

Physique Numérique – TP9

Etude de surfaces cristallines par diffraction des rayons X

Victor Lanvin

1 Introduction

Dans ce TP, on se propose d'étudier numériquement la diffraction des rayons X par des surfaces cristallines. L'interprétation des expériences basées sur la diffraction de rayons par des cristaux étant parfois difficile, il est utile de comparer les résultats expérimentaux aux résultats numériques attendus.

Dans un premier temps, on réalisera et on étudiera un algorithme permettant de faire une double transformée de Fourier rapide, et ce sur des cas simples. Dans un deuxième temps, on construira un réseau bidimensionnel de type cubique simple afin d'obtenir une première figure de diffraction. On réalisera ensuite des réseaux plus complexes et on étudiera l'influence des paramètres numériques sur les résultats obtenus. Enfin, on se servira de notre analyse numérique afin d'interpréter des résultats expérimentaux.

2 Double FFT

Question b. Pour calculer l'amplitude diffusée, on réalise l'identification $e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} = e^{i2\pi\frac{uh+vk}{n}}$. Sachant qu'on choisit un pas d'intégration $d = a/n$, et que $\vec{r} = udu_x + vdv_y$, on obtient $\vec{q} = \frac{2\pi h}{a}u_x + \frac{2\pi k}{a}u_y$. On remarque donc que la résolution du vecteur de diffusion est $\frac{2\pi}{a}$. On peut noter que, en particulier, sa résolution est indépendante de n , ce sur quoi on reviendra dans la section 3.

On déduit de plus immédiatement que la valeur maximale accessible aux coordonnées du vecteur de diffusion est $\frac{2\pi n}{a}$.

Question c. On s'intéresse dans cette question à la diffraction par un atome. On trace donc la densité de charges ainsi que l'intensité diffractée en deux dimensions. Les figures obtenues sont regroupées en Figure 1. On a choisi de représenter la densité de charges d'un atome par une Gaussienne, ce qu'on a représenté en Figure 1a.

En utilisant immédiatement l'algorithme sans correction préalable, on obtient l'intensité représentée en Figure 1b. En effet, la transformée de Fourier d'une Gaussienne est une Gaussienne *centrée en zéro*. Or, la fenêtre d'étude n'est pas centrée en zéro mais est le carré $[0; \frac{2n\pi}{a}] \times [0; \frac{2n\pi}{a}]$. On ne voit donc que le "coin" supérieur droit de la Gaussienne centrée en zéro. De plus, les conditions aux bords périodiques (implicitement supposées par la FFT) rendent la figure de diffraction périodique de période $\frac{2n\pi}{a}$, d'où l'apparition des autres taches.

On corrige cela en remplaçant convenablement les quatre quadrants de la figure et en corrigeant le système de coordonnées, ce qui produit la Figure 1c.

3 Réseau Bidimensionnel et Simulations

Question a. On étudie dans cette question un réseau carré simple (bidimensionnel). Pour cela, on a représenté la densité de charges d'un tel réseau ainsi que la figure de diffraction qui en résulte en Figure 2. On a indexé les taches de diffraction sur cette figure.

On remarque immédiatement que, conformément à la théorie, le réseau réciproque est lui-même carré simple. De plus, en réalisant la même identification que dans la section précédente (Question b.), on trouve la résolution du vecteur de diffraction : $\frac{2\pi}{am}$. Sachant que l'on obtient un pic de diffraction tous les 4 pas, et que ici $m = 4$, on obtient le paramètre du réseau réciproque : $\frac{2\pi}{a}$, ce qui est bien cohérent avec la théorie.

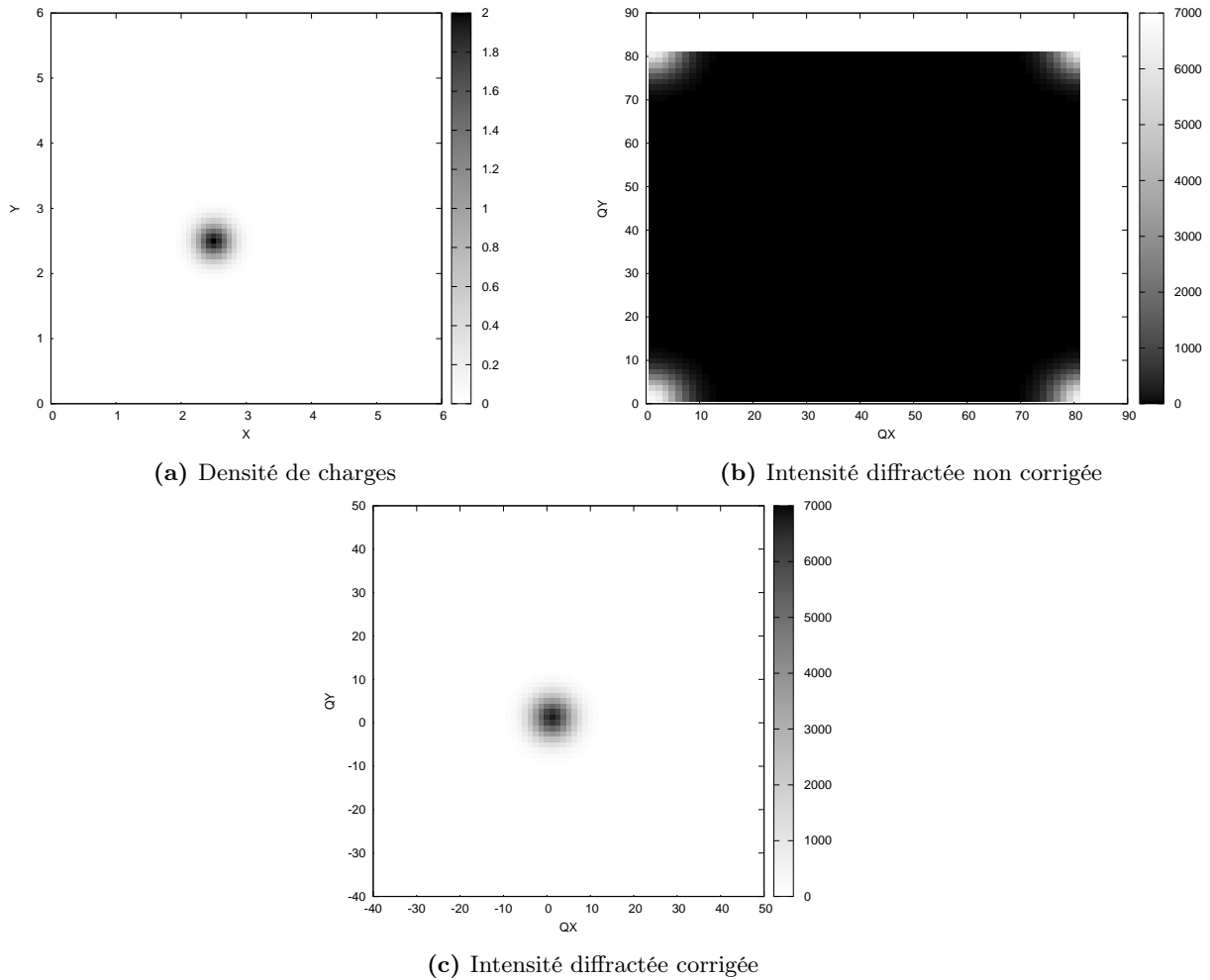


Figure 1: Étude de la diffraction par un atome pour $\sigma = 0.2$, $n = 64$, $a = 5 \text{ \AA}$

Question b. Les taches ne sont pas circulaires pour plusieurs raisons. Premièrement, la discrétisation choisie est carrée. On a donc artificiellement introduit une symétrie carrée dans l'analyse, ce qui se répercute sur les résultats. Deuxièmement, la résolution est basse ($n = 64$ points), et il est donc impossible de distinguer de fines variations. Cependant, augmenter n ne changerait rien à la forme des taches car la résolution du vecteur de diffraction ne dépend que de a et de m . En revanche, cela peut permettre de rendre les taches plus précises, comme représenté en Figure 3 pour $n = 256$. Le réseau étant infini (sous les conditions périodiques), les taches sont elles-mêmes infiniment fines. Ainsi, augmenter la résolution ou la surface analysée ne feront que rétrécir les taches.

Une solution serait de considérer une plus grande fenêtre d'analyse, mais de considérer un échantillon restreint à une partie de la fenêtre (et donc non-périodique sur l'ensemble de la fenêtre). Cela permettrait d'augmenter la taille des taches et donc de visualiser des taches circulaires.

Question c. Dans cette question, on simule le désordre dû à l'agitation thermique en augmentant le paramètre σ associé à la Gaussienne de chaque atome. La répartition des charges ainsi que la figure de diffraction sont représentées en Figure 4. On remarque que l'intensité diffractée est plus faible. Ceci est bien cohérent avec la théorie qui prédit une intensité diffractée modulée par $e^{-q^2 \sigma^2}$. Ainsi, plus sigma est élevé, plus l'intensité des pics secondaires va être faible.

Question d. On s'intéresse maintenant à l'influence de la taille du système m sur la figure de diffraction. On a donc tracé la densité et la figure de diffraction pour différentes valeurs de m ($m = 2, 3, 5$) en Figure 5.

On remarque que plus la taille du système est élevée, moins on observe de pics. Cela est dû à la perte de précision lors de l'intégration car le pas d'intégration augmente linéairement en fonction de m . L'apparent

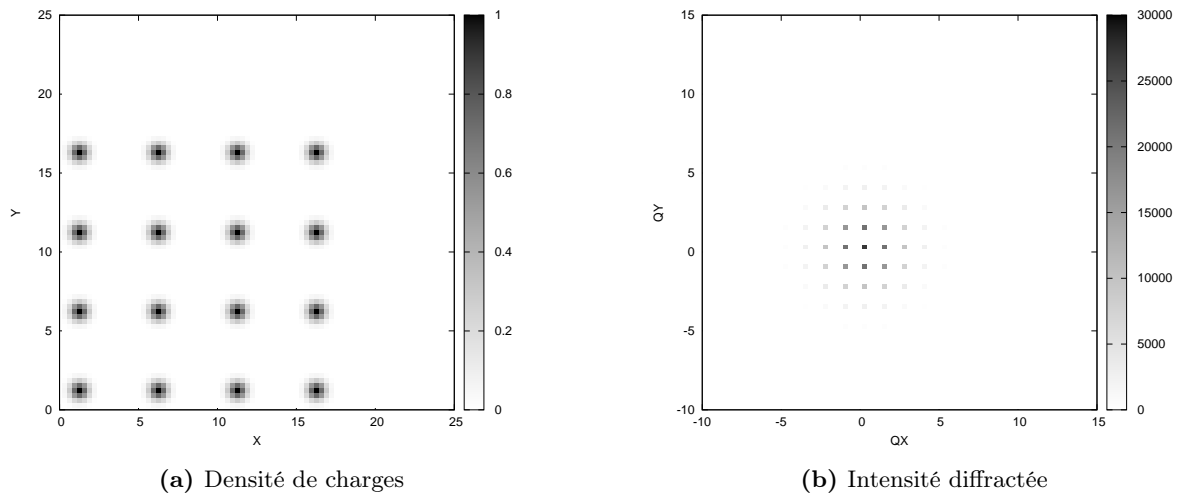


Figure 2: Étude de la diffraction par un réseau cubique simple pour $\sigma = 0.4$, $n = 64$, $a = 5 \text{ \AA}$, $m = 4$

étalement des figures de diffraction n'est dû qu'à la diminution de la fenêtre de représentation, qui vaut $\frac{2n\pi}{am}$ (et donc qui diminue en fonction de m).

Question e. Dans cette question, on ajoute des atomes aux centres des mailles afin d'obtenir un réseau carré centré. La répartition de densité et la figure de diffraction obtenues sont représentées en Figure 6. Si on compare cette figure à celle obtenue pour le réseau carré simple, on remarque que certains pics sont éteints. Ces extinctions, identifiées sur la figure, correspondent aux pics d'indices (10) , (01) , (21) , (12) , \dots . On retrouve le résultat analytique qui prédit qu'il y a extinction en (ij) si et seulement si i et j ne sont pas de même parité.

Question f. On essaie maintenant de "décentrer" le réseau, c'est à dire de décaler légèrement les atomes des centres. La répartition de densité et la figure de diffraction obtenues sont représentées en Figure 7. Notons d'abord que le paramètre de la maille réciproque est inchangé par rapport au cas cubique centré, et ce car la maille est restée inchangée : seul le motif a été modifié.

Généralement, pour des motifs simples, on note que les symétries de la maille principale sont conservées dans la maille réciproque. Ici, en déplaçant les atomes centraux, on a brisé la symétrie diagonale présente dans le réseau cubique centré. Ainsi, on remarque que, contrairement au cas carré centré, la figure de diffraction ne présente plus de symétrie diagonale : la diagonale $y = -x$ n'est plus "équivalente" à la diagonale $y = x$. Cependant, on tout de même conservé certaines symétries (par exemple, les axes verticaux et horizontaux coupant un même point (hk) avec $h = k$ sont équivalents).

4 Analyse de Données Expérimentales

Question a. Le silicium cristallise dans un réseau cubique faces centrées. Ainsi, le plan (001) d'un cristal de silicium est un plan carré centré tel qu'étudié dans la section précédente. On s'attend donc à une figure de diffraction similaire à celle représentée en Figure 6.

Pour se rendre compte des différences, on a tracé en Figure 8 la figure de diffraction correspondant à un réseau carré centré de paramètre $a = 5.43 \text{ \AA}$. On mesure sur cette figure la distance entre deux pics alignés diagonalement : $d = \sqrt{2} * \frac{2\pi}{a} \simeq 1.636 \text{ \AA}$.

En réalisant la même mesure sur le cliché LEED fourni, d'échelle $1.1 \text{ cm} \iff 2 \text{ \AA}$, on trouve la distance entre deux points alignés diagonalement : $d' = 0.45 \text{ cm} * \frac{2\text{\AA}}{1.1 \text{ cm}} \simeq 0.818 \text{ \AA}$. Ceci correspond exactement à la moitié de la valeur attendue : $d' = d/2$. On en déduit que, sur les diagonales, un pic sur deux est dû aux atomes de volume. On a sommairement représenté cela sur la Figure A.

Question b. Une explication sommaire est donnée par le schéma représenté en Figure B.

Question c. La surface n'étant pas plane, certains atomes sont plus proches du microscope que d'autres, et l'intensité tunnel est donc plus élevée au niveau de ces atomes. On observe donc deux niveaux d'intensité, qui

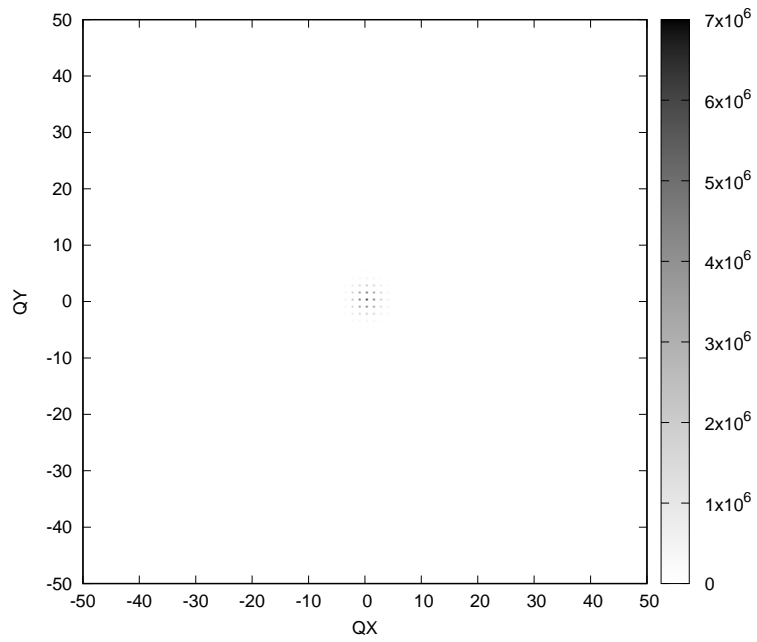


Figure 3: Intensité diffractée par un réseau carré pour $n = 256$

correspondent à une “marche”.

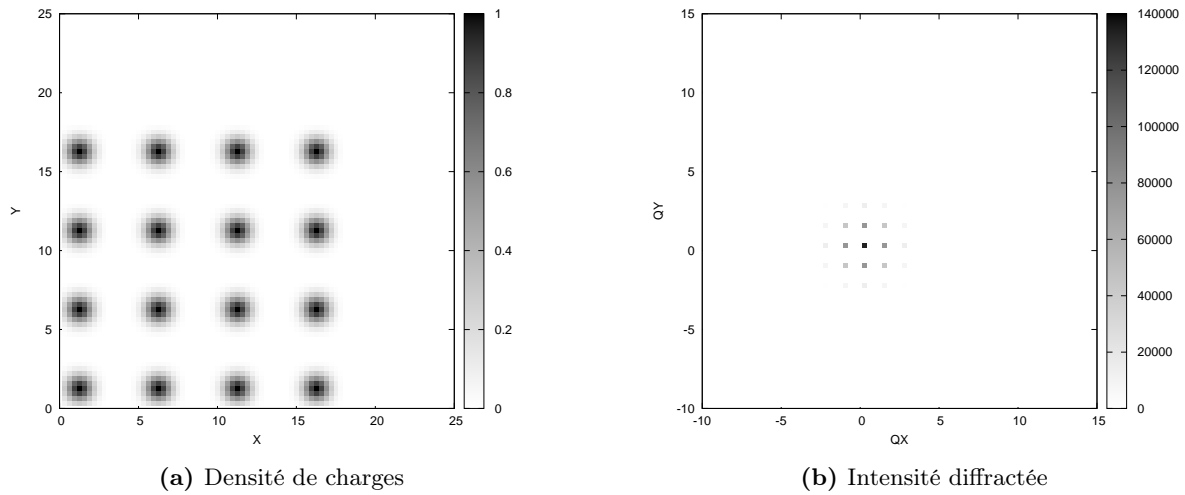


Figure 4: Étude de la diffraction par un réseau cubique simple pour $\sigma = 0.6$

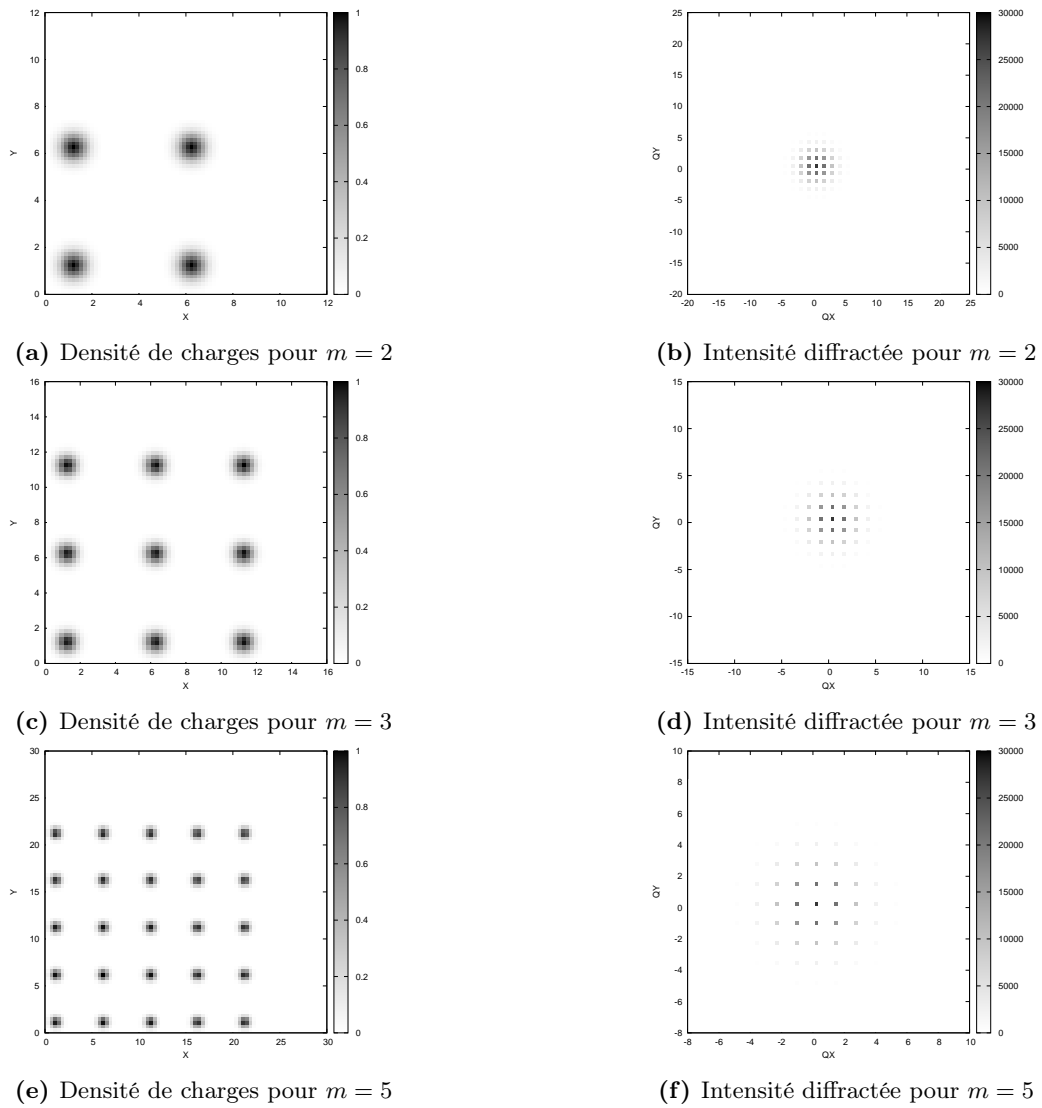


Figure 5: Étude de la diffraction par un réseau carré simple pour différents m

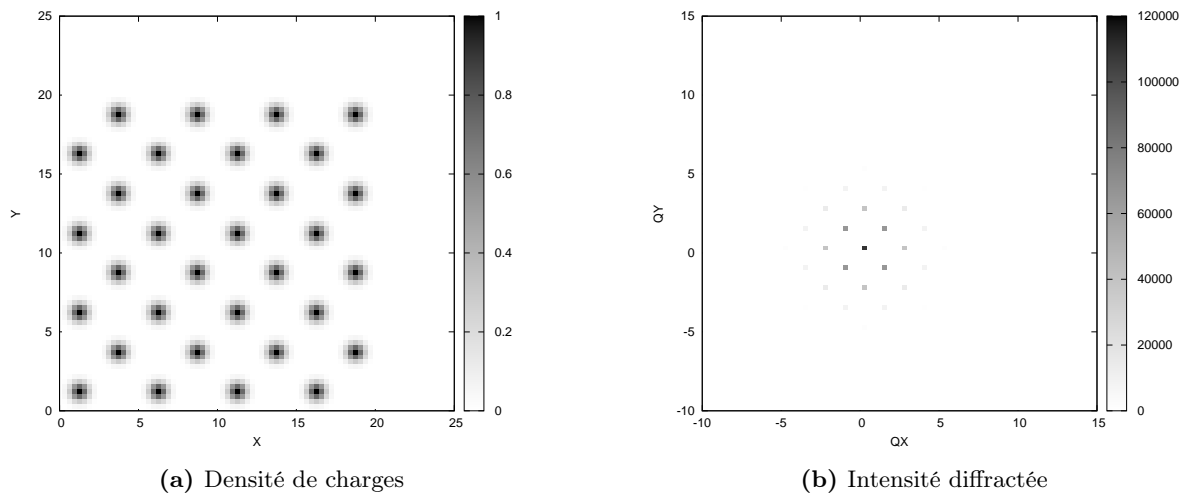


Figure 6: Étude de la diffraction par un réseau carré centré

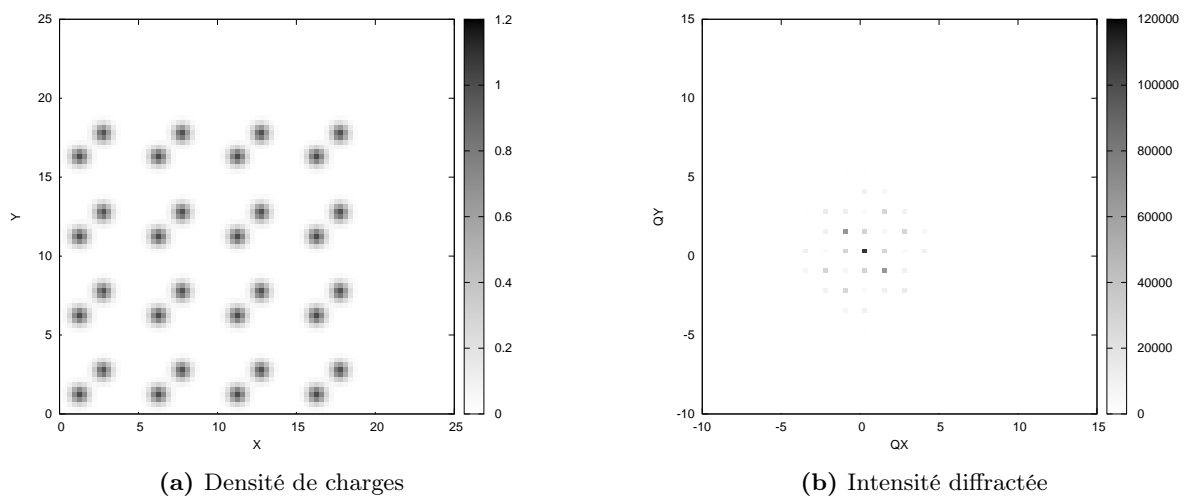


Figure 7: Étude de la diffraction par un réseau carré non centré

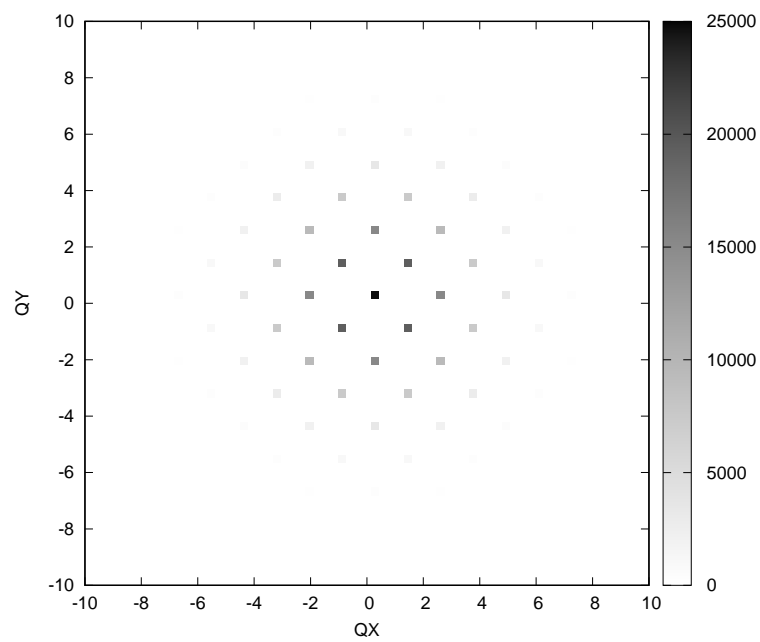


Figure 8: Intensité diffractée par un réseau carré centré $a = 5.43 \text{ \AA}$