(1-\xi)(1-\eta_1)}) \frac{\xi}{\eta} J_1^2(2x_e \sqrt{s_1 s_2 \xi \eta_1 \eta}) \exp(-2\beta x_e(s_1 \xi + s_2 \eta_1 \eta))$$

$$T_6 = \int_0^1 d\xi_1 \int_0^1 d\eta_1 \int_0^1 d\xi \int_0^1 d\eta (s_1 s_2)^2 \sqrt{\frac{1-\eta_1}{1-\xi_1}} J_1(2\sqrt{2} x_e \sqrt{s_1 s_2} \sqrt{(1-\xi_1)(1-\eta_1)})$$

$$(\xi_1 \sqrt{\xi_1 \eta_1}) \exp(-\beta x_e(s_1 \xi_1(1-\xi) + s_2 \eta_1(1-\eta)))$$

$$\sqrt{\frac{1-\eta}{1-\xi}} I_1(2\beta x_e \sqrt{s_1 s_2} \sqrt{\xi_1 \eta_1(1-\xi)(1-\eta)}) \frac{\xi}{\eta} J_1^2(2x_e \sqrt{s_1 s_2 \xi_1 \eta_1 \xi \eta})$$

$$\exp(-2\beta x_e(s_1 \xi_1 \xi + s_2 \eta_1 \eta))$$

$$T_7 = \int_0^1 d\eta_1 \int_0^1 d\xi \int_0^1 d\eta s_1^2 s_2 I_0(2\beta x_e \sqrt{s_1 s_2} \sqrt{(1-\xi)(1-\eta) \eta_1})$$

$$\exp(-\beta x_e(s_1(1-\xi) + s_2 \eta_1(1-\eta)))$$

$$\frac{\xi}{\eta} J_1^2(2x_e \sqrt{s_1 s_2 \xi \eta \eta_1}) \exp(-2\beta x_e(s_1 \xi + s_2 \eta_1 \eta))$$

$$T_8 = \int_0^1 d\xi_1 \int_0^1 d\eta_1 \int_0^1 d\xi \int_0^1 d\eta s_1^2 s_2 \sqrt{s_1 s_2} \sqrt{\frac{1-\eta_1}{1-\xi_1}} J_1(2\sqrt{2} x_e \sqrt{s_1 s_2} \sqrt{(1-\xi_1)(1-\eta_1)})$$

$$\xi_1^2 \exp(-\beta x_e(s_1 \xi_1(1-\xi) + s_2 \eta_1(1-\eta)))$$

$$I_0(2\beta x_e \sqrt{s_1 s_2} \sqrt{\xi_1 \eta_1(1-\xi)(1-\eta)}) \frac{\xi}{\eta} J_1^2(2x_e \sqrt{s_1 s_2 \xi_1 \eta_1 \xi \eta})$$

$$\exp(-2\beta x_e(s_1 \xi_1 \xi + s_2 \eta_1 \eta))$$

$$T_9 = \int_0^1 d\xi \int_0^1 d\eta (s_1 s_2) \exp(-\beta x_e(s_1(1-\xi) + s_2(1-\eta))) I_0(2\beta x_e \sqrt{s_1 s_2(1-\xi)(1-\eta)})$$

$$J_0^2(2x_e \sqrt{s_1 s_2 \xi \eta}) \exp(-2\beta x_e(s_1 \xi + s_2 \eta))$$

$$\begin{aligned}
T_{10} = & \int_0^1 d\xi_1 \int_0^1 d\eta_1 \int_0^1 d\xi \int_0^1 d\eta (s_1 s_2)^2 J_0 \left(2\sqrt{2} x_e \sqrt{s_1 s_2} \sqrt{(1-\xi_1)(1-\eta_1)} \right) \\
& (\xi_1 \eta_1) \exp(-\beta x_e (s_1 \xi_1 (1-\xi) + s_2 \eta_1 (1-\eta))) \\
& I_0 \left(2\beta x_e \sqrt{s_1 s_2} \sqrt{\xi_1 \eta_1 (1-\xi)(1-\eta)} \right) J_0^2 \left(2x_e \sqrt{s_1 s_2} \sqrt{\xi_1 \eta_1 \xi \eta} \right) \\
& \exp(-2\beta x_e (s_1 \xi_1 \xi + s_2 \eta_1 \eta))
\end{aligned} \tag{VI-8}$$

B - LE FACTEUR D'EXTINCTION TOTAL EN GEOMETRIE DE LAUE

Suivant l'expression de I_h (VI-1), on peut écrire le facteur d'extinction total y_t sous la forme suivante :

$$y_t = y_c + y_i + y_m \quad (\text{VI-9})$$

où

$$y_c = \frac{1}{v \chi^2} \int_v I_h^c dv \text{ représente la composante purement cohérente}$$

$$y_i = \frac{1}{v \chi^2} \int_v I_h^{i,0} dv \text{ la composante purement incohérente}$$

$$y_m = \frac{1}{v \chi^2} \int_v I_h^{i,m} dv \text{ la composante mixte} \quad (\text{VI-10})$$

Grâce aux changements (VI-2), les intégrations sur le volume v , intervenant dans les équations (VI-10) sont ramenées au volume d'une sphère de rayon unité : $v = \frac{4\pi}{3}$.

Nous allons calculer ces composantes numériquement pour un sphère. En réalité, chaque fonction y_c , y_i , ou y_m dépend de quatre paramètres x , θ , E et τ/Λ .

B - 1. Calcul de y_c

Si on remplace dans l'équation (VI-10a) I_h^c par sa valeur, on obtient :

$$y_c = E^2 \eta_c (x_e, \beta, \sin \theta) \quad (\text{VI-11})$$

où :

$$\eta_c = \frac{1}{v} \int_v J_0^2 (2 x_e \sqrt{s_1 s_2}) \exp (-2 x_e \beta (s_1 + s_2)) dv \quad (\text{VI-12})$$

Nous avons utilisé la méthode de Gauss (16 points dans chaque direction). Comme dans le cas du cristal parfait, nous voyons sur la Fig. 2, que η_c varie lentement en fonction de $\sin^2 \theta$, donc η_c peut être écrite comme un polynôme de 4ème degré en $\sin^2 \theta$.

$$\eta_c = A_0(x_e, \beta) + A_1(x_e, \beta) \sin^2 \theta + A_2(x_e, \beta) \sin^4 \theta \quad (\text{VI-13})$$

où les fonctions A_0 , A_1 et A_2 sont calculées par la méthode des moindres carrées, présentées au tableau VI-1 et Fig. VI-3.

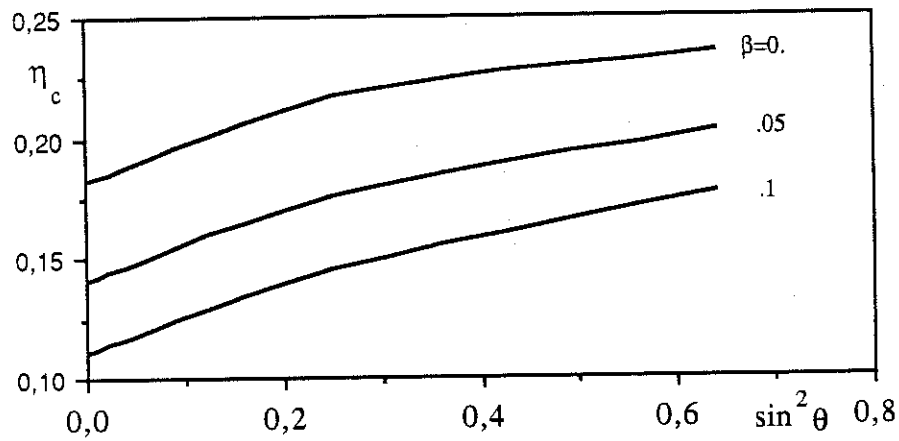


Fig. VI-2 : η_c en fonction de $\sin^2 \theta$ pour $x_e = 2$, $\beta = 0.$, 0.05 et 0.1

$x_e \backslash \beta$	0.0	0.05	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5
0.1	0.99204	0.97729	0.96278	0.93444	0.90698	0.88039	0.85463
0.3	0.93078	0.89021	0.85153	0.77947	0.71391	0.65424	0.59991
0.5	0.82038	0.76255	0.70909	0.61389	0.53236	0.46245	0.40244
0.7	0.68145	0.61671	0.55858	0.45940	0.37916	0.31408	0.26114
0.9	0.53742	0.47476	0.42002	0.33023	0.26124	0.20799	0.16669
1.1	0.40873	0.35360	0.30661	0.23219	0.17754	0.13711	0.10695
1.3	0.30869	0.26224	0.22354	0.16411	0.12217	0.09222	0.07058
1.5	0.24174	0.20161	0.16894	0.12034	0.08738	0.06465	0.04871
1.7	0.20418	0.16629	0.13634	0.09352	0.06589	0.04763	0.03529
1.9	0.18684	0.14752	0.11757	0.07681	0.05210	0.03663	0.02662
2.1	0.17887	0.13643	0.10533	0.06519	0.04243	0.02897	0.02065
2.3	0.17151	0.12661	0.09486	0.05580	0.03497	0.02327	0.01633
2.5	0.16042	0.11523	0.08420	0.04751	0.02889	0.01886	0.01309
2.7	0.14585	0.10255	0.07351	0.04018	0.02391	0.01541	0.01064
2.9	0.13083	0.09037	0.06376	0.03399	0.01991	0.01273	0.00876
3.1	0.11856	0.08037	0.05578	0.02901	0.01675	0.01064	0.00731
3.3	0.11049	0.07312	0.04972	0.02511	0.01426	0.00900	0.00618
3.5	0.10592	0.06804	0.04514	0.02201	0.01228	0.00770	0.00528
3.7	0.10284	0.06403	0.04138	0.01945	0.01066	0.00664	0.00456
3.9	0.09938	0.06012	0.03793	0.01725	0.00931	0.00578	0.00397
4.1	0.09470	0.05592	0.03457	0.01530	0.00817	0.00506	0.00348
4.3	0.08912	0.05157	0.03135	0.01359	0.00720	0.00446	0.00308
4.5	0.08360	0.04747	0.02843	0.01210	0.00638	0.00396	0.00274
4.7	0.07907	0.04397	0.02591	0.01083	0.00568	0.00353	0.00245
4.9	0.07586	0.04116	0.02381	0.00975	0.00509	0.00317	0.00221
5.1	0.07369	0.03889	0.02203	0.00882	0.00458	0.00286	0.00200
5.3	0.07188	0.03688	0.02045	0.00801	0.00415	0.00259	0.00182
5.5	0.06981	0.03489	0.01897	0.00729	0.00377	0.00236	0.00166
5.7	0.06724	0.03286	0.01758	0.00665	0.00343	0.00216	0.00152
5.9	0.06434	0.03083	0.01626	0.00609	0.00314	0.00198	0.00140
6.1	0.06155	0.02894	0.01506	0.00558	0.00288	0.00182	0.00129
6.3	0.05924	0.02727	0.01400	0.00513	0.00266	0.00169	0.00120
6.5	0.05751	0.02586	0.01307	0.00474	0.00246	0.00156	0.00111

A_0

$x_0 \backslash \beta$	0.0	0.05	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5
0.1	-0.00544	-0.00529	-0.00509	-0.00453	-0.00381	-0.00290	-0.00185
0.3	-0.04573	-0.04219	-0.03841	-0.03030	-0.02165	-0.01268	-0.00358
0.5	-0.10919	-0.09502	-0.08117	-0.05470	-0.03015	-0.00775	0.01240
0.7	-0.16470	-0.13343	-0.10480	-0.05496	-0.01406	0.01907	0.04555
0.9	-0.17782	-0.12992	-0.08864	-0.02279	0.02521	0.05959	0.08368
1.1	-0.12861	-0.07484	-0.03111	0.03287	0.07396	0.09943	0.11429
1.3	-0.02716	0.01559	0.04839	0.09208	0.11592	0.12740	0.13123
1.5	0.08711	0.10628	0.12003	0.13573	0.14092	0.13984	0.13518
1.7	0.16630	0.16299	0.16036	0.15488	0.14792	0.13958	0.13049
1.9	0.18253	0.17164	0.16404	0.15269	0.14248	0.13214	0.12182
2.1	0.14391	0.14381	0.14329	0.13932	0.13184	0.12239	0.11235
2.3	0.08611	0.10591	0.11740	0.12486	0.12125	0.11309	0.10356
2.5	0.04691	0.08124	0.10073	0.11476	0.11286	0.10513	0.09582
2.7	0.04321	0.07781	0.09686	0.10948	0.10654	0.09834	0.08901
2.9	0.06558	0.08852	0.10073	0.10671	0.10130	0.09231	0.08292
3.1	0.09105	0.10028	0.10488	0.10403	0.09635	0.08677	0.07743
3.3	0.10118	0.10386	0.10468	0.10026	0.09141	0.08160	0.07245
3.5	0.09227	0.09805	0.09988	0.09556	0.08653	0.07682	0.06794
3.7	0.07324	0.08761	0.09304	0.09066	0.08192	0.07243	0.06387
3.9	0.05654	0.07847	0.08698	0.08618	0.07770	0.06844	0.06019
4.1	0.04978	0.07395	0.08315	0.08239	0.07387	0.06480	0.05685
4.3	0.05299	0.07384	0.08133	0.07917	0.07040	0.06149	0.05382
4.5	0.06076	0.07566	0.08037	0.07627	0.06720	0.05845	0.05106
4.7	0.06655	0.07666	0.07913	0.07349	0.06422	0.05566	0.04854
4.9	0.06638	0.07538	0.07709	0.07074	0.06143	0.05308	0.04623
5.1	0.06044	0.07206	0.07438	0.06805	0.05882	0.05069	0.04410
5.3	0.05222	0.06809	0.07155	0.06549	0.05639	0.04848	0.04214
5.5	0.04604	0.06494	0.06908	0.06310	0.05411	0.04644	0.04033
5.7	0.04437	0.06333	0.06718	0.06089	0.05199	0.04454	0.03866
5.9	0.04663	0.06295	0.06571	0.05883	0.05000	0.04277	0.03711
6.1	0.05001	0.06291	0.06438	0.05687	0.04814	0.04112	0.03567
6.3	0.05160	0.06237	0.06294	0.05499	0.04638	0.03958	0.03433
6.5	0.05012	0.06098	0.06130	0.05318	0.04473	0.03814	0.03308

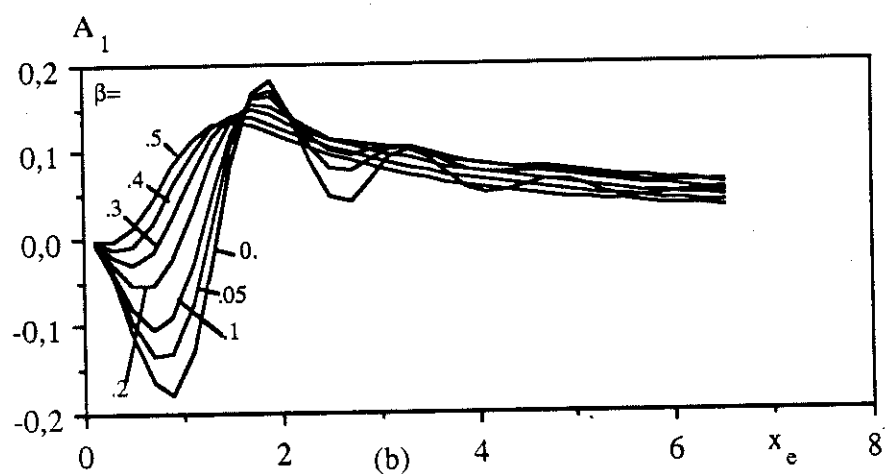
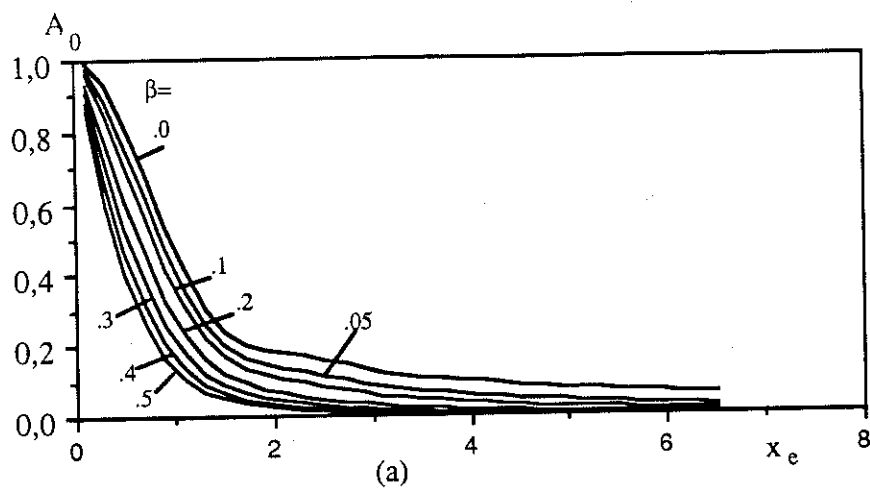
A_1

$x_e \backslash \beta$	0.0	0.05	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5
0.1	-0.00242	-0.00228	-0.00211	-0.00174	-0.00131	-0.00086	-0.00036
0.3	-0.01435	-0.01170	-0.00920	-0.00468	-0.00081	0.00240	0.00498
0.5	-0.00860	-0.00240	0.00271	0.01014	0.01452	0.01655	0.01682
0.7	0.03767	0.04005	0.04081	0.03883	0.03392	0.02755	0.02067
0.9	0.10692	0.09340	0.08063	0.05768	0.03843	0.02276	0.01035
1.1	0.14706	0.11450	0.08785	0.04811	0.02144	0.00369	-0.00792
1.3	0.11516	0.07771	0.04969	0.01293	-0.00762	-0.01882	-0.02448
1.5	0.01825	-0.00118	-0.01417	-0.02834	-0.03378	-0.03490	-0.03385
1.7	-0.08771	-0.07679	-0.06823	-0.05598	-0.04759	-0.04122	-0.03597
1.9	-0.14040	-0.10920	-0.08793	-0.06259	-0.04879	-0.04004	-0.03365
2.1	-0.11782	-0.09123	-0.07382	-0.05379	-0.04283	-0.03546	-0.02972
2.3	-0.05009	-0.04765	-0.04528	-0.04054	-0.03559	-0.03060	-0.02587
2.5	0.00947	-0.01193	-0.02324	-0.03098	-0.03025	-0.02676	-0.02264
2.7	0.02550	-0.00235	-0.01700	-0.02731	-0.02722	-0.02393	-0.01998
2.9	0.00065	-0.01488	-0.02284	-0.02739	-0.02549	-0.02168	-0.01770
3.1	-0.03606	-0.03292	-0.03123	-0.02807	-0.02400	-0.01966	-0.01567
3.3	-0.05614	-0.04215	-0.03493	-0.02746	-0.02227	-0.01774	-0.01384
3.5	-0.05032	-0.03873	-0.03243	-0.02542	-0.02033	-0.01592	-0.01220
3.7	-0.02849	-0.02789	-0.02655	-0.02278	-0.01839	-0.01425	-0.01075
3.9	-0.00732	-0.01752	-0.02104	-0.02038	-0.01665	-0.01276	-0.00946
4.1	0.00192	-0.01262	-0.01809	-0.01864	-0.01517	-0.01145	-0.00833
4.3	-0.00205	-0.01353	-0.01772	-0.01747	-0.01391	-0.01029	-0.00733
4.5	-0.01302	-0.01738	-0.01861	-0.01660	-0.01279	-0.00925	-0.00645
4.7	-0.02258	-0.02058	-0.01924	-0.01576	-0.01176	-0.00831	-0.00565
4.9	-0.02489	-0.02097	-0.01882	-0.01483	-0.01080	-0.00747	-0.00495
5.1	-0.01926	-0.01851	-0.01742	-0.01384	-0.00990	-0.00669	-0.00432
5.3	-0.00974	-0.01487	-0.01568	-0.01287	-0.00907	-0.00599	-0.00375
5.5	-0.00217	-0.01205	-0.01429	-0.01200	-0.00831	-0.00536	-0.00324
5.7	-0.00039	-0.01115	-0.01356	-0.01125	-0.00761	-0.00478	-0.00278
5.9	-0.00409	-0.01193	-0.01336	-0.01057	-0.00696	-0.00425	-0.00237
6.1	-0.00964	-0.01324	-0.01331	-0.00994	-0.00636	-0.00376	-0.00200
6.3	-0.01299	-0.01390	-0.01307	-0.00931	-0.00579	-0.00332	-0.00166
6.5	-0.01222	-0.01340	-0.01249	-0.00868	-0.00526	-0.00291	-0.00136

A_2

Tableau VI-1 : Les fonctions A_0 , A_1 et A_2

en fonction de x_e pour plusieurs valeurs de β



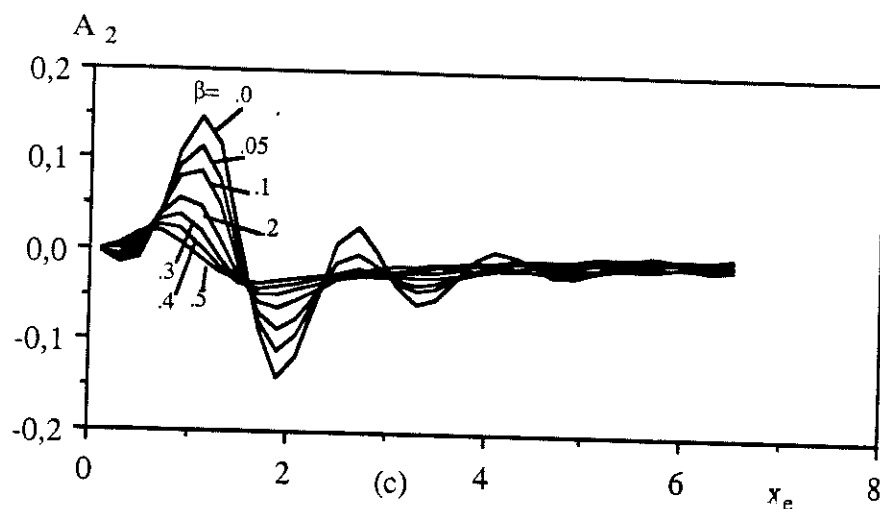


Fig. VI-3 : Les fonctions A_0 , A_1 et A_2 en fonction
de x_e pour plusieurs valeurs de β données

B - 2 Calcul de y_i .

Si on définit le paramètre x_i par la relation suivante :

$$x_i = \beta x_e$$

et en remplaçant $I_h^{i,0}$ par sa valeur, y_i peut s'écrire :

$$y_i = (1 - E^2) \eta_i (x_e, \beta, \sin \theta) \quad (\text{VI-14})$$

où

$$\eta_i = \frac{1}{v} \int_v I_0 \left(2 x_i \sqrt{s_1 s_2} \right) \exp(-x_i (s_1 + s_2)) \quad (\text{VI-15})$$

La méthode de Gauss est aussi utilisée (16 points dans chaque directions). Dans la Fig. VI-4, on voit que η_i est presque linéaire donc η_i peut être considéré comme un polynôme de 2ème degré en fonction de $\sin^2 \theta$:

$$\eta_i = B_0(x_i) + B_1(x_i) \sin^2 \theta + B_2(x_i) \sin^4 \theta \quad (\text{VI-16})$$

où les fonctions B_0 , B_1 et B_2 sont obtenues par la méthode des moindres carrés, Fig. VI-5 et tableau VI-2.

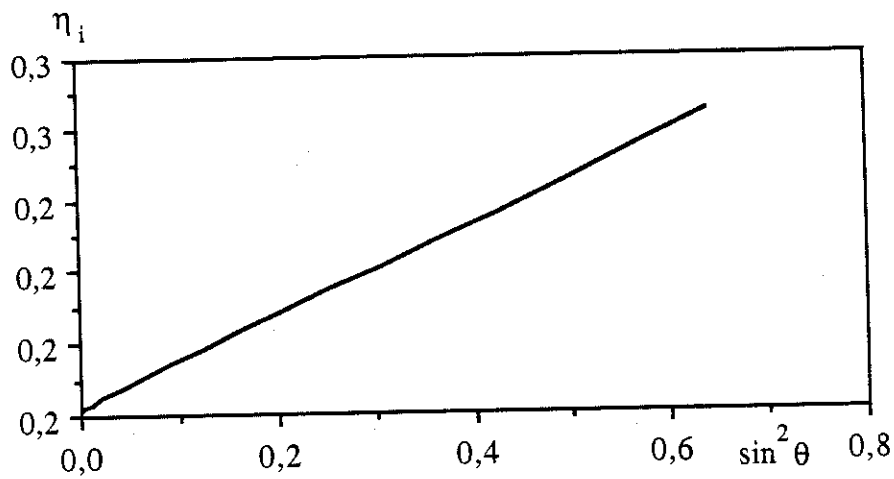


Fig. VI-4 : η_i en fonction de $\sin^2 \theta$ pour $x_i = 2$

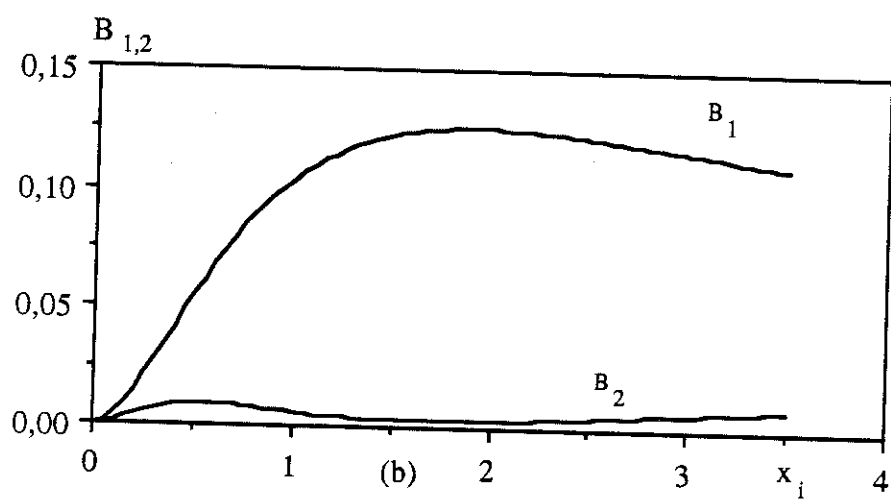
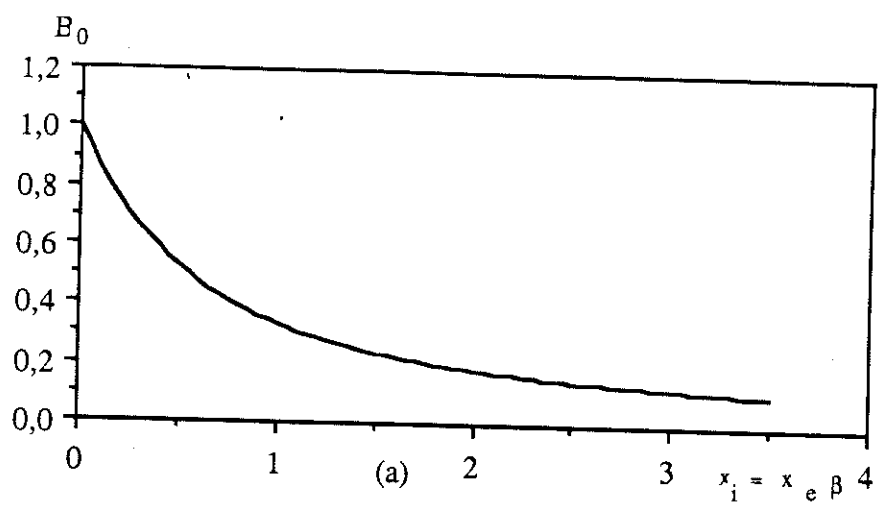


Fig. VI-5 : Les fonctions B_0 , B_1 et B_2 en fonction de x_i

x_i	B_0	B_1	B_2	x_i	B_0	B_1	B_2
0.00	1.00000	0.00000	0.00000	1.80	0.20078	0.12595	0.00288
0.05	0.92885	0.00102	0.00042	1.85	0.19578	0.12607	0.00295
0.10	0.86478	0.00412	0.00157	1.90	0.19101	0.12611	0.00303
0.15	0.80696	0.00874	0.00302	1.95	0.18646	0.12607	0.00313
0.20	0.75468	0.01444	0.00450	2.00	0.18212	0.12597	0.00325
0.25	0.70733	0.02086	0.00586	2.05	0.17797	0.12582	0.00338
0.30	0.66434	0.02770	0.00701	2.10	0.17399	0.12560	0.00352
0.35	0.62525	0.03475	0.00791	2.15	0.17019	0.12534	0.00367
0.40	0.58962	0.04183	0.00856	2.20	0.16654	0.12503	0.00384
0.45	0.55710	0.04880	0.00898	2.25	0.16305	0.12468	0.00401
0.50	0.52734	0.05558	0.00918	2.30	0.15969	0.12430	0.00419
0.55	0.50008	0.06208	0.00921	2.35	0.15646	0.12388	0.00437
0.60	0.47504	0.06827	0.00908	2.40	0.15336	0.12344	0.00456
0.65	0.45200	0.07410	0.00883	2.45	0.15038	0.12296	0.00476
0.70	0.43077	0.07956	0.00850	2.50	0.14751	0.12247	0.00495
0.75	0.41117	0.08464	0.00810	2.55	0.14474	0.12195	0.00515
0.80	0.39304	0.08934	0.00765	2.60	0.14208	0.12141	0.00536
0.85	0.37624	0.09367	0.00719	2.65	0.13951	0.12086	0.00556
0.90	0.36064	0.09764	0.00671	2.70	0.13702	0.12029	0.00577
0.95	0.34615	0.10126	0.00624	2.75	0.13463	0.11971	0.00598
1.00	0.33264	0.10454	0.00579	2.80	0.13231	0.11912	0.00618
1.05	0.32005	0.10752	0.00536	2.85	0.13007	0.11852	0.00639
1.10	0.30828	0.11019	0.00495	2.90	0.12791	0.11791	0.00659
1.15	0.29727	0.11259	0.00458	2.95	0.12582	0.11730	0.00680
1.20	0.28696	0.11473	0.00424	3.00	0.12379	0.11667	0.00700
1.25	0.27727	0.11663	0.00394	3.05	0.12182	0.11605	0.00721
1.30	0.26817	0.11831	0.00368	3.10	0.11992	0.11541	0.00741
1.35	0.25961	0.11977	0.00346	3.15	0.11807	0.11478	0.00761
1.40	0.25153	0.12105	0.00327	3.20	0.11628	0.11414	0.00780
1.45	0.24392	0.12214	0.00311	3.25	0.11454	0.11350	0.00800
1.50	0.23672	0.12308	0.00299	3.30	0.11285	0.11287	0.00819
1.55	0.22991	0.12386	0.00291	3.35	0.11121	0.11223	0.00838
1.60	0.22346	0.12451	0.00285	3.40	0.10962	0.11159	0.00857
1.65	0.21735	0.12503	0.00282	3.45	0.10807	0.11095	0.00875
1.70	0.21154	0.12544	0.00282	3.50	0.10657	0.11031	0.00893
1.75	0.20602	0.12574	0.00284				

Tableau VI-2 : B_0 , B_1 et B_2 en fonction de x_1

B - 3. Calcul de y_m

L'expression de y_m n'est pas aussi simple que celles de y_c et y_i :

$$y_m = E^2 (1 - E^2) \eta_m \quad (\text{VI-17})$$

Où :

$$\eta_m = 2 \frac{\tau}{\Lambda} \left[x C_x + 2 \frac{\tau}{\Lambda} x_e^2 C_\tau \right] \quad (\text{VI-18})$$

$$C_x(x_e, \beta, \sin \theta) = \frac{1}{v} \int_v [T_1 + \beta x_e (T_2 + T_9)] dv$$

$$C_\tau(x_e, \beta, \sin \theta) = \frac{1}{v} \int_v dv [T_9 - T_3 + x_e (-\beta T_4 + \sqrt{2} T_5 + \beta T_7) + x_e^2 (\sqrt{2} \beta T_6 - \sqrt{2} \beta T_8 - 2 T_{10})] \quad (\text{VI-19})$$

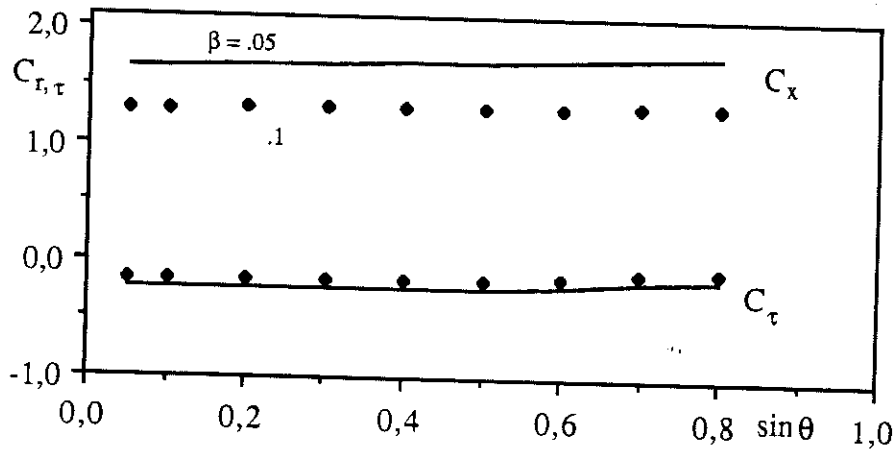
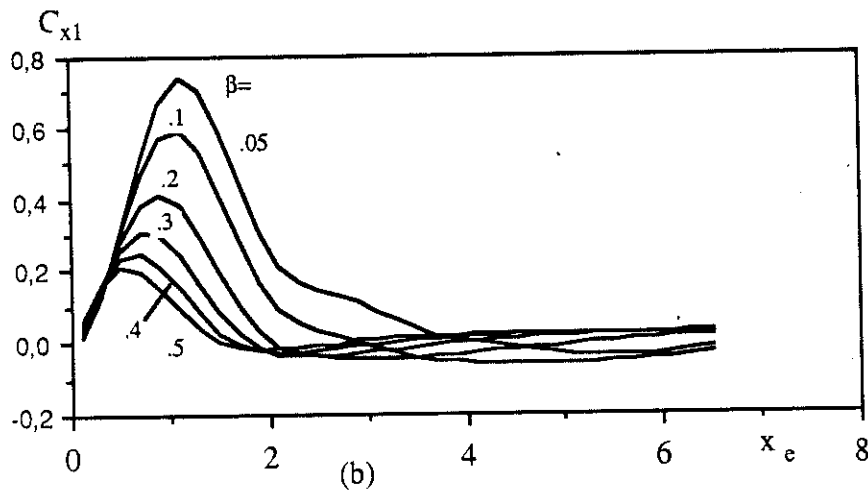
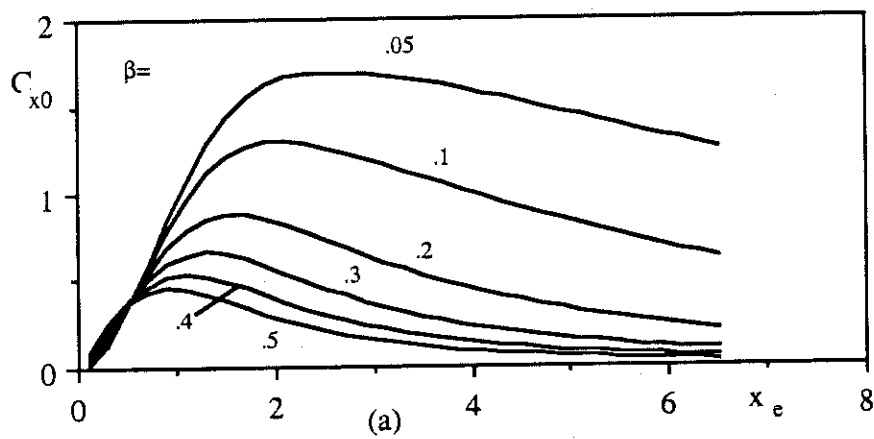


Fig. VI-2 : C_x et C_τ en fonction de $\sin \theta$ pour $x_e = 2.1$, $\beta = 0.05$ et 0.1 .

C_x et C_τ varient très lentement avec $\sin \theta$, Fig VI-6. Donc par le même raisonnement que celui utilisé pour calculer η_c et η_i , on trouve :

$$\begin{aligned}
C_x &= C_{x0}(x_e, \beta) + C_{x1}(x_e, \beta) \sin^2 \theta + C_{x2}(x_e, \beta) \sin^4 \theta \\
C_\tau &= C_{\tau0}(x_e, \beta) + C_{\tau1}(x_e, \beta) \sin^2 \theta + C_{\tau2}(x_e, \beta) \sin^4 \theta
\end{aligned}
\tag{VI-20}$$

Les coefficients C_{xi} et $C_{\tau i}$ ($i = 0, 1, 2$) sont présentés respectivement par la Fig. VI-7 et le tableau VI-3 et Fig. VI-8, tableau 4.



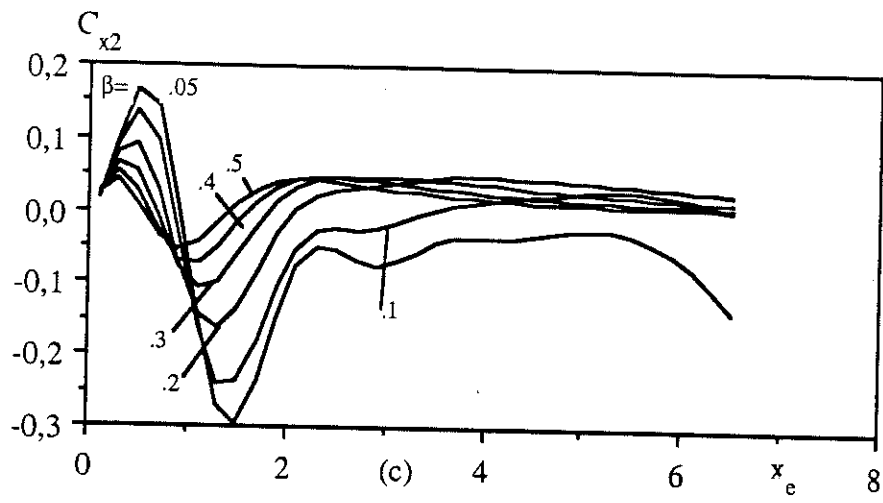
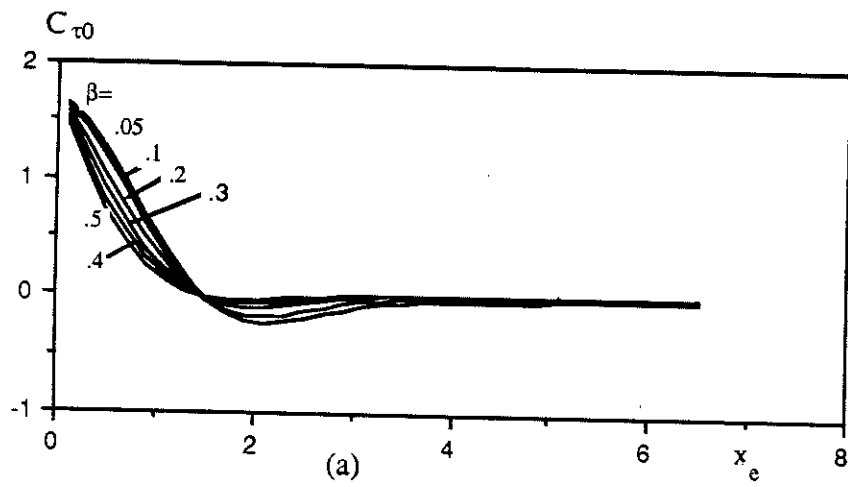


Fig. VI-7 : C_{x0} , C_{x1} et C_{x2} en fonction de x_e



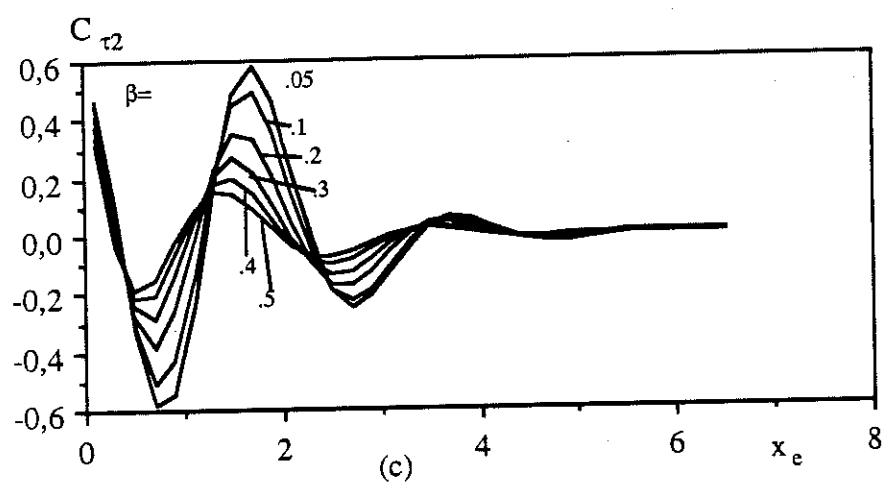
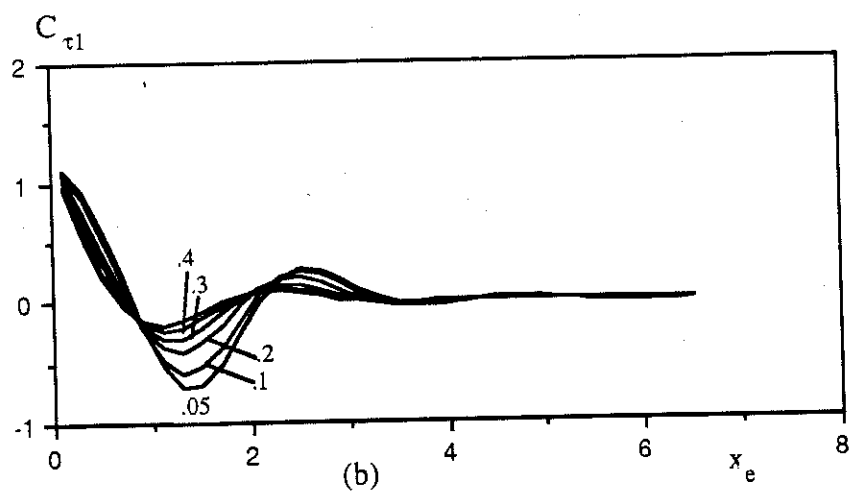


Fig. VI-7 : $C_{\tau 0}$, $C_{\tau 1}$ et $C_{\tau 2}$ en fonction de x_e

$x_e \backslash \beta$	0.05	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5
0.10	0.02195	0.02978	0.04485	0.05917	0.07276	0.08566
0.30	0.14028	0.15688	0.18608	0.21046	0.23063	0.24711
0.50	0.33635	0.34666	0.36088	0.36809	0.36982	0.36731
0.70	0.57826	0.56433	0.53389	0.50160	0.46883	0.43651
0.90	0.83322	0.77860	0.68066	0.59619	0.52339	0.46065
1.10	1.07308	0.96599	0.78826	0.64911	0.53927	0.45189
1.30	1.27804	1.11273	0.85367	0.66534	0.52657	0.42291
1.50	1.43790	1.21436	0.88097	0.65368	0.49581	0.38406
1.70	1.55134	1.27385	0.87815	0.62357	0.45582	0.34251
1.90	1.62380	1.29885	0.85437	0.58329	0.41294	0.30251
2.10	1.66456	1.29888	0.81799	0.53900	0.37112	0.26618
2.30	1.68366	1.28291	0.77543	0.49468	0.33240	0.23424
2.50	1.68956	1.25781	0.73092	0.45253	0.29759	0.20661
2.70	1.68791	1.22799	0.68686	0.41352	0.26676	0.18459
2.90	1.68156	1.19567	0.64438	0.37791	0.23965	0.16257
3.10	1.67141	1.16176	0.60390	0.34562	0.21734	0.14635
3.30	1.65755	1.12660	0.56556	0.31643	0.19502	0.13013
3.50	1.64012	1.09051	0.52942	0.29009	0.17671	0.11719
3.70	1.61961	1.05391	0.49549	0.26637	0.16062	0.10599
3.90	1.59677	1.01732	0.46383	0.24503	0.14646	0.09623
4.10	1.57244	0.98120	0.43437	0.22583	0.13397	0.08772
4.30	1.54725	0.94589	0.40704	0.20855	0.12291	0.08025
4.50	1.52155	0.91154	0.38173	0.19299	0.11310	0.07367
4.70	1.49551	0.87825	0.35830	0.17895	0.10436	0.06784
4.90	1.46913	0.84599	0.33661	0.16627	0.09656	0.06267
5.10	1.44245	0.81477	0.31652	0.15479	0.08958	0.05806
5.30	1.41555	0.78459	0.29793	0.14438	0.08329	0.05393
5.50	1.38856	0.75547	0.28070	0.13493	0.07764	0.05021
5.70	1.36162	0.72743	0.26475	0.12634	0.07252	0.04686
5.90	1.33485	0.70049	0.24996	0.11849	0.06787	0.04383
6.10	1.30832	0.67461	0.23624	0.11133	0.06367	0.04110
6.30	1.28207	0.64978	0.22352	0.10477	0.05983	0.03860
6.50	1.25613	0.62597	0.21170	0.09875	0.05633	0.03633

C_{x0}

$x_e \backslash \beta$	0.05	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5
0.10	0.01926	0.02443	0.03420	0.04319	0.05150	0.05913
0.30	0.13046	0.13792	0.14920	0.15635	0.16007	0.16095
0.50	0.30997	0.30148	0.28095	0.25749	0.23286	0.20826
0.70	0.50820	0.46290	0.38019	0.30855	0.24773	0.19703
0.90	0.66672	0.57119	0.41529	0.29816	0.21144	0.14806
1.10	0.73794	0.59446	0.38084	0.23940	0.14722	0.08824
1.30	0.70523	0.53217	0.29607	0.15835	0.08011	0.03729
1.50	0.59026	0.41332	0.19247	0.08040	0.02671	0.00347
1.70	0.44062	0.28019	0.09852	0.02113	-0.00710	-0.01355
1.90	0.30514	0.16822	0.03013	-0.01534	-0.02346	-0.01844
2.10	0.21225	0.09342	-0.01077	-0.03289	-0.02778	-0.01638
2.30	0.16344	0.05235	-0.03093	-0.03806	-0.02533	-0.01126
2.50	0.14217	0.03157	-0.03937	-0.03683	-0.02005	-0.00537
2.70	0.12836	0.01748	-0.04277	-0.03282	-0.01395	-0.00532
2.90	0.10999	0.00290	-0.04441	-0.02798	-0.00796	0.00526
3.10	0.08532	-0.01321	-0.04499	-0.02277	-0.00266	0.00910
3.30	0.05909	-0.02843	-0.04433	-0.01733	0.00264	0.01294
3.50	0.03649	-0.04042	-0.04214	-0.01191	0.00714	0.01582
3.70	0.01983	-0.04828	-0.03851	-0.00651	0.01101	0.01791
3.90	0.00855	-0.05277	-0.03406	-0.00151	0.01426	0.01964
4.10	0.00029	-0.05510	-0.02916	0.00309	0.01694	0.02084
4.30	-0.00708	-0.05647	-0.02414	0.00727	0.01914	0.02170
4.50	-0.01469	-0.05735	-0.01927	0.01096	0.02097	0.02237
4.70	-0.02246	-0.05793	-0.01454	0.01422	0.02239	0.02279
4.90	-0.02954	-0.05785	-0.01004	0.01704	0.02348	0.02286
5.10	-0.03506	-0.05695	-0.00565	0.01951	0.02426	0.02284
5.30	-0.03833	-0.05499	-0.00153	0.02155	0.02487	0.02261
5.50	-0.03926	-0.05219	0.00243	0.02326	0.02522	0.02254
5.70	-0.03800	-0.04856	0.00623	0.02471	0.02557	0.02234
5.90	-0.03461	-0.04439	0.00959	0.02588	0.02570	0.02206
6.10	-0.02936	-0.03977	0.01284	0.02694	0.02552	0.02149
6.30	-0.02250	-0.03493	0.01572	0.02772	0.02552	0.02114
6.50	-0.01449	-0.02998	0.01833	0.02833	0.02529	0.02064

C_{x1}

$x_e \backslash \beta$	0.05	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5
0.10	0.01569	0.01745	0.02050	0.02300	0.02496	0.02641
0.30	0.09820	0.09202	0.07944	0.06695	0.05512	0.04422
0.50	0.16773	0.13833	0.09018	0.05421	0.02799	0.00955
0.70	0.14300	0.09467	0.02845	-0.00883	-0.02727	-0.03394
0.90	0.01502	-0.02681	-0.06785	-0.07538	-0.06693	-0.05217
1.10	-0.15182	-0.16018	-0.14268	-0.10756	-0.07169	-0.04141
1.30	-0.27139	-0.23888	-0.16375	-0.09767	-0.04864	-0.01555
1.50	-0.29516	-0.23804	-0.13496	-0.06128	-0.01527	0.01069
1.70	-0.23589	-0.17951	-0.08213	-0.01960	0.01404	0.02930
1.90	-0.14609	-0.10646	-0.03174	0.01326	0.03341	0.03907
2.10	-0.07681	-0.05281	0.00250	0.03334	0.04318	0.04222
2.30	-0.04936	-0.02869	0.02016	0.04303	0.04636	0.04160
2.50	-0.05433	-0.02522	0.02780	0.04681	0.04616	0.03918
2.70	-0.06859	-0.02728	0.03190	0.04785	0.04444	0.03601
2.90	-0.07478	-0.02525	0.03594	0.04812	0.04203	0.03284
3.10	-0.06864	-0.01718	0.04039	0.04772	0.03928	0.02985
3.30	-0.05581	-0.00632	0.04450	0.04667	0.03653	0.02685
3.50	-0.04369	0.00361	0.04749	0.04514	0.03363	0.02405
3.70	-0.03623	0.01063	0.04892	0.04298	0.03088	0.02183
3.90	-0.03365	0.01504	0.04932	0.04072	0.02829	0.01964
4.10	-0.03346	0.01792	0.04897	0.03828	0.02595	0.01793
4.30	-0.03321	0.02052	0.04811	0.03584	0.02379	0.01633
4.50	-0.03149	0.02330	0.04714	0.03345	0.02172	0.01484
4.70	-0.02851	0.02634	0.04590	0.03116	0.01991	0.01344
4.90	-0.02549	0.02906	0.04458	0.02896	0.01831	0.01257
5.10	-0.02394	0.03100	0.04294	0.02689	0.01691	0.01165
5.30	-0.02544	0.03157	0.04123	0.02508	0.01562	0.01101
5.50	-0.03084	0.03081	0.03928	0.02337	0.01459	0.01007
5.70	-0.04074	0.02846	0.03703	0.02173	0.01332	0.00934
5.90	-0.05589	0.02468	0.03500	0.02027	0.01238	0.00869
6.10	-0.07662	0.01945	0.03266	0.01871	0.01180	0.00852
6.30	-0.10303	0.01303	0.03044	0.01741	0.01083	0.00792
6.50	-0.13455	0.00556	0.02825	0.01616	0.01030	0.00758

C_{x2}

Tableau VI-3 : C_{x0} , C_{x1} et C_{x2} en fonction de x_e pour
plusieurs valeurs de β

x_e/β	0.05	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5
0.10	1.63939	1.61907	1.57924	1.54049	1.50277	1.46608
0.30	1.49119	1.43670	1.33417	1.23965	1.15246	1.07202
0.50	1.25964	1.18435	1.04816	0.92900	0.82460	0.73304
0.70	0.97742	0.89721	0.75746	0.64118	0.54422	0.46319
0.90	0.67985	0.60951	0.49125	0.39744	0.32278	0.26317
1.10	0.39872	0.34940	0.26902	0.20789	0.16126	0.12555
1.30	0.15828	0.13606	0.10025	0.07354	0.05369	0.03893
1.50	-0.02682	-0.02102	-0.01422	-0.01109	-0.00970	-0.00908
1.70	-0.15159	-0.12124	-0.08003	-0.05527	-0.03996	-0.03015
1.90	-0.21943	-0.17086	-0.10681	-0.06977	-0.04772	-0.03412
2.10	-0.24011	-0.18079	-0.10592	-0.06511	-0.04213	-0.02869
2.30	-0.22692	-0.16392	-0.08850	-0.05031	-0.03037	-0.01944
2.50	-0.19413	-0.13286	-0.06408	-0.03241	-0.01742	-0.01003
2.70	-0.15423	-0.09806	-0.03973	-0.01611	-0.00649	-0.00391
2.90	-0.11651	-0.06678	-0.01984	-0.00388	0.00104	0.00221
3.10	-0.08636	-0.04289	-0.00629	0.00333	0.00339	0.00327
3.30	-0.06538	-0.02743	0.00096	0.00623	0.00573	0.00432
3.50	-0.05278	-0.01918	0.00313	0.00581	0.00459	0.00311
3.70	-0.04629	-0.01611	0.00221	0.00374	0.00258	0.00148
3.90	-0.04319	-0.01579	-0.00005	0.00122	0.00058	0.00000
4.10	-0.04133	-0.01621	-0.00225	-0.00076	-0.00084	-0.00089
4.30	-0.03919	-0.01604	-0.00347	-0.00186	-0.00150	-0.00124
4.50	-0.03615	-0.01485	-0.00357	-0.00195	-0.00144	-0.00109
4.70	-0.03218	-0.01270	-0.00276	-0.00128	-0.00090	-0.00054
4.90	-0.02772	-0.00998	-0.00152	-0.00041	-0.00011	-0.00011
5.10	-0.02336	-0.00719	-0.00009	0.00048	0.00054	0.00048
5.30	-0.01939	-0.00483	0.00089	0.00100	0.00076	0.00058
5.50	-0.01623	-0.00300	0.00152	0.00132	0.00088	0.00064
5.70	-0.01400	-0.00206	0.00158	0.00106	0.00082	0.00054
5.90	-0.01241	-0.00168	0.00125	0.00076	0.00041	0.00027
6.10	-0.01142	-0.00156	0.00080	0.00037	0.00013	0.00007
6.30	-0.01077	-0.00167	0.00032	0.00011	0.00000	-0.00011
6.50	-0.00999	-0.00186	0.00005	0.00001	-0.00006	-0.00008

$C_{\tau 0}$

$x_e \backslash \beta$	0.05	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5
0.10	1.11011	1.08990	1.05045	1.01228	0.97543	0.93985
0.30	0.92302	0.87043	0.77341	0.68633	0.60837	0.53860
0.50	0.60882	0.54336	0.43066	0.33876	0.26421	0.20386
0.70	0.20959	0.15932	0.08188	0.02856	-0.00740	-0.03067
0.90	-0.20082	-0.20726	-0.20602	-0.19360	-0.17559	-0.15570
1.10	-0.53015	-0.47587	-0.37976	-0.30040	-0.23636	-0.18537
1.30	-0.70112	-0.59037	-0.41781	-0.29554	-0.20928	-0.14837
1.50	-0.68332	-0.54077	-0.33758	-0.20948	-0.12887	-0.07803
1.70	-0.50663	-0.36690	-0.18542	-0.08583	-0.03208	-0.00362
1.90	-0.24681	-0.13953	-0.01823	0.03295	0.05104	0.05418
2.10	0.00806	0.06836	0.11566	0.11654	0.10237	0.08531
2.30	0.18935	0.20567	0.18938	0.15219	0.11722	0.08889
2.50	0.26908	0.25511	0.19932	0.14337	0.10100	0.07171
2.70	0.25689	0.22994	0.16107	0.10468	0.06712	0.04368
2.90	0.18663	0.15970	0.09835	0.05441	0.02906	0.01564
3.10	0.09857	0.07831	0.03523	0.00958	0.0046	-0.00043
3.30	0.02374	0.01212	-0.01152	-0.02017	-0.01986	-0.01649
3.50	-0.02160	-0.02687	-0.03445	-0.03105	-0.02414	-0.01700
3.70	-0.03580	-0.03733	-0.03570	-0.02732	-0.01836	-0.01189
3.90	-0.02674	-0.02705	-0.02318	-0.01511	-0.00805	-0.00341
4.10	-0.00714	-0.00773	-0.00576	-0.00134	0.00236	0.00378
4.30	0.01290	0.01059	0.00862	0.00978	0.00875	0.00797
4.50	0.02569	0.02199	0.01608	0.01407	0.01081	0.00894
4.70	0.02921	0.02458	0.01707	0.01201	0.00957	0.00587
4.90	0.02536	0.02028	0.01283	0.00846	0.00493	0.00322
5.10	0.01721	0.01134	0.00532	0.00231	0.00053	-0.00036
5.30	0.00631	0.00330	-0.00047	-0.00162	-0.00119	-0.00174
5.50	-0.00142	-0.00485	-0.00621	-0.00499	-0.00327	-0.00333
5.70	-0.00566	-0.00763	-0.00733	-0.00473	-0.00450	-0.00235
5.90	-0.00726	-0.00761	-0.00581	-0.00395	-0.00180	-0.00129
6.10	-0.00638	-0.00631	-0.00397	-0.00162	-0.00042	-0.00047
6.30	-0.00366	-0.00459	-0.00204	0.00035	0.00097	0.00113
6.50	-0.00136	-0.00007	0.00052	0.00020	-0.00004	0.00066

C_{T1}

$x_e \backslash \beta$	0.05	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5
0.10	0.46238	0.44360	0.40808	0.37501	0.34409	0.31526
0.30	0.11332	0.08605	0.04109	0.00702	-0.01838	-0.03675
0.50	-0.32092	-0.30769	-0.27782	-0.24583	-0.21408	-0.18366
0.70	-0.58629	-0.51000	-0.38274	-0.28408	-0.20768	-0.14910
0.90	-0.54418	-0.42892	-0.25923	-0.14764	-0.07528	-0.02885
1.10	-0.23396	-0.13407	-0.00946	0.05231	0.07926	0.08737
1.30	0.17394	0.21024	0.22720	0.20878	0.17905	0.14855
1.50	0.48534	0.44420	0.35017	0.26438	0.19613	0.14489
1.70	0.58335	0.48871	0.33082	0.21833	0.14308	0.09391
1.90	0.46786	0.36197	0.20494	0.10943	0.05484	0.02484
2.10	0.22751	0.14709	0.04087	-0.01006	-0.03046	-0.03554
2.30	-0.02021	-0.05966	-0.09736	-0.09831	-0.08582	-0.06967
2.50	-0.18918	-0.19144	-0.17082	-0.13478	-0.10068	-0.07397
2.70	-0.24658	-0.22776	-0.17436	-0.12190	-0.08189	-0.04967
2.90	-0.20983	-0.18517	-0.12650	-0.07716	-0.04463	-0.02536
3.10	-0.12287	-0.10311	-0.05741	-0.02405	-0.01119	-0.00233
3.30	-0.03160	-0.02109	0.00463	0.01860	0.02226	0.02071
3.50	0.03306	0.03583	0.04196	0.03958	0.03321	0.02510
3.70	0.06015	0.05756	0.05060	0.04060	0.02941	0.02111
3.90	0.05385	0.04901	0.03850	0.02745	0.01749	0.01038
4.10	0.02965	0.02478	0.01630	0.00930	0.00293	0.00015
4.30	0.00096	-0.00151	-0.00423	-0.00727	-0.00653	-0.00682
4.50	-0.01968	-0.02016	-0.01636	-0.01464	-0.01072	-0.00929
4.70	-0.02873	-0.02721	-0.02056	-0.01356	-0.01101	-0.00598
4.90	-0.02772	-0.02449	-0.01678	-0.01060	-0.00571	-0.00284
5.10	-0.02010	-0.01487	-0.00788	-0.00276	-0.00047	0.00125
5.30	-0.00705	-0.00617	-0.00110	0.00228	0.00203	0.00269
5.50	0.00178	0.00465	0.00727	0.00666	0.00500	0.00522
5.70	0.00805	0.00799	0.00862	0.00684	0.00722	0.00402
5.90	0.01029	0.00876	0.00718	0.00625	0.00312	0.00272
6.10	0.01024	0.00792	0.00579	0.00309	0.00178	0.00175
6.30	0.00743	0.00660	0.00423	0.00061	0.00022	-0.00091
6.50	0.00516	0.00047	0.00093	0.00134	0.00154	0.00057

C_{τ_2}

Tableau VI-3 : C_{τ_0} , C_{τ_1} et C_{τ_2} en fonction de x_e pour

plusieurs valeurs de β

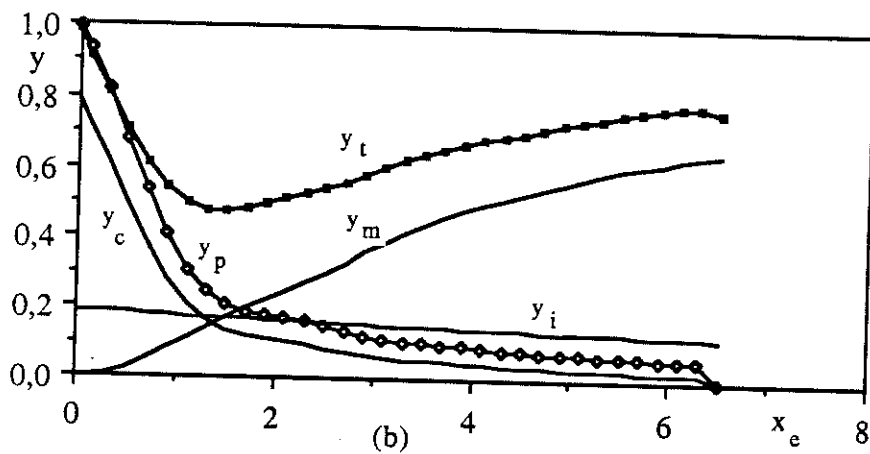
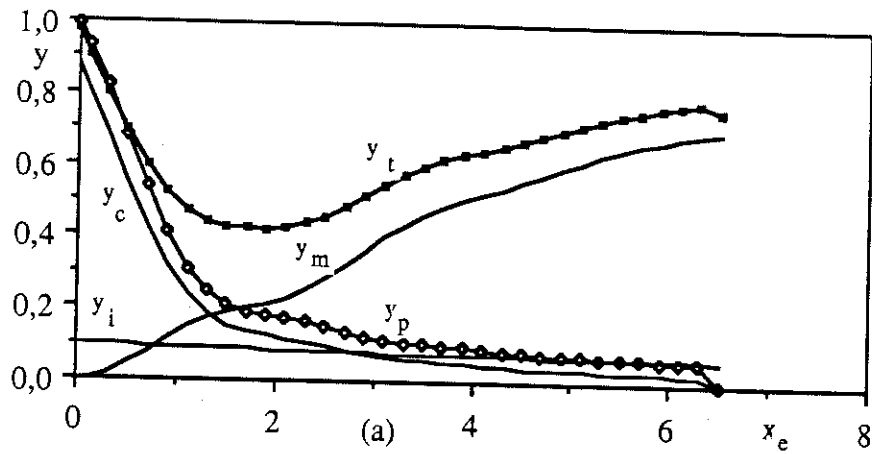


Fig. VI-9 : Le facteur de l'extinction y_x en fonction de x_e pour $\sin \theta = 0.1$, :

(a) : $E = 0.95$ et $\tau/\Lambda = 0.48719$

(b) : $E = 0.90$ et $\tau/\Lambda = 0.23685$

Nous présentons dans la Fig. VI-9, deux exemples qui montrent les différentes composantes de y_t et nous les comparons avec le facteur d'extinction primaire y_p .

On remarque que la composante mixte y_m pour $x_e > 2$, devient beaucoup plus importante que les autres, même de y_p . Par conséquent y_p devient négligeable devant y_t . Donc un tel cristal ne peut pas être considéré comme un cristal ni parfait, ni imparfait.

CONCLUSION

CONCLUSION

Le travail qui vient d'être présenté a permis de proposer une théorie self-consistante de la diffraction par un cristal statistiquement déformé.

Nous avons en particulier discuté les bases d'une approche statistique de la diffraction. Rappelons que le succès de la méthode repose sur la possibilité de remplacer le cristal particulier que l'on désire étudier par un cristal modèle donnant le même spectre de diffraction, mais à partir d'une distribution homogène des imperfections et caractérisé par un paramètre d'ordre à grande distance E et un paramètre d'ordre à courte distance τ (ce dernier représentant la longueur de corrélation des fluctuations de phase).

Partant de deux cas extrêmes, le cristal parfait ($E = 1$) et le cristal idéalement imparfait ($E = 0$), nous avons pu calibrer une méthode de solutions pour un cristal de forme isotrope.

Dans le cas général, nous avons pu montrer que la paramétrisation proposée par Kato n'était pas satisfaisante, une des longueurs caractéristiques du problème étant d'un ordre de grandeur totalement différent.

Nous avons pu appliquer nos modèles à des résultats expérimentaux concernant le silicium et ces confrontations se sont révélées très satisfaisantes. Bien entendu, ces expériences concernent des cristaux à fort degré de perfection et il est indispensable dans un proche avenir de confronter cette théorie à des mesures beaucoup plus variées.

Nous pensons que les mesures par diffraction γ sur divers échantillons de silicium sont très bien adaptées à tester la validité d'une théorie. En effet, la géométrie de l'expérience étant très simplifiée, la confrontation concerne directement la physique du processus et non pas les complications dues aux conditions géométriques imposées par le cristal. Les échanges de vue avec J. Schneider nous incitent à envisager de telles études par la suite.

Contrairement à des idées généralement acquises, nous pensons que les cristaux qui sont utilisés en diffractométrie X ou neutrons sont très éloignés d'un modèle mosaïque. En fait il est probable que pour la plupart des échantillons naturels, E reste grand. Les paramètres E et τ

peuvent jouer un rôle dans des estimations d'énergie libre associée à la croissance cristalline. Leur variation peut être importante lors de transitions de phase cristalline. Des expériences très récentes utilisant le rayonnement synchrotron (J. Schneider...) semblent permettre de mesurer le champ de déformation. De telles mesures sont, bien entendu, irremplaçables quant à la description de l'état de perfection de l'échantillon et devraient aider à cerner les limites d'un modèle statistique.

D'autre part, pour des raisons évidentes de moindre complexité, nous avons éliminé le cas des échantillons absorbants. Ce problème devrait être repris, d'autant que si E est grand, l'absorption anormale est appelée à jouer un rôle important.

Nous espérons que le modèle proposé puisse remplacer progressivement dans les programmes de moindres carrés, les modèles phénoménologiques utilisés jusqu'à ce jour.



REFERENCES

REFERENCES

- Al Haddad M. and Becker P. (1988) *Acta cryst.*, **A44**, 262-270.
- Al Haddad M. and Becker P. (1989) *Acta Cryst.* **A45**, Accepted
- Authier A. (1970) *Advanc. Struct. Res. Diff. Meth.*, **3**, 1-51.
- Authier A., Malgrange C. et Tournarie M. (1968) *Acta Cryst.*, **A24**, 126-136.
- Azaroff L., Kaplow R., Kato N., Weiss R., Wilson A. J. C., Young R. A. (1974) *X-Ray Diffraction*, (Mc Graw-Hill).
- Balibar F. and Malgrange C. (1975) *International Summer School on X-Ray Dynamical Theory and Topography* (Limoges, France).
- Batterman B. W., Cole H. (1964) *Rev. Mod. Phys.*, **36**, 681-717.
- Becker P. (1977a), *Acta Cryst.*, **A33**, 243-249.
- Becker P. (1977b), *Acta Cryst.*, **A33**, 667-671.
- Becker P. (1980) *Electron and Magnetization Densities in Molecules and Crystals* (Plenum).
- Becker P. (1981) " The strategy of extinction corrections". *Cryst. Computing*, edited by Indian Acadademy of Science, p 301.
- Becker P. and Al Haddad M. (1989a) *Acta Cryst.*, **A45**, 333-337.
- Becker P. and Al Haddad M. (1989b) *Acta Cryst.*, **A45**, Accepted
- Becker P. and Al Haddad M. (1989c) *Soumis à Acta Cryst.*
- Becker P., Coppens P. (1974) *Acta Cryst.*, **A30**, 129-153.
- Becker P. and Dunstetter F. (1984) *Acta Cryst.*, **A40**, 241-251.
- Cooper M.J. and Rouse K.D. (1970), *Acta Cryst.*, **A26**, 214-223.
- Darwan C. G. (1914a) *Phil. Mag.*, **27**, 315-333.
- Darwan C. G. (1914b) *Phil. Mag.*, **27**, 675-690.
- Darwan C. G. (1922) *Phil. Mag.*, **43**, 800-824.
- Eberhart J. P. (1976) *Méthodes Physiques d'Etude des Minéraux et des Matériaux*.
- Epelboin Y. (1977) *Acta Cryst.*, **A33**, 758-767.

- Guigay J.P. (1988) ICNS'88 July, 12-15, Grenoble, France
- Guigay J.P. (1989) *Acta Cryst.*, **A45**, 241-244.
- Hamilton W. C. (1957) *Acta Cryst.*, **10**, 629-634.
- Hamilton W. C. (1963) *Acta Cryst.*, **16**, 609-611.
- Hohenberg P., Kohn W. (1964) *Phys. Rev.*, **136B**, 864.
- James R. W. (1963) *The Dynamical Theory of X-Ray Diffraction*, Solid State Physics, **15**, New York : Academic.
- Kato N. (1975) International Summer School on X-Ray Dynamical Theory and Topography (Limoges, France).
- Kato N. (1976a) *Acta Cryst.*, **A32**, 453-457.
- Kato N. (1976b) *Acta Cryst.*, **A32**, 458-466.
- Kato N. (1980) *Acta Cryst.*, **A36**, 763-778.
- Marshall W., Lovesey S. W. (1971) *Theory of Thermal Neutron Scattering* (Oxford)
- Olekhnovich N.M., Karpel A.L., Olekhnovich A.I. and Puzenkova L.D. (1983) *Acta Cryst.*, **A39**, 116-122.
- Schlenker M. (1975) International Summer School on X-Ray Dynamical Theory and Topography (Limoges, France).
- Schneider J.R., Gonçalves O.D., Rollason A.G., Bonse U., Lauer J. and Zulehner W. (1988) *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.*, **B29**, 661-674.
- Schneider J.R., Gonçalves O.D. and Hans A.G. (1988b) *Acta Cryst.*, **A44**, 461-467.
- Squires G. L. (1978) *Introduction to the Theory of Thermal Neutron Scattering* (Cambridge University Press).
- Tagaki S. (1969) *J. Phys. Soc. Japan*, **26**, 1239-1253.
- Taupin D. (1964) *Bull. Soc. Franç. Minér. Crist.*, **87**, 469-511.
- Werner J. A. (1974) *J. Appl. Phys.*, **45**, 3242-3254.
- Zachariasen W. H. (1945) *Theory of X-Ray Diffraction in Crystals* (John Wiley, New York).
- Zachariasen W. H. (1967) *Acta Cryst.*, **23**, 558-564.

RESUME

Nous avons proposé une théorie auto-cohérente de la diffraction par un cristal statistiquement déformé.

Cette théorie consiste à remplacer le cristal étudié par un cristal modèle donnant le même spectre de diffraction. Ce cristal contient une distribution homogène des imperfections qui est caractérisée par deux paramètres d'ordre, à grande et à courte distance.

Les deux cas extrêmes de cette théorie sont bien connus :

- ◇ Le premier concerne *le cristal parfait* (le paramètre à grande distance est égal à 1) : c'est *l'extinction primaire*.
- ◇ Le deuxième se rapportant *au cristal imparfait* (le paramètre à grande distance est égal à 0) : c'est *l'extinction secondaire*.

Nous apportons deux solutions pour le cristal réel :

- La première solution est analytique pour un cristal qui à la forme d'une plaque infinie dans la géométrie de transmission.
- La deuxième est numérique pour un cristal de forme convexe qui peut être remplacée par une sphère.

Des applications sur des données expérimentales sont faites et donnent des résultats satisfaisants.

MOTS CLEFS :

Diffraction (X, neutrons, γ)

Extinction

Théorie dynamique

Cristal réel

Corrélation de phase

Statistique

