

the Argonne Laboratory IBM 370/195 system was 2.77 s; computing N wavelengths with this code would require $2.77 \times N$ s. With the multi-wavelength code, the time was found to be $(3.0 + 0.4 \times N)$ s. Therefore the cost saving to compute for large numbers of wavelengths is a factor of $2.77/0.4 = 7$.

6. Conclusion

We have presented a method by which time-of-flight diffraction data may be simulated in order to obtain corrections for multiple scattering. In the multi-wavelength case, all we wish to do is avoid going through the Monte Carlo simulation for each wavelength individually, and instead to do it just once. The idea is to choose scattering points and directions from distributions which represent somehow all the particular wavelengths being considered, and then compute scores in detector directions in such a way as not to bias the results. Thus, each scattering point and direction is to be chosen from composite cumulative distributions of scattering points and scattering angles, and yet to compensate for their not being the exact distributions for

any particular wavelength the worth of the 'neutron' must be modified for each wavelength after each selection of scattering point and scattering angle. With the present methods, there is no constraint against accurate calculation of multiple scattering and attenuation corrections for time-of-flight diffraction measurement on isotropic materials, other than those imposed by the accuracy of input data. These ideas may be used for the determination of similar algorithms for the evaluation of inelastic scattering data using a spectrometer in an inverse geometry mode on a pulsed neutron source.

We thank J. E. Gunning and C. A. Pelizzari for many useful discussions, and for essential help in the computing aspects of this work.

References

- BISCHOFF, F. G. (1970). *Generalized Monte Carlo Methods for Multiple Scattering Problems in Neutron and Reactor Physics*. Ph.D. Thesis, Rensselaer Polytechnic Institute.
MILDNER, D. F. R., PELIZZARI, C. A. & CARPENTER, J. M. (1977). *Acta Cryst. A* **33**, 954–961.

Acta Cryst. (1977). **A** **33**, 967–970

Utilisation des Paramètres de Stokes dans le Calcul de l'Etat de Polarisation d'un Faisceau de Rayons X Après Diffraction par un Cristal Mosaïque

PAR F. VAILLANT

Laboratoire de Cristallographie, CNRS, Boîte Postale 166 X, Grenoble, France

(Reçu le 23 mai 1977, accepté le 7 juin 1977)

The polarization state of an X-ray beam diffracted by a mosaic crystal is determined. The state of the incident beam being described by four Stokes parameters, the matrix method used allows the calculation of the Stokes parameters of a monochromatic X-ray beam and it leads to a general expression of the polarization factor which can be used for any polarization state of the incident beam.

Introduction

Pour calculer l'intensité diffractée par un cristal, on suppose presque toujours le rayonnement issu du tube comme non polarisé, en particulier lorsqu'on utilise comme source de rayons X la raie caractéristique d'un élément. Ce rayonnement peut être alors considéré comme la somme de deux rayonnements polarisés perpendiculairement de même intensité, et il est facile de calculer le facteur de polarisation quand on interpose un monochromateur entre le cristal et la source de rayons X. Ce calcul a été fait de façon complète lorsque le cristal et le monochromateur sont idéalement imparfaits (Whittaker, 1953; Azaroff, 1955).

Une onde électromagnétique et en particulier un faisceau de rayons X, est dite polarisée elliptiquement

si le champ électrique \mathbf{E} associé à cette onde peut s'écrire sous la forme:

$$\left. \begin{aligned} E_x &= a \cos(kz - \omega t) \\ E_y &= b \cos(kz - \omega t + \delta) \end{aligned} \right\}. \quad (1)$$

Ox, Oy, Oz définissant un repère orthonormé, l'onde se propageant selon Oz . Un rayonnement polarisé elliptiquement est caractérisé par quatre quantités appelées paramètres de Stokes fonction des amplitudes a et b et du déphasage δ

$$\hat{I} = a^2 + b^2, \hat{P}_1 = a^2 - b^2, \hat{P}_2 = 2ab \cos \delta, \hat{P}_3 = 2ab \sin \delta \quad (2)$$

liées par la relation $\hat{I}^2 = \hat{P}_1^2 + \hat{P}_2^2 + \hat{P}_3^2$.

Lorsque $a = b$ et $\delta = \frac{1}{2}m\pi$ avec $m = \pm(2n+1)$, le

rayonnement est dit polarisé circulairement; dans le cas où $\delta = m\pi$ avec m entier, le rayonnement est alors polarisé rectilignement. Les paramètres de Stokes peuvent être définis de façon plus générale en considérant la valeur moyenne au cours du temps des quatre quantités précédentes:

$$\begin{aligned} I &= \langle a^2 + b^2 \rangle, P_1 = \langle a^2 - b^2 \rangle, \\ P_2 &= \langle 2ab \cos \delta \rangle, P_3 = \langle 2ab \sin \delta \rangle. \quad (2') \end{aligned}$$

Pour une source non polarisée

$$\langle a^2 \rangle = \langle b^2 \rangle, \langle 2ab \cos \delta \rangle = \langle 2ab \sin \delta \rangle = 0$$

donc

$$I = \langle a^2 + b^2 \rangle \text{ et } P_1 = P_2 = P_3 = 0.$$

En optique classique, l'interaction entre une onde électromagnétique et un système optique se traduit par une transformation linéaire entre les coefficients de Stokes du faisceau entrant et sortant de ce système:

$$\begin{aligned} \mathbf{S}_{c'}^{(1)} &= Z_{c'c} \mathbf{S}_c^{(0)} \text{ avec} \\ \mathbf{S}_c^{(0)} &= \begin{bmatrix} I^{(0)} \\ P_1^{(0)} \\ P_2^{(0)} \\ P_3^{(0)} \end{bmatrix} \quad \text{et} \quad \mathbf{S}_c^{(1)} = \begin{bmatrix} I^{(1)} \\ P_1^{(1)} \\ P_2^{(1)} \\ P_3^{(1)} \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (3)$$

où $\mathbf{S}_c^{(0)}$ et $\mathbf{S}_c^{(1)}$ sont les vecteurs de Stokes de ces deux faisceaux respectivement, et $Z_{c'c}$ est la matrice de Mueller du système (Robson, 1974).

Dans cet article, nous montrons que l'on peut calculer une matrice analogue $Z_{c'c}$ caractérisant la diffraction des RX par un cristal mosaïque, ensuite nous discutons la possibilité de mesurer les paramètres de Stokes d'un faisceau de RX monochromatique, enfin nous donnons une expression générale du facteur de polarisation valable, quel que soit l'état de polarisation du faisceau incident.

Matrice de diffusion caractérisant la diffraction par un cristal mosaïque

Dans le cas où un faisceau de RX est diffusé par un électron isolé, la formule de Thomson donne en tout point $\mathbf{r} = \mathbf{ru}$ la valeur du champ électrique \mathbf{E}_e associé à l'onde diffusée par un électron

$$\exp(i\omega_0 t) \mathbf{E}_e = (\mathbf{u} \wedge \mathbf{p}_e) \wedge \mathbf{u} \frac{\omega_0^2}{c^2 r} \exp(i\omega_0 t - i2\pi k\mathbf{r}). \quad (4)$$

$$p_e = -\frac{e^2}{m\omega_0^2} E_0$$

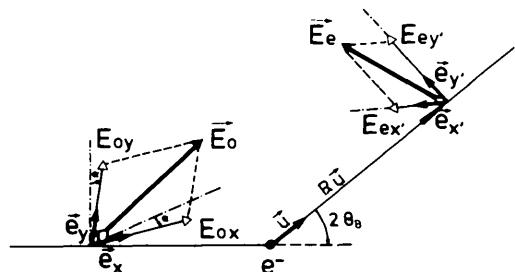


Fig. 1. Diffusion de RX par un électron isolé.

représente le module du dipole associé à l'électron et $E_0 \exp(i\omega_0 t - i2\pi k\mathbf{r})$ caractérise l'onde incidente (Zachariasen, 1945).

Appelons 2θ l'angle de diffusion que fait le faisceau diffusé avec le faisceau incident et représentons \mathbf{E}_0 dans le repère trirectangle direct $R(\mathbf{e}_x, \mathbf{e}_y, \mathbf{e}_z)$ où \mathbf{e}_z est dirigé selon le faisceau incident et où \mathbf{e}_y fait un angle α avec le plan de diffusion: $\mathbf{E}_0 = E_{0x}\mathbf{e}_x + E_{0y}\mathbf{e}_y$ (Fig. 1). De même, on représente $\mathbf{E}_e = E_{ex}\mathbf{e}_x + E_{ey}\mathbf{e}_y$ dans le repère $R'(\mathbf{e}'_x, \mathbf{e}'_y, \mathbf{e}'_z)$, avec \mathbf{e}'_z dirigé selon la direction de l'onde diffusée et \mathbf{e}'_y situé dans le plan de diffusion. L'application de la formule de Thomson montre qu'il n'y a pas de déphasage entre les deux composantes de \mathbf{E}_e . Il est alors possible de déterminer les composantes E_{ex} et E_{ey} du vecteur \mathbf{E}_e en fonction des composantes du vecteur \mathbf{E}_0 :

$$\begin{bmatrix} E_{ex} \\ E_{ey} \end{bmatrix} = \lambda \begin{bmatrix} \cos \alpha & \sin \alpha \\ -\cos 2\theta \sin \alpha & \cos 2\theta \cos \alpha \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_{0x} \\ E_{0y} \end{bmatrix} = T_{c'c} \begin{bmatrix} E_{0x} \\ E_{0y} \end{bmatrix}, \quad (5)$$

où λ se calcule à partir de (4).

Cette écriture présente une analogie formelle avec la relation reliant l'état de polarisation d'un faisceau lumineux avant et après traversée d'un système optique, relation que l'on exprime à l'aide des matrices de Jones. En développant cette analogie par une relation linéaire appropriée il est possible de calculer la matrice $Z_{c'c}$ qui relie les vecteurs de Stokes du faisceau, avant et après diffusion:

$$Z_{c'c} = U(T_{c'c} \oplus T_{c'c}^*)U^{-1} \quad (6)$$

ou $U = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & i & -i & 0 \end{bmatrix}$

(Robson, 1974).

En remplaçant dans (6) $T_{c'c}$ défini en (5), on trouve que:

$$Z_{c'c} = \frac{\lambda^2}{2} \begin{bmatrix} 1 + \cos^2 2\theta & \cos 2\alpha \sin^2 2\theta & \sin 2\alpha \sin^2 2\theta & 0 \\ \sin^2 2\theta & \cos 2\alpha(1 + \cos^2 2\theta) & \sin 2\alpha(1 + \cos^2 2\theta) & 0 \\ 0 & -2 \cos 2\theta \sin 2\alpha & 2 \cos 2\theta \cos 2\alpha & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2 \cos 2\theta \end{bmatrix}. \quad (7)$$

Dans les cristaux idéalement imparfaits dits 'cristaux mosaïques', il n'y a pas d'interaction entre onde diffractée et diffractée. L'état de polarisation d'un faisceau après diffraction par un cristal mosaïque est identique à celui obtenu par la diffusion d'un électron isolé, quand l'angle de diffusion est égal à deux fois l'angle de Bragg θ ; ce qui justifie l'utilisation de l'expression (7) précédemment obtenue, pour relier l'état de polarisation avant et après diffraction par un cristal mosaïque. L'intérêt de cette méthode est de pouvoir déterminer facilement les quatre paramètres de Stokes d'un faisceau de rayons X ayant subi n diffractions sur n cristaux lorsque l'on connaît les paramètres du faisceau incident:

$$\text{Alors } S_{c(n)}^{(n)} = Z_{c(n)c(n-1)}^{(n)} \dots Z_{c(i)c(i-1)}^{(i)} \dots Z_{c'c'}^{(2)} Z_{c'c}^{(1)} S_c^{(0)} \quad (8)$$

où $S_c^{(0)}$ et $S_{c(n)}^{(n)}$ sont les vecteurs de Stokes avant et après les n diffractions et $Z_{c(i)c(i-1)}^{(i)}$ la matrice caractérisant la diffraction par i ème cristal mosaïque.

Mesure des paramètres de Stokes et du degré de polarisation d'un faisceau de RX

Pour déterminer les paramètres de Stokes I, P_1, P_2, P_3 d'un faisceau par diffraction sur un cristal mosaïque, la seule quantité mesurable est l'intensité intégrée ϱ qui est proportionnelle au premier paramètre de Stokes I' du faisceau diffracté: $\varrho = AI'$. De par la forme de la matrice $Z_{c'c}$ (7), on voit qu'il est impossible de mesurer le paramètre P_3 du faisceau incident. Or l'intensité intégrée $\varrho = \varrho(\alpha)$ mesurée après diffraction sur un cristal mosaïque s'exprime en fonction de l'angle de Bragg θ , de l'angle α et des trois premiers paramètres de Stokes du faisceau incident:

$$\begin{aligned} \varrho(\alpha) &= \frac{A\lambda^2}{2} \{(1 + \cos^2 2\theta)I \\ &\quad + \cos 2\alpha \sin^2 2\theta P_1 + \sin 2\alpha \sin^2 2\theta P_2\}. \end{aligned}$$

Cette expression nous permet de calculer P_1/I et P_2/I , si on a mesuré les quantités $\varrho(0), \varrho(\pi/2), \varrho(\pi/4), \varrho(-\pi/4)$:

$$\left. \begin{aligned} \frac{P_1}{I} &= \left(\frac{1 + \cos^2 2\theta}{\sin^2 2\theta} \right) \frac{\varrho(0) - \varrho(\pi/2)}{\varrho(0) + \varrho(\pi/2)} \\ \frac{P_2}{I} &= \left(\frac{1 + \cos^2 2\theta}{\sin^2 2\theta} \right) \frac{\varrho(\pi/4) - \varrho(-\pi/4)}{\varrho(\pi/4) + \varrho(-\pi/4)} \end{aligned} \right\}. \quad (9)$$

On remarque donc qu'à l'aide de mesures par diffraction sur des cristaux mosaïques il est impossible de déterminer le coefficient de polarisation $D = (P_1^2 + P_2^2 + P_3^2)^{1/2}/I$ et de distinguer

$$\text{une source non polarisée où } S_c = \begin{bmatrix} I \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{bmatrix}$$

d'une source polarisée circulairement où $S_c = \begin{bmatrix} I \\ 0 \\ 0 \\ +I \end{bmatrix}$.

La mesure de P_3/I devient théoriquement possible si l'on dispose de cristaux parfaits, qui contrairement aux cristaux mosaïques, produisent un déphasage entre les différentes composantes de l'onde diffractée. On a montré (Skalicky & Malgrange, 1972) qu'il en était ainsi pour les cristaux parfaits convenablement taillés obéissant à la théorie dynamique de la diffraction. En combinant la mesure de P_1/I et de P_2/I à l'aide de cristaux mosaïques et la mesure de P_3/I à l'aide de cristaux parfaits, on pourrait alors déterminer le coefficient de polarisation D d'un faisceau de RX.

Facteur de polarisation

La méthode matricielle utilisée permet un calcul immédiat du facteur de polarisation cristallographique F_p affectant l'intensité intégrée ϱ .

Considérons d'abord le cas où un faisceau de rayons X diffracte sur un cristal mosaïque:

$$\begin{aligned} F_p &= \frac{1 + \cos^2 2\theta}{2} + \frac{\cos 2\alpha \sin^2 2\theta}{2} \frac{P_1}{I} \\ &\quad + \frac{\sin 2\alpha \sin^2 2\theta}{2} \frac{P_2}{I}. \end{aligned} \quad (10)$$

Si ce faisceau est non polarisé $P_1 = P_2 = 0$ et on retrouve le facteur de polarisation bien connu

$$F_p = \frac{1 + \cos^2 2\theta}{2}. \quad (10')$$

Si ce faisceau est linéairement polarisé et si l'angle que fait le plan de polarisation avec le plan d'incidence est égal à α alors

$$I = P_1, P_2 = 0 \text{ et } F_p = \cos^2 \alpha + \sin^2 \alpha \cos^2 2\theta. \quad (10'')$$

Cette expression est identique à celle précédemment donnée (Ramaseshan & Ramachandran, 1953).

Enfin si on place devant le cristal mosaïque un monochromateur idéalement imparfait, il est facile avec la méthode précédente de déterminer le facteur de polarisation du cristal. Appelons I_0 l'intensité incidente, θ_M l'angle de Bragg du monochromateur, θ_c l'angle de Bragg du cristal et α_c l'angle entre le plan de diffraction du monochromateur et le plan de diffraction du cristal. Pour définir la polarisation du faisceau incident choisissons le repère R tel que e_x soit perpendiculaire au plan de diffraction du monochromateur, on a alors $\alpha_M = 0$ (Fig. 2). L'intensité à la sortie du monochromateur I_M ($\alpha_M = 0$) est proportionnelle à:

$$\frac{1}{2}(1 + \cos^2 2\theta_M) + \frac{\sin^2 2\theta_M}{2} \frac{P_1}{I_0}.$$

L'intensité I_c à la sortie du cristal est calculée à partir du produit matriciel $Z_c Z_M$ des matrices caractérisant la diffraction par le monochromateur et le cristal. De cette expression, on déduit le facteur de polarisation du cristal qui est proportionnel à I_c/I_M

mosaïque. Nous en avons déduit qu'il est possible de mesurer par diffraction sur un cristal mosaïque idéal les quantités P_1/I_0 et P_2/I_0 associées à un faisceau de RX mais par contre il est impossible de déterminer la quantité P_3/I_0 et de distinguer une source de RX

$$F_p = \frac{A + B \frac{P_1}{I_0} + C \frac{P_2}{I_0}}{2[(1 + \cos^2 2\theta_M) + \sin^2 2\theta_M (P_1/I_0)]} \quad (11)$$

où

$$\left\{ \begin{array}{l} A = (1 + \cos^2 2\theta_c)(1 + \cos^2 2\theta_M) + \cos^2 2\alpha_c \sin^2 2\theta_c \sin^2 2\theta_M \\ B = (1 + \cos^2 2\theta_c) \sin^2 2\theta_M + \cos 2\alpha_c \sin^2 2\theta_c (1 + \cos^2 2\theta_M) \\ C = 2 \sin 2\alpha_c \sin^2 2\theta_c \cos 2\theta_M \end{array} \right.$$

On remarque que F_p ne dépend pas de P_3/I_0 , mais seulement des quantités P_1/I_0 et P_2/I_0 mesurables à l'aide de cristaux mosaïques et que notre expression de F_p se ramène à celle donnée par Azaroff (1955):

$$F_p = \frac{(\cos^2 2\theta_M \cos^2 \alpha_c + \sin^2 \alpha_c) \cos^2 2\theta_c + \cos^2 2\theta_M \sin^2 \alpha_c + \cos^2 \alpha_c}{1 + \cos^2 2\theta_M} \quad (11')$$

lorsque le faisceau est non polarisé, c'est-à-dire lorsque $P_1 = P_2 = P_3 = 0$.

Conclusion

Nous avons adapté les méthodes matricielles utilisées en optique classique au calcul de l'état de polarisation d'un faisceau de rayons X diffracté par un cristal

polarisée circulairement d'une source non polarisée.

Enfin, nous avons établi une expression du facteur de polarisation dans le cas où le rayonnement est partiellement polarisé et où le cristal est orienté de façon quelconque par rapport au monochromateur.

Références

- AZAROFF, L. V. (1955). *Acta Cryst.* **8**, 701–704.
- RAMASESHAN, S. & RAMACHANDRAN, G. N. (1953). *Acta Cryst.* **6**, 364–365.
- ROBSON, B. A. (1974). *The Theory of Polarization Phenomena*. Oxford Univ. Press.
- SKALICKY, P. & MALGRANGE, C. (1972). *Acta Cryst.* **A28**, 501–507.
- WHITTAKER, E. J. W. (1953). *Acta Cryst.* **6**, 222–223.
- ZACHARIASEN, W. H. (1945). *Theory of X-Ray Diffraction in Crystals*. New York: John Wiley.

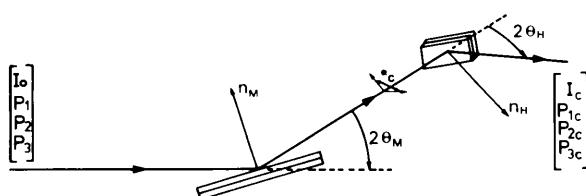


Fig. 2. Diffusion de RX par un monochromateur et un cristal mosaïque.