

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

Université Abbes Laghrour Khenchela  
Faculté des Sciences et Technologies  
Département des Sciences de la Matière



**Polycopié du cours**

---

# RADIOCRISTALLOGRAPHIE

---

Par :

Dr. Rim Benali-Cherif

# *Avant propos*

Cristallography is a marvelous science for a young man or woman beginning research career  
André Guinier, 1974

*Ce polycopié est destiné aux étudiants de second cycle en chimie et en physique. C'est une mise en forme d'un cours que j'ai assuré pour les étudiants de 1<sup>ère</sup> année du Master de chimie-physique à l'université Abbes Laghrour Khenchela,*

*J'essaie de partager avec le lecteur cette expérience en présentant de la manière la plus simple et la plus abordable les principes de base et les éléments généraux de la radiocristallographie et de la cristallographie.*

*Ce support de cours consacré à la radiocristallographie décrit la production des rayons X et leurs propriétés, avec l'étude de la diffraction, l'interaction rayons X-matière ainsi que les conditions de diffraction. Des applications et des exercices illustrent les points importants de ce cours.*

*Entre l'analyse excessive des détails importants, les calculs mathématiques et les concepts physiques nécessaires mais qui risquent de décourager d'une part, et d'autre part la présentation simpliste qui illusionne, il s'agit de trouver une solution médiane, et de faire une étude qui soit aussi complète que possible tout en restant attrayante et abordable pour les étudiants du cycle Master. C'est le but que j'ai cherché en rédigeant ce polycopié.*

*J'ai accordé la plus grande attention à la fois à la présentation des nouveaux concepts, à la démonstration des phénomènes physiques observés en radiocristallographie et j'ai essayé de mettre entre les mains du lecteur un document de base qui lui permettra de faire connaissance avec cette science moderne qui date d'à peine d'un siècle.*

## Sommaire

<b>Avant propos</b>	
<b>Introduction générale</b>	<b>01</b>
<b><i>Chapitre I : Sources et propriétés des rayons X</i></b>	<b>03</b>
<b>I- PRINCIPAUX RAYONNEMENTS</b>	<b>04</b>
I-1- Les rayons X	05
I-2- Une époque fructueuse	05
<b>II- PRODUCTION DES RAYONS X</b>	<b>07</b>
II-1- Principe de production	07
II-2- Tube à rayons X	08
II-3- Fluorescence X	10
<b>III-SPECTRE D'UNE ANTICATHODE</b>	<b>13</b>
III-1-Spectre continu	13
III-2-Spectre de raies	16
<b>IV- EXEMPLE DE TUBES A RAYONS X</b>	<b>19</b>
IV-1-Tube de Crookes	19
IV-2-Tube de Coolidge	20
IV-3-Tube à haute intensité	20
Série de TD 1	22
<b><i>Chapitre II : Appareillage</i></b>	<b>24</b>
<b>I- LES DIFFRACTOMETRES</b>	<b>25</b>
I-1- Diffractomètre à monocristaux	25
I-2- Diffractomètre de poudres	27
<b>II-LE RAYONNEMENT SYNCHROTRON</b>	<b>28</b>
II-1- Principales propriétés du rayonnement synchrotron	30
II-2-Vers un mini synchrotron	31
<b><i>Chapitre III : Interaction des rayons X avec la matière</i></b>	<b>32</b>
<b>I-INTERACTION DES PHOTONS X AVEC LA MATIÈRE</b>	<b>33</b>
I-1- L'effet photoélectrique	34
I-2- Diffusion incohérente ou diffusion Compton	35
I-2- a- Relation entre l'angle $\theta$ de diffusion du photon et l'angle $\phi$ d'éjection de l'électron	37
a- Choc Frontal	37
b-Choc tangentiel	38
I-3-Effet création de paires ou matérialisation $\pi$	39

I-3-a-Quelques définitions	39
I-3-b-Effet création de paires	40
I-4-Effet Thomson	42
I-5-La diffusion Rayleigh	44
I-5-a-Généralité sur la diffusion	44
<b>II- ABSORPTION DES RAYONS X</b>	<b>47</b>
II-1- Coefficient d'absorption	47
II-2-Variation du coefficient d'absorption	48
II-2-a-Variation avec la longueur d'onde	48
II-2-b-Variation avec la nature de l'élément	49
II-3- Coefficient d'absorption massique d'un matériau composé	49
II-4-Application de l'absorption	49
II-4-a- Protection contre le rayonnement	49
II-4-b-Obtention d'un rayonnement monochromatique	50
<b>III- UTILISATION DES RAYONS X ET SECURITÉ</b>	<b>50</b>
Série de TD 2	50
<b><i>Chapitre IV : Détermination des directions et intensités des rayons diffractés</i></b>	<b>53</b>
<b>DIFFRACTION D'UNE ONDE PAR UN CRISTAL</b>	<b>54</b>
<b>I-CONDITION DE LAUE</b>	<b>55</b>
I-1-Nature du vecteur S	56
I-2-Domaine de diffraction	56
<b>II-LOI DE BRAGG</b>	<b>59</b>
II-1-Démonstration directe de la relation de Bragg	61
<b>III- CONSTRUCTION D'EWALD</b>	<b>62</b>
III-1-Exemple d'utilisation de cette construction	64
<b>IV-AMPLITUDE DIFFRACTÉE</b>	<b>64</b>
IV-1-Amplitude diffusé par un atome : facteur de diffusion	65
IV-2-Amplitude diffractée par le cristal : facteur de structure	65
<b>V-LES 14 RESEAUX DE BRAVAIS ET LES EXTINCTIONS SYSTEMATIQUES</b>	<b>67</b>
V-1-Relation entre $F_{hkl}$ et $I_{hkl}$ : Cas des extinctions systématiques	70
V-2- Plans de glissements et extinctions systématiques.	74
V-2-a- Plans de glissement perpendiculaire à un axe	75
V-2-b-Axes hélicoïdaux et extinction systématique	80
V-2-c-Tableau récapitulatif des conditions d'extinctions	83
Série de TD 3	84
<b>Liste bibliographique</b>	<b>86</b>

# Introduction générale



*Dorothy Hodgkin, spécialiste de radiocristallographie a étudié la structure de la pénicilline, de l'insuline, de la Vitamine B12. Elle reçut le prix Nobel de Chimie en 1964.*

# Introduction générale

*La radiocristallographie est l'instrument par excellence de la détermination de la structure de la matière à l'échelle de la molécule et de l'atome.*

*Avec le développement des moyens de détection, de l'informatique et de l'automatique, résoudre une structure devient déjà, dans beaucoup de cas, un travail de routine. Les programmes de calcul contiennent un ensemble impressionnant de connaissances et l'utilisateur peut se contenter parfois de « mode d'emploi »*

*Pourtant, l'appel croissant à la radiocristallographie, amène de nombreux utilisateurs à souhaiter à approfondir leurs connaissances en cristallographie et s'initier à cette science en étudiant quelques méthodes de diffraction des rayons X.*

*Les domaines d'application de la radiocristallographie prennent de l'essor d'année en année, et mon polycopié n'est qu'une modeste présentation de ce que j'estime d'essentiel et de basique pour appréhender cette science moderne.*

*Dans ce polycopié le **premier chapitre** intitulé 'sources et propriétés des rayons X' j'introduis la présentation, de quelques généralités décrivant les rayons X, tout en mettant l'accent sur leur importance, leur production ainsi que sur leurs domaines d'applications.*

*Dans le **second chapitre** de ce manuel « appareillage », j'ai exposé de façon simple les techniques classiques de la radiocristallographie. J'ai présenté à titre d'information et de manière succincte des techniques de caractérisation structurale.*

*Le **troisième chapitre** est consacré aux phénomènes d'interactions des rayons X avec la matière. J'ai parlé de manière simple de ces processus très complexes.*

*Dans le **quatrième chapitre** de ce polycopié j'ai discuté de manière claire et explicite les importantes conditions qui régissent l'apparition et la disparition (extinction) de faisceaux diffractés, conditions présentés de trois manières. Des conditions pour obtenir des interférences constructives ainsi que les conditions d'extinction systématiques.*

## Chapitre 1

# Sources et propriétés des rayons X



B. Röntgen hand



modern hand

## I. PRINCIPAUX RAYONNEMENTS

Les rayonnements peuvent être subdivisés en deux catégories :

- Les rayonnements électromagnétiques
- Les rayonnements corpusculaires

Les premiers, dont font partie la lumière, les ondes hertziennes, les rayons X, se manifestent sous leur aspect ondulatoire ou leur aspect photonique. Le rayonnement est considéré comme une onde de longueur d'onde  $\lambda$  se propageant dans le vide à la vitesse  $c$ . Sa fréquence est alors

$$\nu = c/\lambda.$$

D'aspect photonique lorsque le faisceau est considéré comme un ensemble de photons, d'énergie  $E$  donné par :

$$E = h\nu = hc/\lambda$$

$h$  : constante de Planck

$$\lambda \text{ (nm)} = 1241/E \text{ (eV)}$$

Le *tableau 01* indique l'ordre de grandeur de l'énergie de quelques rayonnements.

Les rayons X se différencient de la lumière visible par leur petite valeur de longueur d'onde, qui est de l'ordre des distances interatomiques de la matière condensée ( $\lambda \approx 0,1 \text{ nm}$ ), et aussi par une grande énergie photonique ( $> 10^4 \text{ eV}$ ), laquelle est comparable à l'énergie de liaison des électrons internes (alors que l'énergie lumineuse est proche de l'énergie de liaison des électrons externe)

Quant aux rayonnements corpusculaires (électrons, neutrons), Les particules de masse  $m$  se déplaçant à une vitesse  $v$  avec une énergie cinétique

$$E_c = \frac{1}{2} mv^2$$

Selon la théorie de dualisme onde-corpuscule de Louis DE BROGILE, on peut associer à ces corpuscules une onde, de longueur d'onde,  $\lambda$  tel que :

$$\lambda = h/mv$$

Il existe d'autres rayonnements très énergétiques comme le rayonnement  $\gamma$  (*tableau I-01*) produits lors de certaines désintégrations atomiques comme celle de l'isotope instable  $^{60}\text{Co}$ . Le  $^{60}\text{Co}$  se transforme en  $^{60}\text{Ni}$  à l'état excité par une désintégration beta (émission d'un électron), puis le Nickel passe à l'état fondamental en émettant deux rayons  $\gamma$  de 1,17 MeV et 1,33 MeV respectivement. Ils sont très pénétrants et utilisés en industrie comme source de rayonnements pour radiographier de pièces métalliques massives

**Tableau I-01.** Énergie des principaux rayonnements

<i>E</i> (eV)	10 <sup>-7</sup>	10 <sup>-1</sup>	1	10	10 <sup>3</sup>	10 <sup>6</sup>	10 <sup>8</sup>
Rayonnements électromagnétique	Ondes hertziennes		IR	Lumière	UV	RX	γ
Rayonnements corpusculaires		Neutrons thermiques			Electrons lents, rapides		

## I.1 LES RAYONS X.

Ils ont été découverts par Röntgen en 1895 et leur nature ondulatoire n'a été mise en évidence que dix huit ans après leur découverte, d'où leur nom rayons X (X pour inconnu). En 1913 avec la réalisation des premières expériences de diffraction suggérées par Von Laue qui réalisa leur diffraction par une lame cristalline (naissance de la radiocristallographie), vérifiant ainsi la théorie de Bravais sur la constitution réticulaire des cristaux. Ultérieurement, Barkla a montré le caractère transversal de ces ondes établissant ainsi qu'il s'agit bien d'ondes électromagnétiques.

Le domaine de longueur d'onde des rayons X va de 0.1 Å (limite des rayons γ) à 100 Å (limite de l'ultraviolet lointain) ; en termes d'énergies ceci correspond à la gamme 0,1 – 100 KeV. L'énergie (en électron-volt) d'un photon X de longueur d'onde λ (en Å) vaut :

$$E = \frac{12400}{\lambda}$$

$$(E = h \cdot \nu = h \cdot c/\lambda \text{ et } 1 \text{ eV} = 1,6 \cdot 10^{-19} \text{ joules})$$

En radiocristallographie on utilise des rayons X dont la longueur d'onde est comprise entre 0,5 et 2,5 Å

Ce rayonnement est surtout connu, au niveau du grand public, et cela depuis 1895, année de sa découverte, pour ses applications médicales (radiographie, radioscopie, tomographie, scanner etc.), mais après 1913 le chimiste, le physicien le métallurgiste, le cristallographe ne sauraient désormais s'en priver.

## I.2 Une époque fructueuse

**La découverte des rayons-X : Wilhelm Röntgen 1895**

Wilhelm Conrad Roentgen, professeur de physique allemand, a été le premier à découvrir le rayonnement électromagnétique dans une gamme de longueurs d'onde communément appelée rayons X aujourd'hui. Bien que de nombreuses personnes aient déjà observé les effets des faisceaux de rayons X, Röntgen a été le premier à les étudier systématiquement. Pour mettre en évidence la nature inconnue de sa découverte, il les a appelés rayons X bien qu'ils soient encore connus sous le nom de rayons Röntgen. Pour sa remarquable réalisation, il a été honoré du premier prix Nobel de physique en 1901.



Prix Nobel de physique (1901)

)

En 1895 Röntgen observe qu'à la décharge d'un tube, complètement enrobé de carton noir, scellé pour en exclure toute lumière et ceci dans une chambre noire, un carton couvert d'un côté de baryum platino-cyanide devient fluorescent lorsqu'il est frappé par les rayons émis du tube, et ce jusqu'à une distance de 2 mètres. Lors d'expériences subséquentes, il place divers objets entre une plaque photographique et la source de rayonnement et il se rend compte qu'ils ont une transparence variable. Il expérimente ensuite avec la main de sa femme placée sur le parcours du rayonnement. Au développement, il s'aperçoit que l'image est l'ombre des os de sa main, sa bague y étant bien visible, Il s'agit là de la première radiographie de l'humanité réalisée grâce aux propriétés de l'absorption des Rayons X.



### Découverte et étude d'éléments radioactifs comme source de rayons-X. Marie Curie 1898,

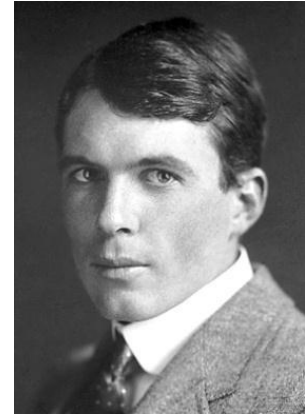
Son frère et son père inventent l'électromètre piézoélectrique qui lui permet de mesurer avec précision l'effet du rayonnement. Elle peut ainsi démontrer que le rayonnement n'est pas de source chimique, mais plutôt intrinsèque à l'atome lui-même. Elle purifie et isole de nouveaux éléments radioactifs, dont l'uranium, le polonium "en hommage à son pays d'origine", et le radium. Marie est à l'origine de la chimiothérapie et la radiothérapie via l'institut Curie. Lors de la première guerre mondiale, Marie met en place 18 ambulances équipées d'appareils de Röntgen pour faire des radiographies des malades. Ces ambulances sont nommées les Petites Curies.



Prix Nobel de physique (1903)  
Prix Nobel de chimie (1911)

**Loi de Bragg qui permet de localiser les atomes dans les cristaux. William Lawrence Bragg 1912,**

À 5 ans, William Lawrence fait une chute de tricycle et se casse le bras. Son père, australien d'origine qui avait pris connaissance des expériences de Röntgen en Europe, a alors utilisé les rayons-X récemment découverts pour examiner le bras cassé de son fils. Les rayons X étant d'intérêt dans la famille ce n'est que quelques années plus tard que William démontre la fameuse loi de diffraction appelé communément loi de Bragg. Son père construit ensuite le premier appareil à diffraction des rayons-X, appareil avec lequel il étudie plusieurs sels cristallins simples (NaCl, KCl etc.). .



Prix Nobel de physique (1915)

**II. PRODUCTION DES RAYONS X (INTERACTION ELECTRON-MATIERE)**

**II.1 Principe de production**

Les rayons X sont produits lors de l'impact d'électrons, accélérés par un champ électrique, sur une cible (anode ou anticathode). Le rendement du bombardement est faible comme l'indique la formule empirique suivante :

$$\eta = \frac{\text{énergie des photons}}{\text{énergie des électron}} = 1,1 \cdot 10^{-9} \cdot Z \cdot V$$

**Z** est le numéro atomique de la cible et

**V** le potentiel accélérateur des électrons (en V).

Pour une anticathode de tungstène alimentée sous 100 kV le rendement est de l'ordre de 0,8%. Le reste de l'énergie cinétique (99%) apportée par les électrons accélérés est dissipée sous forme de chaleur (effet joule).

Des rayons X sont alors produits par deux mécanismes distincts. D'une part, les électrons, se déplaçant à une vitesse très élevée, ont une énergie cinétique suffisante pour perturber les couches électroniques internes des atomes de la cible créant ainsi des lacunes. En comblant ces lacunes, ces atomes, dans un état excité, vont émettre des rayons X en retournant à leur état fondamental. D'autre part, le ralentissement des électrons dans la matière produit un rayonnement de freinage comportant des rayons X.

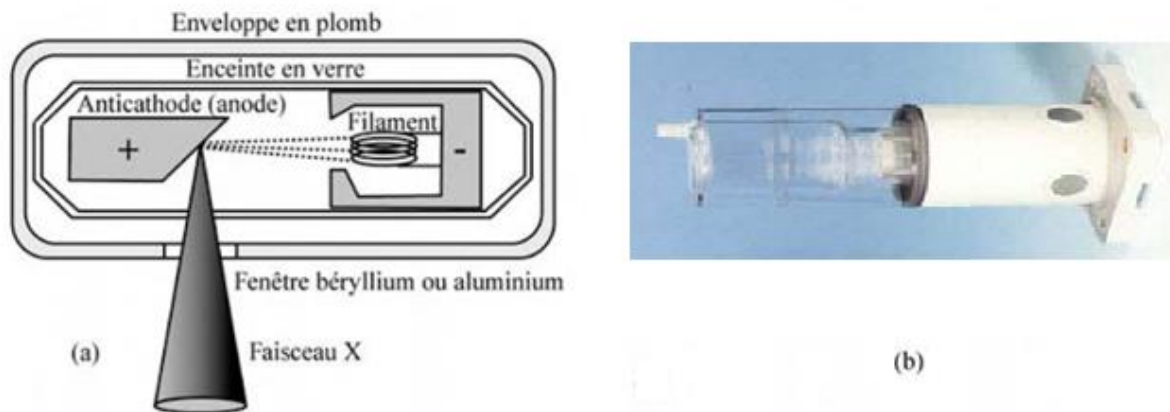
L'énergie cinétique des électrons incidents est déterminée par la tension d'accélération  $\Delta U$ :

$$E_{\text{cin}} = e \Delta U$$

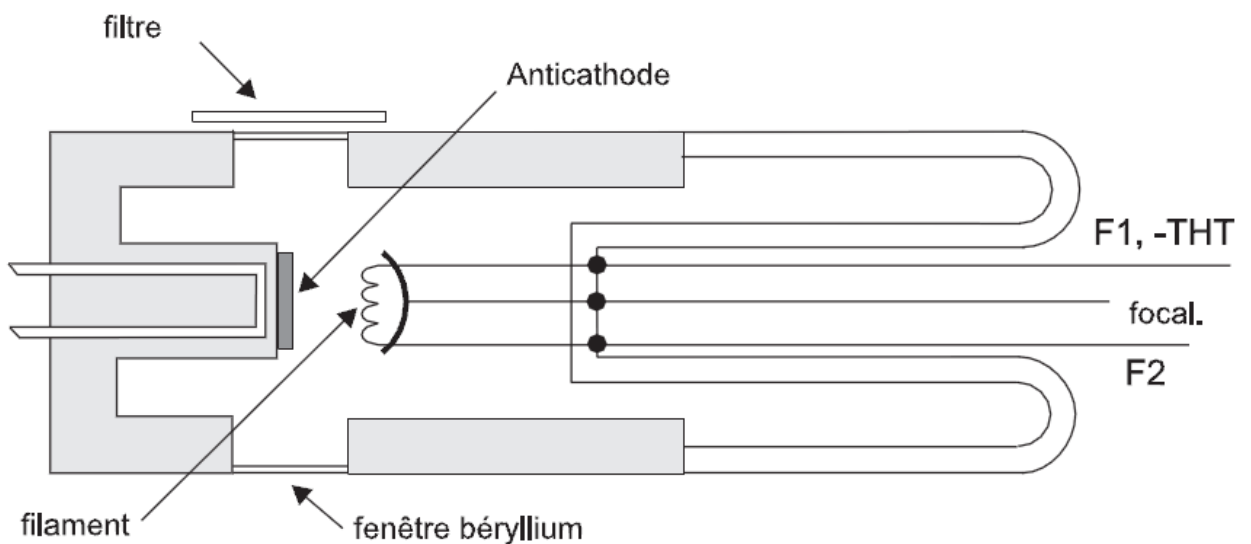
## II.2 Tube à rayons X

Par extension, les tubes générateurs de rayons X sont appelés aussi anticathodes.

Dans la pratique, un faisceau d'électrons est focalisé sur une cible appelée *anticathode*, ou *anode*. L'ensemble, filament chauffé producteur d'électrons et anode accélératrice, forment le *tube* sous forme d'une enceinte scellée sous vide poussé, condition nécessaire à la propagation des électrons. Le tube est équipé d'une fenêtre en béryllium, métal transparent aux rayons X. Ce dispositif, dit tube de COOLIDGE (*figure I-01*), est celui utilisé dans les laboratoires.



**Figure I-01.** Schéma (a) et photographie (b) d'un tube à rayons X de type COOLIDGE



**Figure I-02.** Anticathode ou tube à rayons X

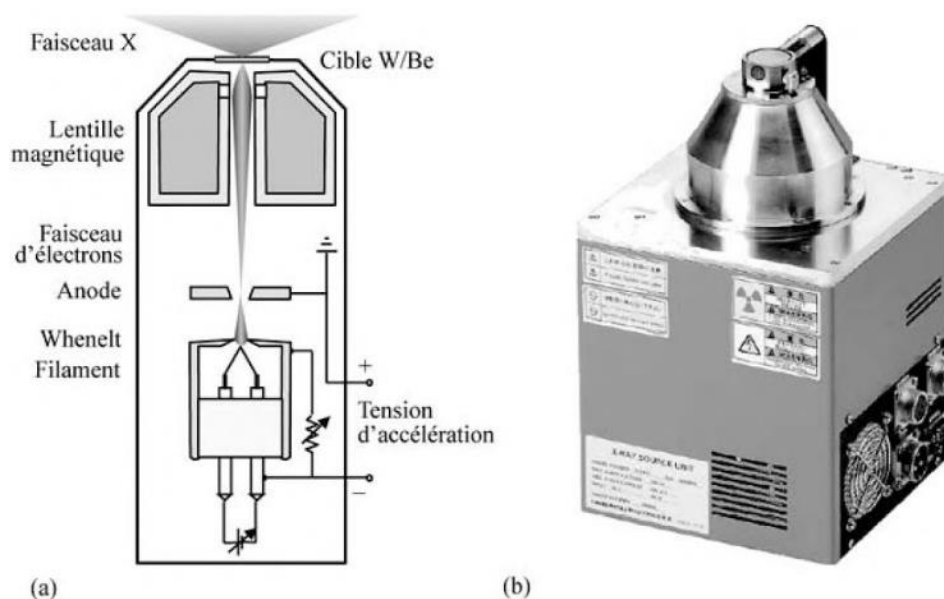
Le bombardement électronique produisant un échauffement (moins de 2% de l'énergie est transformée en émission X), le tube est refroidi par une circulation d'eau. Dans les installations délivrant une puissance d'émission X élevée et/ou garantissant une zone d'impact des électrons de faible taille (dite aussi *foyer*), le tube est doté d'une *anode tournante* refroidie pour éviter sa destruction. Le *tableau I-02* reproduit quelques données caractéristiques des tubes à rayons X. La *brillance* d'une source est définie comme le flux de photons par unités d'angle solide et de surface transverse de la source. Elle s'exprime donc en photons/s/mm<sup>2</sup>/mrad<sup>2</sup>.

**Tableau I-02.** Exemples de sources X et leurs caractéristiques (données *Rigaku Journal*, 2014)

	Puissance du tube (kW/mm <sup>2</sup> )	Taille du foyer (mm <sup>2</sup> )	Brillance (photons/s/mm <sup>2</sup> /mrad <sup>2</sup> )
Tubes scellés	2	10 x 1	5,8 10 <sup>7</sup>
	1,5	8 x 0,4	1,4 10 <sup>8</sup>
Anodes tournante	18	10 x 0,5	1,1 10 <sup>9</sup>
	3	2 x 0,2	2,2 10 <sup>9</sup>
Tube micro-foyer	0,0012	0,002 x 0,002	9,2 10 <sup>9</sup>

Le besoin d'accéder à des informations de plus en plus résolues spatialement, tant en mode diffraction qu'en imagerie par rayons X (radiographie, tomographie, microscopie X), pousse les constructeurs à développer de nouveaux tubes dit tubes à *microfoyer*. L'idée est de produire un faisceau issu d'une source réduite à quelques micromètres, voire moins. Le gain de taille passe par une bonne focalisation du faisceau d'électrons sur l'anode des tubes. Certains constructeurs font le choix de coupler une tube à anode tournante à une optique focalisante. D'autres, à l'image des canons à électrons des microscopes électroniques, choisissent de réaliser des tubes incluant une optique magnétique utilisée pour faire converger les électrons sur un dépôt mince supporté par la face arrière de la fenêtre en béryllium (*figure I-03*).

Ces tubes sont alimentés par une tension plus élevée que les tubes de type COOLIDGE ; ils sont plus particulièrement destinés à la radiographie et à la mamographie. Le dépôt mince à l'origine de l'émission X est classiquement un film de 5 µm de tungstène, de molybdène ou de cuivre.



**Figure 1-03.** Schéma d'un modèle de tube micro-foyer de rayons X (a) et photographie (b) de la source L10321 produite par HAMAMATSU au Japon (anode en tungstène ; tension du tube de 40 à 130 kV ;  $118^\circ$  d'ouverture angulaire ; taille de sonde de  $5\mu\text{m}$  à 4 W de puissance)

### II.3 Fluorescence X

Les rayons X une fois produits, s'ils ont l'énergie suffisante, peuvent à leur tour provoquer l'ionisation des atomes. La désexcitation qui en résulte est qualifiée de secondaire ou de *fluorescence*. Elle se distingue du rayonnement primaire par sa faible intensité et l'absence presque totale de fond continu. L'analyse du rayonnement X secondaire caractéristique nous renseigne sur la composition chimique de la cible, c'est le principe de la technique de fluorescence X qui est simple à mettre en œuvre et très résolue en terme de concentration minimale détectable (de l'ordre de  $1\mu\text{g/g}$ ).

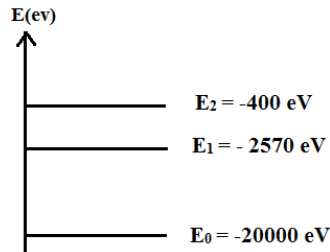
Ajoutons que le rendement de fluorescence, ou nombre de photons produits par atome ionisé, croît presque linéairement avec  $Z$  et que la fluorescence ne se produit que si l'énergie du photon primaire excède l'énergie de liaison d'un électron d'un niveau électronique des atomes de l'échantillon. Typiquement, un rayonnement  $K_\alpha$  primaire ne peut produire une émission  $K_\alpha$  secondaire que si l'atome source du faisceau primaire est de numéro atomique plus élevé que celui de la cible.

En radiocristallographie, cette fluorescence est plutôt nuisible et doit être éliminée (milieu absorbant ; monochromateur arrière ; choix d'un détecteur filtrant ; choix d'une longueur d'onde du faisceau primaire supérieure à celle associée aux raies K de l'échantillon à analyser)

## Exercice d'application

### 1. Les rayons X

L'émission d'un photon X par un métal est due à certaines transitions électroniques entre deux niveaux d'énergie. Le diagramme des niveaux d'énergie du molybdène est donné ci-dessous.



#### 1.1 Transitions électroniques.

1.1.a. Reproduire le schéma ci-dessus et indiquer par des flèches toutes les transitions envisageables qui s'accompagnent de l'émission d'un photon.

1.1.b. Calculer en électronvolts (eV), les variations d'énergies correspondant à ces transitions.

1.2 L'énergie  $E$  transportée par un photon X associé à un rayonnement de fréquence  $n$  est donnée par la relation de Planck :  $E = h.n$ .

1.2.a. Connaissant l'énergie  $E$  transportée par un photon X, donner la relation permettant de déterminer la longueur d'onde  $\lambda$  du rayonnement associé.

1.2.b. Quelle est, parmi les transitions envisagées, celle qui produit le photon X associé au rayonnement ayant la plus petite longueur d'onde ? Justifier.

1.2.c. Calculer la valeur de cette longueur d'onde.

### 2. La radiographie.

Le document ci-dessous correspond à la radiographie d'une main. La main placée contre la plaque sensible s'intercale entre la source de rayons X et la plaque.



En raisonnant sur les os et les tissus de la main, répondre aux questions suivantes :

2.1 Quelle partie de la main a absorbé le plus de rayons X ? Justifier la réponse.

2.2 Connaissant les éléments chimiques présents dans les os et les tissus, donner une explication possible justifiant la différence d'absorption qui apparaît sur la radiographie.

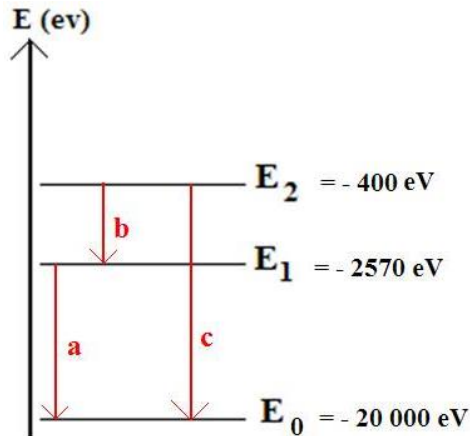
### Indications :

Les éléments calcium ( $Z = 20$ ) et phosphore ( $Z = 15$ ) sont particulièrement présents dans les os.

Les éléments, carbone ( $Z = 6$ ), hydrogène ( $Z = 1$ ) et oxygène ( $Z = 8$ ) sont les principaux éléments constitutifs des tissus.

### Corrigé de l'exercice

1.1.a



1.1.b On a :

$$a : E_{\text{pha}} = E_1 - E_0 = 17430 \text{ eV.}$$

$$b : E_{\text{phb}} = E_2 - E_1 = 2170 \text{ eV.}$$

$$c : E_{\text{phc}} = E_2 - E_0 = 19600 \text{ eV.}$$

$$1.2. a. E = \frac{h \cdot c}{\lambda} \text{ donc } \lambda = \frac{h \cdot c}{E}$$

1.2.b La plus petite longueur d'onde correspond à l'énergie la plus élevée puisque  $l$  est inversement proportionnelle à  $E$ . Il s'agit donc de celle de la transition  $c$  :  $E_{\text{phc}} = E_2 - E_0 = 19600 \text{ eV}$ .

$$1.2.c E_{\text{phc}} = 19600 \text{ eV} = 19600 \times 1.6 \cdot 10^{-19} = 3.14 \cdot 10^{-15} \text{ J} \text{ donc } \lambda_c = \frac{h \cdot c}{E} = 6.3 \cdot 10^{-11} \text{ m}$$

Remarque : Il s'agit d'un photon X puisque  $5 \cdot 10^{-12} \text{ m} < \lambda < 10^{-8} \text{ m}$

2.1 La partie des os a plus absorbé les rayons X : ils n'ont pas impressionné le film photographique puisque la partie des os apparaît en blanc.

2.2 Le calcium et le phosphore ont des numéros atomiques,  $Z$ , plus élevés que ceux des autres atomes présents: ils absorbent mieux les rayons X.

### III. SPECTRE D'UNE ANTICATHODE

La figure I-04 représente le spectre émis par une anticathode de tungstène soumise à une différence de potentiel anode-cathode de l'ordre de 100 kV.

Ce spectre d'émission est constitué par un *fond continu* auquel se superpose un spectre de raies ( $K_\alpha$ ,  $K_\beta$ ,  $L_\alpha$ ...)

Les raies se regroupent en séries (K, L, M...) et une étude fine montre que ces raies ont une structure assez complexe.

L'intensité des raies est très supérieure à celle du fond continu (facteur > 100 pour la raie  $K_\alpha$  d'une anticathode de cuivre). Le fond continu est caractérisé par une discontinuité brutale du côté des faibles longueurs d'onde.

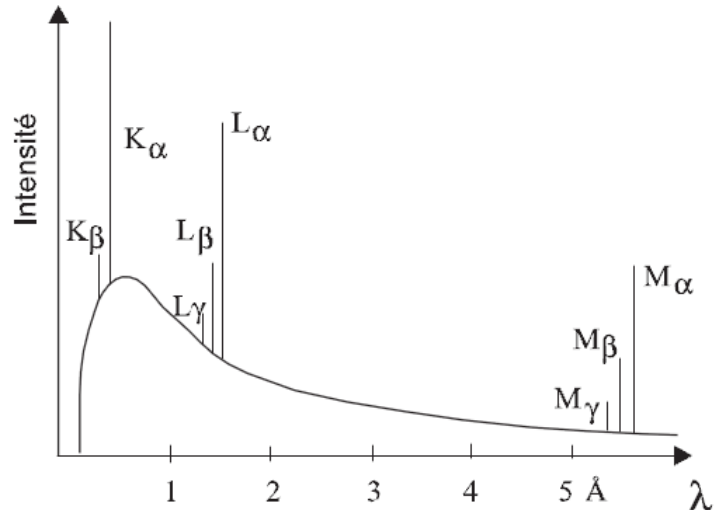


Figure I-04. Spectre produit avec une anticathode

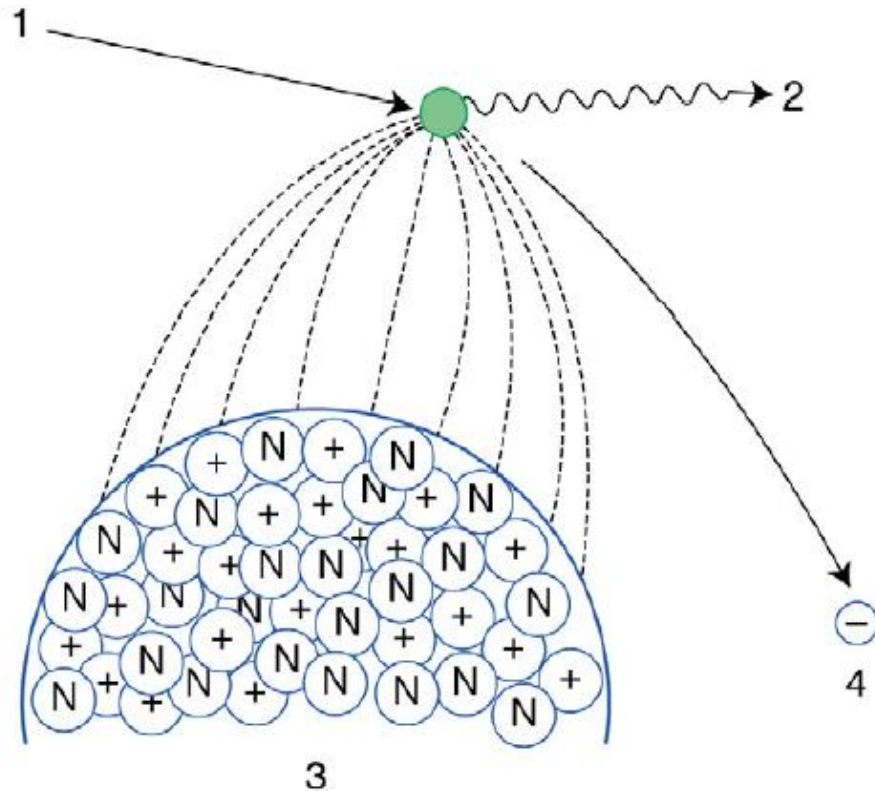
#### III.1 Spectre continu

Ce spectre correspond au *rayonnement de freinage* (en allemand *bremsstrahlung*). Il résulte de l'émission d'une onde électromagnétique par les électrons du faisceau incident qui subissent une décélération brutale lorsqu'ils interagissent avec les électrons de la cible. La longueur d'onde de la discontinuité, qui intervient pour les faibles longueurs d'onde, correspond au transfert de la totalité de l'énergie de l'électron incident au photon X émis.

$$W = e \cdot V = h\nu_{\max} = \frac{h \cdot c}{\lambda_{\min}} \implies \lambda_{\min(\text{\AA})} = \frac{h \cdot c}{e \cdot V} = \frac{12394}{V(\text{volt})}$$

Comme le rendement est fonction du numéro atomique de l'anticathode, pour obtenir un rayonnement "blanc", il faut utiliser une cible de grand numéro atomique sous une tension élevée.

➡ Ce phénomène est celui qui est utilisé dans les générateurs à RX



**Figure I-05.** Rayonnement de freinage (Interaction  $e^-$  - noyau).

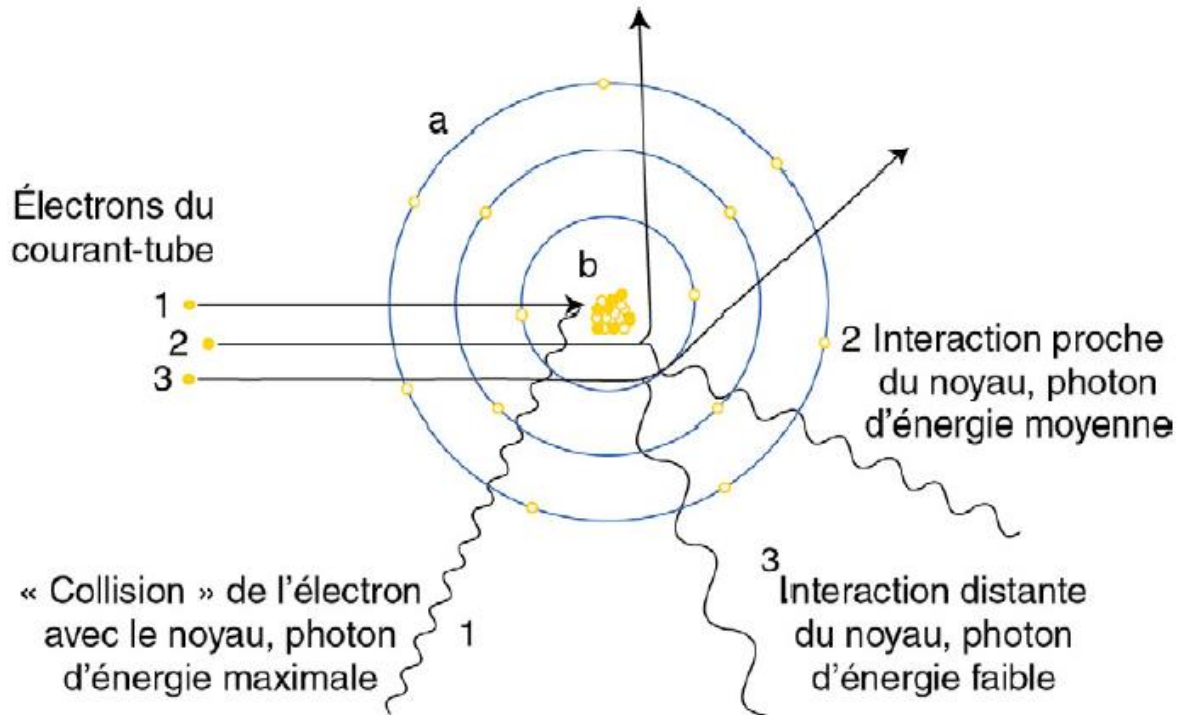
La charge électrique positive du noyau des atomes de tungstène de la cible anodique (3) provoque le freinage (2) et la déviation (4) des électrons émis par le filament (1) et accélérés par la différence de potentiel.

La déviation et la décélération des électrons ont, pour un élément donné (caractérisé par son numéro atomique  $Z$ ), une intensité liée aux relations spatiales entre le noyau des atomes et la trajectoire des électrons (*figure I-06*) :

- freinage et déviation massives lorsque l'électron passe à proximité immédiate du noyau (jusqu'à arrêt total lorsque l'électron « percute » le noyau, c'est-à-dire perd toute son énergie cinétique au contact du noyau) ;
- freinage et déviation minimales voire nulles lorsque l'électron passe à très grande distance du noyau.
- avec tous les intermédiaires possibles entre ces deux extrêmes.


L'énergie cinétique perdue par les électrons dans la cible de l'anode est transformée en radiations électromagnétiques de longueur d'onde variable. Une très faible fraction (1 % de l'énergie électrique consommée par le tube radiogène) correspond à des photons X d'énergie suffisante pour être utilisés en radiodiagnostic (10 à 130 KeV). Les photons X d'énergie inférieure à 10 keV sont dits « mous » ; ils doivent être éliminés autant que faire se peut par

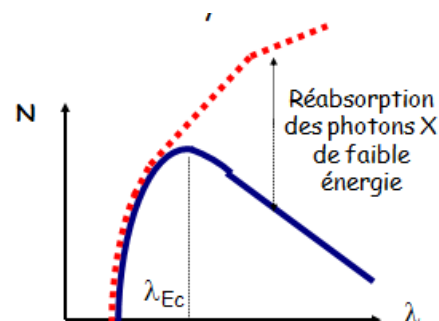
un filtre métallique interposé sur la fenêtre de sortie du tube radiogène pour éviter l'irradiation inutile des téguments exposés par des radiations n'intervenant pas dans la formation de l'image radiologique. Une énorme partie (99 % de l'énergie électrique consommée par le tube) est transformée en radiations électromagnétiques non ionisantes de plus grande longueur d'onde, essentiellement de la chaleur.



**Figure I-06.** Dispersion des énergies des photons X.

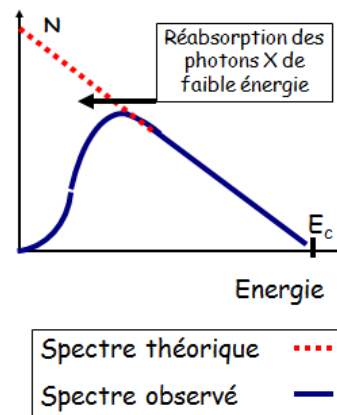
La variation des relations spatiales entre les électrons (a) et les noyaux d'atomes de tungstène (b) explique la dispersion des énergies des photons produits, qui appartiennent pour 1 % d'entre eux aux rayons X « utiles » (1,2), les 99 % restants étant des radiations de grande longueur d'onde (3) essentiellement sous forme de chaleur.

La distribution théorique des photons X selon la probabilité d'interaction est figurée en . Les photons X les moins énergétiques (mous) de  $\lambda$  élevé sont réabsorbés dans le matériau et l'énergie est dissipée sous forme de chaleur



Plus l'électron passe près du noyau, plus l'énergie du photon X est élevée. A la limite (quasi choc avec le noyau), toute l'énergie cinétique  $E_c$  de l'électron est transférée au rayon X.

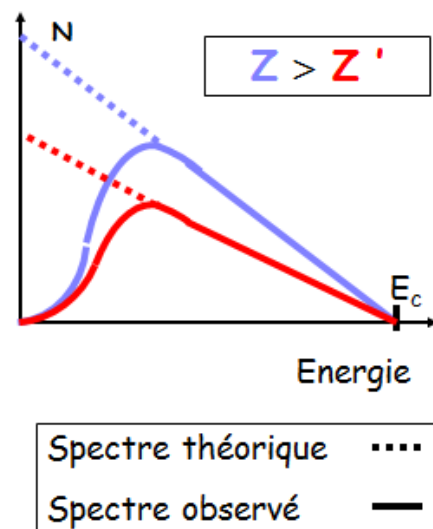
Les photons X de basse énergie sont les plus nombreux, mais ils sont réabsorbés plus facilement dans le matériau -> échauffement important.



***L'interaction coulombienne est d'autant plus importante que le matériau est dense (Z élevé).***

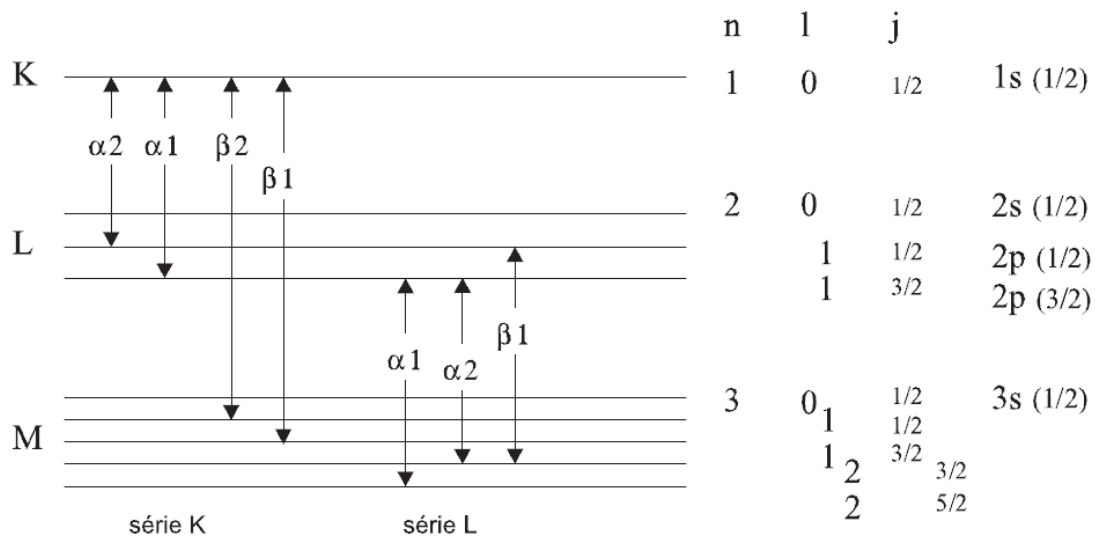
En effet, la force d'attraction coulombienne est  $\propto Z/d^2$ . Le nombre de photons X de freinage augmente car on recrute donc des électrons qui n'auraient pas interagi car trop loin.

En revanche, l'énergie maximale  $E_c$  des photons X ne change pas.



### III.2 Spectre de raies

Le spectre de raie est caractéristique *du métal qui constitue la cible*. Il résulte de transitions électroniques entre des niveaux des atomes de la cible. Les photons du spectre continu ont des énergies suffisantes pour provoquer l'ionisation des couches électroniques profondes de l'atome. L'atome quitte cet état excité par des transitions radiatives internes mais un atome ionisé dans la couche K n'émet pas nécessairement un photon K: l'énergie libérée par le saut sur la couche K d'un électron d'une couche externe peut aussi servir à l'éjection d'un électron (émission Auger). Les règles de la physique atomique permettent d'interpréter complètement les spectres de raies des rayons X. La *figure 06* donne le schéma des niveaux d'énergie et les nombres quantiques qui leur sont associés.



**Figure I-07.** Schéma des niveaux d'énergie et les nombres quantiques qui leurs sont associés.

- Le nombre quantique principal  $n$  désigne les couches **K, L, M,...**
- Le nombre quantique du moment angulaire orbital  $l$  désigne les orbitales notées s, p, d... ( $0 \leq l \leq n-1$ )
- Le nombre quantique magnétique  $m$  prend les valeurs  $-l \leq m \leq l$ .
- Le spin  $s$  de l'électron prend les valeurs  $\pm 1/2$ .
- Le nombre quantique  $j$  du moment angulaire total prend les valeurs  $j = l + s$ .

Si la couche K est ionisée, l'atome est dans un état caractérisé par une énergie  $E_K$ . La lacune électronique créée va être comblée par un électron venant d'une couche plus externe de l'atome.

Une série est caractérisée par le nom du niveau d'arrivée (niveau ionisé) :

Une transition  $L \rightarrow K$  est notée  $K_\alpha$ , une transition  $M \rightarrow K$  notée  $K_\beta$ ...

Les énergies entre les orbitales d'un même niveau sont très voisines, ce qui conduit à la formation de multiplets de longueurs d'onde voisine :

$$K_{\alpha 1} \Rightarrow K-L_3; K_{\alpha 2} \Rightarrow K-L_2; K_{\beta 1} \Rightarrow K-M_3; K_{\beta 2}^I \Rightarrow K-N_3; K_{\beta 2}^{II} \Rightarrow K-N_2 \dots$$

On montre en physique atomique que les transitions permises (celles qui ont une probabilité non nulle), satisfont aux règles de sélection suivantes :

$$\Delta n \geq 1, \Delta l = \pm 1, \Delta j = 0, \pm 1$$

La limite d'une série correspond au saut d'un électron non lié sur le niveau ionisé ; la longueur d'onde limite d'une série est donc égale à :  $\lambda_K = h \cdot c / E_K$ .  
 Pour qu'une série S (S = K, L, M...) soit émise, il faut que l'énergie des électrons incidents supérieure à  $E_S$ , c'est-à-dire que la différence de potentiel accélératrice soit supérieure au seuil  $V_S$  d'ionisation du niveau S.

L'intensité d'une raie est proportionnelle à la probabilité de transition de l'électron entre le niveau initial et le niveau final. Pour les raies  $K\alpha_1$  et  $K\alpha_2$  le niveau d'arrivée est le même, les niveaux de départ ont sensiblement la même énergie mais la population du niveau  $2p^{5/2}$  (4 électrons) est double de celle du niveau  $2p^{3/2}$ . L'intensité de la raie  $K\alpha_1$  est sensiblement le double de la raie  $K\alpha_2$  si le numéro atomique  $z$  est compris entre 20 et 50. Pour la même gamme des valeurs de  $z$ , on a aussi :  $I_{K\beta} \approx 0,2 \cdot I_{K\alpha_1}$ .

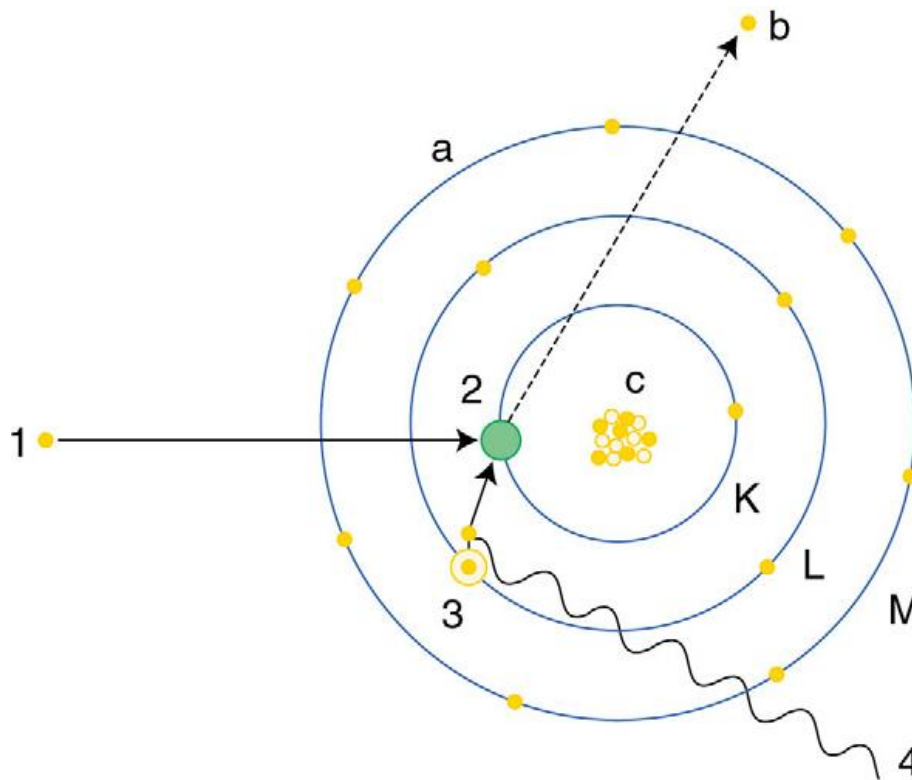
Les longueurs d'onde caractéristiques des principales anticathodes utilisées en radiocristallographie sont indiquées dans le tableau I-03 (La valeur retenue en métrologie pour la radiation  $\lambda_{K\alpha_1 Cu}$  est 1,540597415 Å)

**Tableau I-03.** Longueur d'onde.

Anticathode		Longueurs d'onde (Å)			Seuil $V_K$ (volt)
Nature	Z	$K_{\alpha_2} - K_{\alpha_1}$	$K_{\beta}$	Limite K	
Chrome	24	2,2935 – 2,2896	2,0848	2,070	5950
Fer	26	1,9399 – 1,9360	1,7565	1,743	7100
Cobalt	27	1,7928 – 1,7889	1,6208	1,608	7700
Nickel	28	1,6616 – 1,6578	1,5001	1,488	8300
Cuivre	29	1,5443 – 1,5406	1,3922	1,380	9000
Molybdène	42	0,7135 – 0,7093	0,6323	0,6198	20000
Tungstène	74	0,2138 – 0,2090	0,1844	0,1783	69500

**Remarque :** En première approximation les raies d'émission des rayons X ne sont pas affectées par les liaisons chimiques car l'excitation est localisée au niveau des couches profondes des atomes. Les fréquences ne dépendent que du numéro atomique  $Z$  de l'atome.

Le choix de la longueur d'onde de travail se fait en fonction des paramètres de maille du composé étudié mais aussi en fonction de la nature des éléments chimiques qui le constituent. Il est pas exemple déconseillé d'utiliser une anticathode de cuivre avec un composé contenant du fer car l'énergie des photons  $K_{\alpha Cu}$  est suffisante pour ioniser le niveau K du fer ; celui-ci va émettre des propres radiations caractéristiques et augmenter le fond continu du spectre.



**Figure I-08.** Mécanisme à l'origine des RX: collisions (Interaction  $e^- - e^-$ )

Les rayons X sont alors produits par deux mécanismes distincts.

- ✚ Les électrons, se déplaçant à une vitesse très grande, ont une énergie cinétique suffisante pour perturber les couches électroniques internes des atomes de la cible. Ces atomes, dans un état excités, vont alors émettre des rayons X en regagnant leur état fondamental.
- ✚ D'autre part, le ralentissement des électrons dans la matière produit un rayonnement de freinage comportant des rayons X.

L'énergie cinétique des électrons incidents est déterminée par la tension d'accélération  $\Delta U$ :

$$E_{cin} = e \Delta U .$$

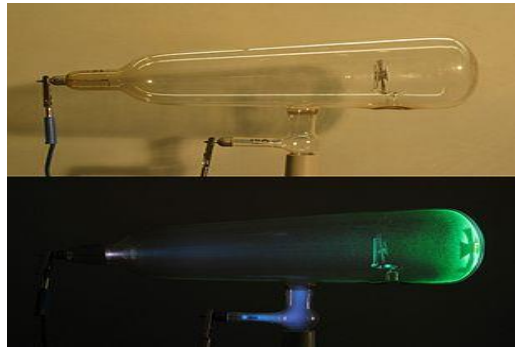
$$(e = - 1,602 \cdot 10^{-19} C).$$

## IV EXEMPLE DE TUBES A RAYONS X

### IV.1 Tube de Crookes

Ce type de tube n'est pratiquement plus utilisé. Mais il a permis à Röntgen de mettre en évidence l'existence de rayonnement X en 1895. Une décharge est appliquée entre deux électrodes placées à l'intérieur d'un tube contenant un gaz sous une très faible pression

(0.01Torr). L'impact d'ions positifs sur la cathode induit l'émission d'électrons par celle-ci. Ces électrons viennent bombarder l'anode qui émet à son tour des rayons X.



*Figure I-09.* Tube de Crookes

## IV.2 Tube de Coolidge

Ce type de tube a été utilisé pour le TP. La cathode est constituée d'un filament de tungstène chauffé par effet joule. Ce filament émet des électrons (effet Edison) qui sont accélérés par un champ électrique, et viennent bombarder l'anode qui émet des rayons X.



*Figure I-10.* Tube de Coolidge

L'efficacité du processus d'émission est très faible, et même dans les meilleures conditions avec une tension de 100kV, seulement 2% de l'énergie fournie est transmise aux rayons X. La majorité de l'énergie est transformée en chaleur (effet joule) par l'anode, d'où la nécessité d'un circuit de refroidissement du corps du tube par une circulation continue d'eau.

## IV.3 Tube à haute intensité

En équipant les tubes avec des anodes tournantes on produit des rayons plus intenses que ceux d'un tube ordinaire. La rotation de l'anode à grande vitesse (2000 à 6000 tr/min) permet de passer à des puissances de plusieurs milliers de watts par millimètre carré.

Les **tubes à anode tournante** sont une amélioration des tubes de Coolidge permettant d'avoir des intensités de rayons X importantes.

Une des limitations de la production de rayons X est en effet la chaleur produite par le phénomène de bombardement de l'anticathode par les électrons accélérés. On prend donc une grande anode de forme cylindrique et on la fait tourner. La rotation permet de minimiser les irradiations par unité de surface et dissiper ainsi la chaleur produite. On peut ainsi atteindre des puissances de l'ordre de 100 kW



*Figure I-11.* Tube à anode tournante.

# TD 1

## Exercice 1

Un tube à rayons X à anticathode de cuivre fonctionnant sous une tension  $U$  de 50 kV est parcouru par un courant d'intensité 40 mA.

- 1) Quelle est la longueur d'onde minimale  $\lambda_0$  (en nm) des photons X du rayonnement de freinage ?
- 2) Sachant que la longueur d'onde du maximum d'intensité du rayonnement de freinage est égale à  $3\lambda_0/2$ , quelle est, pour les électrons ayant pénétré dans l'anticathode, la perte d'énergie cinétique la plus probable lors du processus de freinage ? Exprimer le résultat en keV.
- 3) Quelle est la valeur de  $\lambda_0$  (en nm) lorsque l'intensité du courant électrique qui parcourt le tube augmente de 20 mA ?

## Exercice 2

Un photon a pour énergie  $E_{ph} = 50$  keV.

1. Déterminer la longueur d'onde de ce photon.
2. Rappeler les limites des rayons X et conclure si ce photon est un photon X ou non.
3. On rappelle la loi d'absorption des photons X par un matériau  $I = I_0 e^{-kx}$ . Indiquer ce que représentent  $I$ ,  $I_0$ ,  $k$  et  $\alpha$ .
4. Pour le plomb, on donne  $k = 7910 \text{ m}^{-1}$  dans ces conditions, l'épaisseur de la plaque de plomb est de 1 mm et l'intensité du faisceau est  $I_0 = 100 \text{ W.m}^{-2}$ . Déterminer  $I$ .
5. Citer quelques applications utilisant les rayons X.

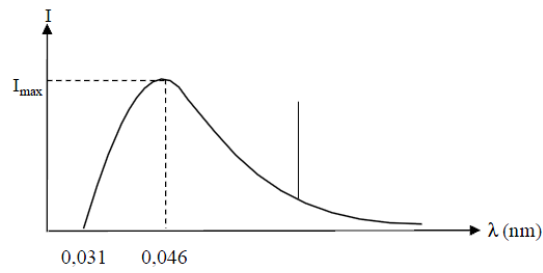
## Exercice 3

Lors de l'absorption d'une onde par une molécule suivie d'une émission de fluorescence, comment se comparent les longueurs d'onde d'absorption et de fluorescence? Pourquoi?

## Exercice 4

Des électrons accélérés sous une différence de potentiel  $U = 40$  kV bombardent une cible en cuivre en créant une émission de rayons X. Le spectre correspondant à cette émission (voir figure ci-dessous) représente l'intensité  $I$  du faisceau de rayons X émis en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$ , exprimée en nm.

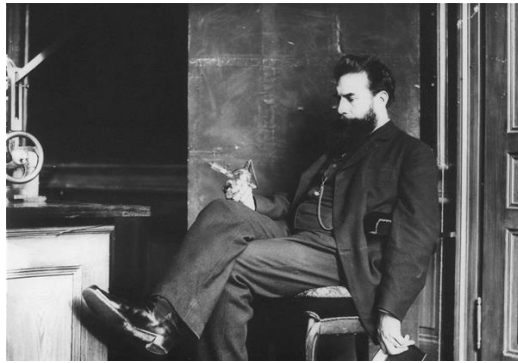
On donne les énergies d'ionisation des niveaux K et L (niveau moyen entre les niveaux  $L_{II}$  et  $L_{III}$ ) du cuivre :  $E_{iK} = 8995$  eV et  $E_{iL} = 955$  eV.



- 1) Quelle est la longueur d'onde minimale  $\lambda_0$ , en nm, du spectre continu émis par la cible ?
- 2) À partir des valeurs numériques indiquées sur le spectre, déterminer la perte d'énergie cinétique la plus probable, en keV, des électrons arrivant sur la cible.
- 3) Quelle condition doit vérifier l'énergie cinétique des électrons qui bombardent la cible pour observer une raie K ?
- 4) Calculer, en nm, la longueur d'onde de la raie  $K\alpha$ .

## Chapitre 2

# Appareillage



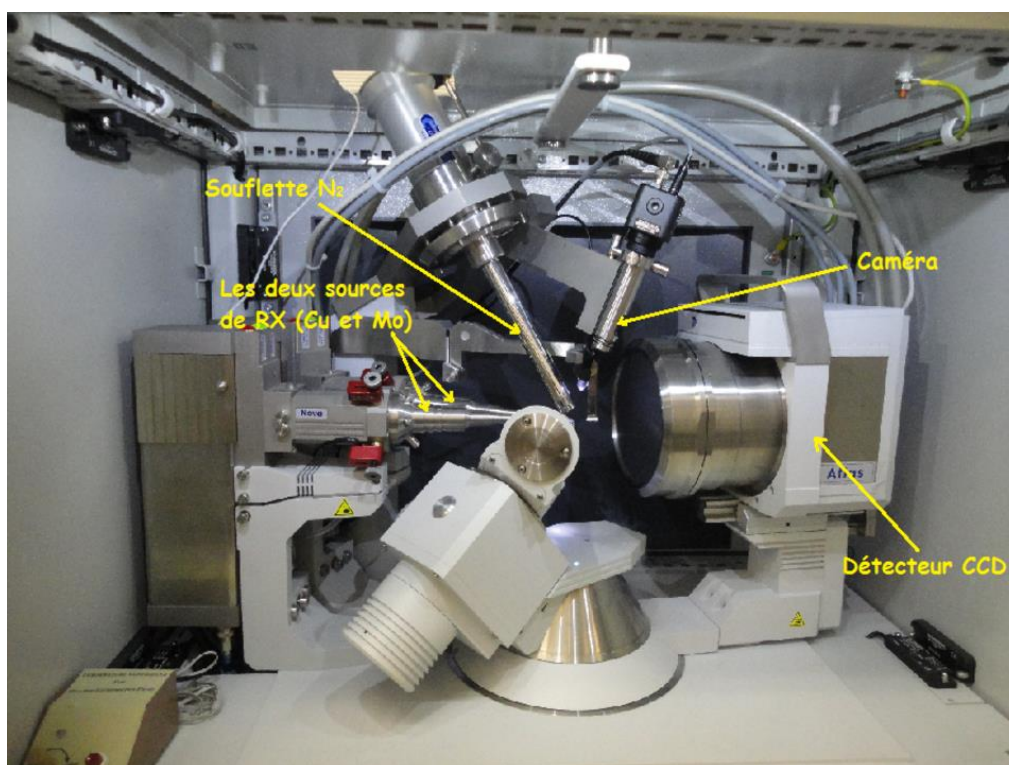
*Wilhem Conrad Röntgen dans son atelier en 1900*

## I. LES DIFFRACTOMETRES

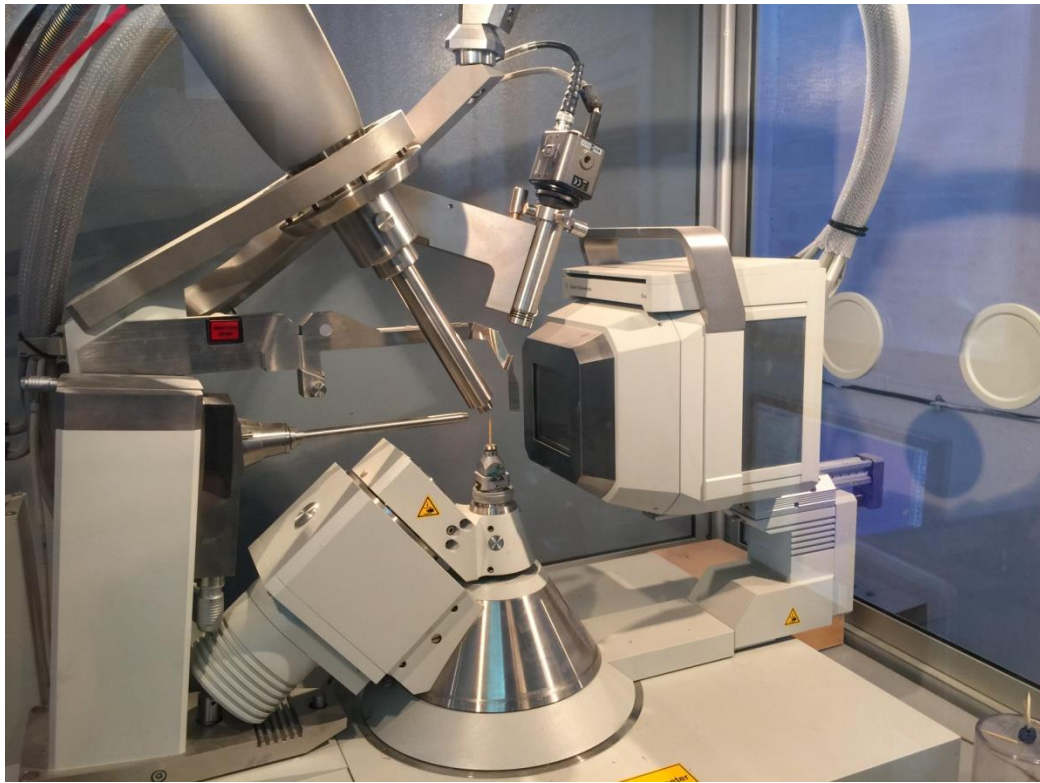
Les expériences de diffraction des rayons X sont réalisées sur des diffractomètres, appareils comportant une source de rayons X (tube), un goniomètre au centre duquel est placé l'échantillon cristallin à analyser (monocristal ou polycristal) et un système de détection des intensités diffractés (film, compteur proportionnel ou détecteur 2D type CCD). Les conditions de réflexion sont amenées successivement par le mouvement concerté de cercles du goniomètre et du bras tenant le détecteur. On « balaye » ainsi une partie ou la totalité de l'espace réciproque, en recueillant les intensités dans un maximum de directions.

### I.1 Diffractomètre à monocristaux

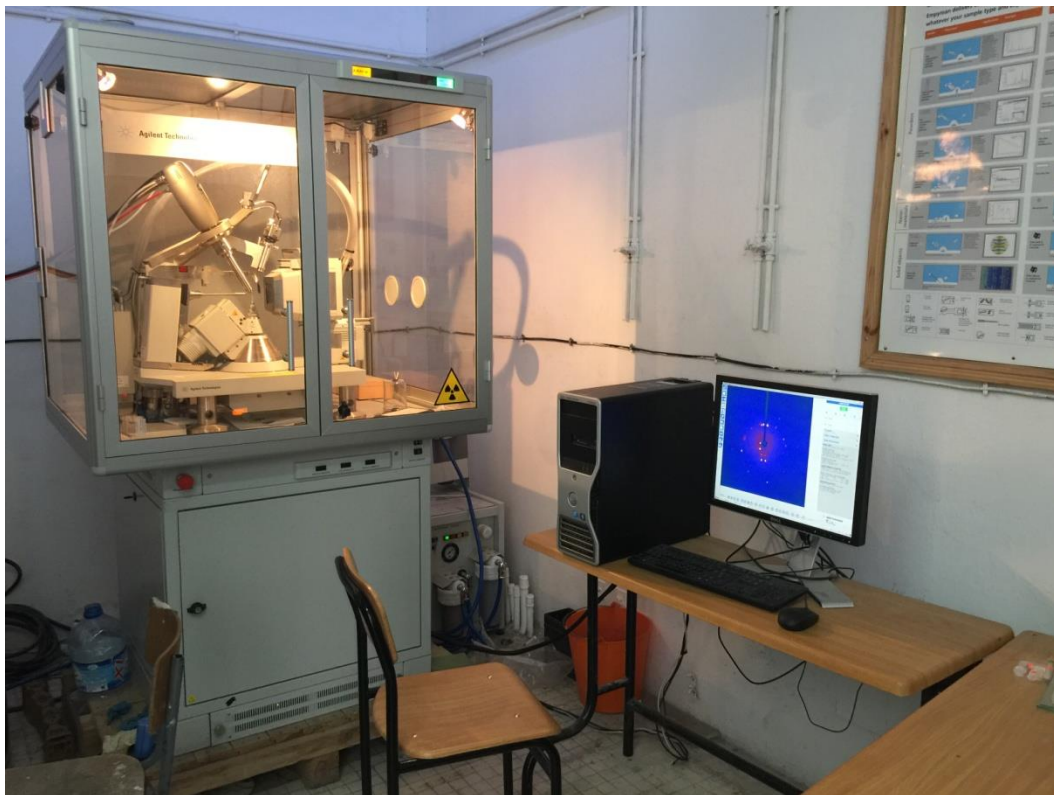
La *figure II-1* est l'image d'un diffractomètre 4 cercles haute résolution (SuperNova d'oxford diffraction) équipé de deux micro-sources de rayons X (Mo et Cu), avec un détecteur bidimensionnel ATLAS. Le système est également équipé d'un dispositif de refroidissement à jet d'azote gazeux (soufflette d'azote) permettant de travailler de 90K à 500K. Le diffractomètre est piloté par un PC fonctionnant sous le système d'exploitation Windows. A noter que les données de diffraction peuvent être enregistrées soit avec la longueur d'onde du molybdène ( $\lambda = 0,71073 \text{ \AA}$ ), soit avec la longueur d'onde du cuivre ( $\lambda = 1,5418 \text{ \AA}$ ).



**Figure II-1.** Diffractomètre à rayons-X double microsource Cu-Mo SuperNova (Oxford diffraction). Diffractomètre du Laboratoire de Cristallographie Résonance Magnétique et Modélisation CRM2-Nancy-France.



(a)



(b)

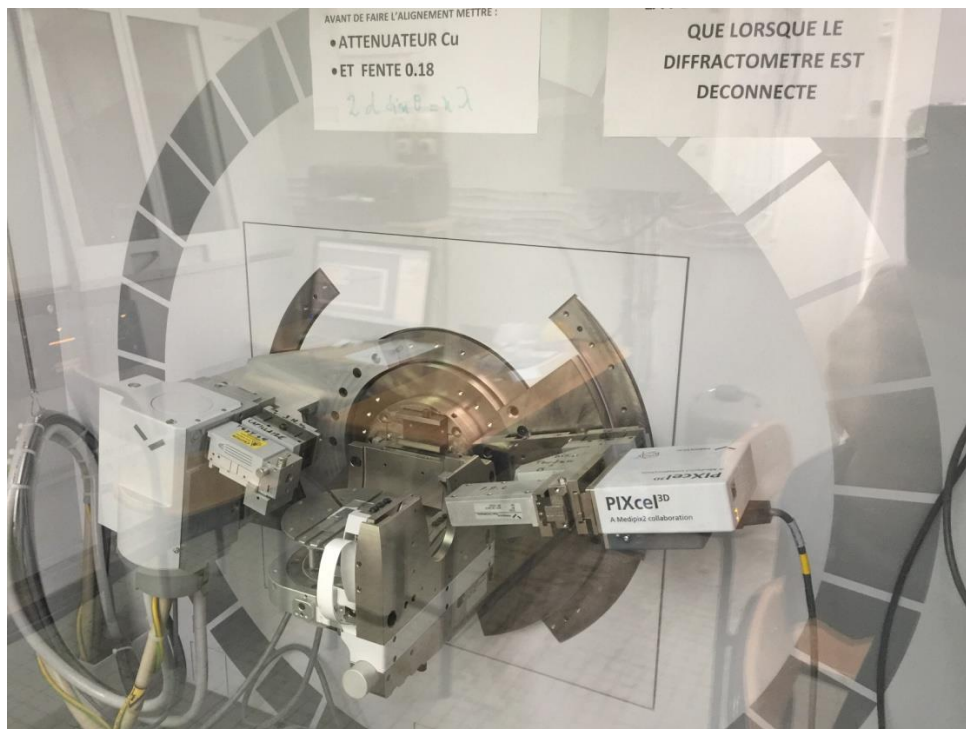
**Figure II-2.** (a) et (b) Diffractomètre sur monocristaux du Laboratoire de Cristallographie de l'Université Mentouri-Constantine.

## I.2 Diffractomètre de poudres

Un diffractomètre de poudres est un diffractomètre à bras mobile (détecteur et/ou tube et/ou porte-échantillon). Les premiers modèles étaient mus par des manivelles, puis sont venus les bras motorisés ; les diffractomètres modernes sont entièrement automatisés et pilotés par des ordinateurs via des interfaces.

Le spectre des faisceaux diffractés est appelé diffractogramme et constitue une empreinte caractéristique de la structure des substances cristallines analysées. Le dépouillement des diffractogrammes fournit une véritable carte d'identité des espèces analysées. L'identification des phases cristallisées est effectuée par comparaison avec un fichier de référence contenu d'une base de données des toutes les structures analysées auparavant et rassemblées dans PDF (Powder Diffraction File) ou J.C.P.D.S (Joint Committee Powder Diffraction Standard) réactualisés périodiquement et comportant actuellement les données de plus de 70000 composés.

Grace à cet instrument on peut identifier les phases cristallines présentes dans les matériaux analysés et nous offre la possibilité d'établir leur composition chimique. Aussi il permet d'évaluer leur degré de cristallinité et de mettre en évidence la morphologie des cristallites qui les constituent. Egalement il donne la possibilité d'estimer les dimensions de ces cristallites. La diffraction des rayons X présente l'avantage d'être une méthode d'analyse non destructive et s'accommode avec des petits échantillons sous diverses formes (monocristalline, polycristalline, couches minces).



(a)



(b)

*Figure II-3.* (a) et (b) Diffractomètre sur poudre du Laboratoire de Cristallographie de l'Université Mentouri-Constantine.

## II. LE RAYONNEMENT SYNCHROTRON

Une autre source puissante de production des rayons X est le SYNCHROTRON : Un accélérateur des d'électrons ( $e^-$ ) ou des positons( $e^+$ )à des vitesses avoisinant la vitesse de la lumière dans des trajectoires circulaires de plusieurs dizaines de mètres de diamètres. Les particules ainsi accélérées émettent un rayonnement dit 'synchrotron' considéré dans ses débuts comme un rayonnement parasite et qui est devenu actuellement une source de rayonnement très utilisée par les chercheurs dans les domaines des matériaux, de médecine, de cristallographie, et de toute étude et science ayant pour but de scruter la matière au niveau atomique.

Toute particule chargée soumise à une accélération (ou une décélération) émet un rayonnement électromagnétique. Lorsque l'accélération est faible le rayonnement quasi monochromatique est émis dans tout l'espace de façon isotrope (ex : antenne radio). Si au contraire **l'accélération est forte** il faut utiliser la mécanique relativiste et le **rayonnement**

**est émis exclusivement de façon tangentielle à la trajectoire** des particules mais avec un **spectre large en énergie** (donc en longueur d'onde).

Le rayonnement synchrotron est émis par des particules chargées, telles que des électrons ou des positrons, accélérées à une vitesse proche de celle de la lumière. C'est le cas dans les accélérateurs et les anneaux de stockage dans lesquels les vitesses des particules proches de celle de la lumière sont obtenues grâce à des accélérations centripètes très élevées produites par des champs magnétiques intenses qui incurvent leur trajectoire. Le spectre d'émission  $I(\lambda)$  a une forme comparable au fond continu d'un tube (II-2-3-4). La longueur d'onde critique (au maximum d'intensité) est donnée par :

$$\lambda_c = 5,6R/E^3 = 18,6/(BE^2)$$

$\lambda_c$  (Å);  $R$  (rayon de courbure ; m);  $B$  (champ magnétique ; teslas);  $E$  (énergie des particules ; GeV)

Il existe aujourd'hui une cinquantaine de synchrotrons dans le monde dont deux en France de la dernière génération (3<sup>e</sup>) qui sont l'ESRF (*European Synchrotron Radiation Facility*, implanté à Grenoble, *cette installation produit des rayons X 100 milliards de fois plus brillants que les rayons X utilisés à l'hôpital*) et à SOLEIL (*Source Optimisée de Lumière Intermédiaire*, Laboratoire d'Utilisation du Rayonnement Electromagnétique, implanté à Saclay). La particularité de ces installations est surtout dans la valeur très élevée de la brillance du rayonnement, alliée à un caractère continu dans les longueurs d'onde émises, c'est-à-dire à *un rayonnement blanc*. Pour ce type de rayonnement, la brillance est ramenée à une tranche spectrale  $\Delta\lambda/\lambda$  de 0,1%.



**Figure II.4.** ESRF (*European Synchrotron Radiation Facility*). Grenoble, France



*Figure II.5.* SOLEIL (Source Optimisée de Lumière Intermédiaire). Saclay, France

Le rayonnement électromagnétique émis dans un synchrotron est le résultat du déplacement accéléré d'une particule chargée relativiste. Une manière de produire cette accélération est de la soumettre à un champ magnétique statique  $\mathbf{B}$  perpendiculaire à sa direction de propagation, c'est-à-dire à son vecteur vitesse  $\mathbf{v}$ . La force de LORENTZ qui s'exerce sur la particule :  $\mathbf{F} = q\mathbf{v}\mathbf{B}$ . va engendrer une courbure de la trajectoire. Une succession d'aimants de courbure répartis le long d'un anneau va alors procurer une trajectoire quasi circulaire aux particules, lesquelles sont des électrons dans les sources X de type synchrotron

## II.1 Principales propriétés du rayonnement synchrotron.

- **Continuité spectrale exceptionnelle**, de l'infrarouge lointain jusqu'aux rayons X.
- **Faible divergence d'émission dans le plan vertical** ce qui conduit à une brillance bien supérieure à celle des tubes de rayons X et permet une excellente focalisation des faisceaux.
- **Intensité** du rayonnement de plusieurs ordres de grandeur supérieure à celle des générateurs de rayons X des laboratoires.
- **Forte polarisation linéaire** dans le plan de l'orbite des particules.
- **Intensité moyenne décroissante au cours du temps**, ce qui oblige à réinjecter des particules dans les machines d'une fois par semaine jusqu'à plusieurs fois par jour.

## **II.2 Vers un mini-synchrotron**

Depuis quelques années, un groupe de physiciens allemands, sud-africains et britanniques est parvenu à accélérer des particules à l'aide de plasmas qui jouent le rôle de « vagues » sur lesquelles les électrons surfent. Dans ces machines très compactes, les électrons sont accélérés sur quelques dizaines de centimètres. Récemment, un mini-accelérateur à plasma a été couplé à un onduleur et à chaque oscillation, les électrons émettent un rayonnement, comme dans un synchrotron standard. Pour l'instant, le rayonnement se situe dans le domaine visible. Il faudra ensuite obtenir le même résultat dans le domaine des rayons X, mais à condition de savoir produire suffisamment d'électrons de plus d'un gigaélectronvolt.

## Chapitre 3

# Interaction des rayons X avec la matière



## I. INTERACTION DES PHOTONS X AVEC LA MATIÈRE

Lorsqu'un faisceau de rayons x pénètre dans un milieu matériel, on constate une diminution progressive de son intensité. Cette diminution du nombre de photons, l'atténuation du faisceau, est due essentiellement à l'interaction des photons avec les électrons. Dans un tel processus, l'énergie perdue se retrouve sous deux formes : une partie  $E_A$  est absorbée par le milieu, et une partie  $E_D$  est diffusée et sort de la matière dans une direction différente de la direction du faisceau initial. Les phénomènes d'atténuation et d'absorption sont à l'origine des applications et des effets des rayons X en médecine (radiodiagnostic et en radiothérapie).

### Description microscopique des interactions

Un photon est neutre, il est donc insensible à la force coulombienne. Considéré comme un champ électromagnétique il interagit avec la matière par l'intermédiaire de trois processus principaux

- i) l'effet photoélectrique,
- ii) l'effet Compton et
- iii) la production de paires (ou matérialisation  $\pi$ ). La section efficace totale d'absorption d'un photon par un atome est la somme des sections efficaces totales partielles de ces trois processus

Deux autres processus peuvent aussi jouer un rôle ;

- i) la diffusion Thomson
- ii) la diffusion Rayleigh où le photon est diffusé sans perte d'énergie par un système électronique (atome) (diffusion purement élastique)/

Avant de décrire ces processus d'interaction des photons avec la matière, on rappelle quelques généralités :

- Un rayonnement est dit ionisant : s'il est susceptible d'arracher des  $e^-$  à la matière: l'énergie du rayonnement incident doit être supérieure à l'énergie de liaison des électrons.
- Les rayonnements non ionisants :
  - UV proches du visible.
  - IR et ondes hertziennes.
- L'interaction du rayonnement avec la matière est un transfert d'énergie du rayonnement incident au milieu traversé (électrons et noyau).
- Cette interaction dépend de :
  - la nature du rayonnement.
  - l'énergie de ce rayonnement.
  - la nature de la matière traversée.
- Les  $R\gamma$  sont des rayonnements indirectement ionisants
- les RX et  $R\gamma$  ont le même comportement vis-à-vis de la matière.
- Ces photons sont différents des particules chargées ( $m = 0$ , charge = 0).

- Les photons sont caractérisés par : leur fréquence  $\nu$ , leur longueur d'onde  $\lambda=c/\nu$  et leur énergie  $E=h\nu$ .

## I.1 L'effet photoélectrique

L'effet photoélectrique a été découvert par Hertz lors de ses recherches sur les ondes électromagnétiques. Alors que la mise en évidence de ces dernières a validé de façon éclatante la théorie de Maxwell, l'effet photoélectrique était rebelle à toute interprétation maxwellienne. Tandis que les ondes électromagnétiques contenaient les germes de la relativité restreinte, l'effet photoélectrique contenait ceux de la mécanique quantique !

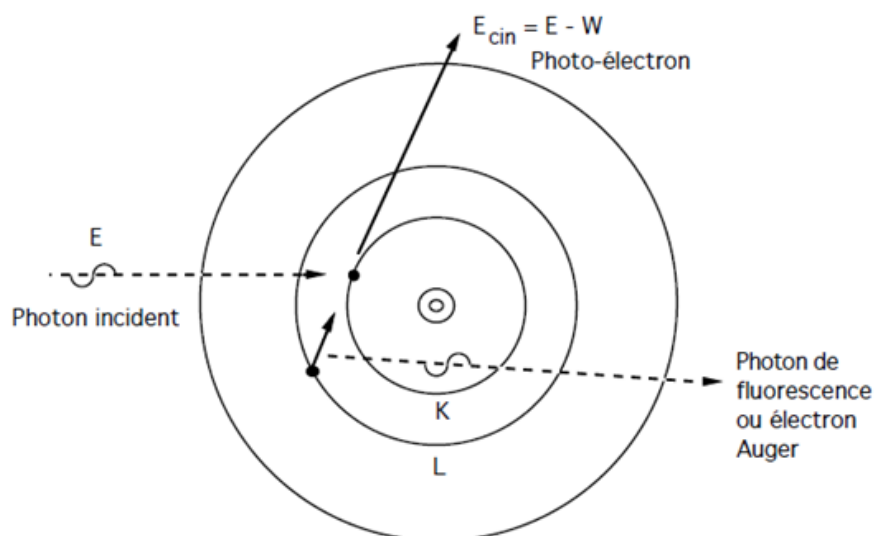


**Heinrich Hertz**

Dans l'effet photoélectrique le photon entre en collision avec un électron des couches profondes de l'atome. L'énergie  $E$  du photon incident est transférée à l'électron qui est éjecté de sa couche. Une partie de cette énergie est utilisée pour « extraire » l'électron interne (énergie de liaison  $W$ ) ; l'excédent d'énergie se retrouve sous forme d'énergie cinétique  $E_{\text{cin}}$  de l'électron éjecté. Par conséquent,

$$E = W + E_{\text{cin}} \quad (\mathbf{E}_{\text{photoélectron}} = \mathbf{E}_{\text{photon incident}} - \mathbf{E}_{\text{énergie de liaison}})$$

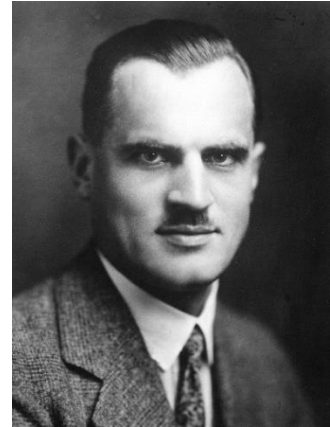
L'effet photoélectrique ne peut avoir lieu que si l'énergie du photon incident est supérieure à l'énergie de liaison de l'électron. L'énergie cinétique du photo-électron est finalement transférée au milieu lors d'ionisations ultérieures. Le retour de l'atome à l'état fondamental s'accompagne d'une émission d'énergie sous forme d'un photon de fluorescence ou d'un électron Auger (*figure III-1*)



**Figure III-1.** Effet photoélectrique.  $E$  : l'énergie du photon incident.  $W$  : l'énergie de liaison de l'électron.  $E_{\text{cin}}$  : l'énergie cinétique de l'électron émis.

## I.2 Diffusion incohérente ou diffusion Compton

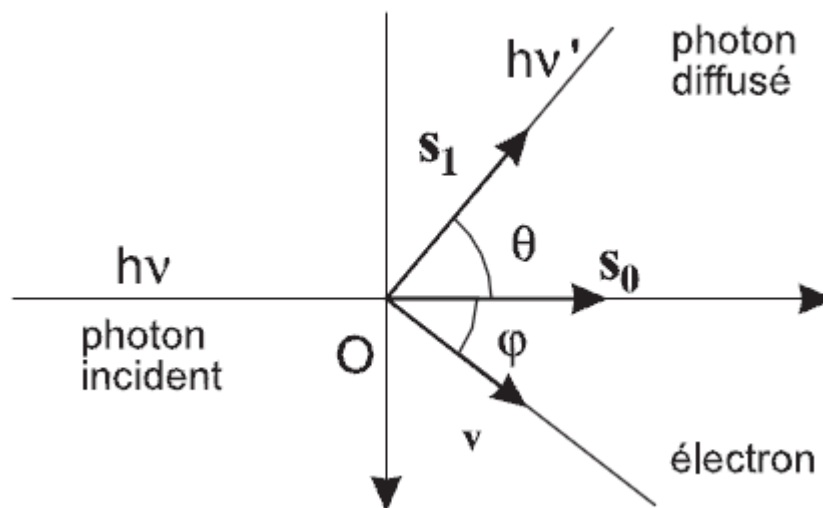
Ce phénomène a été découvert par A. H. Compton en 1926 montrant que la lumière est constituée de quanta d'énergie possédant une quantité de mouvement. Il s'agit plus précisément de la collision d'un photon énergétique, par exemple un photon dans le domaine des rayons X, avec une particule de matière, comme un électron, pouvant être considérée au repos (énergie  $mc^2$ ).



**Arthur Compton**

Cette collision s'accompagne d'un changement de longueur d'onde du photon après la collision. Lorsque le photon après la collision a une plus grande longueur d'onde (diminution de la fréquence), c'est-à-dire qu'il a cédé de l'énergie à l'électron, on est en présence de l'effet Compton proprement dit.

Le photon entre en collision avec un électron libre ou faiblement lié (*cet électron est considéré au repos car son énergie de liaison ainsi que son énergie cinétique est négligeable devant  $E=h\nu$  du photon incident*) auquel il cède une partie de son énergie. Un photon d'énergie plus faible est diffusé dans une direction différente de la direction initiale (*figure III-2*). Pour les photons X étudiés ici, la majeure partie de l'énergie est absorbée par le photon diffusé.



**Figure III-2.** Diffusion Compton. Collision d'un photon avec un électron au repos.

Le photon n'est pas absorbé dans la collision. Le photon qui émerge avec l'électron, appelé photon « diffusé », partage avec l'électron mis en mouvement l'énergie initiale. Le photon diffusé

se propage dans la matière sans déposer d'énergie jusqu'à ce qu'il interagisse à son tour. Le partage de l'énergie est inégal. Il dépend de l'angle entre le photon diffusé et le photon initial. Malgré son extrême légèreté, l'électron constitue en effet une cible lourde pour un photon qui est sans masse. Les lois de la Physique gouvernant l'effet Compton font que le photon diffusé emporte la majeure partie de l'énergie : 96 % en moyenne à 50 keV, 83 % à 500 keV. Des photons de plusieurs centaines de keV peuvent subir de multiples diffusions Compton avant d'être finalement absorbé par effet photoélectrique.

Compton mesura en 1922 les longueurs d'onde des rayonnements incident et diffusé, il montra que les rayonnements diffusés ne présentent pas un spectre de longueur d'onde continu, il utilise ainsi la conservation de l'énergie et la conservation de la quantité de mouvement, utilise l'expression relativiste exacte pour la masse de l'électron et en déduit la désormais célèbre formule du décalage en longueur d'onde apparaissant lors d'une diffusion de rayons X :

$$\lambda_f - \lambda_i = \frac{h}{m_e c} (1 - \cos(\theta))$$

Or, l'énergie du rayon X résultant est égale à la différence entre l'énergie du rayon X incident et celle impliquée dans le processus d'éjection de l'électron de l'atome, d'où :

$\lambda_i$  : Longueur d'onde initiale du photon (m)

$\lambda_f$  : Longueur d'onde finale du photon (m)

$\theta$  : Angle de déviation du photon initial.

$h$  : Constante de Planck ( $6,63 \times 10^{-34}$  J.s)

$m_e$  : Masse de l'électron ( $9,11 \times 10^{-31}$  Kg)

$c$  : Vitesse de la lumière ( $c = 3 \times 10^8$  m/s)

En posant que la constante  $\frac{h}{m_e c} = \lambda_C$  appelée **longueur d'onde de Compton**, nous

pouvons écrire :  $\Delta\lambda = \lambda_f - \lambda_i = \lambda_C (1 - \cos(\theta)) = 0,02426 \text{ \AA}$

La longueur d'onde du photon diffusé est fonction de la direction d'observation. Il n'y a pas de relation de phase entre les ondes incidentes et diffusées. Les ondes diffusées par les différents électrons n'interfèrent jamais, les intensités s'ajoutent simplement. En radiocristallographie, la diffusion Compton est un phénomène parasite qui se traduit par une augmentation du bruit de fond

Considérons  $E_0$ , l'énergie du photon incident,  $E_1$ , l'énergie du photon diffusé,  $T=E_0-E_1$ , l'énergie cinétique cédée à l'électron,  $\theta$ , l'angle de diffusion du photon,  $\phi$ , l'angle entre la trajectoire de l'électron et la direction initiale du photon et  $\alpha = E_0/mc^2$ , le rapport entre l'énergie du photon incident et l'énergie au repos de l'électron

$$E_1 = E_0 \frac{1}{1 + \alpha(1 - \cos\theta)} \quad \longrightarrow \quad \text{Energie du photon diffusé}$$

$$T = E_0 \frac{\alpha(1 - \cos\theta)}{1 + \alpha(1 - \cos\theta)} \quad \longrightarrow \quad \text{Energie cinétique de l'électron Compton}$$

Où

$$\alpha = \frac{E_0}{m_e c^2} \quad \text{et} \quad m_e c^2 = 0,511 \text{ MeV}$$

L'électron au repos est éjecté vers l'avant suivant la direction  $\phi$  telle que :

$$\sin \phi = \frac{h \sin\theta}{\lambda_d \sqrt{2m_e E_{ce}}}$$

## II.1 Relation entre l'angle $\theta$ de diffusion du photon et l'angle $\phi$ d'éjection de l'électron

Supposons que, dans le référentiel du laboratoire, le photon soit diffusé vers un angle  $\theta$ , alors l'angle d'éjection de l'électron,  $\phi$ , est donné par la relation suivante :

$$\frac{1}{\tan \phi} = (1 + \alpha) \tan \frac{\theta}{2}$$

Ainsi si :

- **Choc frontal ou rétrodiffusion** :  $\theta = \pi$ , alors  $\phi = 0$  Cela est facile à comprendre par analogie avec le billard : lorsque la boule blanche (photon) tape directement dans une autre boule (électron) de façon que la blanche revienne en arrière ( $\theta = \pi$ ) alors l'autre boule va généralement vers l'avant ( $\phi = 0$ ). Dans ce cas :

$$E_d = E \left( \frac{m c^2}{m c^2 + 2E} \right)$$

$$E_{\text{cin}} = E \left( \frac{2E}{m c^2 + 2E} \right)$$

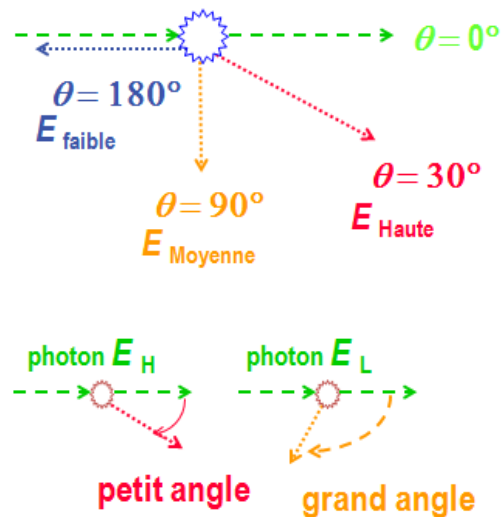
- **Choc tangentiel** :  $\theta = 0$ , alors  $\phi = \frac{\pi}{2}$ . Ce cas est plus difficile à comprendre mais peut aussi être expliqué par une analogie avec le billard. Lorsqu'on fait taper la boule blanche (photon) dans une autre boule (électron) de façon que la blanche ne change presque pas de direction et continue tout droit ( $\theta = 0$ ), alors la boule blanche n'a fait qu'effleurer l'autre boule qui est déplacée perpendiculairement à la trajectoire de la blanche ( $\phi = \frac{\pi}{2}$ ). Dans ce cas, l'énergie du photon diffusé  $E_D$  est égale à l'énergie du photon incident  $E$  ( $E_D = E$ ), et l'énergie cinétique de l'électron Compton est nulle ( $E_{cin} = 0$ ).

**Plus l'énergie du photon incident est grande, plus la fraction d'énergie transférée à l'électron est grande.**

Donc nous pouvons conclure ceci :

Si  $\theta \uparrow$ , l'énergie perdue  $\uparrow$

- $E \downarrow$  pour le photon diffusé  
 $E_{\theta=90^\circ} < E_{\theta=30^\circ}$
- Perte maximale d'énergie si  $\theta = 180^\circ$
- Photons diffusés de grandes énergies si  $\theta$  est petit.
- Photons diffusés de faibles énergies si  $\theta$  est grand.



## Résumé

- Les photons de faibles énergies transfèrent très peu d'énergie à l'électron libéré et sont diffusés à travers de grands angles.
- Les photons d'énergies élevées (10 à 100 MeV) transfèrent leur énergie essentiellement aux électrons libérés et ne sont pas beaucoup diffusés.
- La diffusion Compton est plus importante pour les photons ayant une énergie comprise entre 0.2 et 5.0 MeV, et prédomine dans des absorbants ayant des numéros atomiques plus élevés.

### I.3 Effet création de paires ou matérialisation $\pi$

#### I.3.a Quelques définitions :

##### ❖ *Positron*

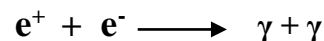
Le positron ou l'antiélectron est l'antiparticule ou la contrepartie de l'antimatière de l'électron. Le positron a une charge électrique de  $+1 e$ , un spin de  $1/2$  (identique à celui de l'électron), et a la même masse qu'un électron.

##### ❖ *Collision d'une particule et de son antiparticule*

Lorsqu'une particule de masse  $m$  rentre en contact avec son antiparticule correspondante, elles s'annihilent pour former une ou plusieurs particules quelconques, mais qui ont une énergie égale à celle initiale, et qui conservent un certain nombre de caractéristiques comme la charge électrique totale qui doit donc être nulle. En particulier, l'annihilation peut produire une particule et son antiparticule différentes de celles initiales.

##### ❖ *L'annihilation*

En physique des particules, l'annihilation est le processus qui se produit lorsqu'une particule subatomique entre en collision avec son antiparticule donnant lieu à une libération d'énergie. Ce phénomène se produit le plus souvent lorsque le positron a perdu son énergie cinétique  $\implies$  quand il est au repos :



Par conservation d'énergie,  $E_{\text{avant}} = E_{\text{après}} \implies 2m_e c^2 = 1,022 \text{ MeV} = E_\gamma + E_\gamma$

$\implies$  Chaque photon a une énergie de 511 KeV.

##### ❖ *Annihilation électron-positron*

Une annihilation électron-positron est le résultat possible de la collision d'un électron et de son antiparticule, le positron. L'électron et le positron sont annihilés et deux (ou plus) photons gamma sont créés.



*Figure III-3.* Annihilation électron-positron

### I.3.b Création de paires $e^+ e^-$ $\gamma + \text{noyau} \longrightarrow e^+ + e^-$

Si un photon très énergétique (avec une énergie supérieure à  $2m_e c^2$  (1,022 MeV)) lorsqu'il passe dans le champ coulombien d'un noyau, il existe une certaine probabilité pour que le photon se matérialise en donnant naissance à une paire électron-positron. L'excès d'énergie se retrouve sous la forme d'énergie cinétique de l'électron et du positron :

$$E_\gamma = 2m_e c^2 + E_{\text{cin}}^+ + E_{\text{cin}}^-$$

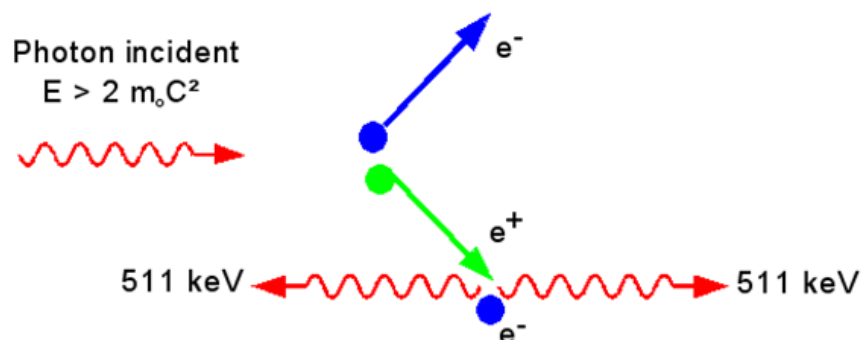
avec  $E_{\text{cin}}^-$  : énergie cinétique de l'électron.

$E_{\text{cin}}^+$  : énergie cinétique du positron

$E_\gamma$  : énergie du photon  $\gamma$

- L'énergie du photon est convertie en masse de particule suivant l'équation d'Einstein  $E = mc^2$ , où  $E$  est l'énergie,  $m$  la masse au repos et  $c$  la vitesse de la lumière. Le photon doit avoir une énergie supérieure à la somme des énergies de masse au repos d'un électron et d'un positron ( $2 \times 0,511 \text{ MeV} = 1,022 \text{ MeV}$ ) pour que la production puisse avoir lieu.
- Si le photon a une énergie exacte de 1.022 MeV, toute celle-ci est utilisée pour créer l'énergie de masse au repos des deux particules de sorte que les particules restent au repos et se recombinent par la suite.
- Si le photon incident a une énergie  $\geq 1.022 \text{ MeV}$ , l'excès d'énergie est transformé en énergie cinétique, énergie qui leur permet de se déplacer à une vitesse donnée à partir du point de création.
- Disparition du photon au voisinage du noyau
- Le positron ne peut pas exister au repos, il s'annihile (dématérialisation) avec un électron du milieu en donnant naissance à 2 photons de 511 KeV chacun, et à  $180^\circ$  l'un de l'autre (qui vont être absorbés par le milieu).
- L'électron devient un électron libre de la matière uniquement soumis à l'agitation thermique.

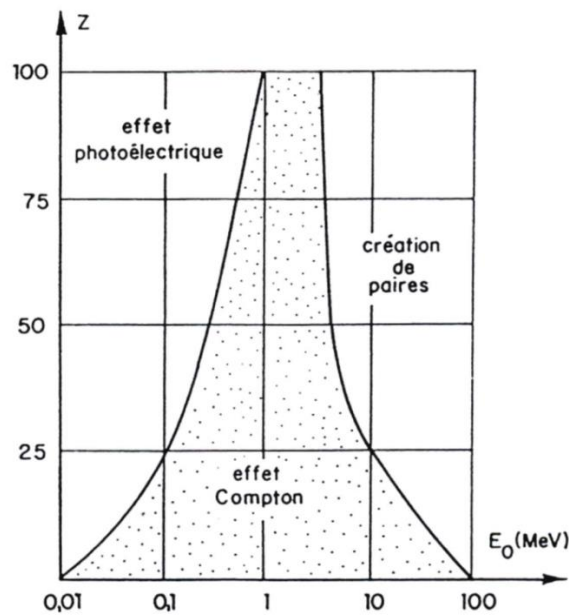
Ce processus de conversion en une paire  $e^+ e^-$  ne peut pas se produire dans le vide.



*Figure III-4.* Principe de la « production de paires »

**Tableau III-01.** Tableau récapitulatif des Interactions des photons avec la matière.

	<b>Effet photoélectrique</b>	<b>Diffusion Compton</b>	<b>Création de paire</b>
<b>Partie impliqué de l'atome</b>	électron du niveau interne	électron du niveau externe	Noyau
<b>Énergies des photons</b>	Faible (<1 MeV)	moyenne (0.2 to 5 MeV)	élevée (> 1.02 MeV)
<b>Z de l'absorbant</b>	Augmente comme $Z^5$	Augmente avec $Z$	augmente comme $Z^2$
<b>Conséquences</b>	Éjection d'un électron du niveau interne de l'atome. Production des rayons X caractéristiques.	Éjection d'un électron du niveau externe de l'atome. Le photon diffuse avec une énergie réduite.	Production de paire électron positron. le positron subit l'annihilation pour former deux photons de 0.51 MeV.



**Figure III-5.** Prédominance des trois effets élémentaires selon le numéro atomique  $Z$  de la cible et l'énergie  $E$  des photons incidents.

**Exercice d'application**

1. Un photon d'énergie  $E=h\nu$  est diffusé par effet Compton sur un électron au repos.

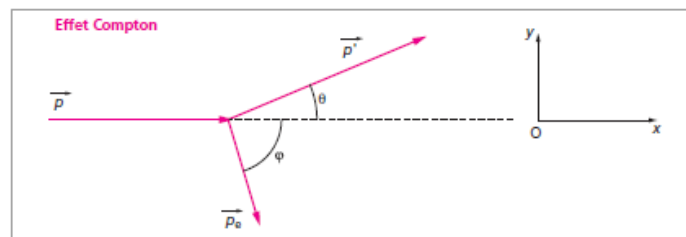
Déterminer en fonction de  $E$ ,  $m_e C^2$  et  $\theta$  (angle entre les directions des photons diffusé et incident) l'énergie cinétique  $E_C$  de l'électron diffusé. Quelle est sa valeur maximale (en MeV) ? Quelle est alors la direction de l'électron diffusé ?

2. Déterminer le décalage en longueur d'onde entre les rayonnements diffusé et incident :

$\Delta\lambda = \lambda' - \lambda$  en fonction de  $m_e$ ,  $C$  et  $\theta$ . Calculer la longueur d'onde de Compton de l'électron.

Données :  $E = 2 \text{ MeV}$ ;  $m_e C^2 = 0,51 \text{ MeV}$

### Corrigé de l'exercice



1. Soit  $E'$  l'énergie du photon diffusé :  $E' = h\nu'$

$$E_C = \frac{E}{1 + \frac{m_e C^2}{E(1 - \cos\theta)}}$$

$E_C$  est maximale lorsque  $(1 - \cos \theta)$  est maximal, c'est-à-dire égal à  $2(\theta = \pi)$ .

**A.N.**  $E_{C\max} = 1,8 \text{ MeV}$  : L'électron emporte presque toute l'énergie du photon.

$\theta = \pi \rightarrow \varphi = 0$  : l'électron part dans la direction et le sens du photon incident. Le photon est rétrodiffusé.

2. Cette question est indépendante de la première et constitue une question « classique » de l'effet Compton. On reprend les notations utilisées au 1 en les complétant avec  $E_e$  l'énergie de l'électron diffusé.

## I.4 La Diffusion Thomson

Sir Joseph John Thomson (18 décembre 1856 - 30 août 1940) est un physicien anglais. Il a découvert l'électron ainsi que les isotopes et a inventé la spectrométrie de masse.

Il a reçu le prix Nobel de physique de 1906 pour « ses recherches théoriques et expérimentales sur la conductivité électrique dans les gaz ». Ses recherches ont fourni les preuves de l'existence de l'électron.



Joseph John Thomson

La diffusion Thomson est la diffusion d'un photon de faible énergie sur une particule chargée au repos, en générale un électron libre, c'est-à-dire non lié à un atome. La diffusion Thomson est un des deux régimes particuliers de la diffusion Compton plus générale.

Cette diffusion s'effectue pour des énergies faibles, le rayonnement électromagnétique est absorbé puis réémis par la particule. Durant cette interaction l'énergie transmise à la particule chargée par le photon est négligée, tant que l'énergie des photons ne dépasse pas 45 keV, il s'agit alors d'une diffusion élastique. La direction de propagation de l'onde électromagnétique associée au photon change sans diminution de l'énergie.

Cette diffusion est similaire à la diffusion Rayleigh à la différence près que cette dernière s'effectue sur des particules chargées liées à des atomes.

Pour les hautes énergies, ce mode de diffusion devient négligeable par rapport à la diffusion Compton.

Le rayonnement incident, caractérisé par un vecteur d'onde  $\mathbf{s}_0$  et un champ électrique  $\mathbf{E}_0$ , soumet l'électron à une accélération  $\gamma$  : cet électron émet un rayonnement secondaire qui, à grande distance (Pour les rayons X, la distance d'observation (quelques centimètres) est toujours très grande devant la longueur d'onde.) de la source, possède une structure d'onde plane polarisée dans le plan  $\mathbf{E}_0, \mathbf{s}_0$ . L'amplitude des champs de l'onde électromagnétique diffusée est proportionnelle à l'accélération.

Le mouvement de l'électron est donné par la relation :

$$\frac{m d^2 x}{d t^2} + F \frac{dx}{dt} + m \cdot \omega_0^2 \cdot x = -e \cdot E_0 \cdot e^{j\omega t}$$

Si l'électron est peu lié, les forces de frottement et de rappel sont négligeables.

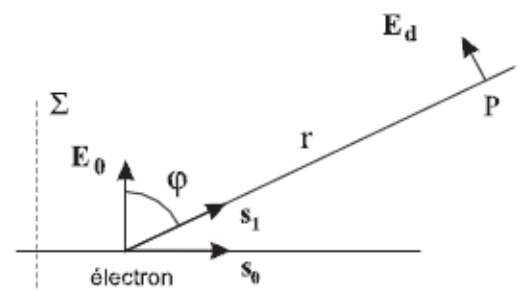
L'accélération de l'électron est donc :

$$\gamma = \frac{e}{m} E_0 \cdot e^{j\omega t}$$

L'amplitude diffusée en P est égale à<sup>2</sup> :

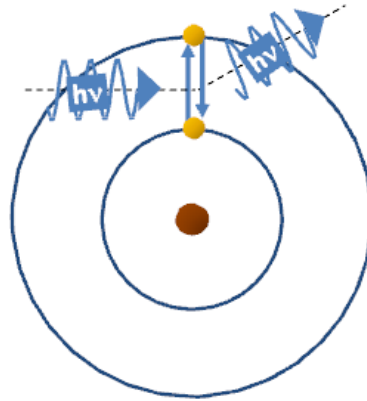
$$E_p = \frac{\mu_0}{4 \cdot \pi} \frac{e^2}{m} \frac{\sin \varphi}{r} E_0 = \frac{1}{4 \cdot \pi \cdot \epsilon_0} \frac{e^2}{m \cdot c^2} \frac{\sin \varphi}{r} E_0$$

Les électrons des atomes légers et les électrons externes des atomes lourds, se comportent vis-à-vis des rayons X comme des électrons libres car leur énergie de liaison avec le noyau correspond à des fréquences propres très inférieures à celle du rayonnement incident. Pour les électrons des couches internes des atomes lourds, l'énergie de liaison est comparable à celle du rayonnement ; il peut y avoir un couplage qui se traduit par de la **dispersion**.



En conclusion :

- Photons de faible énergie ( $<45$  KeV, sinon négligeable)
- Déviation des la direction des photons incidents sans transfert d'énergie
  - ✚  $h\nu$  absorbé par l'atome
  - ✚ L'atome en état excité retour à l'état fondamental
  - ✚ Emission de la même énergie  $h\nu$  mais dans des directions aléatoires

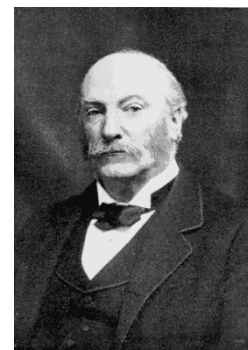


*Figure III-6.* Diffusion Thomson

## I.5 La diffusion de Rayleigh

En 1871, John William Strutt Rayleigh fournit une explication de la couleur du ciel en la reliant à la diffusion de la lumière par les molécules d'air.

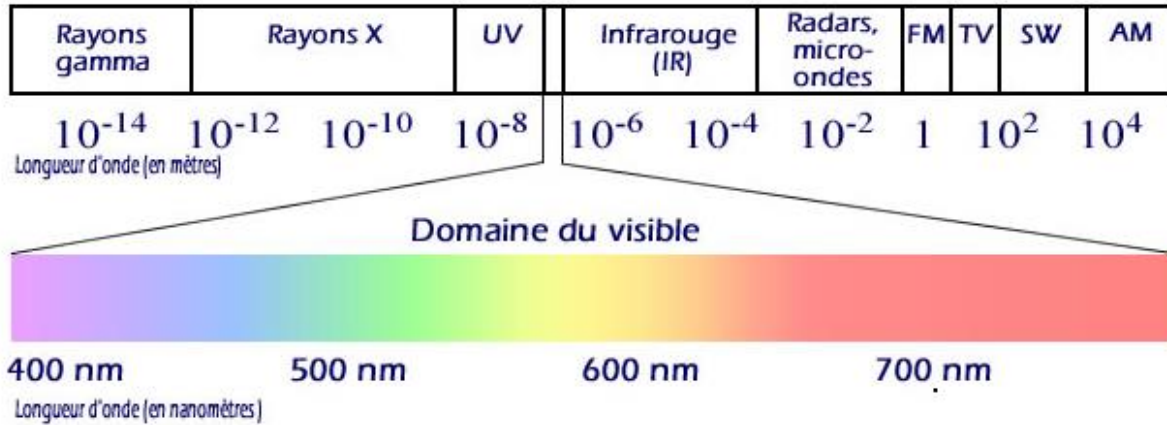
Aussi connu sous le titre lord Rayleigh, c'était un physicien anglais. Il est lauréat du prix Nobel de physique de 1904.



John William Strutt Rayleigh

### I-5-a Généralité sur la diffusion

La diffusion se produit lorsque la lumière coïncide des particules en pénétrant un milieu transparent. Dans l'atmosphère, les molécules de l'air diffusent la lumière. La source qui est ici le soleil émet un rayonnement. Ces rayons sont absorbés par des particules appelés diffuseurs puis ils sont rediffusés dans toutes les directions.



*Figure III-7.* Domaine de longueurs d'ondes de la lumière

La diffusion est importante quand la longueur d'onde est petite. Dans l'atmosphère terrestre, le bleu est diffusé jusqu'à huit fois plus que le rouge. C'est grâce au phénomène de diffusion de la lumière que notre ciel est lumineux durant la journée.

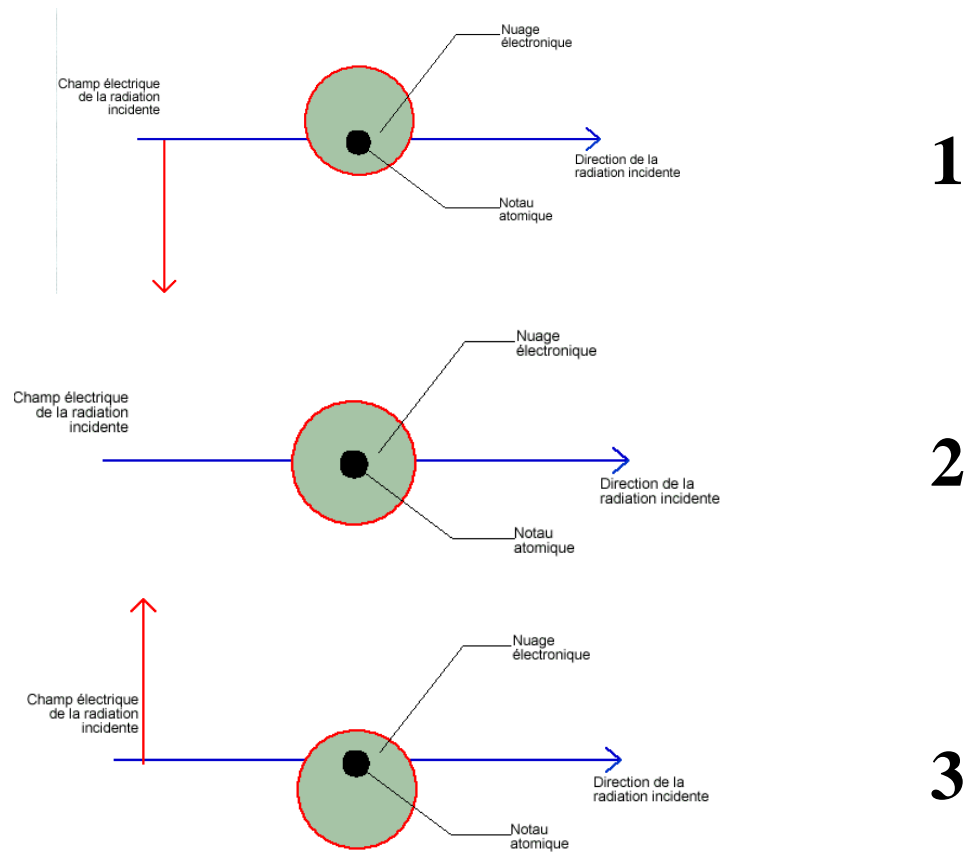
Le Soleil émet une émission centrée sur le jaune, une émission de corps noir désignant un objet idéal dont le spectre électromagnétique ne dépend que de sa température. Quand le soleil est haut dans le ciel, sa couleur est peu affectée par l'absorption atmosphérique et il nous apparaît jaune.

Lorsque le Soleil est au couché, sa lumière traverse une plus grande couche d'air. Les couleurs bleue, verte et jaune de la lumière sont de plus en plus diffusées et absorbées par des aérosols, le soleil paraît donc rouge.

La diffusion Rayleigh s'applique quand la dimension de la particule est petite devant la longueur d'onde. On parle de diffusion élastique, car cela se fait sans variation d'énergie, autrement dit l'onde conserve la même longueur d'onde.

La diffusion de Rayleigh est la diffusion par les molécules. Quand la lumière traverse l'atmosphère, elle est diffusée dans toutes les directions.

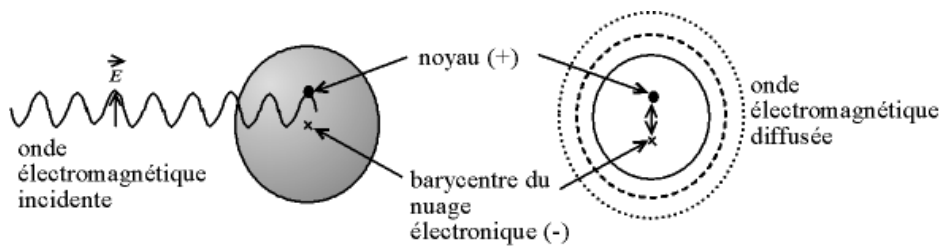
La taille de l'atome est très petite devant la longueur d'onde de la radiation. L'atome est alors soumis à la force magnétique et la force électrique. La première est négligeable devant la seconde. D'autre part, le noyau étant beaucoup plus lourd que l'électron, son déplacement est négligé devant celui de l'électron. On peut dessiner le comportement du nuage électronique soumis à une radiation incidente :



**Figure III-8.** Schématisation des oscillations du nuage électronique soumis à une radiation incidente.

La distance noyau - barycentre (point d'équilibre) du nuage électronique oscille au cours du temps à la même pulsation que celle de l'onde incidente.

Or, on peut décrire l'onde électromagnétique comme étant un champ électrique oscillant marié à un champ magnétique oscillant à la même fréquence. Ce champ électrique va modifier le nuage électronique des atomes, le barycentre des charges négatives oscillant ainsi par rapport au noyau avec une charge positive. Le dipôle électrostatique ainsi créé rayonne, c'est ce rayonnement résultant qui constitue la diffusion Rayleigh (*figure III-9*).



**Figure III-9.** Diffusion Rayleigh : l'atome, excité par l'onde électromagnétique, réémet une onde

La diffusion de Rayleigh n'est valable que pour les particules diffusantes très petites devant la longueur d'onde. De plus grosses particules diffusent également toutes les couleurs et donnent un aspect blanc au ciel autour du soleil, les nuages sont plus ou moins gris en fonction de leur épaisseur, c'est à dire de la lumière qu'ils absorbent, il y'a des diffusions multiples dans les nuages. La diffusion Rayleigh est plus forte dans le bleu, à 400 nm, que dans le rouge à 650 nm. Ceci explique pourquoi le ciel est bleu la journée et le soleil rouge au couché.

## II. ABSORPTION DES RAYONS X

L'absorption totale résulte de deux phénomènes : la diffusion et l'effet photoélectrique. La première cause d'absorption produit des effets à peu près négligeables vis-à-vis de la seconde. Elle résulte de la diffusion cohérente donc sans changement de longueur d'onde (diffusion Thomson) et de la diffusion incohérente (diffusion Compton).

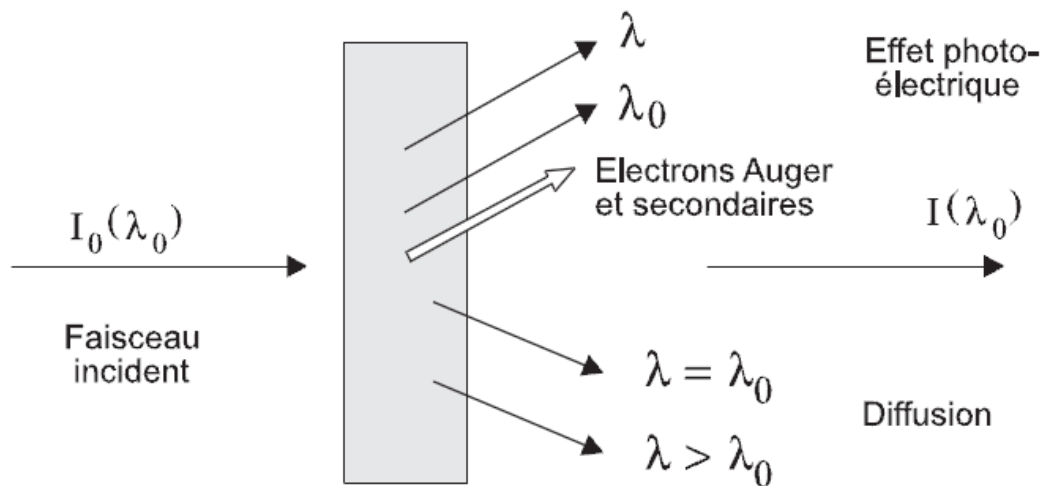


Figure III-10. Absorption des rayons X

### II.1 Coefficient d'absorption

Soit un faisceau monochromatique de section unité qui traverse un écran homogène. Il perd une énergie  $dI$  proportionnelle à la masse de l'écran par unité de surface ( $dp$ ) et à l'intensité incidente ( $I$ ) :

$$dI = -\mu \cdot I \cdot dp$$

$\mu$  est le coefficient d'absorption massique de l'écran. Par intégration on tire :

$$\frac{I}{I_0} = e^{-\mu \rho x}$$

( $x$  est l'épaisseur de l'écran,  $\rho$  est sa masse volumique.)

## II.2 Variation du coefficient d'absorption

Le coefficient d'absorption massique est fonction du numéro atomique de l'élément et de la longueur d'onde.

### II.2.a Variation avec la longueur d'onde

La courbe de variation de  $\mu$  avec la longueur d'onde présente des discontinuités qui s'interprètent par l'effet photoélectrique, c'est-à-dire l'absorption du photon par l'atome avec expulsion d'un électron. Il y a émission d'un rayonnement secondaire dit de « fluorescence » et éventuellement d'électrons Auger et secondaires.

Pour qu'une couche soit ionisée, il faut que l'énergie  $h \cdot \nu$  du photon primaire soit supérieure à l'énergie de liaison de l'électron. Une couche donnée, par exemple la couche K, ne sera ionisée que par des radiations de fréquence  $\nu$  supérieure à  $\nu_K$  telle que :

$$h \cdot \nu_K = W_K = \frac{h \cdot c}{\lambda_K}$$

La longueur d'onde doit être inférieure à :

$$\lambda_K (\text{\AA}) = \frac{h \cdot c}{W_K} = \frac{h \cdot c}{e \cdot V_K} = \frac{12394}{V_K(\text{volt})}$$

Dès que  $\lambda$  est inférieur à  $\lambda_K$ , la couche K est ionisée et l'absorption par cette couche est maximum, elle décroît ensuite avec  $\lambda$ . Le même phénomène se produit avec les couches L mais l'amplitude relative des discontinuités est plus faible.

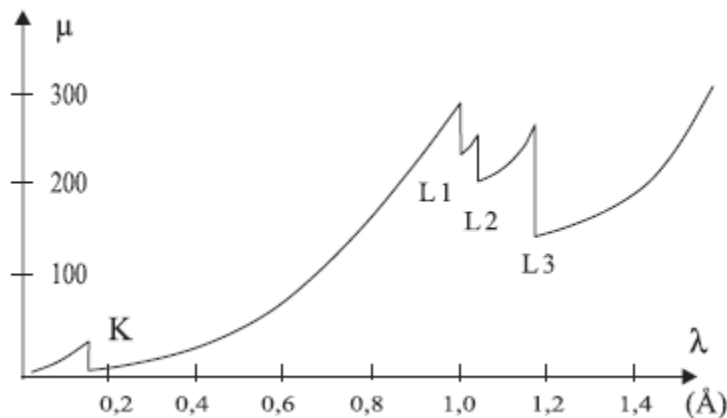


Figure III-11. Variation du coefficient  $\mu$  pour un écran de tungstène.

Dans les domaines séparant les zones de discontinuité, le coefficient d'absorption d'un corps simple varie sensiblement comme  $C \cdot Z^3 \cdot \lambda^3$  (Loi de Bragg-Pierce).

### II.2.b Variation avec la nature de l'élément

L'absorption croît avec le numéro atomique de l'élément. Les éléments légers sont peu absorbants alors que les éléments lourds le sont beaucoup.

**Tableau III-2.** Variation du coefficient d'absorption en fonction de Z

Z	élément	$\mu_\rho$ (cm <sup>2</sup> .g <sup>-1</sup> ) pour Cu-K $\alpha$
4	Be	1,5
8	O	11,5
29	Cu	52,9
82	Pb	232

L'accroissement de  $\mu$  avec Z n'est pas continu et présente des discontinuités qui ont la même origine que les précédentes.

Si l'on considère, par exemple, la raie K $\alpha$  du cuivre ( $\lambda = 1,542 \text{ \AA}$ ), les éléments de numéro atomique inférieur ou égal à 27 (cobalt) ont une longueur d'onde critique  $\lambda_K$  supérieure à  $\lambda$  ( $\lambda_{KCo} = 1,608 \text{ \AA}$ ). C'est l'inverse pour les éléments suivants (nickel :  $\lambda_{KNi} = 1,489 \text{ \AA}$ ) et l'ionisation de la couche K devient alors impossible. Pour la radiation K $\alpha$ Cu, il y a une brusque diminution du coefficient  $\mu$  entre le cobalt et le nickel.

### II.3 Coefficient d'absorption massique d'un matériau composé

Pour un matériau composé le coefficient d'absorption massique est la somme des contributions de chaque élément pondérées par les fractions massiques correspondantes. Par exemple pour le composé AaBbCc de masse molaire  $M = m(A) + m(B) + m(C)$  le coefficient d'absorption massique  $\mu_\rho$  global est donné par :

$$\mu_\rho = \mu_\rho(A) \cdot [m(A)/M] + \mu_\rho(B) \cdot [m(B)/M] + \mu_\rho(C) \cdot [m(C)/M]$$

## II.4 Application de l'absorption

### II.4.a Protection contre le rayonnement

Pour protéger l'expérimentateur on utilise des écrans absorbants généralement à base de plomb. Dans une installation de production de rayons X, il y a, outre le faisceau provenant de

la source (ou faisceau direct) divers rayonnement diffusés par les matériaux rencontrés par ce faisceau (bords des fentes, cristaux, écrans). Aussi le circuit parcouru par les rayons X est-il toujours canalisé et recouvert. Le rayonnement diffusé est très faible et un métal léger, plus convenable aux montages que le plomb, suffit pour l'éliminer. Dans les applications médicales il faut filtrer le rayonnement X. Ce n'est qu'après absorption des rayons X mous que les rayons X durs peuvent être utilisés en radiographie.

#### ***II.4.b Obtention d'un rayonnement monochromatique***

Cette méthode utilise la discontinuité d'absorption. Les rayons X émis par la source sont polychromatiques (spectres continu et de raies). Mais si on interpose sur le chemin un écran dont la discontinuité d'absorption précède une des raies du spectre, celle-ci passe, le reste est absorbé. Le rayonnement obtenu est monochromatique

### **III. UTILISATION DES RAYONS X ET SECURITÉ**

Les rayons X d'énergie moyenne utilisés en cristallographie *sont très dangereux* pour l'organisme humain car, en raison de leur faible pénétration, toute leur énergie est absorbée et ionise les molécules ou atomes des tissus. Une irradiation massive a des conséquences visibles (radiodermites), mais même des doses faibles peuvent provoquer une modification de la formule sanguine (en particulier une diminution du nombre de globules rouges). La protection est réalisée par des écrans en éléments lourds (par exemple écrans de plomb). S'il faut éviter le contact avec le faisceau direct, une exposition prolongée au rayonnement diffusé et de fluorescence présente également un grave danger. Les appareils commerciaux récents non modifiés peuvent en général être utilisés sans danger par un personnel bien informé. La fréquentation de zones équipées de générateurs RX est désormais soumise à des règles très strictes sous le contrôle d'une personne compétente en radioprotection (PCR). Comme moyen de contrôle pour les "personnes habilitées" citons : l'utilisation de détecteurs portables, les dosimètres individuels (poitrine, poignet ou bague) et surtout un examen de formule sanguine au moins une fois par an.

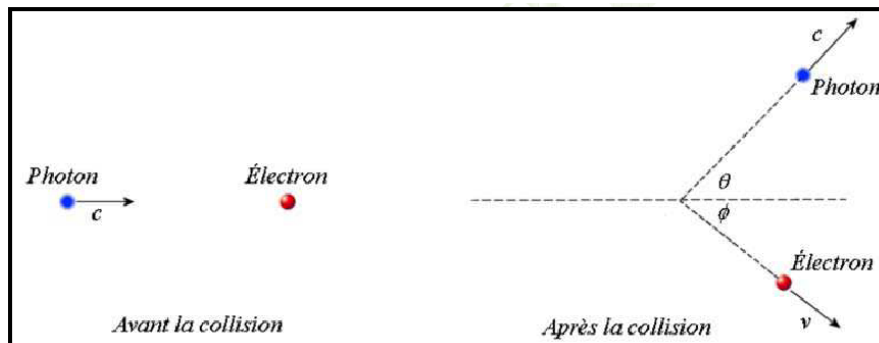
## **TD 2**

### **Exercice 1**

Des photons ayant une énergie de 62 keV sont diffusés par effet Compton par des électrons.

- 1- Quel est le changement de longueurs d'onde des photons diffusé à un angle de 45°?
- 2- Quelle est la longueur d'onde des photons diffusés à 45°?
- 3- Quelle est l'énergie (en keV) des photons diffusés à 45°?
- 4- Quelle est l'énergie cinétique des électrons après qu'ils aient provoqué la diffusion des photons avec un angle de 45°?

5- À quel angle sont projetés les électrons après qu'ils aient provoqué la diffusion des photons avec un angle de  $45^\circ$  (Angle  $\Phi$  sur la figure)?



### Exercice 2

#### L'effet photo électrique :

- a) peut se produire quelque soit l'énergie du photon incident :
- b) donne naissance à un photon diffusé :
- c) augmente si l'énergie du photon incident diminue
- d) se produit entre un photon et un électron
- e) Le photon incident disparaît après son interaction avec un électron lié : on parle d'absorption totale.
- f) Une partie de l'énergie du photon incident est nécessaire pour vaincre l'énergie de liaison de l'électron et l'arracher à sa couche.
- g) La probabilité d'effet photoélectrique diminue au profit de l'effet Compton lorsque le numéro atomique  $Z$  du milieu traversé augmente.
- h) Les photons diffusés après ce type d'interaction ont une énergie proche de zéro.
- i) Lorsque le photon ne parvient pas à arracher l'électron, ce dernier peut voir sa charge s'inverser et se transformer en positon.

### Exercice 3

A propos de l'atténuation du faisceau de rayons X lors de la traversée de l'organisme d'un patient :

- a) L'atténuation du faisceau suit une loi exponentielle décroissante.
- b) La couche de demi-atténuation (CDA) s'exprime en  $m^{-1}$ .
- c) La CDA représente la profondeur au bout de laquelle le nombre de photons dans le faisceau est divisé par  $\ln 2$

### Exercice 4

1 – Concernant les propositions suivantes, choisissez laquelle ou lesquelles est ou sont exacte(s).

**A** – Si le rayonnement a une énergie de 500 keV et que le matériau traversé est du muscle, elle résulte essentiellement d'interactions photons-matière par effet-Compton et effet production de paires.

**B** – Le coefficient linéique d'atténuation dépend de la nature du milieu traversé.

**C** – Dans l'effet photoélectrique. Les photons diffusés après ce type d'interaction ont une énergie proche de zéro.

**D** – Le changement de direction d'un photon s'associe toujours d'un échange (partage) d'énergie.

**E** – La diffusion élastique de Compton peut se faire sur un électron superficiel ou sur un électron libre.

**2 – Concernant les propositions suivantes, choisissez laquelle ou lesquelles est ou sont exacte(s).**

**A** – Lors de l'effet Compton, le photon est diffusé selon un angle de  $180^\circ$ .

**B** – L'électron émis lors de l'effet Compton part selon un angle de  $0$  à  $90^\circ$  par rapport au photon émis.

**C** – L'effet Compton est associé à une augmentation de la longueur d'onde du photon émis par rapport au photon incident

**D** – La probabilité d'interaction selon effet Compton dépend de la densité électronique de l'atome cible

**E** – Toutes choses constantes par ailleurs, la probabilité d'interaction par effet Compton est proportionnelle à l'énergie des photons incidents.

**3 – Concernant les propositions suivantes, choisissez laquelle ou lesquelles est ou sont exacte(s).**

**A** – Lors de l'effet photoélectrique, le photon incident est complètement absorbé par le noyau de l'atome cible.

**B** – L'effet photoélectrique se fait sur un électron d'une couche superficielle.

**C** – L'effet photoélectrique entraîne une ionisation de l'atome et donc l'émission de photon de fluorescence.

**D** – Les photons de fluorescence émis lors de l'effet photoélectrique peut entraîner l'éjection d'un deuxième électron appelé électron d'Auger.

**E** – La probabilité d'interaction par effet Compton dépend du numéro atomique de la cible.

**4 – Concernant les propositions suivantes, choisissez laquelle ou lesquelles est ou sont exacte(s).**

**A** – La probabilité d'interaction par effet photoélectrique se note  $\tau$ .

**B** – Dans le rayonnement de freinage, plus le  $Z$  plus le phénomène est important.

**C** – La probabilité d'interaction par effet photoélectrique diminuera plus vite que la probabilité d'interaction selon l'effet Compton lorsque l'énergie des rayons va augmenter.

**D** – N'importe quel photon peut se matérialiser sous forme d'une paire dans le champ magnétique intense qui règne proche du noyau.

**E** – L'émission d'un photon : fluorescence x succèdent l'effet photoélectrique.

## Chapitre 4

# Détermination des directions et intensités des rayons diffractés



*Marie Curie a reçu le prix Nobel de Chimie en 1903. C'est la première fois qu'une femme a obtenu ce prix.*

# DIFFRACTION D'UNE ONDE PAR UN CRISTAL

## CONDITION DE DIFFRACTION

L'enregistrement et le traitement des faisceaux diffractés sont à la base des meilleures méthodes expérimentales d'étude de la structure de la matière, comme la diffraction des rayons X, la diffraction des électrons et la diffraction des neutrons, qui sont les seules méthodes qui accèdent à la fois à la reconnaissance de la nature de toute matière solide et de sa structure tridimensionnelle au niveau des atomes et des liaisons chimiques.

Dans un premier temps, nous évoquerons les conditions qui régissent l'apparition de ces faisceaux diffractés, conditions présentés de trois manières. Des conditions pour obtenir des interférences constructives:

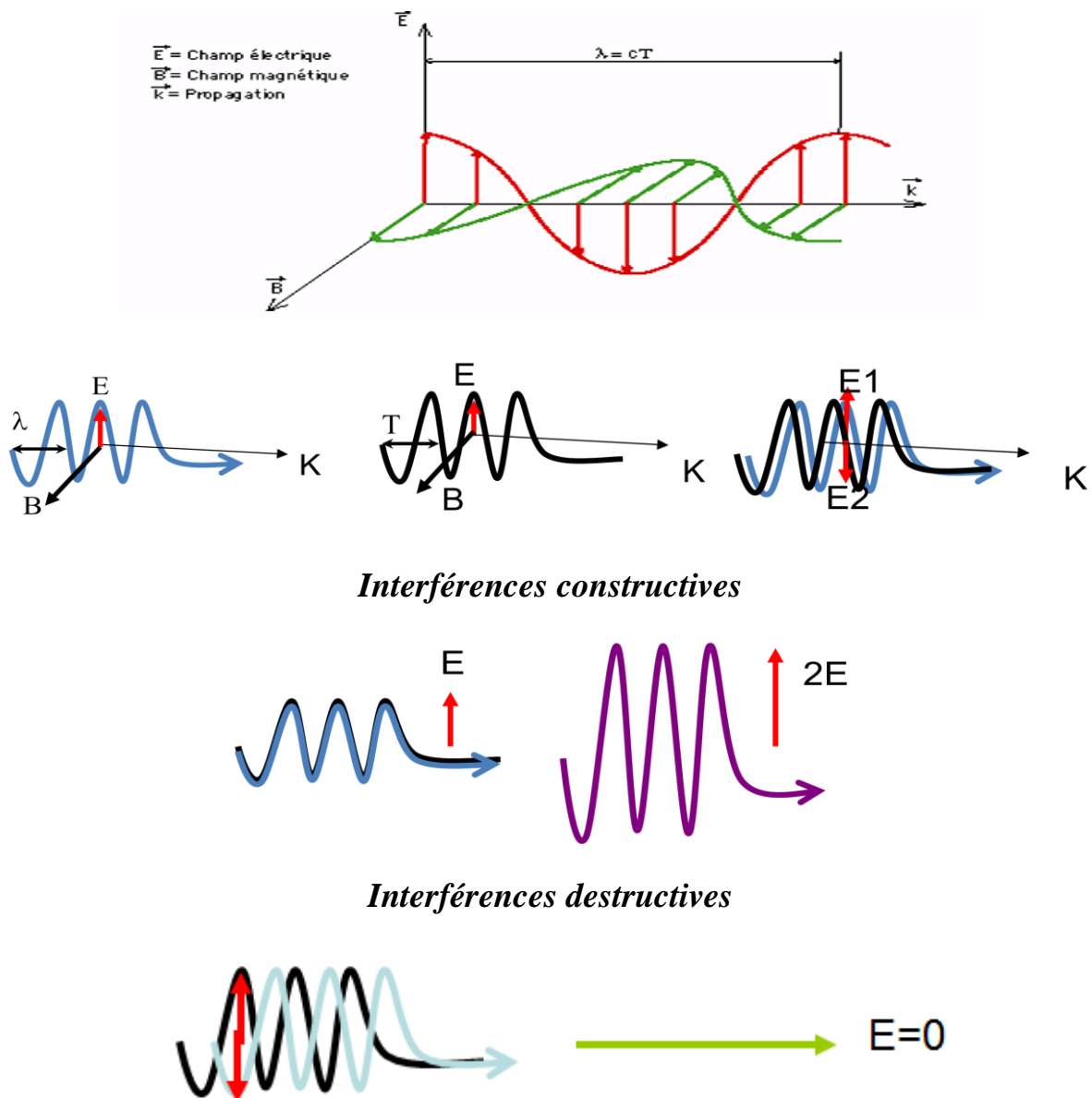


Figure IV-1. Interférences constructives et destructives entre deux ondes.

## I. CONDITIONS DE LAUE

Le nombre de mailles du cristal étant très grand, l'intensité diffusée est nulle partout sauf si les trois fonctions  $A_q(\mathbf{a}_i \cdot \mathbf{S})$  sont simultanément maximales, c'est-à-dire si les produits  $\mathbf{a}_i \cdot \mathbf{S}$  sont entiers.

Les vecteurs  $\mathbf{S}$  vérifient alors les **conditions de Laue** :

$$\left. \begin{array}{l} \mathbf{a} \cdot \mathbf{S} = h \\ \mathbf{b} \cdot \mathbf{S} = k \\ \mathbf{c} \cdot \mathbf{S} = \ell \end{array} \right\} \mathbf{h}, \mathbf{k}, \ell \text{ entiers}$$

**Remarque** : Il est possible de retrouver simplement les directions de diffraction pour un réseau tripériodique en utilisant la méthode suivante :

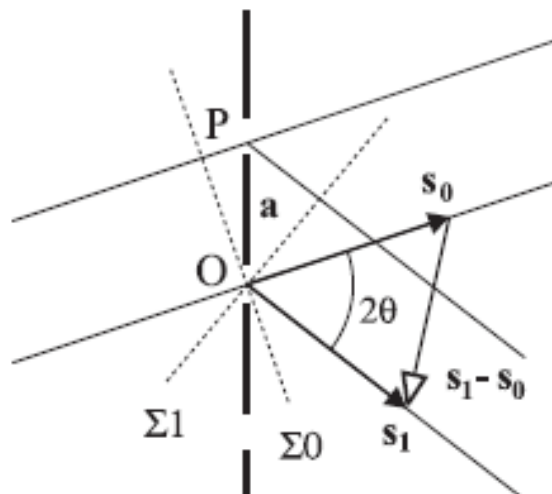
On considère une rangée de diffracteur ponctuel (*figure IV-2*) distants de  $a$  éclairés par une onde plane de vecteur d'onde  $\mathbf{s}_0$  et on observe à l'infini dans la direction  $\mathbf{s}_1$ .

La différence de phase entre l'onde incidente et l'onde diffractée est entre les points O et P égale à :

$$\varphi = \frac{2 \cdot \pi \cdot a \cdot (s_1 - s_0)}{\lambda}$$

$$\text{En posant : } S = \frac{(s_1 - s_0)}{\lambda}$$

$$\text{On obtient : } \varphi = 2 \cdot \pi \cdot a \cdot S$$



*Figure IV-2.* Rangée de diffracteurs ponctuels

Il y a interférence constructive si la différence de phase entre deux nœuds successifs est égale à un nombre entier de fois  $2\pi$ , donc si  $\mathbf{a} \cdot \mathbf{S} = h$  (entier). Le résultat est généralisé pour trois dimensions.

### I-1 Nature du vecteur $\mathbf{S}$

Soit  $2\theta$  l'angle entre les vecteurs d'onde  $\mathbf{s}_1$  et  $\mathbf{s}_0$ . La norme du vecteur  $\mathbf{S}$  est égale à :

$$\|\mathbf{S}\| = \frac{2 \cdot \sin\theta}{\lambda}$$

Les conditions de Laue peuvent s'écrire :

$$\frac{a}{h} S = l \quad \frac{b}{k} S = l \quad \frac{c}{l} S = l$$

Donc :

$$\left(\frac{a}{h} - \frac{b}{k}\right) \cdot S = 0 \quad \left(\frac{a}{h} - \frac{c}{l}\right) \cdot S = 0$$

Les vecteurs  $\frac{a}{h} - \frac{b}{k}$  et  $\frac{a}{h} - \frac{c}{l}$  appartiennent au plan  $\frac{x}{a} + k \frac{y}{b} + l \frac{z}{c} = 1$  de la famille de plans réticulaires (hkl) le vecteur  $\mathbf{S}$ , étant normal à deux vecteurs contenus dans le premier plan réticulaire de la famille d'indices h, k et l qui ne passe pas par l'origine, est donc normal à la famille de plans (hkl).

La distance  $d_{hkl}$  entre deux plans de la famille est égale à la projection du vecteur  $\mathbf{a}/h$  sur le vecteur unitaire normal à ces plans :

$$d_{hkl} = \frac{a}{h} \cdot \frac{S}{\|\mathbf{S}\|} = \frac{l}{\|\mathbf{S}\|}$$

**Les vecteurs  $\mathbf{S}$  sont donc des vecteurs du réseau réciproque.**

Les directions de diffractions permises dans un réseau sont celles définies par les rangées de son réseau réciproque.

### I.2 Domaines de diffraction

On peut écrire l'intensité diffractée sous la forme du produit d'un **facteur de forme**  $L^2$  et d'un **facteur de structure**  $F^2$ . Comme  $\mathbf{S}$  est un vecteur réciproque égal à  $N_{hkl}^* = h \cdot A^* + k \cdot B^* + l \cdot C^*$ , le facteur de forme L peut s'écrire selon le produit :

$$L_S = \sum_{u=1}^m e^{j2 \cdot \pi \cdot u \cdot h} \cdot \sum_{v=1}^n e^{j2 \cdot \pi \cdot v \cdot k} \cdot \sum_{w=1}^p e^{j2 \cdot \pi \cdot w \cdot l}$$

C'est le produit de trois suites géométriques que l'on peut écrire :

$$L_s = \frac{\sin \pi \cdot m \cdot h}{\sin \pi \cdot h} \frac{\sin \pi \cdot n \cdot k}{\sin \pi \cdot k} \frac{\sin \pi \cdot p \cdot l}{\sin \pi \cdot l}$$

La **fonction d'interférence** qui correspond à l'intensité diffractée est égale à  $L_s^2$ .

Pour un *crystal illimité* ( $m = \infty, n = \infty, p = \infty$ ) cette fonction est nulle partout sauf pour les valeurs entières de  $h, k$  et  $l$  où elle est infinie. C'est une distribution de pics de Dirac sur les nœuds du réseau réciproque.

Pour un *crystal limité*, c'est une fonction tripériodique qui présente des maxima principaux pour les valeurs entières de  $h, k$  et  $l$  et des maxima secondaires séparés par des minima nuls. Seuls les maxima principaux ont une intensité notable, ils forment dans l'espace réciproque une distribution tripériodique de volumes de diffraction dont les dimensions sont  $2A^*/m, 2B^*/n$  et  $2C^*/p$  (distances entre les premiers minima nuls) : pour un cristal fini, l'intensité diffractée ne s'annule pas immédiatement lorsque l'on s'écarte des conditions exactes de Laue.

La diffraction se produit tant que l'extrémité du rayon diffractée reste à l'intérieur du volume de diffraction du nœud considéré. On dit qu'il y a *relâchement des conditions de diffraction*.

On utilise souvent deux autres **formulations équivalentes** des conditions de Laue : la construction d'Ewald et la loi de Bragg, qui sont basées sur une construction géométrique simple.

### En résumé,

On considère des diffuseurs alignés distants de  $\mathbf{a} \rightarrow$  interférences constructives si la différence de marche est un multiple de la longueur d'onde:

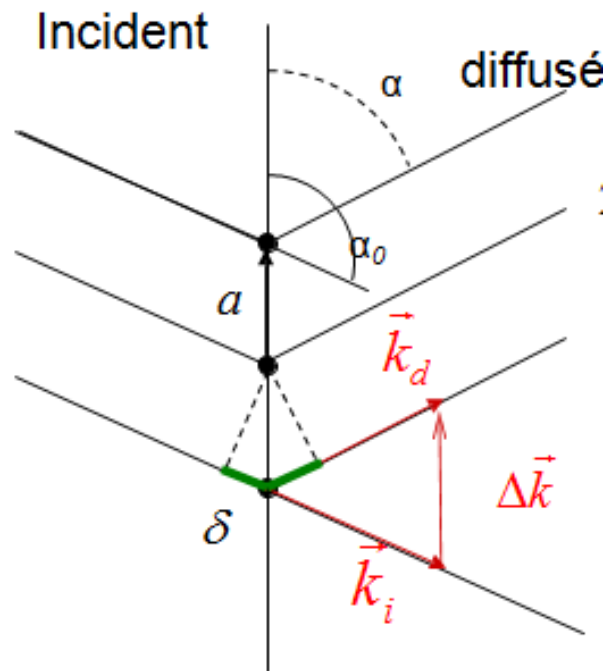
$$2\delta = a(\cos(\alpha) - \cos(\alpha_0)) = \lambda \cdot \vec{a} \cdot (\vec{k}_d - \vec{k}_i) = \lambda \cdot \vec{a} \cdot \Delta\vec{k} = p \cdot \lambda$$

avec  $p$  entier

$$\begin{array}{l} \text{Pour un cristal} \\ \vec{a} \cdot \Delta\vec{k} = p \cdot \lambda \\ \vec{b} \cdot \Delta\vec{k} = q \cdot \lambda \\ \vec{c} \cdot \Delta\vec{k} = r \cdot \lambda \end{array} \quad \text{avec } p, q, r \text{ entiers}$$

Et plus généralement, le long d'une rangée  $[uvw]$ :

$$(u\vec{a} + v\vec{b} + w\vec{c}) \cdot \Delta\vec{k} = pu + qv + rw = \text{entier}$$



**Figure IV-3. Condition de Laue :** Il y a diffraction seulement si le vecteur de diffraction  $\Delta\vec{k}$  est un vecteur du réseau réciproque passant par des nœuds du RR.  $\vec{k}$  Vecteur d'onde de norme  $1/\lambda$

**Conditions de LAUE:**

$$(u\vec{a} + v\vec{b} + w\vec{c}) \cdot \Delta\vec{k} = pu + qv + rw = \text{entier}$$

Soit un vecteur du **réseau réciproque** défini par:  $\vec{H} = h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^*$

et un vecteur de l'**espace direct** défini par:  $\vec{r} = u\vec{a} + v\vec{b} + w\vec{c}$

Le produit:  $\vec{r} \cdot \vec{H} = (u\vec{a} + v\vec{b} + w\vec{c}) \cdot (h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^*) = hu + kv + lw = \text{entier}$

$u, v, w$  entiers (nœuds réseau direct)  $\rightarrow h, k, l$  entiers (nœuds du réseau réciproque)

Il est tentant de dire:  $\vec{H} = \Delta\vec{k} \Rightarrow \vec{k}_d = \vec{k}_i + \vec{H}$

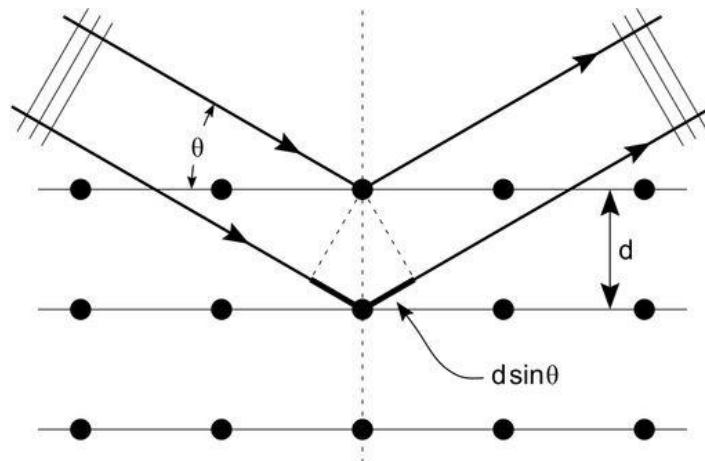
**La condition de Laue devient:**

*Il y a diffraction seulement si le vecteur de diffraction  $\Delta\vec{k}$  est un vecteur du réseau réciproque passant par des nœuds du RR*

## II. LOI DE BRAGG

On étudie la structure cristalline par la diffraction des photons, des neutrons et des électrons (*figure IV-4*). La diffraction dépend de la structure cristalline et de la longueur d'onde de la radiation. Aux longueurs d'onde optiques, de l'ordre de 5000 Å, la superposition des ondes diffusées élastiquement par les atomes individuels d'un cristal produit la réfraction optique classique. Mais lorsque la longueur d'onde de la radiation est comparable ou inférieure au paramètre du réseau, on peut trouver plusieurs faisceaux diffractés dans des directions tout à fait différentes de celle du faisceau incident.

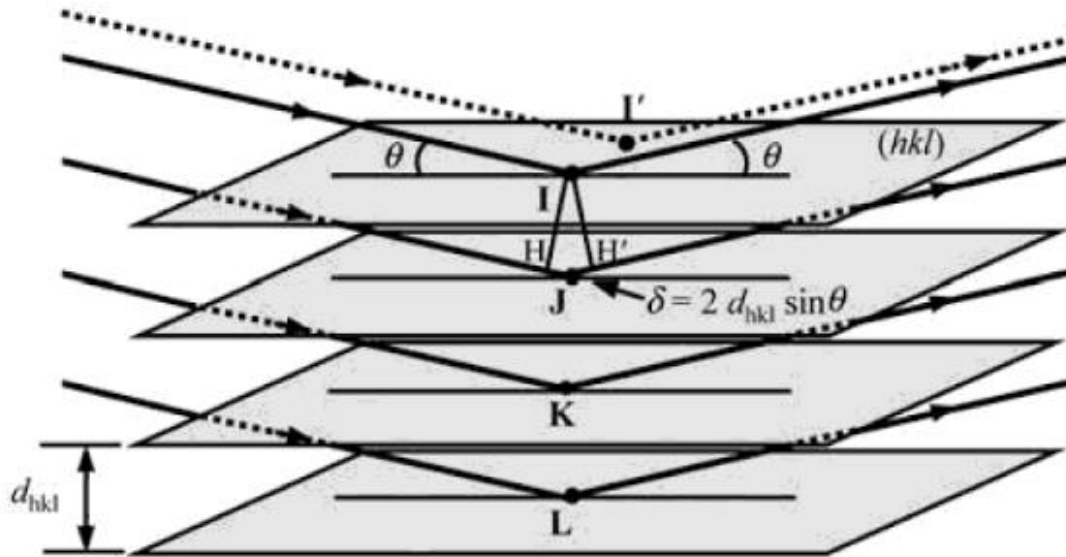
*WILLIAM LAWRENCE BRAGG* proposa une explication simple des angles observés pour les faisceaux diffractés par un cristal. Supposons que les plans parallèles d'atomes réfléchissent les ondes incidentes, chaque plan réfléchissant seulement une petite fraction du rayonnement, comme un miroir légèrement argenté. On n'obtient de rayons diffractés que lorsque les rayons réfléchis par les plans parallèles interfèrent de façon additive (*figure IV-4*). Nous considérons une diffusion élastique, c'est-à-dire que l'énergie du photon X n'est pas modifiée lors de la réflexion.



*Figure IV-4.* Démonstration de l'équation de Bragg  $2d \sin \theta = n \lambda$  ;  $d$  est l'intervalle entre deux plans d'atomes parallèles et  $2n\pi$  est la différence de phases entre les réflexions de deux plans successifs.

La loi de BRAGG s'établit autrement en considérant une suite de plans ( $hkl$ ) équidistants de  $d_{hkl}$  et la réflexion partielle d'une onde plane incidente  $k_i$ . On observe (*figure IV-5*) que la différence de marche entre deux éléments diffusants (attachés aux nœuds) d'un même plan (I et I', par exemple), est nulle.

Par contre, la différence de marche entre deux centres diffusants, situés sur deux plans consécutifs (I et J, par exemple), vaut  $JH + JH' = 2 d_{hkl} \sin \theta$ . La condition d'interférences constructives donne :  $\delta = 2 d_{hkl} \sin \theta = p\lambda$ .



**Figure IV-5.** Réflexion sélective de BRAGG

Soit une série de plans réticulaires parallèles équidistants, de distance interréticulaire  $d$ . Le rayon incident est situé dans le plan de la figure. La différence de marche entre les rayons réfléchis par deux plans consécutifs est  $2d \sin \theta$ , où  $\theta$  est mesuré à partir du plan. Une interférence additive apparaît quand la différence de marche est un multiple entier de la longueur d'onde  $\lambda$ , soit :

$$2d \sin \theta = n \lambda$$

C'est la loi de Bragg.

La réflexion de Bragg nécessite des longueurs  $\lambda \leq 2d$ . Ceci explique pourquoi on utilise les rayons X dont la longueur d'onde est de l'ordre des distances interréticulaire et non la lumière visible.

Si l'on suppose que chaque plan agit comme un miroir, seules quelques valeurs de  $\theta$  permettent aux réflexions de tous les plans parallèles de s'ajouter pour donner un faisceau réfléchi intense. Bien sûr, si chaque plan était parfaitement réfléchissant, seul le premier plan d'un ensemble de plans parallèles verrait la radiation et toute longueur d'onde pourrait être réfléchi. Mais chaque plan réfléchit de 0.1% à 0.001% de la radiation incidente. Pour cela il faut donc  $10^3$  à  $10^5$  plans qui contribueront à la formation du faisceau de Bragg réfléchi d'un cristal, pour qu'il soit diffracté, détecté et traité.

La loi de Bragg est une conséquence de la périodicité du réseau. La loi ne tient pas compte de l'arrangement des atomes associés à un nœud. La composition de la base détermine l'intensité relative des différents ordres  $n$  de la diffraction par une famille de plans parallèles.

### II.1 Démonstration directe de la relation de Bragg

Les interférences sont constructives lorsque les maxima d'amplitude s'additionnent, c'est à-dire que les maxima d'ondes différentes arrivent en même temps aux mêmes points de l'espace (on dit que les ondes sont en phase). Pour que cette condition soit remplie il faut impérativement que la différence de marche entre deux ondes doit être égale à un nombre entier de longueurs d'onde  $n\lambda$ .

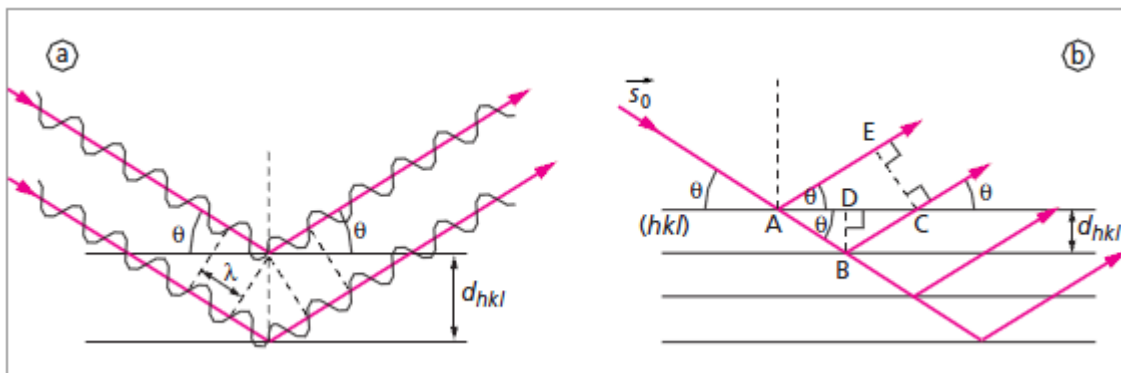


Figure IV-6. Réflexion sur les plans réticulaires  $(hkl)$ . b. Démonstration de la loi de Bragg.

On note  $d$  la distance entre les plans réticulaires de la famille  $(hkl)$  et  $\lambda$  la longueur d'onde des rayons X. Sur la figure, la différence de marche entre les deux ondes est :

$$\Delta = AB + BC - AE = 2AB - AE = \frac{2d}{\sin\theta} - 2 AD \cos\theta$$

Or :  $AD = d / \tan\theta$ , donc :

$$\Delta = 2 \frac{d}{\sin\theta} (1 - \cos^2\theta) = 2d \sin\theta$$

Les maxima d'interférence seront tels que la différence de marche  $\Delta$  soit égale à  $n\lambda$ . Donc :

$$2d \sin\theta = n\lambda$$

$n$  est un nombre entier positif, appelé l'ordre de diffraction. L'angle  $\theta$  est appelé angle de Bragg. On voit qu'il ne peut être quelconque et qu'il dépend du réseau du cristal par l'intermédiaire de la distance  $d$  entre les plans réticulaires  $(hkl)$ . Cette relation est analogue à

la relation de diffraction de la lumière par les réseaux optiques ;  $n$  est alors l'ordre du spectre diffracté.

### III. CONSTRUCTION D'EWALD

Le cristal diffracteur placé en O reçoit un faisceau de vecteur d'onde  $s_0$ .

Soit la sphère dite « sphère d'Ewald » de centre O et de rayon  $R = 1/\lambda$ . Le faisceau incident AO traverse la sphère en I (figure IV-7).

Si le vecteur  $\mathbf{IM} = \mathbf{S} = \frac{\mathbf{s}_1 - \mathbf{s}_0}{\lambda}$  est tel qu'OM est une direction de diffraction, alors M est un nœud du réseau réciproque construit avec le point I comme origine (nœud 000). La droite AM est parallèle aux plans réticulaires donnant lieu à diffraction.

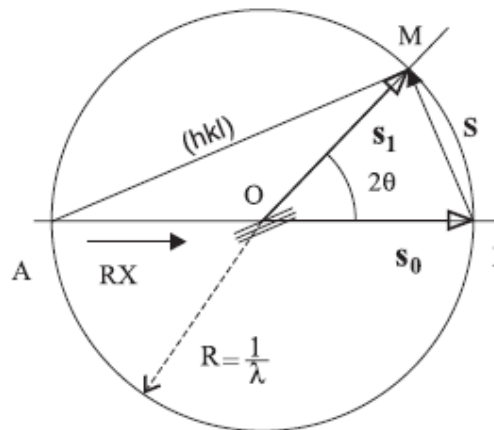


Figure IV-7. Construction de la sphère d'Ewald

Réciproquement, les directions de diffractions possibles sont les directions définies par les droites joignant l'origine O aux nœuds du réseau réciproque qui sont situés sur la sphère d'Ewald. Avec un cristal orienté de manière aléatoire, il n'y a en général pas de rayon diffracté. Il faut tourner le cristal autour de O pour amener un nœud du réseau réciproque sur la sphère.

Lors de la rotation du cristal autour de O, le réseau réciproque tourne autour du point I.

La figure IV-8 représente l'intersection de la sphère d'Ewald par un plan réticulaire (001)\* du réseau réciproque.

Le nœud M, étant sur la sphère, définit la direction de diffraction OM.

Dans l'exemple représenté par cette figure, il y a diffraction par les plans réticulaires (310).



### III.1 Exemple d'utilisation de cette construction

Considérons un cristal orthorhombique disposé de telle sorte que l'axe  $c$  soit orthogonal aux rayons X. On fait tourner ce cristal sur lui-même autour de  $c$ . Etudions des diffractions possibles d'indices  $hkO$ . La figure donne la sphère d'Ewald (donc  $\lambda$ ) (donc  $a^*$  et  $b^*$ ).

Lorsque le cristal (qu'on peut imaginer placé en O par exemple) tourne autour de l'axe  $c$ , son réseau réciproque tourne autour de l'axe  $c^*$  orthogonal à la figure en I.

On raisonne dans le plan de la famille. Le plan  $hkO$  tournant autour de I, on peut choisir par exemple, comme position initiale, celle de la figure, où  $a^*$  est confondu avec les RX incidents. Les seuls ordres  $hkO$  qui correspondent à des diffractions sont ceux pour lesquels la distance du nœud  $hkO$  à l'origine I est inférieure au diamètre du cercle. Parmi les nœuds représentés seuls 4 ne conduisent pas à des diffractions :  $220$ ,  $2\bar{2}0$ ,  $\bar{2}\bar{2}0$ , et  $\bar{2}20$ .

A partir de la position initiale, pour obtenir la diffraction  $1000$  il faut faire tourner le cristal de l'angle  $\delta$ . Le rayon diffracté est OR.

### Conclusions

*Les conditions de Laue, la relation de Bragg et la construction d'Ewald sont trois représentations équivalentes du même phénomène : les directions de diffraction d'un réseau sont déterminées par son réseau réciproque.*

La nature du motif influe uniquement sur l'intensité diffractée et pas sur les directions de diffraction. La mesure des angles de diffraction des rayons X par un cristal donne seulement des informations sur le réseau translatore du cristal. Pour obtenir la position des atomes dans la maille, il faut aussi utiliser les intensités des figures de diffraction. Suivant la nature du problème étudié et les techniques de diffraction employées, on utilisera pour déterminer les directions de diffraction, l'une des ces trois méthodes.

### IV. AMPLITUDE DIFFRACTÉE

On caractérise le rayonnement diffracté par son amplitude et son intensité. Quand la maille contient plusieurs atomes à chaque atome on peut faire correspondre le réseau. Tout se passe comme si on avait plusieurs réseaux identiques, décalés les uns des autres, ne pouvant différer que par la nature des atomes qu'ils repèrent. Ces réseaux vont diffracter aux mêmes angles, déterminés par les équations de Laue, mais le décalage des atomes entraîne un déphasage entre les ondes correspondantes. Par ailleurs les amplitudes dépendront des atomes du réseau. La figure IV-10 montre, à 2 dimension, les réseaux des 3 types d'atomes A, B et C d'une maille donnée.

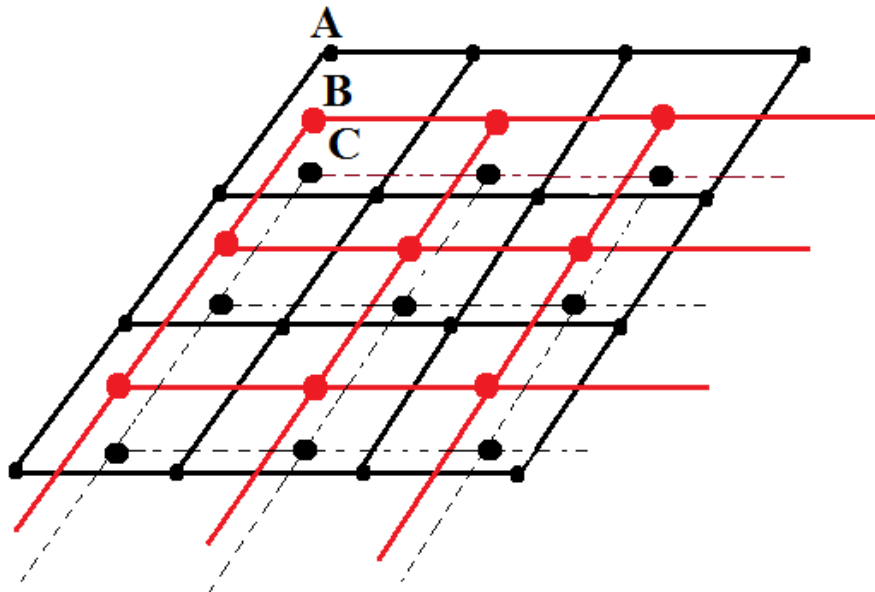


Figure IV-10. Un réseau par un atome

#### IV.1 Amplitude diffusée par un atome : facteur de diffusion.

La somme des amplitudes diffusées par les électrons d'un atome constitue l'amplitude diffusée par cet atome. On l'appelle *facteur de diffusion*. On désigne son module par la lettre  $f$ . En cristallographie, les facteurs de diffusion atomiques sont utilisés pour calculer le facteur de structure d'une réflexion donnée lors de la diffraction par un cristal.

Le facteur de diffusion atomique  $f_s(\sin\theta/\lambda, \lambda)$  est un nombre complexe dont le module représente **le nombre d'électrons de l'atome** participant à la diffusion du rayonnement incident dans la direction d'angle  $2\theta$  avec le faisceau incident.

$$f_a(\sin\theta/\lambda, \lambda) = f_0(\sin\theta/\lambda) + f'(\lambda) + i f''(\lambda)$$

- ✓  $f_0(\sin\theta/\lambda)$  est le **facteur de forme** électronique de l'atome : il est calculé en supposant les atomes *sphériques*.
- ✓  $f'(\lambda)$  et  $f''(\lambda)$  sont les termes de **diffusion anormale**. Ils deviennent importants lorsque la longueur d'onde incidente est très proche de celle des seuils d'absorption K, L, M... de l'atome

#### IV.2 Amplitude diffractée par le cristal : facteur de structure

On raisonne au niveau de la maille. Le cristal étant la répétition de la même maille dans les trois directions de l'espace, Le résultat sera valable, à un facteur multiplicatif près, pour l'ensemble du cristal

- Si la maille ne contient qu'un seul atome, de facteur de diffusion  $f$ , l'amplitude diffractée par la maille est  $f$ .

- La maille contient, en générale plus qu'un atome. Pour déterminer l'amplitude diffractée dans une direction donnée, on additionne vectoriellement les amplitudes diffusées par les atomes. L'opération est une composition d'ondes déphasées les unes par rapport aux autres. L'amplitude diffractée par le cristal est appelée facteur de structure. On le désigne par  $\vec{F}$ . Son module est F

D'une autre manière : Soit un atome A caractérisé par  $f_A$  et  $\begin{pmatrix} x_A \\ y_A \\ z_A \end{pmatrix}$  contenues dans le plan hkl.

$f_A$  : Facteur de diffusion de l'atome A

$\begin{pmatrix} x_A \\ y_A \\ z_A \end{pmatrix}$  : coordonnées partielles de l'atome A dans la maille

Le facteur de structure de l'atome A s'écrira

$$F_{hkl} = f_A \exp 2\pi (hx_A + ky_A + lz_A)$$

Si on considère deux atomes A et B contenus dans le plan hkl.

Le facteur de structure des atomes A et B s'écrira

$$F_{hkl} = f_A \exp 2\pi (hx_A + ky_A + lz_A) + f_B \exp 2\pi (hx_B + ky_B + lz_B)$$

Si on considère n atomes contenus dans le plan hkl.

Le facteur de structure des n atomes s'écrira ;

$$F_{hkl} = \sum_{j=1}^n f_j \exp 2\pi (hx_j + ky_j + lz_j)$$

Sachant que l'intensité diffractés  $I_{hkl}$  peut s'écrire :

$$I_{hkl} \approx F_{hkl} \cdot F_{hkl}^*$$

F étant complexe et  $F^*$  son conjugué

$$F_{hkl} = a + ib, F^* = a - ib$$

$$(a + ib)(a - ib) = a^2 - i^2b^2 = a^2 + b^2, (i^2 = -1)$$

## V. LES 14 RESEAUX DE BRAVAIS ET LES EXTINCTIONS SYSTEMATIQUES

Les réseaux de Bravais (ou classes de Bravais) représentent une *classification des réseaux de translation selon la métrique imposé par la symétrie*. Ils ont été dérivés pour la première fois par l'abbé M. A. Bravais

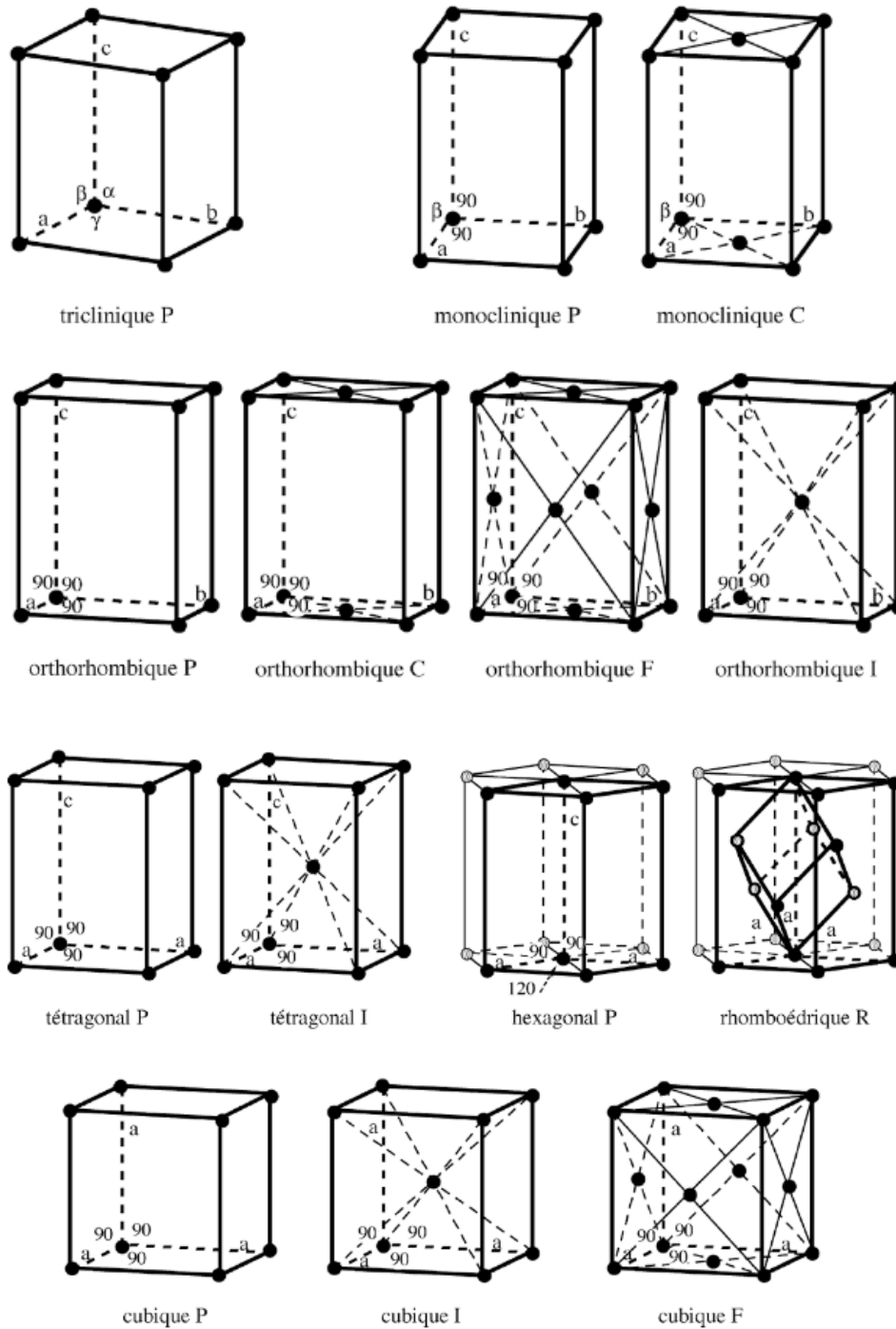


Figure IV-11. Les 14 réseaux de Bravais

Les mailles cristallines peuvent être subdivisées en 7 systèmes cristallins : **Triclinique, Monoclinique, Orthorhombique, Rhombohédrique, Tetragonal/Quadratique, Hexagonal, Cubique**

Chaque système cristallin peut présenter un ou plus d'un réseau : c'est un réseau de Bravais

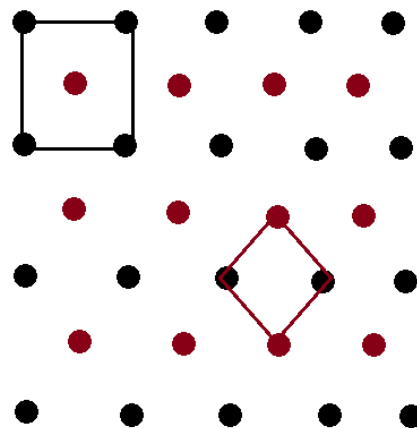
Il est possible d'ajouter des nœuds (ailleurs qu'à l'origine et aux sommets) et trouver ainsi, d'autres réseaux dits réseaux de Bravais

à 2 dim : réseau carré ●, maille carrée □, maille avec un seul nœud ( $8 \cdot 1/8 = 1$ )

au centre des  
mailles, ajoutons des

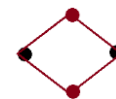
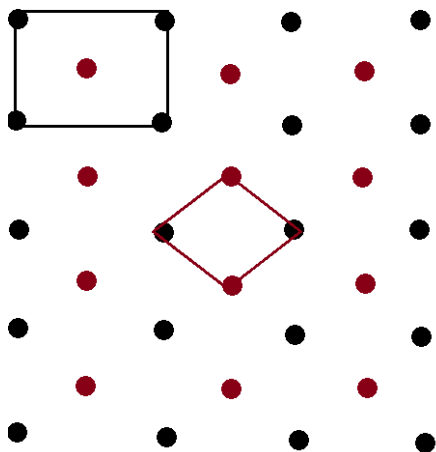
nœuds ●

maille carrée



C'est encore un réseau carré mais de maille plus petite (côté en  $1/\sqrt{2}$ ) la symétrie carrée est conservée

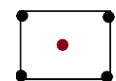
Pour un réseau rectangulaire, la même opération de centrage conduit à un autre réseau



maille rectangulaire centrée

(2 noeuds) = maille multiple non

primitive



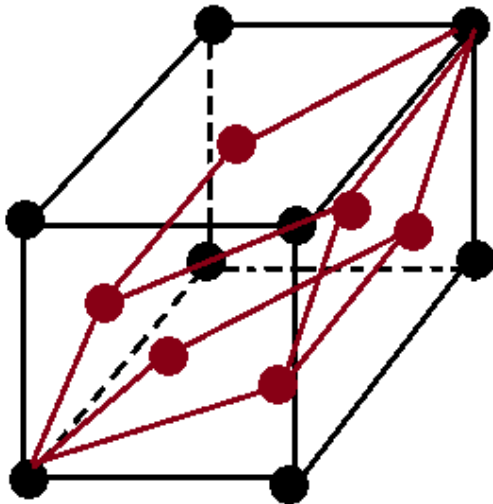
La symétrie du réseau n'est pas rectangle

$\left\{ \begin{array}{l} \text{réseau : symétrie du réseau} \\ \text{maille du cristal simple (1 noeud) : symétrie de la maille} \end{array} \right.$

- quand la symétrie de la maille est la même que celle du réseau, la maille est adoptée pour représenter le réseau

Le réseau est alors primitif  $\rightarrow$  P

- quand les symétries sont différentes, nous prenons une maille multiple, la plus petite ayant les symétries du réseau



Soit un réseau cubique de symétrie  $Pm\bar{3}m$   
(a, b, c)

Centrons les 6 faces  
le nouveau réseau P est trigonal  $3m$  (maille primitive)

Il est de symétrie inférieure à celle du cube

$\rightarrow$  Nous prendrons une maille multiple (4 nœuds) cubique à faces centrée qui maintient la symétrie

## Modes de Bravais :

Primitif

**P** : aucune translation t

Centré

**I** : t (a/2+b/2+c/2)

Une Face centrée (A,B ou C)

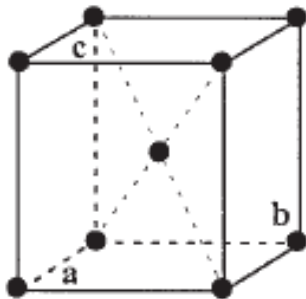
**A** : t (b/2+c/2) , **B** : t (a/2+c/2) ou **C** : t (a/2+b/2)

Faces centrées

**F** : t (b/2+c/2) et t (a/2+c/2) et t (a/2+b/2)

## V.1 Relation entre $F_{hkl}$ et $I_{hkl}$ : Cas des extinctions systématiques

❖ Soit un réseau  $I$



$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} \xrightarrow{I} \begin{pmatrix} x + \frac{1}{2} \\ y + \frac{1}{2} \\ z + \frac{1}{2} \end{pmatrix}$$

$$I \rightarrow t \left( \frac{1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right)$$

•  $F_{hkl}$  pour un Réseau  $I$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ h \left( x + \frac{1}{2} \right) + k \left( y + \frac{1}{2} \right) + l \left( z + \frac{1}{2} \right) \right]$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ (hx + ky + lz) + \left( \frac{h}{2} + \frac{k}{2} + \frac{l}{2} \right) \right]$$

Sachant que  $e^{a+b} = e^a \cdot e^b$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) \cdot \exp \pi (h + k + l)$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) [1 + \exp \pi (h + k + l)]$$

Expérimentalement on enregistre des intensités diffractées ( $I_{hkl}$ )

$$I_{hkl} \approx K F_{hkl}^2$$

Si on n'observe pas de diffraction cela veut dire que :

$$I_{hkl} = 0 = K F_{hkl}^2 \text{ appelé aussi extinction}$$

$$\Rightarrow F_{hkl}^2 = 0 = F_{hkl} = 0$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) [1 + \exp \pi (h + k + l)] = 0$$

$$\Rightarrow f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) \text{ ne peut s'annuler, } f_j \neq 0 \text{ et } \exp \dots \neq 0$$

Donc:

$$1 + \exp \pi (h + k + l) = 0 \Rightarrow \exp \pi (h + k + l) = -1$$

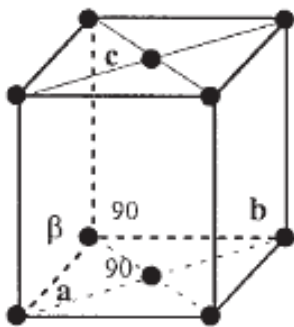
$$\boxed{h + k + l = 2n + 1} \Rightarrow F_{hkl} = 0 \Rightarrow I_{hkl} = 0$$

Pour le réseau **I**, tous les plans d'indices hkl tel que :

$$\boxed{h + k + l = 2n + 1} \text{ sont absents}$$

Et hkl tel que  $\boxed{h + k + l = 2n}$  sont présents

❖ Soit un Réseau C



$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} \xrightarrow{C} \begin{pmatrix} x + \frac{1}{2} \\ y + \frac{1}{2} \\ z \end{pmatrix}$$

$$C \rightarrow t \left( \frac{1}{2}, \frac{1}{2}, 0 \right)$$

- $F_{hkl}$  pour un Réseau C

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ h \left( x + \frac{1}{2} \right) + k \left( y + \frac{1}{2} \right) + lz \right]$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left( hx + ky + lz + \frac{h}{2} + \frac{k}{2} \right)$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) \cdot \exp \pi (h + k)$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) [1 + \exp \pi (h + k)]$$

L'extinction systématique pour un réseau C est observée quand :

$$F_{hkl} = 0$$

Donc:

$$1 + \exp \pi (h + k) = 0 \Rightarrow \exp \pi (h + k) = -1$$

$$\boxed{h + k = 2n + 1}$$

Pour un Réseau C les conditions d'extinction sont :

hkl tel que  $\boxed{h + k = 2n + 1}$  sont absents

hkl tel que  $\boxed{h + k = 2n}$  sont présents

- ❖ Soit un Réseau B

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} \xrightarrow{B} \begin{pmatrix} x + \frac{1}{2} \\ y \\ z + \frac{1}{2} \end{pmatrix}$$

$$B \rightarrow t \left( \frac{1}{2}, 0, \frac{1}{2} \right)$$

- $F_{hkl}$  pour un Réseau B

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ h \left( x + \frac{1}{2} \right) + ky + l \left( z + \frac{1}{2} \right) \right]$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left( hx + ky + lz + \frac{h}{2} + \frac{l}{2} \right)$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) \cdot \exp \pi (h + l)$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) [1 + \exp \pi (h + l)]$$

L'extinction systématique pour un réseau B est observée quand

$$F_{hkl} = 0$$

Donc:

$$1 + \exp \pi (h + l) = 0 \Rightarrow \exp \pi (h + l) = -1$$

$$\boxed{h + l = 2n + 1}$$

Pour un Réseau **B** les conditions d'extinction sont :

hkl tel que  $\boxed{h + l = 2n + 1}$  *sont absents*

hkl tel que  $\boxed{h + l = 2n}$  *sont présents*

❖ *Soit un Réseau A*

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} \xrightarrow{A} \begin{pmatrix} x \\ y + \frac{1}{2} \\ z + \frac{1}{2} \end{pmatrix}$$

$$A \rightarrow t \left( 0, \frac{1}{2}, \frac{1}{2} \right)$$

- $F_{hkl}$  pour un Réseau A s'écrit :

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ hx + k \left( y + \frac{1}{2} \right) + l \left( z + \frac{1}{2} \right) \right]$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left( hx + ky + lz + \frac{k}{2} + \frac{l}{2} \right)$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) \cdot \exp \pi (k + l)$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) [1 + \exp \pi (k + l)]$$

L'extinction systématique pour un réseau A est observée quand :

$$F_{hkl} = 0$$

Donc:

$$1 + \exp \pi (k + l) = 0 \Rightarrow \exp \pi (k + l) = -1$$

$$\boxed{k + l = 2n + 1}$$

Pour un Réseau A les conditions d'extinction sont :

hkl tel que  $\boxed{k + l = 2n + 1}$  sont *absents*

hkl tel que  $\boxed{k + l = 2n}$  sont *présents*

## V.2 Plans de glissements et extinctions systématiques.

Les extinctions systématiques sont observées pour les groupes d'espaces avec des symétries de translations :

- Les modes de réseaux (Réseaux de Bravais) : P, C, I, F
- Les plans de glissements : a, b, c, n, d
- Les axes hélicoïdaux :  $2_1, 3_1, 3_2, 4_1, 4_2, 4_3, 6_1, 6_2, 6_3, 6_4$

### Axes de rotations directes

$$\text{Axe } n \Rightarrow \text{rot} \left( \frac{2\pi}{n} \right)$$

$$\text{Axe } 1 \Rightarrow \text{rot} (2\pi) \Rightarrow \alpha = 360^\circ$$

$$\text{Axe } 2 \Rightarrow \text{rot} (\pi) \Rightarrow \alpha = 180^\circ$$

$$\text{Axe } 3 \Rightarrow \text{rot} \left( \frac{2\pi}{3} \right) \Rightarrow \alpha = 120^\circ$$

$$\text{Axe } 4 \Rightarrow \text{rot} \left( \frac{\pi}{2} \right) \Rightarrow \alpha = 90^\circ$$

$$\text{Axe } 6 \Rightarrow \text{rot} \left( \frac{\pi}{3} \right) \Rightarrow \alpha = 60^\circ$$

### Axes inverses ( $\bar{n}$ )

$$\text{Axe } \bar{n} \Rightarrow \text{rot} \frac{2\pi}{n} + n$$

$$\text{Axe } \bar{1} \Rightarrow \text{rot} (2\pi) \Rightarrow \alpha = 360^\circ$$

$$\text{Axe } \bar{2} \Rightarrow \text{rot} (\pi) \Rightarrow \alpha = 180^\circ$$

$$\text{Axe } \bar{3} \Rightarrow \text{rot} \left( \frac{2\pi}{3} \right) \Rightarrow \alpha = 120^\circ$$

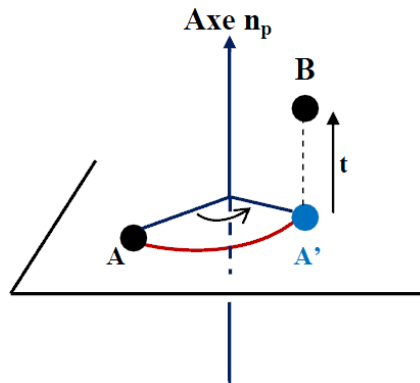
$$\text{Axe } \bar{4} \Rightarrow \text{rot} \left( \frac{\pi}{2} \right) \Rightarrow \alpha = 90^\circ$$

$$\text{Axe } \bar{6} \Rightarrow \text{rot} \left( \frac{\pi}{3} \right) \Rightarrow \alpha = 60^\circ$$

### Axes hélicoïdaux

Ils associent une rotation autour d'un axe directe  $n$  suivie d'une translation de vecteur  $t$ , parallèle à l'axe  $n$ ,

Les axes hélicoïdaux sont notés  $n_p$ . L'axe  $n_p$  correspond à une rotation de  $2\pi/n$  autour de l'axe  $n$ , suivie d'une translation de  $t = p/n H$  parallèlement à cet axe, avec  $1 \leq p \leq n-1$  et  $H$  la période ou pas de l'hélice ( $H=c$  si l'axe hélicoïdal est porté par  $oz$ ).



*Figure IV-12.* Schématisation de l'axe hélicoïdale.

$$\text{Axe } n_p \Rightarrow \text{rot} \frac{2\pi}{n} + t \left( \frac{p}{n} \right) \text{ suivant l'axe parallèle.}$$

Ex : Soit l'axe  $2_1 // \vec{b}$

### V.2.a PLANS DE GLISSEMENT $\perp$ A UN AXE

❖ Plan de glissement  $C \perp \vec{a}$

$$C \equiv m + t \left( \frac{1}{2} \right) C$$

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} \xrightarrow{C \text{ perpendiculaire à } \vec{a}} \begin{pmatrix} \bar{x} \\ y \\ z + \frac{1}{2} \end{pmatrix}$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ -hx + ky + l \left( z + \frac{1}{2} \right) \right]$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ -hx + ky + lz + \frac{l}{2} \right]$$

Le signe moins (-) associé à  $-hx$  pose problème pour la mise en facteur commun, et lever cette indétermination on considère :

$$-hx = 0 \Rightarrow h = 0$$

Dans ce cas on ne considère que les plans (hkl) tel que  $h = 0$  ; donc les plans (0kl) :

Cas particulier des plans 0kl  $\rightarrow F_{hkl}$  devient  $F_{0kl}$

$$F_{0kl} = f_j \exp 2\pi (ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ ky + l \left( z + \frac{1}{2} \right) \right]$$

$$F_{0kl} = f_j \exp 2\pi (ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left( ky + lz + \frac{l}{2} \right)$$

$$F_{0kl} = f_j \exp 2\pi (ky + lz) \cdot (1 + \exp \pi l)$$

$$F_{0kl} = 0 \Rightarrow \exp \pi l = -1 \Rightarrow l = 2n + 1$$

Pour un plan de glissement  $C \perp \vec{a}$ , la condition d'extinction est :

$$\boxed{0kl \text{ tel que } l = 2n + 1}$$

❖ Plan de glissement  $C \perp \vec{b}$

$$\text{Plan } c \equiv m + t \left( \frac{1}{2} \right) C$$

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} \xrightarrow{C \text{ perpendiculaire à } \vec{b}} \begin{pmatrix} x \\ \bar{y} \\ z + \frac{1}{2} \end{pmatrix}$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ hx - ky + l \left( z + \frac{1}{2} \right) \right]$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ hx - ky + lz + \frac{l}{2} \right]$$

De même  $-ky$  pose problème pour la mise en facteur commun.

On élimine  $-ky$

$$-ky = 0 \Rightarrow k = 0$$

Cas particulier des plans  $h0l$

**$F_{hkl}$  devient  $F_{h0l}$**

$$F_{h0l} = f_j \exp 2\pi (hx + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ hx + l \left( z + \frac{1}{2} \right) \right]$$

$$F_{h0l} = f_j \exp 2\pi (hx + lz) + f_j \exp 2\pi \left( hx + lz + \frac{l}{2} \right)$$

$$F_{h0l} = f_j \exp 2\pi (hx + lz) \cdot (1 + \exp \pi l)$$

$$F_{h0l} = 0 \Rightarrow \exp \pi l = -1 \Rightarrow l = 2n + 1$$

Pour un plan de glissement **C**  $\perp$   $\vec{b}$

$$\boxed{h0l \text{ tel que } l = 2n + 1}$$

❖ Plan de glissement **a**  $\perp$   $\vec{b}$

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} \xrightarrow{\text{a perpendiculaire à } \vec{b}} \begin{pmatrix} x + \frac{1}{2} \\ \bar{y} \\ z \end{pmatrix}$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ h \left( x + \frac{1}{2} \right) - ky + lz \right]$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ hx + \frac{h}{2} - ky + lz \right]$$

$-ky$  pose problème pour la mise en facteur commun.

On élimine  $-ky$

$$-ky = 0 \Rightarrow k = 0$$

Cas particulier des plans  $h0l \rightarrow F_{hkl}$  devient  $F_{h0l}$

$$F_{h0l} = f_j \exp 2\pi (hx + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ h \left( x + \frac{1}{2} \right) + lz \right]$$

$$F_{h0l} = f_j \exp 2\pi (hx + lz) + f_j \exp 2\pi \left( hx + \frac{h}{2} + lz \right)$$

$$F_{h0l} = f_j \exp 2\pi (hx + lz) \cdot (1 + \exp \pi h)$$

$$F_{h0l} = 0 \Rightarrow \exp \pi h = -1 \Rightarrow h = 2n + 1$$

Pour un plan de glissement  $a \perp \vec{b}$  ; la condition d'extinction est :

$$\boxed{h0l \text{ tel que } h = 2n + 1}$$

❖ Plan de glissement  $a \perp \vec{c}$

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} \xrightarrow{\text{a perpendiculaire à } \vec{c}} \begin{pmatrix} x + \frac{1}{2} \\ y \\ \bar{z} \end{pmatrix}$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ h \left( x + \frac{1}{2} \right) + ky - lz \right]$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ hx + \frac{h}{2} + ky - lz \right]$$

$-lz$  pose problème pour la mise en facteur commun.

On élimine  $-lz$

$$-lz = 0 \Rightarrow z = 0$$

Cas particulier des plans  $hk0 \rightarrow F_{hkl}$  devient  $F_{hk0}$

$$F_{hk0} = f_j \exp 2\pi (hx + ky) + f_j \exp 2\pi \left[ h \left( x + \frac{1}{2} \right) + ky \right]$$

$$F_{hk0} = f_j \exp 2\pi (hx + ky) + f_j \exp 2\pi \left( hx + \frac{h}{2} + ky \right)$$

$$F_{hk0} = f_j \exp 2\pi (hx + ky) \cdot (1 + \exp \pi h)$$

$$F_{hk0} = 0 \Rightarrow \exp \pi h = -1 \Rightarrow h = 2n + 1$$

Pour un plan de glissement  $\mathbf{a} \perp \vec{\mathbf{c}}$

$$\boxed{hk0 \text{ tel que } h = 2n + 1}$$

❖ **Plan de glissement  $\mathbf{b} \perp \vec{\mathbf{a}}$**

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} \xrightarrow{\mathbf{b} \text{ perpendiculaire à } \vec{\mathbf{a}}} \begin{pmatrix} \bar{x} \\ y + \frac{1}{2} \\ z \end{pmatrix}$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ -hx + k \left( y + \frac{1}{2} \right) + lz \right]$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ -hx + ky + \frac{k}{2} + lz \right]$$

$-hx$  pose problème pour la mise en facteur commun.

On élimine  $-hx$

$$-hx = 0 \Rightarrow h = 0$$

Cas particulier des plans  $0kl \rightarrow \mathbf{F}_{hkl}$  devient  $\mathbf{F}_{0kl}$

$$F_{0kl} = f_j \exp 2\pi (ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ k \left( y + \frac{1}{2} \right) + lz \right]$$

$$F_{0kl} = f_j \exp 2\pi (ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left( ky + \frac{k}{2} + lz \right)$$

$$F_{0kl} = f_j \exp 2\pi (ky + lz) \cdot (1 + \exp \pi k)$$

$$F_{0kl} = 0 \Rightarrow \exp \pi k = -1 \Rightarrow k = 2n + 1$$

Pour un plan de glissement  $\mathbf{b} \perp \vec{\mathbf{a}}$

$$\boxed{0kl \text{ tel que } k = 2n + 1}$$

❖ Plan de glissement  $\mathbf{b} \perp \vec{\mathbf{c}}$

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} \xrightarrow{\mathbf{b} \text{ perpendiculaire à } \vec{\mathbf{c}}} \begin{pmatrix} x \\ y + \frac{1}{2} \\ \bar{z} \end{pmatrix}$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ hx + k \left( y + \frac{1}{2} \right) - lz \right]$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ hx + ky + \frac{k}{2} - lz \right]$$

$-lz$  pose problème pour la mise en facteur commun.

On élimine  $-lz$

$$-lz = 0 \Rightarrow l = 0$$

Cas particulier des plans  $0kl \rightarrow \mathbf{F}_{hkl}$  devient  $\mathbf{F}_{hk0}$

$$F_{hk0} = f_j \exp 2\pi (hx + ky) + f_j \exp 2\pi \left[ hx + k \left( y + \frac{1}{2} \right) \right]$$

$$F_{hk0} = f_j \exp 2\pi (hx + ky) + f_j \exp 2\pi \left( hx + ky + \frac{k}{2} \right)$$

$$F_{hk0} = f_j \exp 2\pi (hx + ky) \cdot (1 + \exp \pi k)$$

$$F_{hk0} = 0 \Rightarrow \exp \pi k = -1 \Rightarrow k = 2n + 1$$

Pour un plan de glissement  $\mathbf{b} \perp \vec{\mathbf{c}}$

$$\boxed{hk0 \text{ tel que } k = 2n + 1}$$

### V.2.b Axes hélicoïdaux et extinction systématique.

Les axes de symétrie doivent toujours être définis parallèlement aux axes cristallographiques  $\vec{\mathbf{a}}, \vec{\mathbf{b}}$  et  $\vec{\mathbf{c}}$

Soit un axe  $2_1 // \vec{\mathbf{b}}$

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} \xrightarrow{2_1 // \vec{\mathbf{b}}} \begin{pmatrix} \bar{x} \\ y + \frac{1}{2} \\ \bar{z} \end{pmatrix}$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ -hx + k \left( y + \frac{1}{2} \right) - lz \right]$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ -hx + ky + \frac{k}{2} - lz \right]$$

$-hx$  et  $-lz$  nous posent problème pour la mise en facteur commun.

On élimine  $-hx$  et  $-lz$  en posant :

$$-hx = 0 \Rightarrow h = 0 \text{ et } -lz = 0 \Rightarrow l = 0$$

Cas particulier des plans  $0kl \rightarrow \mathbf{F}_{hkl}$  devient  $\mathbf{F}_{0k0}$

$$F_{hk0} = f_j \exp 2\pi (ky) + f_j \exp 2\pi \left[ k \left( y + \frac{1}{2} \right) \right]$$

$$F_{hk0} = f_j \exp 2\pi (ky) + f_j \exp 2\pi \left( ky + \frac{k}{2} \right)$$

$$F_{hk0} = f_j \exp 2\pi (ky) \cdot (1 + \exp \pi k)$$

$$F_{hk0} = 0 \Rightarrow \exp \pi k = -1 \Rightarrow k = 2n + 1$$

Pour un plan de glissement  $2_1 // \vec{\mathbf{b}}$

$$\boxed{0k0 \text{ tel que } k = 2n + 1}$$

**Cas d'un axe  $2_1 // \vec{c}$**

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} \xrightarrow{2_1 // \vec{c}} \begin{pmatrix} \bar{x} \\ \bar{y} \\ z + \frac{1}{2} \end{pmatrix}$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ -hx - ky + l \left( z + \frac{1}{2} \right) \right]$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ -hx - ky + lz + \frac{l}{2} \right]$$

$-hx$  et  $-ky$  posent problème pour la mise en facteur commun.

On élimine  $-hx$  et  $-ky$

$$-hx = 0 \Rightarrow h = 0 \text{ et } -ky = 0 \Rightarrow k = 0$$

Cas particulier des plans  $0kl \rightarrow F_{hkl}$  devient  $F_{00l}$

$$F_{00l} = f_j \exp 2\pi (lz) + f_j \exp 2\pi \left[ l \left( z + \frac{1}{2} \right) \right]$$

$$F_{00l} = f_j \exp 2\pi (lz) + f_j \exp 2\pi \left( lz + \frac{l}{2} \right)$$

$$F_{00l} = f_j \exp 2\pi (lz) \cdot (1 + \exp \pi l)$$

$$F_{00l} = 0 \Rightarrow \exp \pi l = -1 \Rightarrow l = 2n + 1$$

Pour un plan de glissement  $2_1 // \vec{c}$

$$\boxed{00l \text{ tel que } l = 2n + 1}$$

**Cas d'un axe  $2_1 // \vec{a}$**

$$\begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} \xrightarrow{2_1 // \vec{a}} \begin{pmatrix} x + \frac{1}{2} \\ \bar{y} \\ \bar{z} \end{pmatrix}$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ h \left( x + \frac{1}{2} \right) - ky - lz \right]$$

$$F_{hkl} = f_j \exp 2\pi (hx + ky + lz) + f_j \exp 2\pi \left[ hx + \frac{h}{2} - ky - lz \right]$$

$-ky$  et  $-lz$  posent problème pour la mise en facteur commun.

On élimine  $-ky$  et  $-lz$

$$-ky = 0 \Rightarrow k = 0 \text{ et } -lz = 0 \Rightarrow l = 0$$

Cas particulier des plans  $0kl \rightarrow F_{hkl}$  devient  $F_{h00}$

$$F_{h00} = f_j \exp 2\pi (hx) + f_j \exp 2\pi \left[ h \left( x + \frac{1}{2} \right) \right]$$

$$F_{h00} = f_j \exp 2\pi (hx) + f_j \exp 2\pi \left( hx + \frac{h}{2} \right)$$

$$F_{h00} = f_j \exp 2\pi (hx) \cdot (1 + \exp \pi h)$$

$$F_{h00} = 0 \Rightarrow \exp \pi h = -1 \Rightarrow h = 2n + 1$$

Pour un plan de glissement  $2_1 // \vec{a}$ , la condition d'extinction est :

$$\boxed{h00 \text{ tel que } h = 2n + 1}$$

V-2-c Tableau récapitulatif des conditions d'extinctions systématiques

Tableau IV-1. Tableau récapitulatif des conditions d'extinctions systématiques

Mode de Réseau (Bravais)	Trois indices de Miller hkl (3D)	Conditions d'extinctions
P	hkl	Aucune
C		$h + k = 2n + 1$
I		$h + k + l = 2n + 1$
F		h, k, l de même parité $\begin{pmatrix} h + k = 2n + 1 \\ h + l = 2n + 1 \\ k + l = 2n + 1 \end{pmatrix}$
Plans de glissements	Deux indices de Miller (hk0), (h0l) et (0kl) (2D)	Conditions d'extinctions
$\mathbf{a} \perp \vec{c}$	hk0	$h = 2n + 1$
$\mathbf{a} \perp \vec{b}$	h0l	$h = 2n + 1$
$\mathbf{b} \perp \vec{a}$	0kl	$k = 2n + 1$
$\mathbf{b} \perp \vec{c}$	hk0	$k = 2n + 1$
$\mathbf{c} \perp \vec{a}$	0kl	$l = 2n + 1$
$\mathbf{c} \perp \vec{b}$	h0l	$l = 2n + 1$
$\mathbf{n} \perp \vec{a}$	0kl	$k + l = 2n + 1$
$\mathbf{n} \perp \vec{b}$	h0l	$h + l = 2n + 1$
$\mathbf{n} \perp \vec{c}$	hk0	$h + k = 2n + 1$
Axes hélicoïdaux	Un indice de Miller 1D	Conditions extinctions
$2_1 // \vec{a}$	H00	$h = 2n + 1$
$2_1 // \vec{b}$	0k0	$k = 2n + 1$
$2_1 // \vec{c}$	00l	$l = 2n + 1$

# TD 3

## Exercice 1.

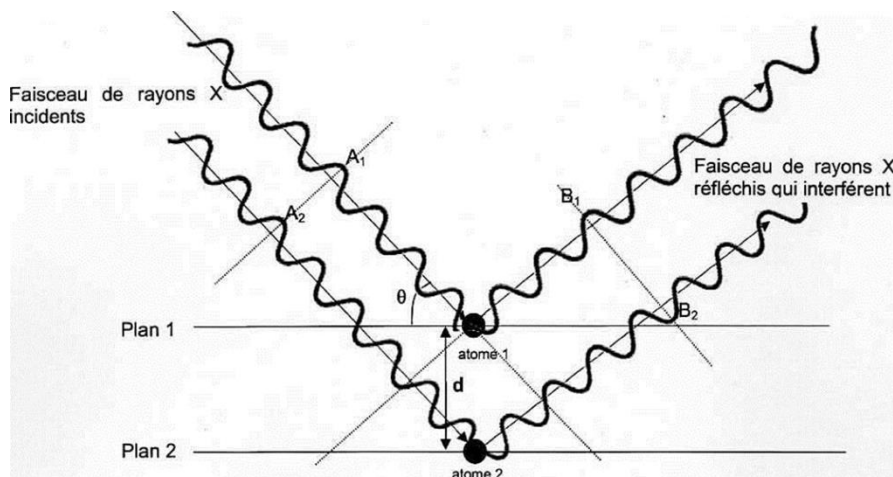
Répondre brièvement aux questions suivantes :

1. Quelle est la différence entre une interférence constructive et une interférence destructive (faire un dessin) ?
2. Dans la condition d'Ewald, quand est-ce qu'il y a diffraction sur les plans hkl ?
3. Que signifie l'annihilation entre une particule et son antiparticule ?
4. Quand est-ce que l'effet création de paires peut-il se produire ?
5. Quels sont les deux phénomènes utilisés pour la production des Rayons x ?
6. De quoi est-il composé un spectre de production des rayons x (dessiner le spectre) ?
7. Dans l'effet Compton, qu'est-ce que la rétrodiffusion ?
8. Dans le phénomène de production de rayons x, les transitions importantes proviennent de quels électrons ?
9. Donner la relation de l'énergie du photo-électron
10. Comment appelle-t-on l'appareil utilisée pour déterminer la structure cristalline d'un composé ?

## Exercice 2

Les rayons X sont utilisés pour explorer la matière et par exemple pour évaluer la distance  $d$  entre deux plans 1 et 2 voisins d'atomes dans un cristal. Lorsqu'on envoie un faisceau de rayons X de longueur d'onde  $\lambda$  sur un cristal, ils sont réfléchis par les atomes qui constituent le cristal. Les ondes réfléchies par les atomes interfèrent.

On peut représenter de façon très simplifiée cette situation par le schéma suivant :



Données :

- la différence de parcours entre deux ondes incidentes qui se réfléchissent sur deux plans successifs est donnée par la relation :  $\delta = 2 d \cdot \sin \theta$ , où  $d$  est la distance entre deux atomes voisins et  $\theta$  l'angle entre le rayon et le plan.
  - dans le cas d'interférences constructives, la différence de parcours vaut :  $\delta = k \cdot \lambda$
  - dans le cas d'interférences destructives, la différence de parcours vaut :  $\delta = (k + \frac{1}{2}) \cdot \lambda$
- où  $k$  est un nombre entier positif ou négatif et  $\lambda$  la longueur d'onde des ondes qui interfèrent.

- 1 En exploitant le schéma précédent, précisé :
  - Si les deux rayons incidents interfèrent avec les états vibratoires représentés en  $A_1$  et  $A_2$ , on obtient des interférences constructives ou destructives.
  - Si les deux rayons réfléchis interfèrent avec les états vibratoires représentés en  $B_1$  et  $B_2$ , on obtient des interférences constructives ou destructives.
  - Pourquoi les interférences ne sont pas de même nature entre  $A_1/A_2$  et  $B_1/B_2$ .
  -
- 2 Pour un angle  $\theta$  de  $10,4^\circ$  et une longueur d'onde de  $0,154$  nm, déterminer la valeur de  $d$  dans le cristal, dans le cas où l'on obtient des interférences constructives pour une différence de parcours minimale.

### **Exercice 3**

Donner sans démontrer les conditions d'extinction systématique pour:

- 1) Réseau A
- 2) Axe 21 parallèle à l'axe c
- 3) plan de glissement c perpendiculaire à l'axe c
- 4) plan de glissement n perpendiculaire à l'axe c

### **Exercice 4**

Soit le groupe d'espace P21/a

- 1) Quelles sont les symétries présentes
- 2) Ecrire les conditions d'extinction systématiques pour ce groupe

### **Exercice 5**

Soient les réflexions absentes d'un groupe d'espace en monoclinique:

124, 210, 016, 104, 541, 540, 201, 101, 301, 401, 103, 203, 205

- 1) déterminer le mode de réseau et les éléments de symétrie
- 2) Proposer un groupe d'espace
- 3) Ecrire les facteurs de structure pour les éléments de symétrie présents.

## *Liste bibliographique*

- [1] C. Esnouf, Caractérisation microstructurale des matériaux, Analyse par les rayonnements X et électronique, presses polytechniques et universitaires Romandes, 2011
- [2] J-J. Rousseau & A. Gibaud, Cristallographie géométrique et radiocristallographie, 3<sup>e</sup> édition, Dunod, 2007
- [3] Pierre Gravereau. Introduction à la pratique de la diffraction des rayons X par les poudres. 3<sup>rd</sup> cycle. Diffraction des rayons X par les poudres, Université Bordeaux 1, France. 2011, pp.209
- [4] C. Kittel, Physique de l'état solide, 7<sup>e</sup> édition, Dunod, Paris, 1998.
- [5] R. Ouahes, Éléments de radiocristallographie, 2<sup>e</sup> édition, office des publications universitaires, 1995.
- [6] M. Guymont, Structure de la matière, Atomes, liaisons chimiques et cristallographie, Belin sup sciences, 2003
- [7] D. Schwarzenbach & G. Chapuis. Cristallographie, 2<sup>e</sup> édition, presses polytechniques et universitaires Romandes, 2006.
- [8] M. Souhassou, Intervention ECM5 (5<sup>ème</sup> école marocaine de cristallographie), Oujda du 24 -26 octobre 2013
- [9] N. Millot & J-C.Nièpce. Cristallographie géométrique, Lavoisier, 2014.
- [10] D. Régent, A. Lisbona, A. Noël et F. Masson, Scanner et rayons X, Elsevier Masson SAS, 2013.
- [11] Tables internationales, The International Union of Crystallography, Vol. C, Springer (2004)
- [12][http://physique.unice.fr/sem6/2008-2009/PagesWeb/SBM/D\\_un\\_point\\_de\\_vue\\_physique....html](http://physique.unice.fr/sem6/2008-2009/PagesWeb/SBM/D_un_point_de_vue_physique....html)
- [13] Ralph W. G.Wycoff, Crystal Structures, Volume4, second edition, Interscience Publishers, 1968.
- [14] P. P. Ewald, Fifty years of Crystallography,<https://www.iucr.org/publ/50yearsofxraydiffraction>.
- [15] H. Schenk, Crystallography across the science 2, International Union of crystallography, 2008.