

- GOLDSTEIN, H. (1951). *Classical Mechanics*. Cambridge, Mass.: Addison-Wesley.
- HAMILTON, W. C. & IBERS, J. A. (1968). *Hydrogen Bonding in Solids*. New York: Benjamin.
- KITAIGORODSKII, A. I., MIRSKAYA, K. V. & TOVBIS, A. B. (1968). *Sov. Phys. Crystallogr.* **13**, 176.
- LIPPINCOTT, E. R. (1957). *J. Chem. Phys.* **26**, 1678.
- LIPPINCOTT, E. R. & SCHROEDER, R. (1955). *J. Chem. Phys.* **23**, 1099.
- LIQUORI, A. M. (1959). *Chimica Inorganica Avanzata*, IV Corso Estivo di Chimica, Varenna, 311.
- LIQUORI, A. M. (1966a). *J. Polymer Sci. C*, p.209.
- LIQUORI, A. M. (1966b). *Principles of Biomolecular Organisations*, Ciba Foundation Symposium, 40.
- LIQUORI, A. M. (1969). *Quart. Rev. Biophys.* **2**, 65.
- LIQUORI, A. M., GIGLIO, E. & MAZZARELLA, L. (1968). *Nuovo Cimento*, **55B**, 476.
- LONSDALE, K. (1961). *Acta Cryst.* **14**, 37.
- MASON, R. & RAE, A. I. M. (1968). *Proc. Roy. Soc. A* **304**, 501.
- RABINOVICH, D. & SCHMIDT, G. M. J. (1966). *Nature, Lond.* **211**, 1391.
- STOCKMAYER, W. H. (1941). *J. Chem. Phys.* **9**, 398.
- VAINSSTEIN, B. K. (1955). *Zh. Fiz. Khim.* **29**, 327.
- WILLIAMS, D. E. (1969). *Acta Cryst.* **A25**, 464.

Acta Cryst. (1970). **A26**, 327

Une Formule Optimale pour la Correction par Compteur Moniteur

PAR M. TOURNARIE

*Service de Physique et de Résonance Magnétique, Centre d'Etudes Nucléaires de Saclay,
B.P. no. 2, 91 Gif-sur-Yvette, France*

(Reçu le 3 janvier 1969)

The counter method with a time basis has the disadvantage that it includes the systematic error resulting from the variation of the source. The counter method with a monitor counter gets rid of this systematic error but introduces a statistical error originating in the uncertainty of the flux received by the monitor counter. The author proposes a formula which is a compromise between the two methods and which partially retains the advantages of the two methods.

1. Avantages et inconvénients de l'emploi d'un compteur moniteur

Les compteurs détecteurs de quanta possèdent certains avantages et désavantages sur les films photographiques. Leur sensibilité est en général plus grande que celle des films. Cependant, pour certaines applications cet avantage est contrebalancé par la possibilité qu'offre le film d'enregistrer simultanément tout le diagramme à étudier. Il faut avoir à l'esprit, en particulier que toutes les portions d'un cliché photographique sont obtenues dans des conditions instrumentales identiques, ce qui permet automatiquement de rapporter les intensités à une base strictement équivalente. Au contraire le compteur est un détecteur local et il doit parcourir successivement tous les points décrivant le domaine du diagramme. Aussi les intensités recueillies de cette manière sont-elles sujettes à des erreurs (résultant de la variation de la source) qui se produisent pendant la course du compteur.

Si la précision recherchée pour les intensités est supérieure à celle du flux probable de la source, on peut corriger les intensités observées d'un facteur déduit de la mesure du flux incident venant de la source. Cette mesure doit évidemment être faite simultanément et pendant la même durée que celle d'un point du diagramme. Le détecteur servant à cette mesure est appelé compteur moniteur.

Il est des cas où indubitablement l'usage d'un comp-

teur moniteur est indispensable: lorsque la source n'est pas stabilisable et fluctue grandement.

Par contre, lorsque la source est très stable et que les taux de comptage du compteur récepteur sont élevés (voisins de la limite acceptable pour avoir une bonne durée de vie, ou pour rester dans le domaine des approximations valables concernant le temps de résolution), alors l'emploi d'un compteur moniteur ne ferait qu'augmenter la fluctuation des résultats. L'incertitude sur le flux déduit du nombre de quanta reçus par le compteur moniteur serait alors plus grande que les fluctuations possibles de la source pendant le même temps.

Si on se trouve dans des cas intermédiaires, il est alors tentant d'utiliser à la fois l'information sur le temps et l'information du compteur moniteur.

2. Choix d'un mode opératoire

Certains modes d'emploi du compteur moniteur peuvent conduire à des formules de calcul du flux probable n'ayant pas les propriétés statistiques courantes.

Nous allons examiner ces cas pour des chaînes de comptage ayant un temps de résolution négligeable. Nous aurons ainsi des expressions plus simples sans restreindre les propriétés statistiques.

Premier mode d'emploi

On déclenche et on arrête le comptage à des instants

prédéterminés séparés d'une durée t . Soit n et m le nombre d'impulsions provenant respectivement du détecteur et du moniteur et soit $x\phi$ et $w\phi$ les flux respectifs sur ces compteurs.

Les probabilités de n et m sont:

$$p(n) = \exp(-x\phi t) \frac{[x\phi t]^n}{n!} \quad (2.1)$$

et

$$p(m) = \exp(-w\phi t) \frac{[w\phi t]^m}{m!} \quad (2.2)$$

Cherchons l'espérance mathématique de n/m . Puisque les flux sont indépendants, elle est donnée par:

$$\overline{\frac{n}{m}} = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{n}{m} p(n)p(m) \quad (2.3)$$

Soit:

$$\overline{\frac{n}{m}} = \exp[-(x+w)\phi t] \sum_{n=1}^{\infty} \frac{[x\phi t]^n}{(n-1)!} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{[w\phi t]^m}{m!m} \quad (2.4)$$

Or la série d'indice m est infinie car le terme en $m=0$ est infini. En effet la probabilité que $m=0$ n'est pas nulle: $\overline{\frac{n}{m}}$ a une espérance mathématique infinie. On ne peut donc utiliser cette quantité dans des formules faisant intervenir son espérance mathématique.

Par contre la quantité $n/[m+1]$ a pour espérance mathématique:

$$\overline{\frac{n}{[m+1]}} = x/w \quad (2.5)$$

car

$$\sum_{m=0}^{\infty} \frac{[w\phi t]^m}{m![m+1]} = \frac{1}{w\phi t} \exp w\phi t, \quad (2.6)$$

et

$$\sum_{n=1}^{\infty} \frac{[x\phi t]^n}{(n-1)!} = x\phi t \exp x\phi t. \quad (2.7)$$

C'est donc $n/[m+1]$ qui a pour espérance mathématique le rapport des flux. Comme $x/w = \tilde{n}/\tilde{m}$ on a la relation:

$$\overline{\frac{n}{[m+1]}} = \tilde{n}/\tilde{m} \quad (2.8)$$

La variance de cette quantité est finie aussi, mais elle n'est pas d'expression simple:

$$\begin{aligned} & \overline{\frac{n^2}{[m+1]^2}} - \left(\overline{\frac{n}{[m+1]}}\right)^2 \\ &= x\phi t [1+x\phi t] \frac{\exp(-w\phi t)}{w\phi t} \int_0^{w\phi t} \frac{\exp(y-1)}{y} dy \\ & \quad - \frac{x^2}{w^2}, \end{aligned} \quad (2.9)$$

ce qui fait que ce mode d'emploi est peu commode pour l'étude des propriétés statistiques.

Deuxième mode d'emploi

Une autre façon de procéder consiste à compter le nombre de quanta décelés par le détecteur pendant l'intervalle de temps séparant l'absorption de $m+1$ quanta dans le moniteur.

Le nombre de quanta du moniteur est alors une quantité certaine et c'est le temps qui devient une variable aléatoire continue. Sa densité de probabilité est:

$$p(t)dt = \exp(-w\phi t) \frac{[w\phi t]^{m-1}}{(m-1)!} w\phi dt \quad (2.10)$$

La probabilité de déceler n quanta sur le détecteur pendant un temps de comptage compris entre t et $t+dt$ est donc:

$$p(n,t)dt = \exp[-(x+w)\phi t] \frac{[x\phi]^n [w\phi]^m}{(m-1)!n!} t^{n+m-1} dt \quad (2.11)$$

D'où l'on déduit la probabilité de déceler n quanta quel que soit le temps de comptage compris entre $m+1$ quanta décelés par le moniteur:

$$p(n) = \int p(n,t)dt = \frac{1}{(m-1)!} \cdot \frac{1}{[1+x/w]^m} \times \left[\frac{x}{1+\frac{x}{w}} \right]^n \frac{(n+m-1)!}{n!} \quad (2.12)$$

L'espérance mathématique de n est donc:

$$\tilde{n} \equiv \sum_{n=0}^{\infty} np(n) = \frac{x}{w} m \quad (2.13)$$

La variance de n est aussi:

$$\overline{n^2} - \tilde{n}^2 = \left[1 + \frac{x}{w} \right] \tilde{n} \quad (2.14)$$

3. Temps de résolution d'un détecteur

Considérons un flux ϕ et un détecteur susceptible d'en déceler une fraction x . Quand le flux, $x\phi$, décelé par le détecteur augmente, le flux enregistré cesse de lui être égal. En effet après une détection, il s'écoule un certain temps τ_1 pendant lequel le détecteur ne peut pas enregistrer l'absorption d'un nouveau quantum. De plus, si une absorption survient aussitôt après ce délai, elle ne donnera naissance qu'à une impulsion trop faible pour déclencher un enregistrement dans le système électronique auquel le détecteur est relié. Il faudra atteindre un temps τ_2 pour que l'impulsion suivante engendrée soit suffisamment intense pour être enregistrée.

Ainsi, lorsque l'intervalle moyen $1/x\phi$ séparant l'arrivée de deux quanta n'est pas grand vis à vis du temps

mort $\tau_0 = \tau_1 + \tau_2$, il y a un nombre notable de particules perdues.

Pendant le temps t , le nombre espéré de particules absorbées est $x\varphi t$ par définition. Si le compteur décèle n particules, il est inefficace pendant un temps $n\tau_0$, de sorte que l'espérance du nombre enregistré n (produit du flux $x\varphi$ absorbé par le temps effectif $t - n\tau_0$) est :

$$\bar{n} = x\varphi[t - \bar{n}\tau_0]. \quad (3.1)$$

Cette formule fut obtenue par Schiff (1936). Elle suppose que le flux probable n'a pas de fluctuations rapides. Si ce n'est pas le cas il faut introduire une correction car alors les 'chevauchements d'impulsions' sont plus fréquents que si le flux était stable. Wescott (1948) a montré que l'on pourrait prendre en compte cette correction en définissant un temps de résolution effectif τ supérieur à τ_0 et égal à :

$$\tau = \frac{\overline{\varphi^2}}{\overline{\varphi^2} - \overline{\varphi}} \tau_0, \quad (3.2)$$

et en appliquant la formule :

$$mn = xm[t - \bar{n}\tau]. \quad (3.3)$$

4. Modèle statistique de source stable

Lorsque la source a des fluctuations lentes, on ne peut se contenter de corriger le temps mort, il faut aussi corriger le flux. Ceci complique notablement la procédure expérimentale et son exploitation numérique.

L'expérience doit en effet comprendre deux détecteurs : l'un mesurant le phénomène physique étudié, l'autre mesurant l'intensité de la source. Il devient nécessaire pour l'exploitation numérique de construire un modèle statistique de source fluctuante.

Etablissons d'abord les équations qui donnent les flux reçus par ces compteurs pour un flux donné émis par une source stable.

Soit

- φ le flux incident,
- x la proportion absorbée par le compteur,
- t le temps de comptage,
- τ le temps de résolution,

s un échantillon d'une variable aléatoire continue normale réduite (c'est-à-dire suivant une loi de densité de probabilité de Laplace-Gauss, d'espérance mathématique nulle et de variance unité).

L'espérance mathématique n du nombre d'impulsions décelées est :

$$\bar{n} = x\varphi[t - \tau\bar{n}]. \quad (4.1)$$

D'où l'on déduit

$$\bar{n} = \frac{x\varphi}{1 + \tau x\varphi} t. \quad (4.2)$$

Si la source ne fluctue pas, la seule fluctuation qu'on observe sur n est la fluctuation quantique qui suit une loi de Poisson :

$$p(n) = \exp(-\bar{n}) \frac{\bar{n}^n}{n!}, \quad (4.3)$$

dont la variance est

$$\overline{n^2} - \bar{n}^2 = \bar{n}. \quad (4.4)$$

Comme la plupart des calculs qui vont suivre n'exploiteront que les propriétés statistiques d'ordre deux (variances), nous obtiendrons les mêmes résultats pour une loi de Poisson ou une loi de Laplace-Gauss. Lorsque les calculs seront plus simples avec cette dernière loi, nous la choisirons pour notre modèle et nous indiquerons si cette hypothèse a une influence sur le résultat.

Nous pourrions donc écrire :

$$n = \frac{x\varphi}{1 + \tau x\varphi} t + s \sqrt{\frac{x\varphi}{1 + \tau x\varphi} t}, \quad (4.5)$$

où s est un tirage d'une variable aléatoire continue réduite (d'espérance mathématique nulle et de variance unité).

Le physicien cherche à obtenir une estimation du x_j correspondant au j -ème comptage à partir de la connaissance de l'ensemble des n_j et t_j . Partant de l'ensemble d'équations :

$$n_j = \frac{\varphi x_j t_j}{1 + \tau \varphi x_j} + s_j \sqrt{\frac{\varphi x_j t_j}{1 + \tau \varphi x_j}}, \quad (4.6)$$

on procède en général ainsi :

On cherche un $\varphi \bar{x}_j$ apparent conforme aux équations entre les espérances mathématiques, c'est-à-dire :

$$n_j = \frac{\varphi \bar{x}_j t_j}{1 + \tau \varphi \bar{x}_j}, \quad (4.7)$$

d'où

$$\varphi \bar{x}_j = \frac{n_j}{t_j - \tau n_j}. \quad (4.8)$$

Grâce à notre modèle statistique, il est facile de voir la relation entre le \bar{x}_j apparent et le véritable x_j :

$$\varphi \bar{x}_j \simeq \varphi x_j + [1 + \tau \varphi x_j]^{3/2} \sqrt{\frac{\varphi x_j}{t_j}} s_j. \quad (4.9)$$

Le terme correctif de premier ordre est d'espérance mathématique nulle. Notons que le terme de second ordre n'est pas d'espérance nulle, mais on le néglige car il est faible.

5. Validité du modèle approché

On peut se demander quelle est la validité du procédé consistant à se limiter à des développements n'ayant sûrement en commun que les propriétés statistiques du premier et du deuxième ordres.

Montrons sur un exemple que nous obtenons par ce procédé la valeur correcte de l'écart statistique. Considérons un comptage ayant duré le temps t compris entre la réception de $m+1$ quanta. Pendant ce temps le compteur détecteur a reçu n quanta.

Sachant que la densité de probabilité du temps t est :

$$p(t)dt = \exp(-w\varphi t) \frac{[w\varphi t]^{m-1}}{(m-1)!} w\varphi dt, \quad (5.1)$$

on trouve

$$\bar{t} = \frac{m}{w\varphi} \text{ et } \bar{t}^2 - \bar{t}^{\prime 2} = \frac{m}{[w\varphi]^2}. \quad (5.2)$$

Un modèle statistique approché au second ordre sera donc:

$$t = \bar{t} + s' \sqrt{\bar{t}^2 - \bar{t}^{\prime 2}} = \frac{m}{w\varphi} \left[1 + \frac{s'}{\sqrt{m}} \right]. \quad (5.3)$$

Maintenant sachant que pour un temps t connu, la probabilité de n est:

$$p(n|t) = \exp(-x\varphi t) \frac{[x\varphi t]^n}{n!}, \quad (5.4)$$

on en déduit $\bar{n}_t = x\varphi t \bar{n}_t^{\prime 2} - \bar{n}_t^{\prime 2} = x\varphi t$. Notre modèle nous conduit à:

$$n_t = \bar{n}_t + s'' \sqrt{\bar{n}_t^2 - \bar{n}_t^{\prime 2}} = x\varphi t \left[1 + \frac{s''}{\sqrt{x\varphi t}} \right]. \quad (5.5)$$

Combinons maintenant les deux phénomènes statistiques en portant le modèle t dans la formule du modèle n_t . On obtient en première approximation:

$$n = \frac{mx}{w} \left[1 + \frac{s'}{\sqrt{m}} + \frac{s''}{\sqrt{\bar{n}}} \right]. \quad (5.6)$$

Comme s' et s'' sont des échantillons de variables aléatoires indépendantes, on peut les remplacer par un échantillon s d'une variable unique dont la variance est la somme des variances précédentes. On peut donc écrire:

$$n = \frac{mx}{w} \left[1 + s \sqrt{\frac{1}{m} + \frac{1}{n}} \right]. \quad (5.7)$$

La variance de ce modèle est donc en se rappelant que $\bar{n}/m = x/w$:

$$\bar{n}^2 - \bar{n}^{\prime 2} = \left[1 + \frac{x}{w} \right] \bar{n}. \quad (5.8)$$

On retrouve bien la valeur rigoureuse de la variance obtenue précédemment [équation (2.14)]. On voit que ce mode de calcul approché ne nous conduit pas à des résultats qui dépendraient du chemin parcouru pour les obtenir.

La raison en est simple: tant qu'on ne s'intéresse qu'à l'espérance mathématique et à la variance, un développement au premier ordre est suffisant. Ces deux grandeurs dépendent en première approximation de termes de parités différentes et jamais les ordres supérieurs ne peuvent toucher ces premiers termes.

En effet soit s un tirage d'une variable aléatoire continue réduite et soit $f(s)$ une fonction développable de s (comme ce sera toujours le cas dans cet article) telle que:

$$f(s) = a_0 + a_1s + a_2s^2 + a_3s^3 + a_4s^4 + \dots \quad (5.9)$$

On voit facilement que:

$$\bar{f}(s) = a_0 + a_2 + a_3\sigma_3 + a_4\sigma_4 + \dots, \quad (5.10)$$

et

$$\bar{f}^2(s) - \bar{f}(s)^2 = a_1^2 + 2a_1a_2\sigma_3 + a_2^2[\sigma_4 - 1] + 2a_1a_3\sigma_4 + \dots, \quad (5.11)$$

où

$$\sigma_3 = \bar{s}^3 \text{ et } \sigma_4 = \bar{s}^4. \quad (5.12-13)$$

On constate donc qu'il suffit de prendre en compte les termes d'ordre nul et de premier ordre pour avoir une estimation satisfaisante de l'espérance mathématique de f et de sa variance à condition que:

$$a_0 \gg a_2 + a_3\sigma_3 + a_4\sigma_4 + \dots, \quad (5.14)$$

et

$$a_1^2 \gg 2a_1a_2\sigma_3 + a_2^2[\sigma_4 - 1] + 2a_1a_3\sigma_4 + \dots, \quad (5.15)$$

ce qui est le cas pour les quantités que nous examinons.

6. Modèle statistique de source instable

Si le flux φ est lui-même affecté d'une instabilité propre, l'espérance mathématique du nombre d'absorptions dans le compteur ne sera pas $\varphi x_j t_j$ mais $\varphi_j x_j t_j$. Les variations de cette espérance mathématique d'un comptage à l'autre ne seront plus attribuables sûrement à x_j . Le physicien pallie cet inconvénient en disposant un autre compteur travaillant toujours dans les mêmes conditions de rendement. L'espérance mathématique du nombre d'absorptions sera alors $w\varphi_j t_j$. Nous aurons pour ce compteur:

$$m_j = \frac{w\varphi_j t_j}{1 + \tau w\varphi_j} + s'_j \sqrt{\frac{w\varphi_j t_j}{1 + \tau w\varphi_j}}. \quad (6.1)$$

Nous avons admis que le flux est affecté d'une instabilité qui se traduit par:

$$\varphi_j = [1 + \varepsilon_j] \Phi, \quad (6.2)$$

où ε_j varie d'un comptage à l'autre, tandis que Φ représente un flux constant d'un comptage à l'autre. On en déduit:

$$m_j = \frac{w\Phi[1 + \varepsilon_j]}{1 + \tau w\Phi[1 + \varepsilon_j]} t_j + s'_j \sqrt{\frac{w\Phi[1 + \varepsilon_j]}{1 + \tau w\Phi[1 + \varepsilon_j]}}. \quad (6.3)$$

En nous contentant d'approximations au premier ordre, on obtient en posant $u_0 = 1 + \tau w\Phi$.

$$m_j = \frac{w\Phi}{u_0} t_j + \frac{w\Phi}{u_0^2} \varepsilon_j t_j + \sqrt{\frac{w\Phi}{u_0}} s'_j \quad (6.4)$$

où le deuxième terme de la somme est susceptible d'être notablement plus grand que le troisième. La connaissance de τ, m_j, t_j et $w\Phi$ permet d'estimer ε_j donc φ_j et par suite de corriger l'erreur due à l'instabilité de la source. L'estimation de φ_j comporte néanmoins une incertitude due à s'_j . Il y a donc lieu d'optimiser.

7. Formule optimale

Formule non corrigée des instabilités

Si l'on néglige l'instabilité de la source, on obtient l'estimation \bar{x}_j de x_j qui a la variance la plus faible comparée à celles des formules tenant compte de l'instabilité.

On part en effet de:

$$\Phi \bar{x}_j = \frac{n_j}{t_j - \tau n_j} \tag{7.1}$$

Or:

$$n_j = \Phi \frac{x_j t_j}{u_j} + \Phi \frac{x_j t_j \varepsilon_j}{u_j^2} + \sqrt{\frac{\Phi x_j t_j}{u_j}} s_j \tag{7.2}$$

On en déduit au second ordre près:

$$\Phi \bar{x}_j = \Phi x_j + \Phi x_j \varepsilon_j u_j + \sqrt{\frac{\Phi x_j u_j^3}{t_j}} s_j \tag{7.3}$$

Le troisième terme concerne l'erreur statistique due à la fluctuation quantique. Le second concerne l'erreur 'systématique' résultant de l'hypothèse faite dans la formule que la source est stable.

Formule partiellement corrigée des instabilités

Si l'on tient compte de l'instabilité de la source, on est conduit à estimer x_j par une formule où le terme en ε_j intervient peu. Elle fait intervenir le nombre m_j d'impulsions décelées par le compteur moniteur. La formule classique est:

$$\Phi \bar{x}_j = \frac{w \Phi n_j [t_j - \tau m_j]}{m_j [t_j - \tau n_j]} \tag{7.4}$$

On en déduit:

$$\begin{aligned} \Phi \bar{x}_j &= \Phi x_j + [u_j - u_0] \Phi x_j \varepsilon_j + \sqrt{\frac{\Phi x_j u_j^3}{t_j}} s_j \\ &- \sqrt{\frac{u_0^3 x_j}{w t_j}} s'_j \end{aligned} \tag{7.5}$$

On remarque que cette formule ne corrige entièrement l'erreur d'instabilité de la source que si le flux reçu par le moniteur est de l'ordre de grandeur du flux reçu par le compteur.

Nous allons chercher la formule optimale par une combinaison linéaire des deux précédentes:

$$\begin{aligned} \Phi \dot{x}_j &= \left[1 - \alpha + \alpha \frac{w \Phi [t_j - \tau m_j]}{m_j} \right] \frac{n_j}{t_j - \tau n_j} \\ &\equiv \left[1 - u_0 \alpha_0 + \alpha_0 w \Phi \frac{t_j}{m_j} \right] \frac{n_j}{t_j - \tau n_j} \end{aligned} \tag{7.6}$$

où α est choisi pour que soit minimale, non pas l'erreur systématique, mais l'erreur totale, combinaison de l'erreur systématique et de l'erreur aléatoire. Calculons avec les constantes théoriques la valeur de $\Phi \dot{x}_j$. On obtient au premier ordre:

$$\begin{aligned} \Phi \dot{x}_j &= \Phi x_j \left[1 + [u_j - \alpha u_0] \varepsilon_j + \sqrt{\frac{u_j^3}{\Phi x_j t_j}} s_j \right. \\ &\left. - \alpha \sqrt{\frac{u_0^3}{\Phi w t_j}} s'_j \right] \end{aligned} \tag{7.7}$$

L'erreur relative globale η se tire de l'équation de la variance

$$\begin{aligned} \frac{[\Phi \dot{x}_j - \Phi x_j]^2}{\Phi^2 x_j^2} &\equiv \eta^2 = [u_j - \alpha u_0]^2 \tilde{\varepsilon}^2 + \frac{u_j^3}{\Phi x_j t_j} \\ &+ \alpha^2 \frac{u_0^3}{\Phi w t_j} \end{aligned} \tag{7.8}$$

où apparaît la somme des carrés des coefficients des trois variables aléatoires indépendantes r_j , s_j et s'_j . Cette erreur est minimale lorsque sa dérivée par rapport à α est nulle:

$$\frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial \alpha} (\eta^2) \equiv u_0 \left[\alpha u_0 \left[\frac{u_0}{\Phi w t_j} + \tilde{\varepsilon}_j^2 \right] - \tilde{\varepsilon}_j^2 u_j \right] = 0 \tag{7.9}$$

soit:

$$\alpha = \alpha_0 \equiv \frac{u_j}{u_0} \cdot \frac{\Phi w t_j \tilde{\varepsilon}_j^2}{u_0 + \Phi w t_j \tilde{\varepsilon}_j^2} \tag{7.10}$$

8. Solution

En posant $\beta \equiv \frac{\Phi w t_j \tilde{\varepsilon}_j^2}{u_0 + \Phi w t_j \tilde{\varepsilon}_j^2}$ la formule optimale s'écrit

plus simplement:

$$\Phi \dot{x}_j = \left[1 + \beta u_j \left[\frac{w \Phi t_j}{u_0 m_j} - 1 \right] \right] \frac{n_j}{t_j - \tau n_j} \tag{8.1}$$

$$\text{où } u_0 = 1 + \tau w \Phi \quad u_j = 1 + \tau \Phi x_j \tag{8.2-3}$$

$$\text{et } \beta = \frac{\Phi w t_j \tilde{\varepsilon}_j^2}{u_0 + \Phi w t_j \tilde{\varepsilon}_j^2} \tag{8.4}$$

Cette formule fait intervenir des quantités théoriques inconnues: Φw , Φx_j , $\tilde{\varepsilon}_j^2$. Mais comme la valeur de β n'est pas critique, on peut se contenter de les remplacer dans β par leur estimation grossière à partir des comptages bruts. Dans la formule elle-même $w \Phi$ doit être assez correctement évalué sous peine de créer une erreur systématique. Nous verrons plus loin comment l'estimer avec précision à partir de l'étude des différents m_j .

Propriétés de la solution

Si les perturbations de la source sont négligeables,

ε_j^2 peut être considéré comme nul. β est nul et l'on retrouve la formule d'estimation de $\Phi \bar{x}_j$ sans compteur moniteur. Dans ce cas en effet la base de temps qui fournit le t_j à une période près sera plus précise que le compteur moniteur qui fournit m_j à $\sqrt{m_j}$ près.

Si la source est extrêmement variable en intensité $\tilde{\varepsilon}_j^2 \rightarrow \infty$, alors $\beta \rightarrow 1$. On tend alors vers la formule entièrement corrigée de l'erreur systématique:

$$\Phi \bar{x}_j = \left[1 - u_j + \frac{w\Phi}{u_0} \frac{u_j t_j}{m_j} \right] \frac{n_j}{t_j - \tau n_j}. \quad (8.5)$$

9. Evaluation de l'erreur

L'erreur probable η_j s'obtient en remplaçant α_0 par sa valeur dans la formule (7.8). On remarque préalablement que:

$$\alpha_0 u_0 = \frac{\Phi w t_j \tilde{\varepsilon}_j^2 u_j}{u_0 + \Phi w t_j \tilde{\varepsilon}_j^2}. \quad (9.1)$$

Donc:

$$u_j - \alpha_0 u_0 = \frac{u_0 u_j}{u_0 + \Phi w t_j \tilde{\varepsilon}_j^2}. \quad (9.2)$$

Par conséquent comme:

$$\eta_j^2 = [u_j - \alpha_0 u_0]^2 \tilde{\varepsilon}_j^2 + [\alpha_0 u_0]^2 \frac{u_0}{\Phi w t_j} + \frac{u_j^3}{\Phi x_j t_j}, \quad (9.3)$$

on en déduit

$$\eta_j^2 = \alpha_0 \frac{u_0^2 u_j}{\Phi w t_j} + \frac{u_j^3}{\Phi x_j t_j}, \quad (9.4)$$

soit:

$$\eta \Phi \dot{x}_j = \Phi x_j \sqrt{\frac{u_j^3}{\Phi x_j t_j} + \beta \frac{u_0 u_j^2}{\Phi w t_j}} \quad (9.5)$$

Formule pratique

Dans la pratique, on peut remplacer les grandeurs théoriques $\Phi x_j t_j$, $\Phi w t_j$, u_0 , u_j par des quantités observables ayant même espérance mathématique; ce sont:

$$u_j / \Phi x_j t_j \rightarrow 1/n_j \quad (9.6)$$

$$u_0 / \Phi w t_j \rightarrow 1/m_j \quad (9.7)$$

$$u_j \rightarrow t_j / [t_j - \tau n_j] \quad (9.8)$$

$$u_0 \rightarrow t_j / [t_j - \tau m_j] \quad (9.9)$$

ce qui donne:

$$\eta \Phi \dot{x}_j \simeq \Phi \dot{x}_j \sqrt{\frac{u_j^2}{n_j} + \frac{\beta u_0 u_j}{m_j}}. \quad (9.10)$$

Propriétés de l'erreur

Nous allons étudier la variance relative η^2 dans les différentes méthodes. On obtient:

$$\eta^2 = \begin{cases} \frac{u_j^3}{\Phi x_j t_j} + \frac{\beta}{1-\beta} \frac{u_0 u_j^2}{\Phi w t_j} & \text{sans correction} \\ & \text{de moniteur} \quad (9.11) \\ \frac{u_j^3}{\Phi x_j t_j} + \beta \frac{u_0 u_j^2}{\Phi w t_j} & \text{avec correction} \\ & \text{optimale} \quad (9.12) \\ \frac{u_j^3}{\Phi x_j t_j} + \frac{u_0 u_j^2}{\Phi w t_j} & \text{avec correction} \\ & \text{complète.} \quad (9.13) \end{cases}$$

Partons de $\tilde{\varepsilon}_j^2 = 0$, alors $\beta = 0$. On trouve pour l'erreur dans la méthode optimale $\Phi x_j \sqrt{u_j^2 / \Phi x_j t_j}$ qui est l'erreur dans le cas de l'emploi d'une base de temps (et source stable puisque $\varepsilon_0^2 = 0$). L'erreur est en effet plus faible si l'on n'emploie pas de moniteur lorsque la source est stable.

Lorsque $\tilde{\varepsilon}_j^2$ croît, il arrive un moment où $\Phi w t_j \tilde{\varepsilon}_j^2$ devient plus grand que u_0 . L'erreur est dans ce cas plus grande sans correction de moniteur qu'avec correction complète. La correction optimale fournit alors une erreur inférieure aux deux.

Lorsqu'enfin $\varepsilon^2 \rightarrow \infty$, c'est-à-dire que la source est très instable, $\beta \rightarrow 1$. L'erreur dans la formule optimale tend par valeurs inférieures vers celle qu'on aurait par l'emploi d'un compteur moniteur sans utilisation d'une base de temps (dont les indications seraient alors sans intérêt).

L'évolution de η^2 en fonction de β a été portée Fig. 1.

On voit que pour $0 < \beta < u_0$, c'est-à-dire $\tilde{\varepsilon}_j^2 t_j < 1/\Phi w$ les meilleurs résultats sont par ordre décroissant obtenus par:

- (1) correction optimale avec moniteur et base de temps;
- (2) base de temps seule;
- (3) moniteur seul.

Si par contre $\tilde{\varepsilon}_j^2 t_j > 1/\Phi w$, les meilleurs résultats sont par ordre décroissant obtenus par:

- (1) correction optimale avec moniteur et base de temps;
- (2) moniteur seul;
- (3) base de temps seule.

10. Estimation du flux absorbé par le moniteur

Les formules optimales précédentes font intervenir le flux $w\Phi$ absorbé par le moniteur et l'instabilité $\tilde{\varepsilon}_j^2$ de la source qui sont des quantités mal connues *a priori*. Pour les estimer, on peut se servir à la suite des comptages m_j du moniteur.

Lorsque les durées de comptage sont variables, il faut faire une conjecture concernant la variation de $t_j \varepsilon_j^2$ avec t_j et avec j . Nous avons admis que le flux est affecté d'une instabilité d'autant plus marquée qu'on le mesure sur un intervalle de temps plus petit, et que d'autre part cette instabilité ne dépend pas de l'instant j considéré.

On écrit ainsi:

$$\overline{\varepsilon_j^2} = \frac{\varepsilon^2}{t_j} \quad (10-1)$$

et

$$\varphi_j = \left[1 + \frac{\varepsilon}{\sqrt{t_j}} r_j \right] \Phi, \quad (10-2)$$

où ε^2 est un temps mesurant l'instabilité de la source et où r_j est un échantillon d'une variable aléatoire continue réduite (c'est-à-dire d'espérance mathématique nulle et de variance unité).

Le nombre m_j de quanta décelés par le compteur moniteur au cours du j ème comptage est alors (rapelons-le):

$$m_j = \frac{w\Phi}{u_0} t_j + \frac{\varepsilon w\Phi}{u_0^2} \sqrt{t_j} r_j + \sqrt{\frac{w\Phi t_j}{u_0}} s'_j. \quad (10-3)$$

Notre tirage aléatoire est décrit en faisant intervenir r_j et s'_j , deux variables aléatoires, ce qui est maintenant inutile. On peut les remplacer par une seule variable aléatoire continue s_j fournissant la même espérance mathématique et la même variance. On aboutit ainsi à l'équation:

$$m_j = \frac{w\Phi}{1 + \tau w\Phi} t_j + K\sqrt{t_j} s_j, \quad (10-4)$$

$$K^2 \equiv \frac{w\Phi}{1 + \tau w\Phi} + \frac{\varepsilon^2 w^2 \Phi^2}{[1 + \tau w\Phi]^4}, \quad (10-5)$$

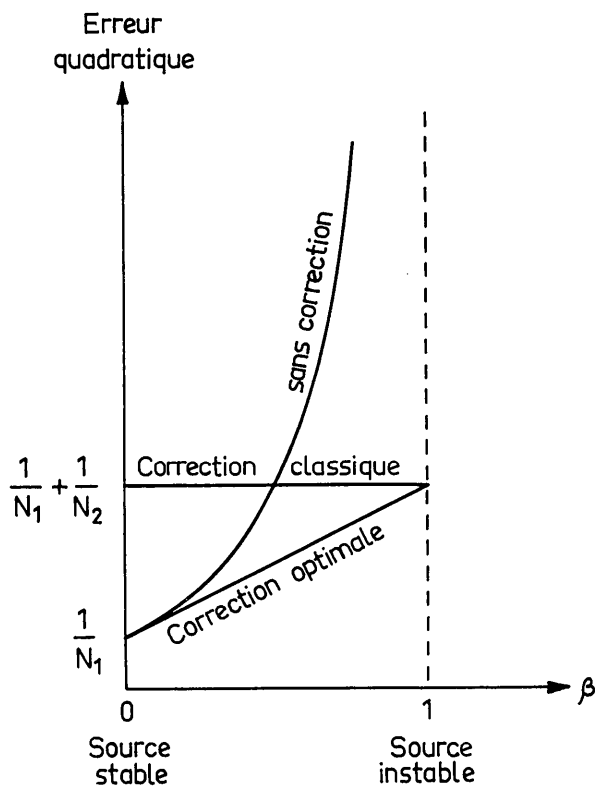


Fig. 1. L'évolution de η^2 en fonction de β .

et où s_j est une variable aléatoire continue réduite (c'est-à-dire d'espérance mathématique nulle et de variance unité).

En effectuant la somme de tous ces comptages et en s'intéressant aux valeurs probables, la somme où intervient s_j est d'espérance mathématique nulle. On a donc:

$$\Sigma \overline{m_j} = \frac{w\Phi}{1 + \tau w\Phi} \Sigma t_j. \quad (10-6)$$

Cherchons le $\overline{w\Phi}$ efficace qui justifie les écarts entre les m_j observés et leur valeur calculée avec le plus de vraisemblance.

L'écart au j ème comptage est:

$$m_j - \frac{\overline{w\Phi}}{1 + \overline{w\Phi}} t_j, \quad (10-7)$$

alors que l'écart statistique probable est $K\sqrt{t_j}$. La probabilité est donc, dans le cas d'une loi normale, maximale si

$$E = \Sigma \frac{1}{K^2 t_j} \left[m_j - \frac{\overline{w\Phi}}{1 + \overline{w\Phi}} t_j \right]^2 \text{ est minimal.} \quad (10-8)$$

Ceci s'obtient pour:

$$\overline{w\Phi} = \frac{\Sigma m_j}{\Sigma [t_j - \tau m_j]} \quad (10-9)$$

soit

$$\overline{w\Phi} = \frac{M}{T - \tau M} \quad (10-10)$$

en posant

$$M = \Sigma m_j \quad (10-11)$$

$$T = \Sigma t_j. \quad (10-12)$$

Propriétés statistiques de l'estimation du flux moniteur

Evaluons dès maintenant la valeur de $\overline{w\Phi}$ en fonction des grandeurs théoriques vraies: $w\Phi$, K , etc... Pour cela portons dans $\overline{w\Phi}$ l'expression

$$\Sigma m_j = \left[\frac{w\Phi}{u_0} + K\theta \right] T. \text{ On obtient alors:}$$

$$\overline{w\Phi} = w\Phi \frac{1 + u_0 K\theta/w\Phi}{1 - \tau u_0 K\theta} \simeq w\Phi + u_0^2 K\theta, \quad (10-13)$$

où

$$\theta = \frac{\Sigma \sqrt{t_j} s_j}{\Sigma t_j}. \quad (10-14)$$

θ est un échantillon d'une variable aléatoire continue d'espérance mathématique nulle et de variance égale à $1/T$. On voit qu'au second ordre près, l'espérance mathématique $\overline{\overline{w\Phi}}$ de $\overline{w\Phi}$ est égale à $w\Phi$:

$$\overline{\overline{w\Phi}} = w\Phi. \quad (10-15)$$

Son écart statistique vaut $u_0^2 K \sqrt{\overline{\theta^2}} = \frac{u_0^2 K}{\sqrt{T}}$. (10-16)

11. Estimation du temps d'instabilité de la source

A partir de K^2 et $w\Phi$, on peut évaluer le temps d'instabilité de la source:

$$\varepsilon^2 = \frac{[1 + \tau w\Phi]^4}{w^2 \Phi^2} K^2 - \frac{[1 + \tau w\Phi]^3}{w\Phi}. \quad (11.1)$$

Nous allons étudier les propriétés statistiques d'un temps $\bar{\varepsilon}^2$ défini à partir d'une expression analogue, mais ne faisant intervenir que des grandeurs expérimentales. Pour cela il faut définir $\overline{w\Phi}$ et $\overline{K^2}$. Nous avons déjà défini $\overline{w\Phi}$ ayant pour espérance mathématique $w\Phi$. Il faut définir un $\overline{K^2}$ expérimental ayant K^2 pour espérance mathématique. Nous le tirons de E . En effet, évaluons quelle sera la valeur minimale de E . En remarquant que $w\Phi/[1 + w\Phi] = M/T$, c'est-à-dire qu'il n'y a pas de terme aléatoire au dénominateur, nous avons d'abord:

$$m_j - \frac{\overline{w\Phi} t_j}{1 + \tau \overline{w\Phi}} = K[\theta t_j - \sqrt{t_j} s_j]. \quad (11.2)$$

Puis

$$\sum \frac{1}{t_j} \left[m_j - \frac{\overline{w\Phi} t_j}{1 + \tau \overline{w\Phi}} \right]^2 = K^2 [\sigma_2 - \theta^2 T], \quad (11.3)$$

en posant

$$\sigma_2 = \sum_{j=1}^n s_j^2, \quad (11.4)$$

σ_2 est un échantillon d'une variable aléatoire continue d'espérance mathématique égale à n , le nombre de comptages effectués. Donc l'espérance mathématique de $\sigma_2 - \theta^2 T$ est $n - 1$ (puisque l'espérance de θ^2 est $1/T$). Donc:

$$K^2 = \frac{1}{n-1} \sum \frac{1}{t_j} \left[m_j - \frac{\overline{w\Phi} t_j}{1 + \tau \overline{w\Phi}} \right]^2. \quad (11.5)$$

Nous définissons donc $\overline{K^2}$ comme:

$$\overline{K^2} \equiv \frac{1}{n-1} \sum \frac{1}{t_j} \left[m_j - \frac{\overline{w\Phi} t_j}{1 + \tau \overline{w\Phi}} \right]^2 \quad (11.6)$$

Propriétés statistiques de $\overline{K^2}$

Evaluons la valeur expérimentale $\overline{K^2}$ en fonction des grandeurs théoriques. On a:

$$\overline{K^2} = K^2 \frac{\sigma_2 - T\theta^2}{n-1}. \quad (11.7)$$

L'espérance mathématique de σ_2 est n , et celle de $T\theta^2$

est 1. On a donc bien $\overline{\overline{K^2}} = K^2$ comme on l'a cherché. La variance de $\overline{K^2}$ fait intervenir les corrélations entre σ_2 et θ^2 et nécessite une conjecture sur la valeur du quatrième moment de la variable aléatoire s . Si on admet une loi de densité de probabilité de Laplace-

Gauss, on a alors:

$$\overline{\overline{\sigma_2^2}} = n^2 + 2n \quad \overline{\overline{\sigma_2 \theta^2}} = \frac{n+2}{T} \quad \overline{\overline{\theta^4}} = \frac{3}{T^2}. \quad (11.8-9-10)$$

On trouve alors pour la variance de $\overline{K^2}$

$$\overline{[\overline{K^2} - K^2]^2} = \frac{2}{n-1} K^4. \quad (11.11)$$

Cette dernière formule est seulement indicative car elle repose sur des hypothèses restrictives concernant la loi de densité de probabilité suivie par s .

Nous sommes maintenant à même de définir un temps $\bar{\varepsilon}_2$ selon l'expression

$$\overline{\varepsilon_2} \equiv \frac{[1 + \tau \overline{w\Phi}]^4}{w\Phi^2} \overline{K^2} - \frac{[1 + \tau \overline{w\Phi}]^3}{w\Phi} \quad (11.12)$$

Nous allons d'abord évaluer $\overline{\varepsilon_2}$ en fonction des grandeurs inconnues théoriques. On sait que:

$$\overline{\overline{w\Phi}} \simeq w\Phi \left[1 + \frac{u_0^2 K\theta}{w\Phi} \right], \quad (11.13)$$

d'où

$$1 + \tau \overline{\overline{w\Phi}} \simeq [1 + \tau w\Phi] [1 + \tau u_0 K\theta], \quad (11.14)$$

enfin

$$\overline{K^2} = K^2 \frac{\sigma_2 - T\theta^2}{n-1} \equiv K^2 \left[1 + \frac{\sigma_2 - n + 1 - T\theta^2}{n-1} \right]. \quad (11.15)$$

On a donc:

$$\begin{aligned} \overline{\varepsilon_2} \simeq & \frac{u_0^4 [1 + 4\tau u_0 K\theta]}{w\Phi^2 \left[1 + \frac{u_0^2 K\theta}{w\Phi} \right]^2} K^2 \left[1 + \frac{\sigma_2 - n + 1 - T\theta^2}{n-1} \right] \\ & - \frac{u_0^3 [1 + 3\tau u_0 K\theta]}{w\Phi \left[1 + \frac{u_0^2 K\theta}{w\Phi} \right]}, \end{aligned} \quad (11.16)$$

ou

$$\begin{aligned} \overline{\varepsilon_2} \simeq & \varepsilon^2 + \left[3 - 2u_0 - 2 \frac{2 - u_0}{w\Phi} K^2 \right] \frac{u_0^2 K\theta}{[w\Phi]^2} \\ & + \frac{n - \sigma_2 + 1 - T\theta^2}{n-1} \frac{u_0^4 K^2}{[w\Phi]^2}. \end{aligned} \quad (11.17)$$

Propriétés statistiques de $\overline{\varepsilon_2}$

On sait qu'au second ordre près

$$\overline{\overline{\varepsilon_2}} = \varepsilon^2. \quad (11.18)$$

Quand à la variance de $\overline{\varepsilon_2}$, elle est essentiellement soumise aux hypothèses concernant la loi de probabilité de la variable aléatoire s engendrant les s_j .

Dans l'hypothèse d'une loi de densité de probabilité de type Laplace-Gauss, on trouve:

$$\begin{aligned} \overline{[\varepsilon_2 - \varepsilon^2]^2} &= \sqrt{\frac{2}{n-1} \left[\frac{u_0^2 K}{w\Phi} \right]^2} \\ &+ \left[1 + \frac{[4-2u_0]\varepsilon^2 w\Phi}{u_0^3} \right] \frac{u_0^4 K}{[w\Phi]^2 \sqrt{T}}. \quad (11.19) \end{aligned}$$

12. Mise en oeuvre de la méthode optimale

La mise en pratique de la méthode optimale demande l'installation de deux compteurs et de trois unités de comptage pour la base de temps, le compteur détecteur, et le compteur moniteur. L'application de la formule optimale demande une exploitation numérique préalable de l'ensemble des comptages moniteurs afin de déterminer le temps $\bar{\varepsilon}_2$ caractéristique de l'instabilité de la source. Cette opération comprend au moins un examen (sinon deux pour avoir une bonne précision) de l'ensemble des comptages moniteurs. Ensuite un dernier examen permet le calcul des $\Phi \dot{x}_j$ corrigés. On aboutit ainsi à la procédure suivante:

Boucle A: Enregistrer t_j, n_j, m_j ,
calculer $T = \sum t_j, M = \sum m_j$.

Interboucle: Calculer $\overline{w\Phi} = \frac{M}{T - \tau M}$,
 $\frac{\overline{w\Phi}}{1 + \tau \overline{w\Phi}} = \frac{M}{T}, \bar{u}_0 = \frac{T}{T - \tau M}$.

Boucle B: Calculer $\bar{K}_2 \equiv$
 $\frac{1}{n-1} \sum_j \frac{1}{t_j} \left[m_j - \frac{M}{T} t_j \right]^2$.

Il semblerait que cette expression puisse être calculée dans la boucle A car elle est analytiquement identique à

$$\bar{K}_2 = \frac{1}{n-1} \left[\sum \frac{m_j^2}{t_j} - \frac{M^2}{T} \right].$$

Mais le résultat comporterait des erreurs d'arrondi beaucoup plus grandes, dues aux effets de différences: des sommes de carrés de différences sont plus précises que des différences de sommes de carrés.

Interboucle

Calculer éventuellement $\bar{\varepsilon}_2 = \frac{\bar{u}_0^4 \bar{K}_2}{w\Phi^2} - \frac{\bar{u}_0^3}{w\Phi}$, etc...

Puis calculer:

$$\beta = \frac{\bar{\varepsilon}_2 \overline{w\Phi}}{\bar{u}_0 + \bar{\varepsilon}_2 \overline{w\Phi}}.$$

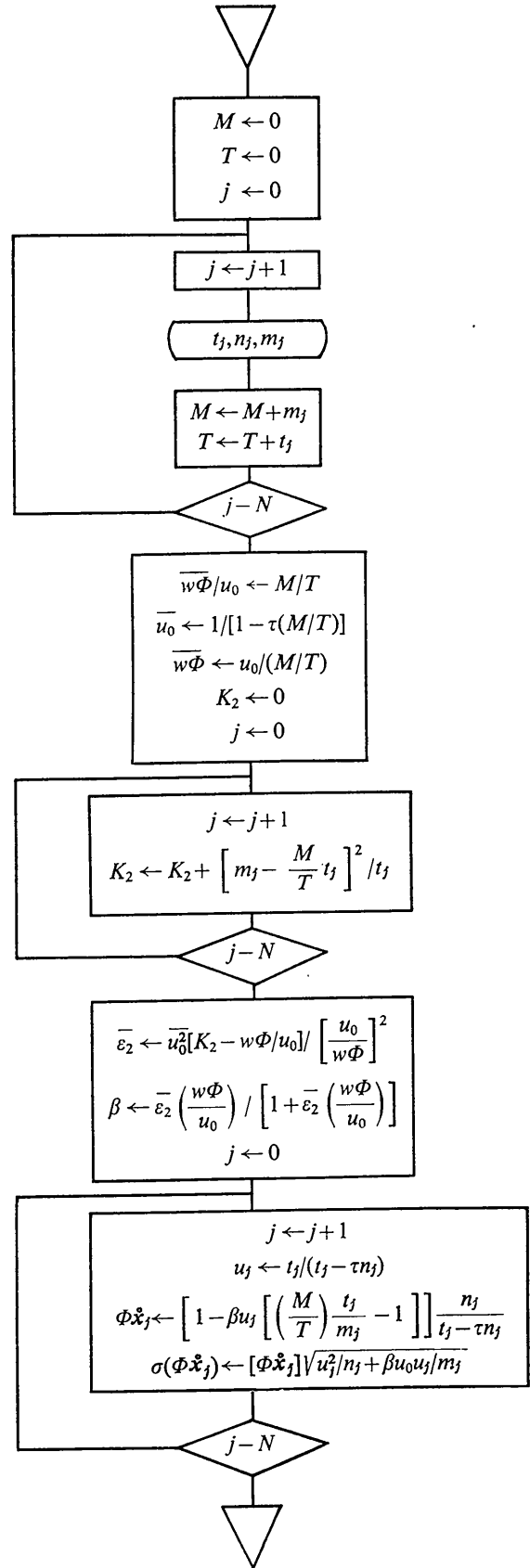
Boucle C

Calculer pour chaque comptage $\bar{u}_j = t_j / [t_j - \tau n_j]$ puis:

$$\Phi \dot{x}_j = \left[1 - \beta u_j \left[\frac{M t_j}{T m_j} - 1 \right] \right] \frac{n_j}{t_j - \tau n_j}$$

et

$$\sigma(\Phi \dot{x}_j) = [\Phi \dot{x}_j] \sqrt{\frac{u_j^2}{n_j} + \frac{\beta u_0 u_j}{m_j}}.$$



Conclusion

Nous avons montré que l'erreur systématique apportée par la dérive de la source ne peut être corrigée sans introduire une erreur aléatoire due à la fluctuation quantique du flux moniteur.

Nous constatons une fois de plus l'antagonisme de ces deux types d'erreur. Comme nous l'avions déjà signalé (Tournarie, 1958) comme étant un cas général, l'erreur minimale s'obtient par une correction non pas totale, mais seulement partielle de l'erreur systématique.

Nous pensons donc que les systèmes de comptage doivent comprendre trois éléments:

- { une base de temps ;
- { un compteur de flux diffusé ;
- { un compteur de flux moniteur .

Références

- SCHIFF, L. I. (1936) *Phys. Rev.* **50**, 88.
 TOURNARIE, M. (1958). *Actes du 2ème congrès international de Cybernétique*, Namur.
 WESCOTT, C. H. (1948). *Proc. Roy. Soc. A* **194**

Acta Cryst. (1970). **A26**, 336

X-ray and Neutron Diffraction Study of Tetragonal Barium Titanate

BY J. HARADA,* T. PEDERSEN AND Z. BARNEA

School of Physics, University of Melbourne, Australia

(Received 10 June 1969)

An attempt is made to differentiate between the three previously proposed models of the structure of tetragonal BaTiO₃. In the new model, the serious parameter-interaction problem was avoided by the use of both neutron and X-ray diffraction data collected from *c*-domain single crystals. The result of the refinement gave the displacement of the Ti atom from its cubic position as $0.0135 \pm 0.0004 \text{ \AA}$; the *R* value was 0.027 and 0.024 for the neutron and X-ray data respectively. The analysis also showed that the temperature parameters, B_{33} , along the *c* axis are approximately independent of mass; $B_{33} = 0.32 \pm 0.03 \text{ \AA}^2$ from X-ray and $0.33 \pm 0.04 \text{ \AA}^2$ from neutron diffraction. The average value obtained for the $\overline{B_{11}}$ temperature parameters, $\overline{B_{11}} = 0.50 \text{ \AA}^2$, is considerably higher than the B_{33} value, which thus clearly indicates the existence of low frequency optic modes at room temperature.

Introduction

Below its ferroelectric Curie temperature (120°C) BaTiO₃ has tetragonal symmetry with the space group *P4mm* (*C_{4v}*). In this ferroelectric phase, the atoms are shifted from the symmetry positions of the cubic perovskite-type structure along the *c* axis by small amounts Δz . The exact values of these are very difficult to determine because of the large interaction between the position and temperature parameters along the tetragonal axis. This has been shown by Evans (1951, 1961) who in an attempt to solve the structure by X-ray diffraction proposed two models both of which fitted his experimental data equally well with a reliability index *R* of about 0.037. The problem has also been investigated by Frazer, Danner & Pepinsky (1955) and Danner, Frazer & Pepinsky (1960) using neutron diffraction and they obtained a third model, intermediate between the two previous models. Three different models of the structure have thus been proposed.

In the neutron diffraction experiment the crystal was equipped with electrodes to permit unidirectional domain alignment by an electric field. Because of the piezoelectricity of tetragonal BaTiO₃, application of an electric field to the crystal will cause the crystal to become strained. The amount of deformation would be extremely small (Kittel, 1963). The effect of the electric field on the temperature parameters, however, is not yet clear. We have therefore collected both neutron and X-ray diffraction data using free, *c*-domain crystals without electrodes.

In this paper an attempt has been made to differentiate between the three previously proposed models in the light of our data. We also show that it is possible to obtain a model which is in good agreement with both neutron and X-ray data, provided certain initial assumptions are made about the temperature factors.

Experiment

Barium titanate crystals grown at the Matsushita Electric Industry Co. Ltd. by Remeika's method were used in the investigation. Suitable *c*-domain single crystals were chosen with the aid of a polarizing microscope.

* A.I.N.S.E. Research Fellow, on leave from Department of Physics, Tokyo Institute of Technology, Tokyo, Japan. Present address: Physics Department, Brookhaven National Laboratory, N.Y., U.S.A.