

Étude des interfaces et des couches minces par réflectivité des rayons X et des Neutrons

GUILLAUME BROTONS

Table des matières

I. Présentation	3
II. Cours	4
1. Théorie de la réflectivité spéculaire des dioptries plans et des milieux stratifiés unidimensionnels.....	4
1.1. Calcul de la réflectivité des rayons-X ou des neutrons de films minces.....	4
1.2. Réflectivité sur un dioptre plan séparant deux milieux homogènes semi-infinis.....	5
1.3. Réflectivité sur une couche mince homogène et d'épaisseur constante.....	25
1.4. Réflectivité des film minces stratifiés (analyse selon la normale à leur surface libre, suivant z).....	29
2. Utilisation des approximations de Born simplificatrices. Formalisme cinématique continu.....	38
2.1. Approximations de Born.....	39
3. Calcul des indices de réfraction d'un matériau pour les rayons-X et pour les neutrons.....	40
3.1. Photons X.....	41
3.2. Neutrons et pseudo-potentiel de Fermi.....	42
3.3. Utilisation des tableaux pour le calcul des indices.....	45
III. Exercices	50
1. Comparaison des indices de réfraction aux neutrons et rayons-X.....	50
2. Détermination de la densité électronique et de l'épaisseur d'une couche mince d'or par réflectivité spéculaire des rayons-X.....	50
Solution des exercices	53
Bibliographie	55
Webographie	57
Crédit des ressources	58

I.Présentation

Module :

Optique des rayons X

Auteur(s) :

Guillaume BROTONS - Institut des molécules et matériaux du Mans
UMR CNRS 6283

Résumé :

Ce cours est consacré à la présentation des théories utilisées pour calculer la réflectivité spéculaire d'une interface, d'un film mince ou d'une multi-couche plus complexe. Nous soulignons avec un soin particulier les hypothèses qui permettent d'appliquer un formalisme développé historiquement pour l'optique visible aux faisceaux de rayons-x et de neutrons, qui permettent de sonder des échelles spatiales plus petites avec des contrastes et des transparences très différents.

Mots-clés :

Optique des rayons-x et des neutrons, théorie de la réflectivité, interfaces, films et couches minces, multicouches

Pré-requis :

Optique physique (optique de Fresnel), bases en mécanique quantique.

Objectif(s) pédagogique(s) :

Comprendre et savoir simuler (calculer, programmer) le phénomène de réflectivité des rayons-x ou des neutrons.

Analyser des mesures et caractériser des interfaces, couches minces ou multicouches.

Plan du cours :

- Introduction
- Théorie de la réflectivité spéculaire des dioptries plans et des milieux stratifiés unidimensionnels
- Utilisation des approximations de Born simplificatrices. Formalisme cinématique continu
- Calcul des indices de réfraction d'un matériau pour les rayons-X et pour les neutrons

Conception & production :

PRN - Le Mans Université

Licence :

Licence GNU¹

1 - <http://www.gnu.org/licenses/fdl.txt>

II. Cours

Ce cours est consacré à la présentation des théories utilisées pour calculer la **réflectivité spéculaire** d'une interface, d'un film mince ou d'une multi-couche plus complexe. Nous soulignons avec un soin particulier les hypothèses qui permettent d'appliquer un formalisme développé historiquement pour l'optique visible aux faisceaux de **rayons-X** et de **neutrons** qui permettent de sonder des échelles structurales plus petites avec des contrastes et des transparences très différents.

La communauté scientifique étudiant des **interfaces** ou des **couches minces** attend de ces techniques d'analyse structurale qu'elles permettent la mesure des épaisseurs des différents matériaux rencontrés ainsi que la largeur et même le profil des interfaces qui les séparent. Généralement, on utilise pour cela des procédures d'ajustement basées sur l'optimisation d'un jeu de paramètres permettant de reproduire la courbe de réflectivité mesurée. Pour ces procédures, les potentiels d'interaction avec le rayonnement, les épaisseurs et les largeurs des interfaces sont des paramètres du calcul. Nous présentons ici les bases des modèles théoriques qui permettent ces calculs d'optique des rayons-X et des neutrons.

Les domaines scientifiques utilisant ces méthodes sont nombreux. Citons notamment les sciences des matériaux qui s'intéressent aux polymères et liquides complexes (*élastomères, caoutchoucs, plastiques, résines, colles, mousses, ...*) avec des enjeux technologiques forts couplés à des problèmes fondamentaux originaux (*adhésion, films de mouillage, biocompatibilité, viscoélasticité, ...*); les revêtement et couches minces inorganiques à la base de nombreux composants de microélectronique (*semi-conducteurs, multicouches magnétiques, films minces, cristaux liquides, nanocomposites et matériaux hybrides en couches minces ...*); la corrosion des interfaces métalliques ainsi que plus récemment la biologie puisque nombreux phénomènes du vivant ont lieu à des interfaces au sein de solutions complexes.

1. Théorie de la réflectivité spéculaire des dioptries plans et des milieux stratifiés unidimensionnels

1.1. Calcul de la réflectivité des rayons-X ou des neutrons de films minces

Nous allons introduire les théories couramment utilisées pour calculer la **réflectivité des rayons-X ou des neutrons de films minces**. Ces théories étant issues de formalismes différents tels que l'optique classique ou la mécanique quantique, un soin particulier sera porté à la mise en évidence des hypothèses sous-jacentes qui définissent leurs domaines de validité. Le phénomène de réflectivité des films minces latéralement homogènes est étudié en premier. Le dioptre plan constitue le système réfléchissant le plus simple et nous permet de rappeler des notions élémentaires d'optique.

Le phénomène est abordé premièrement selon le **formalisme classique des ondes électromagnétiques** qui s'applique aux rayons-X et ensuite selon l'**approche quantique pour des particules massives** puisque c'est le formalisme utilisé pour les neutrons.

La complémentarité des deux approches devient évidente lorsqu'on décrit avec une présentation originale le phénomène de la réflexion totale aux petits angles d'incidence.

Des systèmes plus complexes mais plus proches de la réalité des systèmes étudiés au laboratoire ou dans l'industrie sont abordés ensuite.

Le cas simple d'une couche mince unique est suivi par celui des matériaux stratifiés comme les empilements multicouches. Pour ces systèmes, les méthodes de calcul les plus courantes sont

rappelées dans le cadre de formalismes dits dynamiques respectant les lois de conservation de l'énergie.

La partie suivante introduit le formalisme cinématique basé sur l'utilisation des approximations de Born. Il est très pratique quand on peut l'appliquer ce qui est souvent le cas pour les rayons-X puisqu'il simplifie les calculs et permet de travailler avec des équations analytiques (par opposition aux calculs matriciels ou itératifs introduits avant).

Les définitions des grandeurs utilisées pour quantifier la réflexion et transmission d'un matériau aux X ou aux neutrons sont introduites dans la dernière partie.

1.2. Réflectivité sur un dioptre plan séparant deux milieux homogènes semi-infinis.

Le **dioptré plan** constitue le système physique le plus simple donnant lieu aux phénomènes de réflexion et transmission. Il définit l'interface entre deux milieux ayant des propriétés différentes pour la propagation des ondes. L'approche optique présentée en premier lieu se retrouve dans tous les ouvrages universitaires traitant de la propagation des ondes aux interfaces [1 [The Feynman Lectures on Physics], 2 [Theory of Reflection of Electromagnetic and Particles Waves], 3 [X-ray and Neutron Reflectivity : Principles and Applications]]. L'approche quantique plus appréciée des neutroniciens est rarement enseignée et sera soigneusement développée en second [4 [Neutron Optics, An introduction to the theory of Neutron Optical Phenomena and Their Applications], 5 [Theory of Neutron Scattering from Condensed Matter], 6 [Mécanique Quantique], 7 [Quantum mechanics]]. Le phénomène de réflexion totale est discuté ensuite à partir de ces deux formalismes et suivant une présentation originale.

a) Rappel des concepts de la théorie de la propagation des ondes établie par Maxwell

i Notions élémentaires sur la propagation d'une onde à la rencontre d'un dioptre

Une onde électromagnétique, monochromatique, plane, infinie et homogène se propage dans un milieu matériel homogène et isotrope dit incident (d'indice I). Elle tombe sur un dioptre plan infini constituant la séparation avec un milieu noté T où la vitesse de propagation de l'onde est différente.

La vitesse de propagation dans chacun de ces milieux est une constante optique du matériau et le caractérise suffisamment pour le problème posé. Dans un matériau indicé I , cette vitesse de phase, v_{ℓ}^{φ} , est égale au rapport de la pulsation de l'onde ω_{ℓ} et du module du vecteur de propagation k_{ℓ} .

Notons que lorsque l'on sort de cette approche optique pour traiter non plus le cas de la lumière mais des neutrons la vitesse \mathbf{v} des particules avec masse est différente de cette vitesse de phase.

Pour la lumière, il est possible d'obtenir des faisceaux ayant une résolution spectrale presque parfaite (*tels les LASERS*) ce qui n'est pas le cas des faisceaux de neutrons. Pour les neutrons, la notion de paquet d'onde (Superposition d'ondes monochromatiques de fréquences légèrement différentes) est utilisée et il faut alors définir leur vitesse de groupe v_{ℓ}^g qui est la quantité accessible expérimentalement.

Définition

Les premiers membres des équations suivantes définissent ces deux vitesses qui sont estimées respectivement à partir des relations de De Broglie et à partir de l'équation de la vitesse pour les neutrons introduite :

$$v_l^\varphi = \frac{w_l}{k_l} = \frac{C^2}{v} \quad \text{et} \quad v_l^g = \frac{dw_l}{dk_l} = v$$

L'indice de réfraction absolu n_ℓ par le rapport des vitesses de phase de l'onde dans le matériau ℓ notée v_ℓ^φ et dans le vide notée C . Cet indice optique propre à la radiation monochromatique considérée vaut:

$$n_l = \frac{C}{v_l^\varphi} \quad \text{ainsi} \quad n_0 = 1$$

En comparant cette expression à celle de la vitesse de propagation d'une onde plane qui suit, on définit la relation entre l'indice et les permittivités:

$$v_l^\varphi = \frac{C}{\sqrt{\varepsilon_{r,l} \mu_{r,l}}}$$

où $\varepsilon_{r,\ell}$ et $\mu_{r,\ell}$ correspondent aux perméabilités électriques et magnétiques relatives au vide, ainsi $\varepsilon_{r,\ell} = \varepsilon_\ell / \varepsilon_0$ et $\mu_{r,\ell} = \mu_\ell / \mu_0$ où $\varepsilon_0 = 1/(C^2 \mu_0) = 8,854$ en $(C^2 J^{-1} m^{-1})$ et $\mu_0 = 4\pi * 10^{-7}$ en $(J s^2 C^{-2} m^{-1})$ sont propres au vide et ε_ℓ et μ_ℓ au matériau ℓ et appelées permittivités absolues. Leur unité est le $F.m^{-1}$. Pour simplifier l'écriture nous ne précisons plus l'indice r dans la suite. Ainsi nous lions l'indice optique à ces constantes du matériau:

$$n_l = \sqrt{\varepsilon_{r,l} \mu_{r,l}}$$

Définition

On introduit aussi l'indice relatif n_{IT} du dioptre entre les deux milieux considérés et propre à une propagation allant du milieu I (*incident*) vers le milieu T (*transmis*). Il est égal au rapport des indices optiques absolus:

$$n_{IT} = \frac{n_T}{n_I} = \frac{v_I^\varphi}{v_T^\varphi} = \frac{k_T}{k_I} = \frac{\lambda_I}{\lambda_T} = \frac{\sqrt{\varepsilon_T \mu_T}}{\sqrt{\varepsilon_I \mu_I}} \quad \text{ainsi} \quad n_I = n_{0I}$$

Pour les neutrons ayant une vitesse dans le vide v_0^g , nous obtenons:

$$n_l = \frac{v_l^g}{v_0^g} \quad \text{et} \quad n_{IT} = \frac{v_T^g}{v_I^g} = \frac{k_T}{k_I} = \frac{\lambda_I}{\lambda_T}$$

ii Utilisation des équations de Maxwell pour la continuité des champs au passage d'un dioptré

Rappel

Rappelons les équations de Maxwell vérifiées par une onde dans un milieu matériel diélectrique parfait (c'est-à-dire de densités volumiques permanentes de charge $\rho_{charges}$ et de courant j nulles) homogène et isotrope (soit de permittivité diélectrique ε et magnétique μ constantes).

Intrinsèques :		Conservation Flux Magnétique :	$\%div(\vec{B})=0$
		Maxwell-Faraday (MF) :	$r\vec{o}t(\vec{E})=-\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$
Dépendent du milieu : (ε, μ, j)		Maxwell-Gauss (MG) :	$\%div(\vec{D})=\rho_{charges}$
		Maxwell-Ampère (MA) :	$r\vec{o}t(\vec{H})=\vec{j}+\frac{\partial \vec{D}}{\partial t}$

Lorsqu'une onde se propage dans un milieu I et atteint un dioptré le séparant du milieu T , il apparaît une onde dans celui-ci. Les équations liant les champs de ces deux ondes sont dites **équations de continuité** et sont dérivées des équations de Maxwell. Elles s'appliquent au cas général d'une **polarisation quelconque** de l'onde électromagnétique incidente où les champs \vec{E} et \vec{B} ont simplement caractérisés par une composante normale (selon le vecteur unitaire perpendiculaire au dioptré \vec{e}_n) et une **composante tangentielle** au dioptré (selon le vecteur unitaire coplanaire à \vec{e}_t).

Complément

En premier lieu considérons les flux des deux membres des deux premières équations de Maxwell à travers la surface S_a délimitée par le contour rectangulaire C_a de la Figure 1.

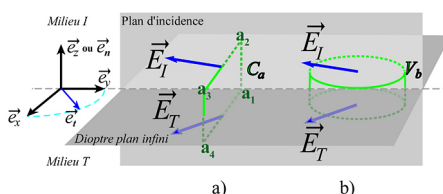


Figure 1 : Équations de continuité au dioptré plan

Nous introduisons le contour rectangulaire C_a qui délimite la surface S_a , et le volume cylindrique V_b de surface S_b , tous deux sont impliqués dans la démonstration des équations de continuité du champ électromagnétique à la surface de séparation des deux milieux indicés I et T . La hauteur des deux constructions est infiniment petite par rapport aux dimensions de leur bases, parallèles et de part et d'autre du dioptré.

L'équation de Maxwell-Faraday conduit à : $\int \int_{S_a} r\vec{o}t(\vec{E}) \cdot d\vec{S} = - \int \int_{S_a} \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \cdot d\vec{S}$

Selon la formule de Stokes appliquée au premier membre et puisque la dérivée de la fonction

continue B l'est aussi, cette relation devient : $\int_{C_a} \vec{E} \cdot d\vec{l} = - \frac{d}{dt} \int \int_{S_a} \vec{B} \cdot d\vec{S}$

Le premier terme s'obtient en considérant uniquement les composantes tangentielles de \vec{E} dont les circulations sur $a_1\bar{a}_2$ et $a_3\bar{a}_4$ sont nulles et constantes sur $a_2\bar{a}_3$ et $a_4\bar{a}_1$.

- Le flux de \vec{B} étant infiniment petit comparé à $a_2\bar{a}_3$ l'on obtient : $E_{t,I}a_2\bar{a}_3 + E_{t,T}a_4\bar{a}_1$. Cette relation est valable pour tout ce plan : $E_{t,I} = E_{t,T}$.

- Donnons également la relation obtenue de façon analogue avec l'équation Maxwell-

$$\text{Ampère : } \text{rot}(\vec{B}) = \varepsilon\mu \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \Rightarrow \frac{B_{t,I}}{\mu_I} = \frac{B_{t,T}}{\mu_T}$$

La relation de Maxwell-Gauss $\text{div}(\vec{D}) = 0$ et la conservation du flux magnétique $\text{div}(\vec{B}) = 0$, sont utilisées avec le volume d'intégration cylindrique décrit sur figure. En utilisant le théorème d'Ostrogradski on arrive aux égalités suivantes :

$$\int \int \int_{V_b} \text{div}(\vec{D}) \cdot dV = \int \int_{S_b} \vec{D} \cdot d\vec{S} = 0$$

Seules les composantes normales au dioptre sont à considérer puisque le rapport des flux à travers les bases est infiniment grand devant celui à travers les surfaces latérales et D_y est constant.

Ainsi les flux de chaque base doivent s'annuler ce qui donne la relation suivante : $\varepsilon_I E_{n,I} = \varepsilon_T E_{n,T}$

Des considérations similaires appliquées à l'équation de Maxwell conduisent à la deuxième équation suivante : $E_{n,I} = B_{n,T}$

1 Lois de Snell-Descartes

Il n'est pas utile de spécifier la nature de l'onde tant est que celle-ci est scalaire, *i.e.* entièrement caractérisée par une seule variable (complexe ou réelle). A la traversée du dioptre, les ondes peuvent *a priori* subir un changement de phase mais celui-ci doit être le même en tous points infiniment proches et de part et d'autre de l'interface. En un point du dioptre ($z = 0$) cette variation de phase doit être la même pour les trois ondes I, R et T et l'on écrit :

$$d\varphi_I = -k_I \frac{\vec{k}_I}{\|\vec{k}_I\|} d(a_2 \vec{a}_1), \quad d\varphi_R = -k_R \frac{\vec{k}_R}{\|\vec{k}_R\|} d(a_2 \vec{a}_1) \quad \text{et} \quad d\varphi_T = -k_T \frac{\vec{k}_T}{\|\vec{k}_T\|} d(a_2 \vec{a}_1)$$

$$\text{où } k_I = k_0 n_I \quad \text{et} \quad k_T = k_0 n_T$$

En égalisant ces expressions on obtient les relations à vérifier en $z = 0$ quel que soit $d(a_2 \vec{a}_1)$:

$$\text{Pour la réflexion : } \left(\frac{\vec{k}_I}{\|\vec{k}_I\|} - \frac{\vec{k}_R}{\|\vec{k}_R\|} \right) = \vec{0}$$

$$\text{Pour la réfraction : } \left(n_I \frac{\vec{k}_I}{\|\vec{k}_I\|} - n_T \frac{\vec{k}_T}{\|\vec{k}_T\|} \right) d(a_2 \vec{a}_1) = 0$$

Rappel

- De la seconde égalité on obtient la **Première loi de la réfraction** : le rayon réfracté est dans le plan d'incidence,
- On en tire aussi la **Seconde loi de la réfraction** correspondant à l'égalité : $n_I \cos(\alpha_I) = n_T \cos(\alpha_T)$
où α_I et α_T correspondent respectivement aux angles entre \vec{k}_I et \vec{k}_T avec le dioptre.
- On obtient aussi la Première loi de la réflexion : le rayon réfléchi est dans le plan d'incidence ;

- Ainsi que la Seconde loi de la réflexion en réécrivant l'équation précédente au sein du seul milieu I et donc en considérant la réflexion comme une réfraction dans un milieu d'indice opposé. Elle s'énonce comme suit: les rayons incidents et réfléchis font des angles de droite égaux avec la normale au point d'incidence (\vec{e}_n). La direction de la réflexion α_R est alors dite spéculaire et correspond à un angle sortant égal à l'angle incident ($\alpha_R = \alpha_I$).

Nous verrons que du vide ($n_I = 1$) vers un matériau (n_T), la lumière transmise s'écarte toujours de la surface traversée puisque C est la vitesse limite (la matière est dite plus réfringente que le vide à la lumière ($n_T > n_I$)). Au contraire un faisceau de rayons-X se rapproche de la surface puisque les indices de réfraction aux rayons-X sont généralement voisins de 1 moins 10^{-6} (soit pratiquement 1). Le cas des neutrons est plus complexe puisque les deux situations sont possibles suivant les matériaux traversés ($n_T > n_I$ ou $n_T < n_I$).

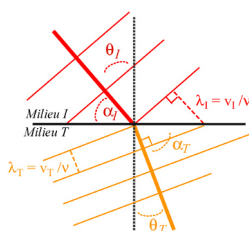


Figure 2 : Passage milieu I vers un matériau plus réfringent (milieu T) de la lumière visible

Complément

Les deux triangles rectangles représentés d'hypoténuse commune conduisent à la relation :

$$\left(\frac{\frac{v_T}{\nu}}{(\sin(\theta_T))} \right) = \left(\frac{\frac{v_I}{\nu}}{(\sin(\theta_I))} \right)$$

où ν est la fréquence de l'onde qui reste constante au cours de ce processus élastique (conservation de l'énergie totale). La vitesse v et la longueur d'onde λ vont par contre être différentes dans chaque milieu.

2 Equation d'Helmholtz pour l'onde plane harmonique

La propagation du champ électrique et magnétique d'une onde (I) dans un milieu quelconque est régie par l'**équation d'Helmholtz** obtenue par combinaison des équations de Maxwell. Dans le cas où $\vec{J} = \vec{0}$ et $\rho = 0$:

$$\Delta^2(\vec{E}_I) - \frac{\epsilon \mu}{C^2} \ddot{\vec{E}}_I + \vec{\nabla}(\ln(\mu_I)) \wedge (\vec{\nabla} \wedge \vec{E}_I) + \vec{\nabla}(\vec{E}_I \cdot \vec{\nabla}(\ln(\epsilon_I))) = 0$$

$$\Delta^2(\vec{H}_I) - \frac{\epsilon \mu}{C^2} \ddot{\vec{H}}_I + \vec{\nabla}(\ln(\epsilon_I)) \wedge (\vec{\nabla} \wedge \vec{H}_I) + \vec{\nabla}(\vec{H}_I \cdot \vec{\nabla}(\ln(\mu_I))) = 0$$

Pour un milieu à propriétés continues (dit homogène) tel que ϵ et μ sont de gradients nuls, l'équation d'Helmoltz se simplifie et on obtient :

$$\Delta(\vec{E}_I) + k_I^2 \vec{E}_I = \vec{0} \quad \text{aussi notée :} \quad \vec{\nabla} \wedge \vec{\nabla} \wedge \vec{E}_I - \left(\frac{n_I \omega_I}{C} \right)^2 \vec{E}_I = \vec{0}$$

$$\text{où } k_l = \frac{\omega_l}{C} = k_0 n_l, k_0 = \frac{2\pi}{\lambda_0}, n_l^2 = \varepsilon_l \mu_l, v_l = \frac{C}{\sqrt{\varepsilon_l \mu_l}}$$

et \ddot{E}_l étant la dérivée seconde du champ par rapport au temps.

Attention

En pratique on peut considérer un matériau comme étant homogène lorsque ses caractéristiques affectant l'onde le parcourant (ε_l et μ_l) varient très peu sur des longueurs de l'ordre de la longueur d'onde λ_0 et peuvent être considérées comme constantes à l'échelle macroscopique. Homogène n'implique pas isotrope.

Lorsque l'onde est sinusoïdale elle vérifie :

$$\frac{1}{C^2} \ddot{E} \equiv \frac{1}{C^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = -\frac{\omega^2}{C^2} \vec{E} = -k_0^2 \vec{E}$$

$$\text{et } \Delta(\vec{E}_l) + k_l^2 \vec{E}_l = \vec{0}$$

Les champs électriques (grandeur vectorielle) solutions de l'équation différentielle s'écrivent :

$$\vec{E}_l = A_l e^{i(\omega t - \vec{k}_l \vec{r})} \vec{e}_l$$

Ici $l = I, R$ et T dénotent les champs incidents, réfléchi et transmis.

Remarque

Notons que la séparation en trois ondes utilisée pour décrire ce phénomène est artificielle puisqu'elle ne correspond pas à une réalité physique. C'est en quelque sorte une représentation commode pour le calcul du champ électromagnétique dans le milieu I qui s'obtient par interférence (sommation en amplitude) des ondes I et R situées dans le milieu d'incidence.

Nous allons maintenant détailler le sens des différentes grandeurs utiles (représentées dans le plan complexe sur la figure suivante). Tout d'abord nous rappelons que selon un processus élastique la dépendance temporelle est connue et définie par la pulsation ω de l'onde qui est conservée ($\omega = 2\pi\nu$). Pour simplifier l'écriture, on peut éliminer cette dépendance en définissant l'amplitude complexe $E_l = A_l e^{i\varphi_l}$ (appelée "phasor" par les anglophones). Ici A_l est l'amplitude réelle et φ_l est la phase indépendante du temps qui est incluse dans le facteur de phase. $f = e^{i\varphi_l}$. La dépendance temporelle de l'onde se restaure simplement quand on en a besoin selon $E_{l,t} = \Re(E_l e^{+i(\omega t)}) = A_l \cos(\omega t + i\varphi_l)$, où \Re désigne la partie réelle.

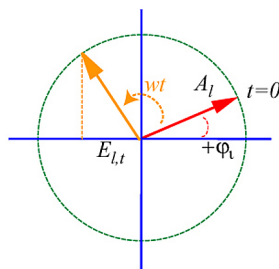


Figure 3 : Illustration de la phase d'une onde progressive représentée par un nombre complexe

Complément

La quantité E_I est représentée dans le plan complexe par un vecteur de longueur A_I tournant dans le sens des aiguilles d'une montre autour de l'origine à la vitesse angulaire ω (aussi notée ω) à partir d'une origine définie pour $t = 0$ à laquelle ce vecteur forme l'angle.

Etudions le cas d'une onde plane polarisée linéairement dont le champ électrique est perpendiculaire au plan d'incidence (polarisation dite "**TE**" pour **Transverse Electrique**, notée " s " ou " \perp "). Une seconde polarisation souvent étudiée correspond à l'onde dont le champ magnétique est perpendiculaire au plan d'incidence (polarisation dite "**TM**" pour **Transverse Magnétique**, notée " p " ou " \parallel ").

Remarque

Notons qu'on peut toujours décomposer en une combinaison linéaire de ces deux polarisations (s et p) une onde polarisée de façon quelconque (voir figure 4).

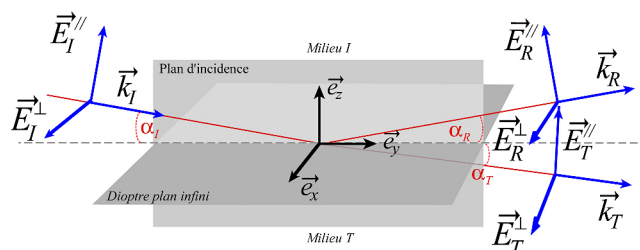


Figure 4 :

Figure 4 : Représentation des axes selon lesquels on décompose le champ électrique d'une onde de polarisation quelconque tombant sur le dioptre plan ($z = 0$) qui sépare les deux milieux semi-infinis d'indices n_I et n_T . Les vecteurs \vec{e}_x, \vec{e}_y et \vec{e}_z définissent un trièdre direct orthonormé. Le plan dit d'incidence est soutenu par \vec{e}_y et \vec{e}_z .

Aussi, il est possible de transposer au cas de la polarisation " p " tous les résultats que nous allons obtenir pour une polarisation " s " en raison des symétries respectées par les équations de Maxwell et qui conduisent aux substitutions suivantes :

$$\begin{aligned} s &\Rightarrow p \quad \text{avec} \quad E \Rightarrow H \quad \text{et} \quad \varepsilon \Rightarrow \mu \\ p &\Rightarrow s \quad \text{avec} \quad -H \Rightarrow E \quad \text{et} \quad \mu \Rightarrow \varepsilon \end{aligned}$$

iii Coefficients de Fresnel en amplitude, réflectance r et transmittance t

1 Onde polarisée TE

L'onde incidente "**TE**" pour **Transverse Electrique** (polarisée " s ") est prise selon \vec{e}_x . Les variations de son champ électrique vectoriel sont :

$$\vec{E}_I(\vec{r}, t) = E_{x,I}(\vec{r}, t) \vec{e}_x = A_I \cos(\omega t - \vec{k}_I \vec{r}) \vec{e}_x \quad \text{avec} \quad \begin{aligned} \vec{e}_x \vec{e}_x &= 1 \\ \vec{e}_x \vec{k}_I &= 0 \end{aligned}$$

De cette expression on peut identifier une famille de plans orthogonaux à la direction \vec{k}_I constituant les lieux où le champ électrique oscille en phase ($\vec{k}_I \vec{r}$ est constant). Deux de ces plans consécutifs sont séparés par la longueur d'onde λ . La vitesse de phase v_φ qui définit la propagation équiamplitude le long de \vec{k}_I s'obtient selon l'équation différentielle suivante où intervient la coordonnée s colinéaire à \vec{k}_I :

$$\frac{d}{dt}(\omega t - \frac{2\pi}{\lambda} s) = 0$$

Appliquons les relations générales que doit respecter cette onde à la traversée du dioptré représenté sur la figure ci-dessous. On choisit le référentiel tel que le vecteur de propagation de l'onde incidente ait uniquement deux composantes selon y et z : $\vec{k}_I = k_{y,I}\vec{e}_y + k_{z,I}\vec{e}_z$

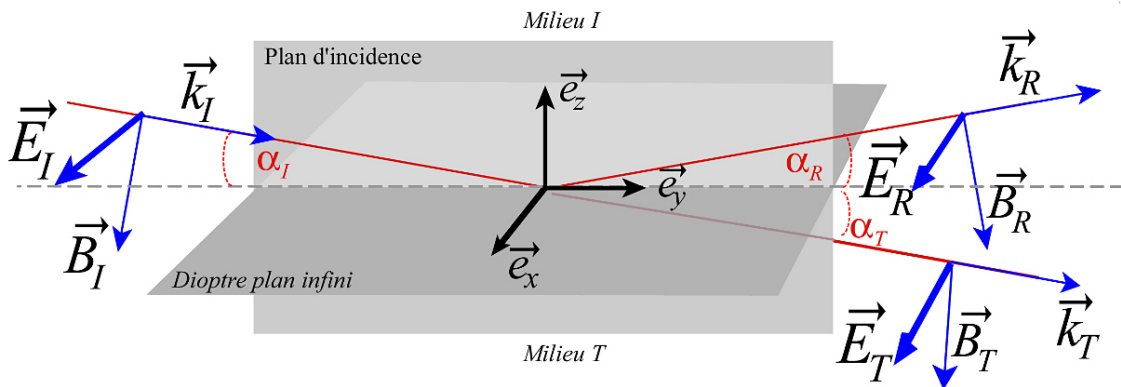


Figure 5 : Représentation du trièdre direct (k, E, B) pour l'onde TE (transverse électrique, polarisée "s")

Selon les premières lois de Descartes les vecteurs d'ondes appartiennent au plan d'incidence contenant la normale au dioptré. Les vecteurs de diffusion des ondes réfléchi et transmis s'écrivent donc : $\vec{k}_I = k_{y,I}\vec{e}_y + k_{z,I}\vec{e}_z$ avec $I = R$ ou T .

Selon la deuxième loi dite de Snell-Descartes la réflexion est purement spéculaire, c'est-à-dire à un angle sortant égal à l'angle incident ($\alpha_R = \alpha_I$). En considérant que ce processus est élastique $\|\vec{k}_R\| = \|\vec{k}_T\| = \|\vec{k}_I\| = n_I k_0$ et selon la conservation de la composante tangentielle des vecteurs d'onde $k_{x,R} = k_{x,T} = k_{x,I}$, nous obtenons :

$$\begin{aligned}\vec{k}_I &= k_0(\cos(\alpha_I)\vec{e}_y - \sin(\alpha_I)\vec{e}_z) \\ \vec{k}_R &= k_0(\cos(\alpha_I)\vec{e}_y + \sin(\alpha_I)\vec{e}_z)\end{aligned}$$

$$\vec{k}_T = n_{IT} k_0(\cos(\alpha_T)\vec{e}_y - \sin(\alpha_T)\vec{e}_z) \quad \text{où} \quad n_{IT} = \frac{n_T}{n_I}$$

La continuité de la composante du champ électrique tangentielle (au dioptré) s'écrit (selon Fresnel) :

$$(\vec{E}_I + \vec{E}_R) \cdot \vec{e}_x = \vec{E}_T \cdot \vec{e}_x \quad \text{soit} \quad (A_I + A_R)e^{i(\omega t - \vec{k}_I \vec{r})} = A_T e^{i(\omega t - \vec{k}_T \vec{r})}$$

Selon les expressions des vecteurs de diffusion, nous obtenons :

$$(A_I + A_R) e^{-i(y k_I \cos(\alpha_I))} = A_T e^{-i(y k_T \cos(\alpha_T))}$$

Cette relation étant satisfaite sur toute l'interface plane ($\forall x, y$ en $z = 0$), nous obtenons :

$$A_I + A_R = A_T \quad \text{et} \quad k_I \cos(\alpha_I) = k_T \cos(\alpha_T)$$

Cette dernière relation étant connue sous le nom de loi de Snell-Descartes. On devrait alors préciser pour un dioptre défini, qu'un angle de réfraction différent existe pour chaque angle d'incidence, soit $\alpha_T = f(\alpha_I)$.

La composante tangentielle du champ magnétique est aussi conservée à la traversée du dioptre et nous obtenons son expression selon la relation de Maxwell liant le champ magnétique au champ électrique :

$$\text{rot}(\vec{E}) = \frac{-\partial \vec{B}}{\partial t} = i \omega \vec{B}$$

Notons qu'une onde plane est dite transverse car les vecteurs \vec{E} ou \vec{B} sont dans le plan d'onde qui est perpendiculaire à la direction de propagation. Ces deux vecteurs sont aussi perpendiculaires entre eux et forment un trièdre trirectangle direct tel que pour notre cas :

$$\vec{B} = \frac{1}{v^\phi} \vec{k} \wedge \vec{E}$$

Par projection sur l'axe \vec{e}_y nous obtenons la composante tangentielle de \vec{B} égale à :

$$B_y = \vec{B} \cdot \vec{e}_y = \frac{\text{rot}(\vec{E}) \cdot \vec{e}_y}{i \omega} \quad \text{où} \quad \text{rot}(\vec{E}) = \frac{\partial E_x}{\partial z} \vec{e}_y - \frac{\partial E_x}{\partial y} \vec{e}_z \quad \text{soit} \quad B_y = \frac{1}{i \omega} \frac{\partial E}{\partial z}$$

Sa continuité au passage du dioptre s'écrit :

$$(\vec{B}_I + \vec{B}_R) \cdot \vec{e}_y = \vec{B}_T \cdot \vec{e}_y \quad \text{soit} \quad k_I (A_I - A_R) \sin(\alpha_I) = k_T A_T \sin(\alpha_T)$$

ce qui conduit à $(A_I - A_R) \sin(\alpha_I) = n_{IT} A_T \sin(\alpha_T)$

On obtient ainsi les équations de Fresnel en introduisant les coefficients de réflexion (r) et de transmission (t).

Remarque

Notons que ces coefficients sont en amplitude (nombres complexes) et qu'ils sont souvent nommés respectivement reflectance et transmittance.

L'équation se réécrit :

$$1 + r_\perp = t_\perp \quad \text{où} \quad r = \frac{A_R}{A_I} \quad \text{et} \quad t = \frac{A_T}{A_I}$$

qui devient :

$$1 - r_\perp = n_{IT} t_\perp \frac{\sin(\alpha_T)}{\sin(\alpha_I)}$$

En combinant les relations pour r et pour t , nous obtenons les relations de Fresnel (~1823) qui peuvent se simplifier en utilisant la relation de Snell-Descartes conduisant aux seconds membres ci-dessous :

Fondamental

$$r_{\perp} = \frac{n_I \sin(\alpha_I) - n_T \sin(\alpha_T)}{n_I \sin(\alpha_I) + n_T \sin(\alpha_T)} = \frac{\sin(\alpha_I - \alpha_T)}{\sin(\alpha_I + \alpha_T)}$$

$$\text{et } t_{\perp} = \frac{2n_I \sin(\alpha_I)}{n_I \sin(\alpha_I) + n_T \sin(\alpha_T)} = \frac{2 \sin(\alpha_I) \cos(\alpha_T)}{\sin(\alpha_I + \alpha_T)}$$

$$\text{et } t_{\parallel} = \frac{2n_I \sin(\alpha_I)}{n_I \sin(\alpha_I) + n_T \sin(\alpha_T)} = \frac{2 \sin(\alpha_I) \cos(\alpha_T)}{\sin(\alpha_I + \alpha_T)}$$

2 Onde polarisée TM

Le même raisonnement appliqué au cas d'une onde de champ électrique polarisé parallèlement au plan d'incidence (dite polarisée "P") conduit à :

Fondamental

$$r_{\parallel} = \frac{n_T \sin(\alpha_I) - n_I \sin(\alpha_T)}{n_T \sin(\alpha_I) + n_I \sin(\alpha_T)} = \frac{\tan(\alpha_I - \alpha_T)}{\tan(\alpha_I + \alpha_T)}$$

$$\text{et } t_{\parallel} = \frac{2n_I \sin(\alpha_I)}{n_T \sin(\alpha_I) + n_I \sin(\alpha_T)} = \frac{2 \sin(\alpha_I) \cos(\alpha_T)}{\sin(\alpha_I + \alpha_T) \cos(\alpha_I - \alpha_T)}$$

Attention

Expérimentalement, on mesure sur le détecteur ce qui est appelé communément l'intensité. Cette terminologie est exacte lorsque le faisceau mesuré arrive perpendiculaire à la surface de détection. Lorsque l'on introduit un angle entre cette surface et un faisceau, il serait plus exacte de parler d'éclairement.

Dans la théorie électromagnétique, cette grandeur correspond à l'intégration du vecteur flux d'énergie de l'onde \vec{S} sur la surface fermée de mesure de vecteur unité définissant sa normale \vec{n} . Donnons l'expression de l'intensité générale (\vec{n} et \vec{S} sont colinéaires) et son expression développée au cas particulier des ondes planes :

et pour une onde plane :

$$\vec{S} = \frac{C}{4\pi} (\vec{E} \wedge \vec{B})$$

$$\vec{S} = \frac{C}{4\pi} (E B \vec{s}) = \frac{C}{4\pi} (E^2 \sqrt{\frac{\epsilon}{\mu}} \vec{s}) \quad \text{où} \quad \vec{s} = \frac{\vec{k}}{\|\vec{k}\|}$$

Pour un diélectrique parfait ($\mu = 1$), le module de ce vecteur vaut $\frac{CnE^2}{4\pi}$ et correspond à l'intensité lumineuse en $\text{J.s}^{-1}.\text{m}^{-2}$ se propageant suivant \vec{k} . Pour le problème que nous traitons, estimons la quantité d'énergie au dioptre par unité de surface et de temps qui est notée J . C'est un éclairement qui a l'unité d'une intensité et qui correspond au flux par surface commune aux trois faisceaux considérés dans cette approche (I , R et T).

$$J_I = S_I \sin(\alpha_I) = \frac{n_I C}{4\pi} |A_I|^2 \sin(\alpha_I)$$

$$J_R = S_R \sin(\alpha_I) = \frac{n_I C}{4\pi} |A_R|^2 \sin(\alpha_I)$$

$$J_T = S_T \sin(\alpha_I) = \frac{n_I C}{4\pi} |A_T|^2 \sin(\alpha_I)$$

Les quantités auxquelles nous nous intéressons étant ainsi complètement définies :

Fondamental

$$R = \frac{J_R}{J_I} = \frac{|A_R|^2}{|A_I|^2} = r \tilde{r}$$

$$T = \frac{J_T}{J_I} = \frac{n_T \sin(\alpha_T) |A_T|^2}{n_I \sin(\alpha_I) |A_I|^2} = \frac{n_T \sin(\alpha_T)}{n_I \sin(\alpha_I)} t \tilde{t} = \frac{k_{z,T}}{k_{z,I}} t \tilde{t} = n_{z,IT} t \tilde{t}$$

Remarque

Le pré-facteur de $t\tilde{t}$ (où le conjugué complexe de t est noté t^* ou \tilde{t}) est $n_{z,IT}$ et provient du fait que si les flux incidents et réfléchis ont la même section (perpendiculaire à la propagation), le flux transmis lui ne s'étale pas sur la même section. On peut vérifier la relation de conservation de l'énergie pour les deux polarisations définies :

$$R + T = 1$$

iv Théorie quantique pour la réflectivité des neutrons

La dualité onde-corpuscule des rayonnements électromagnétiques se matérialise du point de vue mathématique par la ressemblance entre l'équation d'Helmholtz régissant la propagation de la lumière et **l'équation stationnaire de Schrödinger propre aux particules massives** telles que les neutrons. En reprenant le formalisme des ouvrages de référence de la mécanique quantique [4 [Neutron Optics, An introduction to the theory of Neutron Optical Phenomena and Their Applications], 5 [Theory of Neutron Scattering from Condensed Matter], 6 [Mécanique Quantique], 7 [Quantum mechanics]] nous allons traiter du cas étudié au paragraphe précédent selon la théorie classique ondulatoire et établir les connections entre les expressions trouvées selon ces deux approches.

Nous chercherons donc l'expression de la fonction d'onde indépendante du temps propre à la particule soumise au potentiel $V(r)$. La solution la plus générale de l'équation de Schrödinger est :

$$\Psi(\vec{r}, t) = \Psi(\vec{r}) e^{\frac{-iEt}{\hbar}}$$

Nous traitons de la diffusion élastique (sans changement d'énergie) des neutrons au cours d'un phénomène stationnaire (indépendant du temps). Nous allons déterminer $\Psi(\vec{r})$, la **fonction d'onde cohérente stationnaire de la particule quantique non relativiste** utilisée pour tous les phénomènes de l'optique neutronique. Elle est solution de l'équation de Schrödinger dite à un corps aux valeurs propres indépendantes du temps :

$$\left(\frac{-\hbar}{2m}\Delta + V(r)\right)\Psi(\vec{r}) = E\Psi(\vec{r}) \Rightarrow \nabla^2(\Psi(\vec{r})) + \frac{2m}{\hbar^2}(E - V(r))\Psi(\vec{r}) = 0$$

Dans le vide (pris comme milieu d'incidence I), l'énergie de la particule E_0 est purement cinétique. Le module du **vecteur d'onde** s'exprime selon cette énergie :

$$k_0 = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E_0)} = \frac{2\pi}{\lambda_0}$$

Dans un matériau (noté T), l'énergie (E_T) est la somme de l'énergie cinétique de la particule (T_T) et de l'énergie potentielle (V_T) mesurant son énergie d'interaction avec la matière. Le module du vecteur d'onde vaut :

$$k_T = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E_T - V_T)}$$

Suivant la conservation d'énergie associée à la rencontre d'un dioptré, nous obtenons :

$$E_0 = \frac{(\hbar k_0)^2}{2m} = \frac{(\hbar k_T)^2}{2m} + V_T$$

Fondamental

Selon le formalisme optique, le rapport des modules des vecteurs de diffusion est l'indice de réfraction du matériau T par rapport au vide. Il s'en suit l'expression de ce rapport et les égalités le liant aux grandeurs utilisées dans le formalisme quantique :

$$n_T = n_{0T} = \frac{n_T}{n_0} = \frac{k_T}{k_0} = \sqrt{1 - \frac{V_T}{E_0}} = \sqrt{1 - \frac{4\pi}{k_0^2}(\rho b)_T} = \sqrt{1 - \frac{\lambda_0^2}{\pi}(\rho b)_T}$$

Le produit $(\rho b)_T$ est la densité de longueur de diffusion du matériau T (d'unité inverse à une surface et souvent donnée en $[\text{Å}^{-2}]$). En optique, la vitesse de propagation d'un rayonnement dans un matériau I se traduit en terme d'indice optique du milieu (n_I) ce qui revient à comparer cette vitesse à celle qu'aurait l'onde dans le vide.

Remarque

A cette grandeur caractéristique, la communauté des rayons-X et des neutrons préfère la densité de longueur de diffusion dont l'expression ne dépend pas directement de la longueur d'onde bien qu'elle soit aussi propre à certaines gammes d'énergie du rayonnement.

Ces deux grandeurs sont liées par la relation ci-dessus ainsi qu'avec l'angle critique mesuré depuis le vide suivant la relation que nous introduirons ultérieurement.

On peut aussi introduire dans l'expression le potentiel de diffusion du matériau T défini par :

$$F_T = \frac{k_0^2}{4\pi} (n_T^2 - 1) = -(\rho b)_T$$

Pour les neutrons le potentiel V_T s'obtient en intégrant le **pseudo-potentiel de Fermi** sur le volume du matériau T considéré. Dans la gamme d'énergie utilisée, ce potentiel permet de quantifier l'interaction neutron-noyau lié :

$$F^{Fermi}(r) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} b_{noyau} \delta(r)$$

Notons que le potentiel V_T est pour cet exemple considéré comme constant dans le matériau V supposé donc homogène. Après intégration sur le volume du milieu T , on obtient le potentiel macroscopique :

$$V_T = \frac{1}{Vol} \int_{Vol} V^{Fermi}(r) dr = \frac{2\pi\hbar^2}{m} (\rho b)_T$$

Le dioptre plan sur lequel a lieu la réflexion sépare deux milieux semi-infinis de potentiels constants. On définit :

$$V = V(z) = \begin{cases} V_I & \text{pour } z > 0 \\ V_T & \text{pour } z < 0 \end{cases}$$

En introduisant l'indice de réfraction dans l'expression, on obtient :

$$\nabla^2(\Psi(\vec{r})) + n^2(\vec{r})k^2(\vec{r})\Psi(\vec{r}) = 0$$

La solution générale de cette équation s'exprime comme une superposition d'ondes planes :

$$\Psi(\vec{r}) = \sum_i A_i e^{-i\vec{k}_i \vec{r}}$$

A une dimension, L'équation devient :

$$\frac{\partial^2}{\partial z^2}(\Psi(z)) + k_0^2(n^2(z) - \cos^2(\alpha_I))\Psi(z) = 0$$

où α_I correspond est l'angle d'incidence de l'onde sur le dioptre. Cette expression est nommée équation de la réflectivité et ses solutions (ondes planes) sont alors du type :

$$\Psi(r) = \begin{cases} \Psi_I + \Psi_R & \text{pour } z > 0 \\ \Psi_T & \text{pour } z < 0 \end{cases}$$

$$\text{où : pour } z > 0 : \begin{cases} \Psi_I = A_I e^{-i\vec{k}_I \vec{r}} \\ \Psi_R = A_R e^{-i\vec{k}_R \vec{r}} \end{cases} \quad \text{et pour } z < 0 : \Psi_T = A_T e^{-i\vec{k}_T \vec{r}}$$

La continuité de cette fonction d'onde et de sa dérivée à la rencontre du dioptre conduisent à :

$$\begin{aligned} A_I e^{-i\vec{k}_I \vec{r}} + A_R e^{-i\vec{k}_R \vec{r}} &= A_T e^{-i\vec{k}_T \vec{r}} \\ \vec{k}_I A_I e^{-i\vec{k}_I \vec{r}} + \vec{k}_R A_R e^{-i\vec{k}_R \vec{r}} &= \vec{k}_T A_T e^{-i\vec{k}_T \vec{r}} \end{aligned}$$

Fondamental

nous retrouvons les coefficients dits "de Fresnel" propres au passage du matériau I vers le matériau T :

$$r_{IT} = \frac{A_R}{A_I} = \frac{k_{z,I} - k_{z,T}}{k_{z,I} + k_{z,T}} = \frac{Q_I - Q_T}{Q_I + Q_T}$$

$$\text{et } t_{IT} = \frac{A_T}{A_I} = \frac{2k_{z,I}}{k_{z,I} + k_{z,T}} = \frac{2Q_I}{Q_I + Q_T}$$

où les modules des vecteurs de diffusion Q sont le double des modules des vecteur d'onde k .

Remarque

La théorie quantique nous conduit naturellement à une quantité scalaire du coefficient de réflexion r_{IT} . Si nous comparons ce coefficient à celui obtenu au paragraphe précédent dans le cadre de la théorie optique, on s'aperçoit qu'il correspond au coefficient de réflexion r_{\perp} . Ceci explique l'analogie souvent faite entre ces deux quantités.

Il est admis qu'on peut négliger les différences entre r_{\perp} et $r_{//}$ lorsque la réflexion se fait aux faibles angles d'incidence pour un rayonnement non polarisé.

Ce sont les conditions habituelles de travail avec les faisceaux X utilisés pour caractériser des couches minces. Dans ces conditions, il nous semble qu'il serait plus correct de calculer les différents coefficients de réflexion correspondant aux polarisations du faisceau. En quelque sorte, nous considérons un faisceau non polarisé comme un faisceau contenant toutes les polarisations et donc comme un ensemble d'ondes qui se réfléchiront différemment sur le dioptre considéré. Nous n'avons pas effectué ce calcul pour lequel il faut considérer les interférences entre toutes ces ondes de façon à obtenir un coefficient effectif de réflexion pour le faisceau.

La quantité accessible étant le flux de particules, nous appliquons l'opérateur densité de courant de particules aux fonctions d'onde :

$$J_I = \frac{-i\hbar}{2m} \left[\tilde{\Psi} \frac{\partial}{\partial z} \Psi - \Psi \frac{\partial}{\partial z} \tilde{\Psi} \right]$$

Pour l'onde incidente :

$$\Psi_I = A_I e^{-i\vec{k}_I \vec{r}}, \quad \tilde{\Psi}_I = \tilde{A}_I e^{+i\vec{k}_I \vec{r}}, \quad \nabla(\Psi_I) = -i\vec{k}_I A_I e^{-i\vec{k}_I \vec{r}} \quad \text{et} \quad \nabla(\tilde{\Psi}_I) = -i\vec{k}_I \tilde{A}_I e^{+i\vec{k}_I \vec{r}}$$

$$\text{soit } J_I = \frac{-i\hbar}{2m} [i 2 A_I \tilde{A}_I \vec{k}_I] = \frac{\hbar \vec{k}_I}{m} |A_I|^2 = \frac{\vec{p}_I}{m} |A_I|^2 = \vec{v}_I |A_I|^2$$

Pour l'onde réfléchi :

$$\text{soit } J_R = \frac{-i\hbar}{2m} \left[i 2 A_R \tilde{A}_R \vec{k}_R \right] = \frac{\hbar \vec{k}_R}{m} |A_R|^2 = \frac{\vec{p}_R}{m} |A_R|^2 = \vec{v}_R |A_R|^2 = \vec{v}_R r \tilde{r} |A_I|^2$$

Et pour l'onde transmise: Considérons que le vecteur \vec{k}_T peut avoir des composantes complexes (ce cas est discuté plus loin en introduisant l'absorption du rayonnement dans le matériau). On pose \vec{k}_T en définissant les notations :

$$\Re(\vec{k}_T) = \Re(k_{y,T}) \vec{e}_y + \Re(k_{z,T}) \vec{e}_z \quad \text{et} \quad \Im(\vec{k}_T) = \Im(k_{y,T}) \vec{e}_y + \Im(k_{z,T}) \vec{e}_z$$

Nous obtenons :

$$\Psi_T = A_T e^{-i(\Re(\vec{k}_T) + i\Im(\vec{k}_T))\vec{r}} ; \quad \tilde{\Psi}_T = \tilde{A}_T e^{(\Im(\vec{k}_T) + i\Re(\vec{k}_T))\vec{r}}$$

$$\nabla_z(\Psi_T) = A_T (\Im(k_{z,T}) - i\Re(k_{z,T})) e^{(\Im(\vec{k}_T) - i\Re(\vec{k}_T))\vec{r}}$$

$$\text{et } \nabla_z(\tilde{\Psi}_T) = \tilde{A}_T (\Im(k_{z,T}) + i\Re(k_{z,T})) e^{(\Im(\vec{k}_T) + i\Re(\vec{k}_T))\vec{r}}$$

$$\text{soit } J_T = \frac{-i\hbar}{2m} \left[-i 2 |A_T|^2 \Re(k_{z,T}) e^{2\Im(\vec{k}_T)\vec{r}} \right] = \frac{-\hbar}{m} (t \tilde{t}) |A_I|^2 \Re(k_{z,T}) e^{2\Im(\vec{k}_T)\vec{r}}$$

On en retiendra les flux suivants, pour le faisceau incident, réfléchi et transmis, respectivement :

$$\vec{J}_I = \frac{\hbar \vec{k}_I}{m} |A_I|^2 ; \quad \vec{J}_R = \frac{\hbar \vec{k}_R}{m} (r \tilde{r}) |A_I|^2 \quad \text{et} \quad \vec{J}_T = \frac{-\hbar \Re(k_{z,T})}{m} \frac{\vec{k}_T}{\|\vec{k}_T\|} (t \tilde{t}) |A_I|^2 e^{2\Im(\vec{k}_T)\vec{r}}$$

et la réflectivité et la transmission, selon les rapports :

Fondamental

$$\left\{ \begin{array}{l} R = \frac{|\vec{J}_R|}{|\vec{J}_I|} = r \tilde{r} = \left| \frac{k_{z,I} - k_{z,T}}{k_{z,I} + k_{z,T}} \right|^2 \\ T = \frac{|\vec{J}_T|}{|\vec{J}_I|} = \frac{\Re(k_{z,T})}{k_I} (t \tilde{t}) e^{2\Im(\vec{k}_T)\vec{r}} = \frac{\Re(k_{z,T})}{k_I} \left| \frac{2k_{z,I}}{k_{z,I} + k_{z,T}} \right|^2 e^{2\Im(\vec{k}_T)\vec{r}} \quad k_{x,T} = k_{x,I} \end{array} \right.$$

Ainsi on retrouve $R + T = 1$ lorsque $\Im(\vec{k}_T) = \vec{0}$ (on note souvent : $\Im(k_T) = -\beta \text{Im}(\vec{k}_T) \equiv -\beta$). Quand ce n'est pas le cas, l'exponentielle introduit une décroissance liée à l'absorption de l'onde dans le milieu T . Ce cas est discuté dans la suite.

v Réflexion totale sous l'angle critique

1 Cas d'un milieu non absorbant

Définition

Dans un premier temps considérons que l'indice de réfraction n_{IT} est un réel pur. Selon le formalisme optique, la **réflexion totale** ($R = 1$) a lieu lorsque l'angle incident α_I est inférieur à une valeur critique noté $\alpha_I^{(c,IT)}$ ou $\alpha_I^{(c)}$ et correspondant à l'établissement d'une onde réfractée tangentielllement à l'interface α_T . La valeur de cet angle critique (propre au passage du matériau I vers le matériau T), peut être obtenue par la relation de Snell-Descartes :

$$\cos(\alpha_I^{(c,IT)}) = \frac{n_T}{n_I} = n_{IT}$$

On peut donc distinguer les deux situations suivantes : $n_I < n_T$ et $n_I > n_T$. Le premier cas peut être illustré par le passage d'une onde lumineuse de l'air ($n_I = 1$) à l'eau ($n_T = 1,33$) et qui ne peut jamais être totalement réfléchi. Le second cas s'obtient lorsque la propagation se fait de l'eau vers l'air, la **réflexion totale** a lieu sur une vaste gamme angulaire allant de 0 à $\alpha_I^{(c,IT)} = \arccos(1/1,33) = 49,51$.

Considérons maintenant ce que signifie la réflexion totale dans le cadre du formalisme quantique. Mathématiquement, elle s'obtient lorsque $Q^2 \leq 0$, soit quand $k^2(n^2 - \cos^2(\alpha_I)) \leq 0$. Cette inégalité est respectée quand l'énergie cinétique des particules a une composante perpendiculaire à l'interface ($E \sin^2(\alpha_I)$) inférieure à la barrière de potentiel V_T . Dans ce cas les particules ne peuvent plus pénétrer le matériau et sont réfléchies. Ce n'est possible que lorsque la vitesse de groupe des particules devrait diminuer si celles-ci passaient dans le matériau T (ce milieu est qualifié de moins réfringent que le matériau I ($n_T < n_I$)). La réflexion totale dans le milieu incident ne peut donc avoir lieu qu'à l'interface avec un matériau de densité de longueur de diffusion $(\rho b)_T$ supérieure (soit d'indice plus faible).

Remarque

L'**angle critique** d'un dioptré est une constante. Elle peut se lier aux indices optiques ou aux densités de longueur de diffusion qui se calculent simplement pour un matériau.

Il est utile d'introduire ces constantes dans l'expression du module du vecteur d'onde dans le matériau T qui est une fonction du vecteur d'onde dans le milieu I . Nous avons :

$$\begin{cases} k_I^2 = (k_{z,I})^2 + (k_{x,I})^2 = n_I^2 k_0^2 \\ k_T^2 = (k_{z,T})^2 + (k_{x,T})^2 = n_T^2 k_0^2 \\ k_{x,T} = k_{x,I} \end{cases}$$

Ces équations donnent :

$$(k_{z,T})^2 - (k_{z,I})^2 = (n_T^2 - n_I^2) k_0^2$$

Il sera aussi utile d'introduire le rapport des composantes perpendiculaires :

$$n_{z,IT} = \frac{k_{z,T}}{k_{z,I}}$$

qui conduit à de nouvelles expressions des coefficients de Fresnel :

$$\begin{cases} r = \frac{A_R}{A_I} = \frac{k_{z,I} - k_{z,T}}{k_{z,I} + k_{z,T}} = \left(\frac{1 - n_{z,IT}}{1 + n_{z,IT}} \right) \\ t = \frac{A_T}{A_I} = \frac{2k_{z,I}}{k_{z,I} + k_{z,T}} = \left(\frac{2}{1 + n_{z,IT}} \right) \end{cases} \quad \text{où : } n_{z,IT} = \left(\frac{A_I - A_R}{A_T} \right)$$

A l'angle critique, on a par définition :

$$\begin{cases} \text{Quand } \alpha_I = \alpha_I^{(c)} \\ k_{z,I}(\alpha_I) = k_{z,IT}^{(c)} \\ k_{z,T}(\alpha_I) = 0 \end{cases}$$

Reportant cette expression dans celle vue juste avant, on obtient :

$$\left(k_{z,IT}^{(c)} \right)^2 = (n_I^2 - n_T^2) k_0^2$$

Suivant l'expression liant les indices optiques aux densités de longueur de diffusion des matériaux et sans autre approximation que celles propres à la définition du potentiel de Fermi, nous réécrivons l'expression :

$$\left(k_{z,IT}^{(c)} \right)^2 = 4\pi \left((\rho b)_T - (\rho b)_I \right)$$

Cette quantité indépendante des angles, est propre à l'interface entre les matériaux I et T et est attachée au milieu I où a lieu la réflexion. Il est pratique d'exprimer la composante normale du vecteur de diffusion dans le matériau T selon cette constante et sa valeur dans le matériau I . L'équation devient :

$$\left(k_{z,T} \right)^2 = \left(k_{z,I} \right)^2 - \left(k_{z,IT}^{(c)} \right)^2$$

Si l'on veut bien comprendre la nature des deux régimes de réflectivité délimités par $k_{z,IT}^{(c)}$, il est nécessaire d'introduire cette constante dans l'expression du coefficient de réflectivité complexe. On formule l'équation différemment en y introduisant $k_{z,I}^{(c)}$ donné par :

$$\begin{cases} r_{IT} = \left(\frac{1 - n_{z,IT}}{1 + n_{z,IT}} \right) \\ n_{z,IT} = \frac{k_{z,T}}{k_{z,I}} = \sqrt{1 - \left(\frac{k_{z,IT}^{(c)}}{k_{z,I}} \right)^2} \end{cases}$$

Remarque

- Lorsque l'angle d'incidence est suffisamment grand pour avoir $k_{z,I} > k_{z,IT}^{(c)}$, le coefficient de Fresnel de l'interface est réel puisque $n_{z,IT}$ est un réel compris entre 0 et 1. La

réflectivité (soit l'intensité réfléchie) décroît suivant une loi en $k_{z,I}^{(c)}$ (Cette loi est analogue à une loi de Porod en diffusion aux petits angles).

- A des angles d'incidence plus faibles tels que $k_{z,I} < k_{z,IT}^{(c)}$, devient un imaginaire pur. En utilisant les notations classiques associées aux nombres complexes et les conventions de signes propres aux phases, on réécrit r_{IT} en posant :

$$n_{z,IT} = -i \Im(n_{z,IT}) \quad \text{où} \quad \Im(n_{z,IT}) = \sqrt{\left| 1 - \left(\frac{k_{z,IT}^{(c)}}{k_{z,I}} \right)^2 \right|}$$

$$\text{soit : } r_{IT} = \left(\frac{1 - n_{z,IT}}{1 + n_{z,IT}} \right) = \frac{1 + i \Im(n_{z,IT})}{1 - i \Im(n_{z,IT})} = |r_{IT}| e^{i\varphi}$$

Lorsque $k_{z,I}$ varie de 0 à $k_{z,IT}^{(c)}$, le module $|r_{IT}|$ vaut 1 et la phase φ varie de façon monotone de π à 0. La réflectivité, présente un plateau à 1 dans **ce régime dit de réflexion totale interne (dans le milieu I) pour l'onde incidente**. Dans le milieu T , une onde inhomogène se propage parallèlement à l'interface suivant, par définition, la direction normale aux plans équiphase. Cette onde est dite évanescence car elle décroît de façon exponentielle selon sa distance à l'interface ce qui définit des plans "équiamplitude" parallèles à celle-ci. O.Bryngdahl décrit en détails ce phénomène et ses applications en imagerie optique dans la référence [8 [Evanescent Waves in Optical Imaging]].

Conseil

Pour expliquer la réflexion totale d'une onde plane d'extension finie, il faut considérer que l'énergie pénètre dans le substrat par l'un des bords de l'onde incidente et se déplace sous forme d'une onde évanescence selon une trajectoire de type parabolique. Elle ressort à l'autre bord d'onde incidente ce qui génère un léger déplacement latéral du plan d'incidence. En moyennant sur le temps, la direction du flux d'énergie net est donc parallèle à l'interface. Cette pénétration en fait un phénomène volumique qui se réduit à deux dimensions (phénomène surfacique) lorsque l'onde plane incidente est considérée d'extension infinie.

2 Cas d'un milieu absorbant

Afin de calculer la réflectivité d'un milieu absorbant, nous avons introduit une composante imaginaire à l'indice n_{IT} qui se dénomme maintenant **indice de réfraction complexe**.

$$n_{IT} = \Re(n_{IT}) + i \Im(n_{IT})$$

La **partie réelle** est toujours appelée indice de réfraction et se note souvent $1 - \delta$. La **partie imaginaire** est ici l'opposé du coefficient d'extinction β qui est un réel positif tout comme δ . On a $\Im(n_{IT}) = -\beta$ selon les conventions que nous suivons [9 [Ellipsometry and polarized light]]. Les lois de Snell-Descartes ainsi que les relations de Fresnel sont toujours applicables. Cette écriture nous conduit à aussi décomposer selon une partie réelle et imaginaire la quantité :

$$n_{z,IT} = \Re(n_{z,IT}) + i \Im(n_{z,IT})$$

et de même on peut aussi décomposer :

$$\vec{k}_T = \Re(\vec{k}_T) + i \Im(\vec{k}_T)$$

Pour que cette notation n'introduise aucune ambiguïté précisons que :

$$\vec{k}_T = (k_{y,T})\vec{e}_y + (k_{z,T})\vec{e}_z = (\Re(k_{y,T}) + i\Im(k_{y,T}))\vec{e}_y + (\Re(k_{z,T}) + i\Im(k_{z,T}))\vec{e}_z$$

Les expressions vues précédemment permettent d'éliminer α_T et d'introduire α_I dans l'expression du vecteur d'onde T. On obtient :

$$\vec{k}_T = k_0 \left(\cos(\alpha_I)\vec{e}_y - \left(\frac{A_I - A_R}{A_T} \right) \sin(\alpha_I)\vec{e}_z \right)$$

qui selon l'expression de $n_{z,IT}$ devient :

$$\vec{k}_T = k_0 \left(\cos(\alpha_I)\vec{e}_y - (n_{z,IT}) \sin(\alpha_I)\vec{e}_z \right)$$

Par identification des parties réelles et imaginaires on obtient :

$$\begin{cases} \Re(k_{y,T}) = k_0 \cos(\alpha_I) \\ \Im(k_{y,T}) = 0 \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} \Re(k_{z,T}) = k_0 \Re(n_{z,IT}) \sin(\alpha_I) \\ \Im(k_{z,T}) = k_0 \Im(n_{z,IT}) \sin(\alpha_I) \end{cases}$$

La composante imaginaire de l'onde transmise varie donc selon la profondeur z du matériau traversé. Dans ces expressions, lorsque $k_{z,I}$ est réel (par exemple quand le milieu d'incidence est le vide, $I = 0$), on obtient simplement :

$$\begin{cases} \Re(n_{z,0T}) = (1/k_{z,0})\Re(k_{z,T}) \\ \Im(n_{z,0T}) = (1/k_{z,0})\Im(k_{z,T}) \end{cases}, \text{ avec } k_{z,0} = k_0 \sin(\alpha_I) \quad \text{et} \quad k_0 = 2 \frac{\pi}{\lambda_0}$$

Ces expressions peuvent s'injecter dans l'expression établie pour le flux de particules transmises ce qui conduit à :

$$\vec{J}_T = \frac{-\hbar \Re(k_{z,T})}{m} \frac{\vec{k}_T}{\|\vec{k}_T\|} \left| \frac{2k_{z,0}}{k_{z,0} + k_{z,T}} \right|^2 |A_0|^2 e^{-2\Im(k_{z,T})z}$$

$$\text{et } T = \frac{\Re(k_{z,T})}{k_0} \left| \frac{2k_{z,0}}{k_{z,0} + k_{z,T}} \right|^2 e^{-2\Im(k_{z,T})z}$$

puisque la composante imaginaire du vecteur k_T ne dépend que de z .

L'exponentielle de cette expression a un argument réel et décroît en fonction de la profondeur z . Le terme $\Im(k_{z,T})$ introduit la prise en compte de l'absorption et de même l'évanescence de l'onde lorsque $k_{z,I} < k_{z,IT}^{(c)}$. On définit une longueur caractéristique du matériau dite **profondeur de pénétration** ($z_{1/e}$) au delà de laquelle le flux transmis représente la fraction $1/\exp(1) \sim 0,368$ du flux incident.

$$\text{Soit } T = \frac{|\vec{J}_T|}{|\vec{J}_I|} = \frac{1}{e^1} \quad \text{donnant} \quad z_{1/e} = \left| \frac{1}{2\Im(k_{z,T})} \right| = \left| \frac{1}{2\Im(n_{z,IT})k_{z,I}} \right|$$

Considérons les conséquences de la prise en compte de l'absorption premièrement d'un point de vue mathématique. On en conclut qu'au-dessus de l'angle critique, les relations définies précédemment restent vraies et la prise en compte de l'absorption se traduit uniquement par l'introduction d'un facteur d'atténuation. Sous l'angle critique, les composantes perpendiculaires des vecteurs d'onde étaient déjà complexes ce qui ne modifie même pas les expressions introduites sans absorption. D'un point de vue physique, l'onde évanescente se propage maintenant selon une direction inclinée par rapport à la surface. En effet, les plans d'équiphasse $\Re(\vec{k}_T) \cdot \vec{r} = cst$ ne sont plus parallèles aux plans équi-amplitude $\Im(\vec{k}_T) \cdot \vec{r} = cst$. Dans ce cas la moyenne sur le temps du flux d'énergie qui est aussi inclinée s'accompagne d'une perte d'énergie dans le matériau absorbant. La réflexion n'est plus jamais totale. Les effets de l'absorption sur la réflectivité et transmission sont illustrés par les figures suivantes.

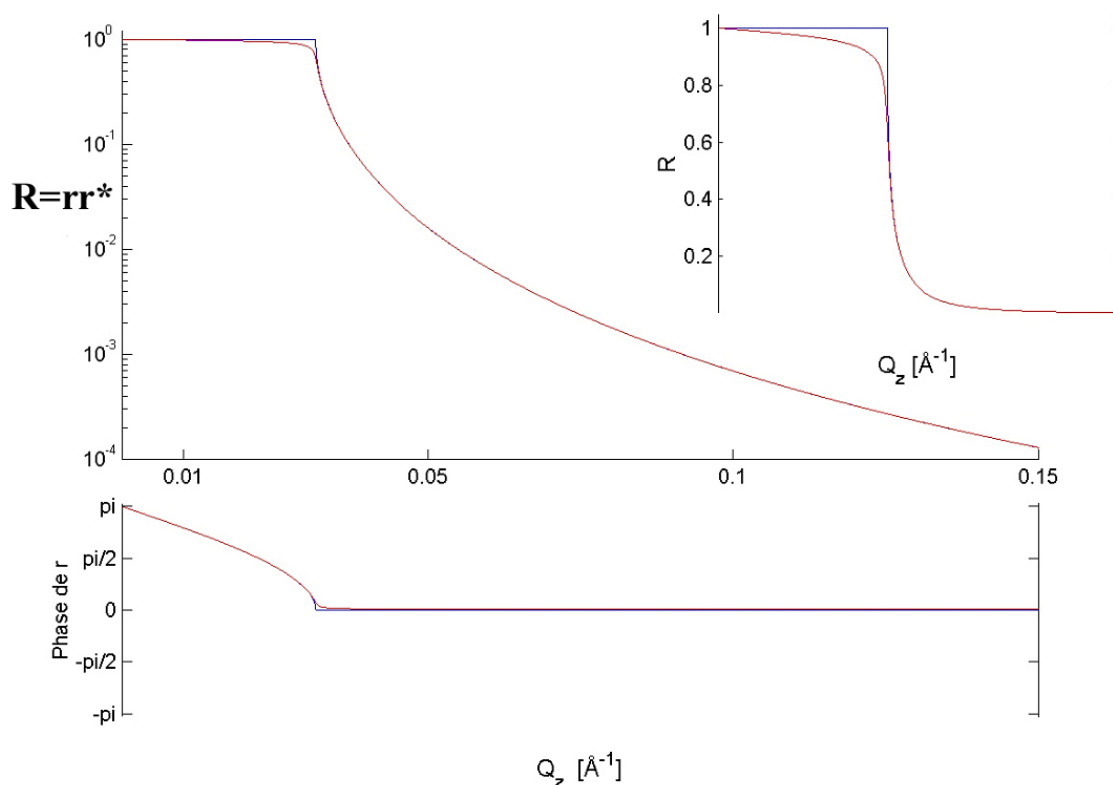


Figure 6 : Représentation des réflectivités ($R=rr^*$) sur une échelle logarithmique et linéaire (en insert). La phase de r est représentée dessous

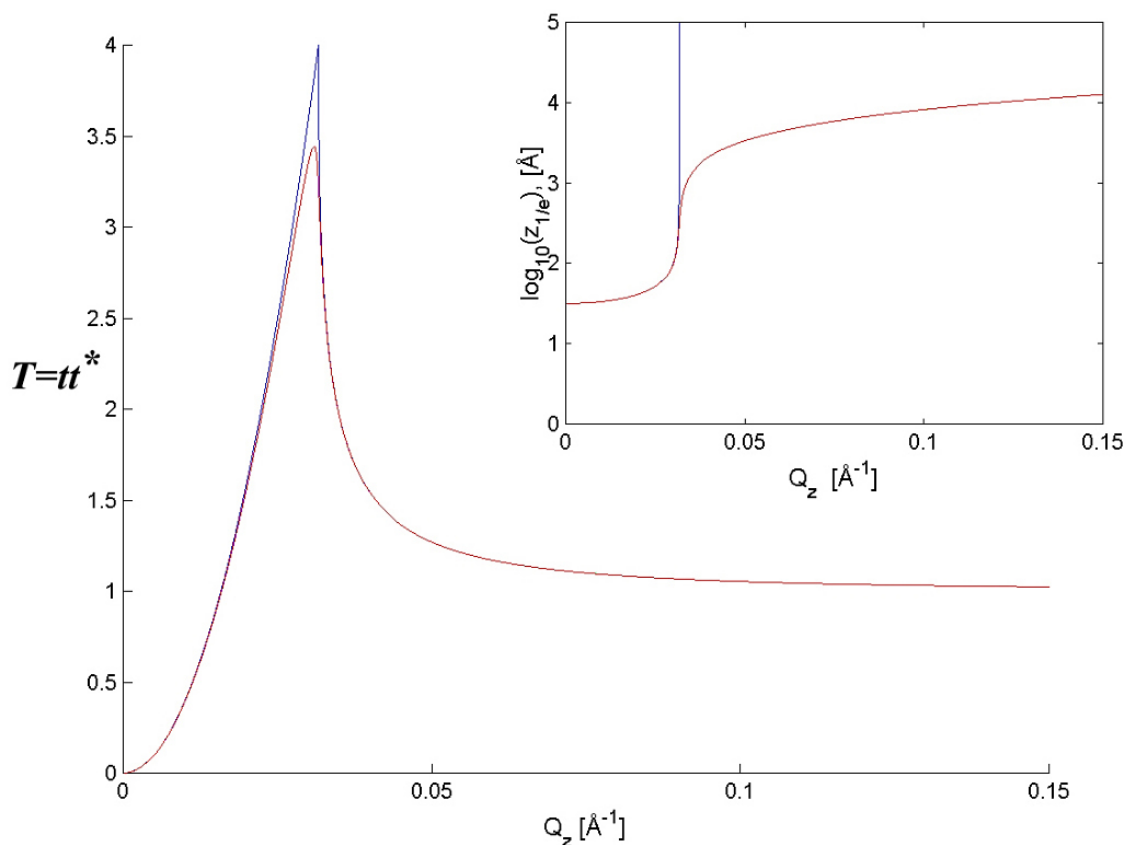


Figure 7 : Représentation du carré du module des coefficients de transmission ($|t|^2 = tt^*$)

Figure 7 : Représentation du carré du module des coefficients de transmission ($|t|^2 = tt^*$)

Complément

L'insert est la profondeur de pénétration ($z_{1/e}$) correspondante. Ces calculs sont obtenus pour un substrat de silicium ($\rho b = 1,992 \cdot 10^{-05} [\text{Å}^{-2}]$) et des rayons-X de longueur d'onde $\lambda = 1,54 [\text{Å}]$ (soit une anode en cuivre). Les courbes bleues sont obtenues lorsque l'absorption du matériau est négligée. En présence d'absorption ($\mu = 1,425 \cdot 10^{06} [\text{Å}^{-1}]$) on obtient les courbes rouges.

1.3. Réflectivité sur une couche mince homogène et d'épaisseur constante

Nous allons calculer la réflectivité d'une **couche complète, d'un matériau homogène** (milieu 1), posée sur un substrat (milieu 2). Le milieu incident (milieu 0) est supposé semi-infini tout comme le substrat. Ce calcul est attribué à Airy [10 [Phil. Mag. 2]] à partir d'un formalisme pour l'optique visible. Nous allons rappeler sa démonstration qui est reprise dans de nombreux ouvrages dont la référence [2 [Theory of Reflection of Electromagnetic and Particles Waves]]. Il tient compte de l'interférence de toutes les ondes émises dans la même direction (*vers le détecteur supposé à l'infini*). La première réflexion a lieu sur l'interface libre supérieure du film (dioptré noté 01 car entre le milieu 0 et la couche 1) et est caractérisée par le **coefficient de réflexion de Fresnel** :

$$r_{01} = \frac{k_{z,0} - k_{z,1}}{k_{z,0} + k_{z,1}} = \frac{Q_0 - Q_1}{Q_0 + Q_1}$$

Au niveau de la deuxième interface (dioptré d'indice n_{12}), ce coefficient est :

$$r_{12} = \frac{k_{z,1} - k_{z,2}}{k_{z,1} + k_{z,2}} = \frac{Q_1 - Q_2}{Q_1 + Q_2}$$

Dans cette **approche dynamique**, les réflexions multiples sont prises en compte (elles sont illustrées sur la Figure 8).

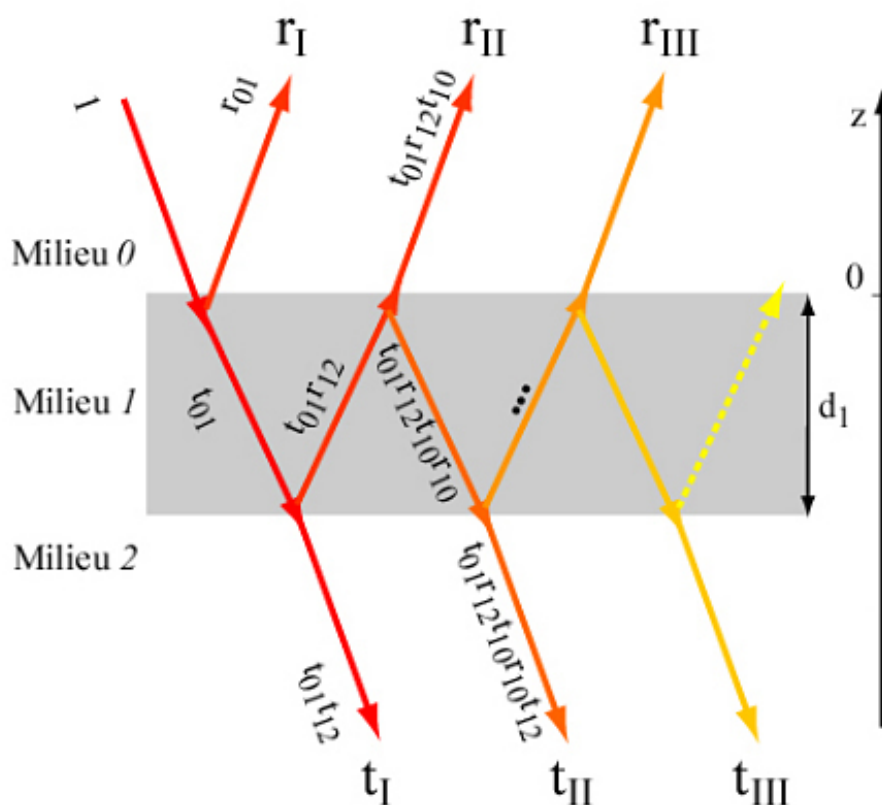


Figure 8).

Figure 8 : Représentation schématique du phénomène de **réflexion multiple** ayant lieu au sein d'une couche homogène d'épaisseur d_1 . Seuls les coefficients de Fresnel de réflexion et de transmission sont notés. Les termes de phase (du type $\exp(\pm 2k_z d)$) sont omis pour des raisons de lisibilité.

Le coefficient de réflectivité (*complexe*) du film (ensemble des interférences) s'obtient par la somme :

$$\tilde{r}_{01} = r_I + r_{II} + r_{III} + r_{IV} + \dots$$

$$\text{où } \begin{cases} r_{01} = r_{01} \\ r_{II, IV, \dots} = t_{01} t_{10} r_{12}^{n-1} r_{10}^{n-2} e^{+inQ_{z,1}d_1} \\ r_{III, V, \dots} = t_{01} t_{10} r_{12}^{n-1} r_{10}^{n-2} e^{-inQ_{z,1}d_1} \end{cases} \text{ et } \begin{cases} Q_{z,1} = Q_1 = 2k_{z,1} \\ \varphi = \pm i(n-1)Q_{z,1}d_1 \end{cases}$$

où Q_1 est le **module du vecteur de diffusion** dans la couche 1. La réflexion est ici purement spéculaire (pour interfaces planes et parallèles) ce qui permet d'identifier Q_1 à sa composante normale à la surface. Explicitons les termes de cette somme :

$$\tilde{r}_{01} = (r_{01}) + (t_{01} r_{12} e^{-i2k_{z,1}d_1} t_{10}) + (t_{01} t_{10} r_{12}^2 r_{10} e^{+i4k_{z,1}d_1}) + (t_{01} t_{10} r_{12}^3 r_{10}^2 e^{-i6k_{z,1}d_1}) + \dots$$

ce qui permet d'utiliser les relations suivantes : $\begin{cases} r_{10} = -r_{01} \\ t = 1 - r \end{cases}$ soit : $t_{01}t_{10} = 1 - r_{01}^2$, on obtient :

$$\tilde{r}_{01} = r_{01} + (1 - r_{01}^2) r_{12} e^{-iQ_{z,1}d_1} \left(\sum_{n=II, III} (r_{10}^{n-2} r_{12}^{n-2}) e^{\pm i(n-2)Q_{z,1}d_1} \right)$$

où la somme est égale à : $\frac{1}{1 - r_{01}r_{12}e^{-iQ_{z,1}d_1}}$ puisque $|r_{01}r_{12}e^{-iQ_{z,1}d_1}| < 1$ et $n \rightarrow \infty$. Cette série s'écrit :

$$\tilde{r}_{01} = r_{01} + \frac{t_{01} t_{10} r_{12} e^{-i2k_{z,1}d_1}}{1 - r_{10} r_{12} e^{-i2k_{z,1}d_1}}, \text{ soit : } \tilde{r}_{01} = \frac{r_{01} + r_{12} e^{-i2k_{z,1}d_1}}{1 + r_{01} r_{12} e^{-i2k_{z,1}d_1}}$$

Un raisonnement analogue permet aussi d'obtenir la transmission \tilde{t}_{01} de la couche, et nous retenons :

$$\tilde{t}_{01} = \frac{t_{01} + t_{12} e^{-i2k_{z,1}d_1}}{1 + r_{01} r_{12} e^{-i2k_{z,1}d_1}}$$

Réflectivité R et transmission T en intensité sont obtenues avec les relations suivantes :

$$\begin{cases} R(Q_z) = \tilde{r}_{01} * \text{Conj}(\tilde{r}_{01}) = \frac{r_{01}^2 + r_{12}^2 + 2r_{01}r_{12}\cos(Q_1d_1)}{1 + r_{01}^2r_{12}^2 + 2r_{01}r_{12}\cos(Q_1d_1)} \\ T(Q_z) = \left(\frac{k_{z,2}}{k_{z,0}}\right) \tilde{t}_{01} * \text{Conj}(\tilde{t}_{01}) = \left(\frac{k_{z,2}}{k_{z,0}}\right) \frac{t_{01}^2 t_{12}^2}{1 + r_{12}^2 r_{23}^2 + 2r_{12}r_{23}\cos(Q_1d_1)} \end{cases}$$

où $Q_z = Q_0 = Q_{z,0} = 2k_{z,0}$ est la variable pertinente dont dépendent $r_{01}, r_{12}, r_{23}, t_{01}, t_{12}$ et Q_1 .

a) Remarques générales issues des expressions de R et T

Le terme de phase $e^{-iQ_1d_1}$ est introduit par les interférences entre les ondes réfléchies aux deux interfaces tours à tours constructives ou destructives en fonction de la valeur de Q_1 , c'est-à-

dire en fonction de l'angle d'incidence. Les oscillations créées par ces interférences ont une période de $2\pi/d_1$ ce qui permet une mesure directe de l'épaisseur de la couche. Elles sont visibles sur la figure suivante et on les nomme "**franges de Kiessig**". Leur amplitude dépend des contrastes d'indice optique relatifs aux deux interfaces et devient maximum lorsque le substrat (milieu 2) est le même matériau que le milieu incident (milieu 0).

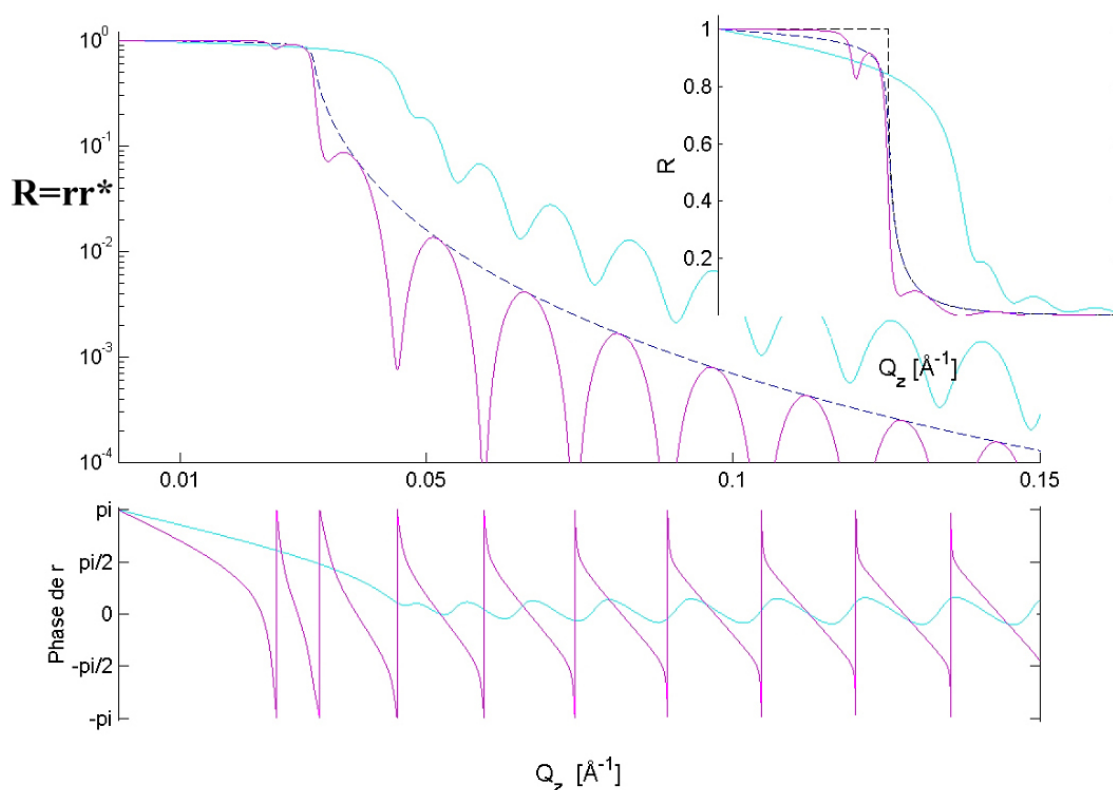


Figure 9: Réflectivités ($R=rr^*$) tracées sur une échelle logarithmique et linéaire du système décrit

Complément

La figure du dessous correspond à la phase de r . La réflectivité du substrat de silicium ($\rho b = 1,992 \cdot 10^{-5} [\text{Å}^{-2}]$) pour des rayons-X de longueur d'onde $\lambda = 1,54 [\text{Å}]$ est présentée en pointillés soit en noir lorsque l'absorption est négligée, soit en bleu en considérant celle-ci ($\mu = 1,425 \cdot 10^{-6} [\text{Å}^{-1}]$). Les courbes cyan sont obtenues pour une couche de $400 [\text{Å}]$ de maghémite très absorbante (Fe_2O_3 avec $\rho b = 3,99 \cdot 10^{-5} [\text{Å}^{-2}]$ et $\mu = 1,065 \cdot 10^{-5} [\text{Å}^{-1}]$). Les courbe magenta correspondent à une couche de même épaisseur du copolymère dibloc étudié. Ce matériau absorbe peu (PS-PBMA avec $\rho b = 3,99 \cdot 10^{-5} [\text{Å}^{-2}]$ et $\mu = 4,92 \cdot 10^{-8} [\text{Å}^{-1}]$).

b) Régime de réflexion totale

Si on s'intéresse à la réflexion totale entre le substrat et la couche, l'expression de l'angle critique doit être réécrite en fonction des valeurs accessibles expérimentalement et donc définies dans le milieu d'incidence (milieu I ou 0). Nous notons $k_{z,12}^{(0)}$ la valeur particulière de k_z , 0 correspondant à l'angle incident où va se manifester cette réflexion totale. Selon l'expression vue précédemment nous obtenons :

$$\left(k_{z,12}^{(0)}\right)^2 = \left(k_{z,0}^2\right) = \left(k_{z,01}^{(c)}\right)^2 + \left(k_{z,12}^{(c)}\right)^2, \text{ soit : } \left(k_{z,12}^{(0)}\right)^2 = 4\pi \left((\rho b)_2 - (\rho b)_0 \right)$$

La réflexion totale entre la couche et le substrat est donc mesurée dans le milieu incident au même angle que celui obtenu sur le substrat nu $k_{z,02}^{(0)}$. Par contre en présence de la couche, une autre valeur particulière de $k_{z,0}$ existe et correspond au phénomène de réflexion totale sur la couche dans le milieu incident. L'angle critique correspondant s'obtient avec :

$$(k_{z,01}^{(c)})^2 = (k_{z,01}^{(0)})^2 = 4\pi((\rho b)_1 - (\rho b)_0)$$

Plusieurs cas peuvent être envisagés quand on compare ces deux angles critiques, ce qui revient à comparer $(\rho b)_1$ et $(\rho b)_2$. Quelle que soit la relation entre ces deux potentiels, un plateau de réflexion totale est mesuré aux petits angles ainsi le coefficient de réflexion global r doit être de module unité.

- Lorsque $(\rho b)_1 < (\rho b)_2$, la réflexion totale à l'interface entre la couche et le substrat va avoir lieu en premier quand l'angle d'incidence diminue puisque $k_{z,12}^{(0)} > k_{z,01}^{(0)}$. Entre ces deux valeurs particulières de $k_z^{(0)}$, il y a réflexion totale sur le substrat mais pas encore sur la couche pleine, ainsi $|r_{12}| = 1$ et r_{01} est réel.

Posons : $r_{12} = e^{i\delta}$, $r_{01} = \Re(r_{01})$ et $\Delta = \delta - Q_1 d$ pour pouvoir reformuler :

$$r = \frac{\Re(r_{01}) + e^{i\Delta}}{1 + \Re(r_{01}) + e^{i\Delta}} = e^{-i\Delta} \frac{\Re(r_{01}) + e^{i\Delta}}{e^{-i\Delta} + \Re(r_{01})}$$

$$R = r * \text{Conj}(r) = e^0 \frac{(\Re(r_{01}) + e^{i\Delta})^2}{(\Re(r_{01}) + e^{i\Delta})^2} = 1$$

ce qui conduit à :

Aux angles encore plus faibles, apparaît en plus la réflexion totale sur la première interface rencontrée $|r_{01}| = 1$. Dans ce cas, Q_1 et Q_2 étant des imaginaires purs, r_{12} est purement réel mais n'est plus de module unité puisque toute l'énergie de l'onde évanescence pénétrant la couche n'arrive pas jusqu'au substrat.

En posant : $r_{01} = e^{i\delta}$ et $r_{12} e^{-iQ_1 d} = i$ un réel, on obtient :

$$r = \frac{e^{i\delta} + i}{1 + e^{i\Delta} i}, \text{ soit } R = r * \text{Conj}(r) = r r^* = 1$$

- Lorsque $(\rho b)_1 > (\rho b)_2$, la réflexion totale sur la couche se manifeste avant celle sur le substrat lorsque α_I décroît. Pour $k_{z,0}$ compris entre $k_{z,01}^{(0)}$ et $k_{z,12}^{(0)}$, on a donc $|r_{01}| = 1$ et une onde évanescence (*mode non propagatif*) s'étend jusqu'au substrat (Q_1 est un imaginaire pur). Comme précédemment le formalisme utilisé permet d'expliquer la présence d'un plateau de réflexion totale.

1.4. Réflectivité des film minces stratifiés (analyse selon la normale à leur surface libre, suivant z)

Dans le paragraphe suivant, nous allons présenter les méthodes utilisées classiquement pour le calcul de la **réflectivité spéculaire de films minces ayant des profils d'indice qui dépendent de la profondeur**, c'est à dire ayant une densité de longueur de diffusion fonction de leur normale $(\rho b)_{(z)}$.

a) Formalisme matriciel optique introduit par Abeles

L'introduction du **formalisme matriciel** est attribuée à Herpin pour l'optique des films minces homogènes [11 [Compt. Rend. Ac. Sc.]]. Nous partons de l'article d'Abelès [12 [Recherches sur la propagation des ondes électromagnétiques sinusoidales dans les milieux stratifiés. Applications aux couches minces]] qui est repris dans de nombreux ouvrages de référence en

optique [13 [Principles of Optics], 14 [Light reflection from films of continuously varying refractive index]].

Un matériau stratifié introduit du point de vue optique une disymétrie entre la direction normale au film z et les directions x, y parallèles aux plans des surfaces. Ses caractéristiques sont invariantes par translation latérale, soit perpendiculaire à z et exprimées par l'indice de réfraction (optique ici) : $n(z) = \epsilon\mu$. On distingue les régions suivantes du film :

$$\begin{cases} \text{Pour } \infty < z < 0 : \epsilon = \epsilon_0 \text{ et } \mu = \mu_0, \text{ ainsi : } n = n_0 \\ \text{Pour } 0 < z < d_{\text{tot}} : \epsilon = \epsilon(z) \text{ et } \mu = \mu(z), \text{ ainsi : } n = n(z) \\ \text{Pour } -d_{\text{tot}} < z < \infty : \epsilon = \epsilon_{N+1} \text{ et } \mu = \mu_{N+1}, \text{ ainsi : } n = n_{N+1} \end{cases}$$

Dans ce cas, nous devons repartir des équations de Maxwell pas encore simplifiées au cas des matériaux homogènes et qui se résument pour la polarisation "s" étudiée ($E_y = E_z = 0$) à :

$$\begin{cases} (a) : \frac{\partial H_z}{\partial y} - \frac{\partial H_y}{\partial z} + \frac{i\epsilon\omega}{C} E_x = 0 \\ (b) : \frac{\partial H_x}{\partial z} - \frac{\partial H_z}{\partial x} = 0 \\ (c) : \frac{\partial H_y}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial y} = 0 \end{cases} \quad \begin{cases} (d) : \frac{i\mu\omega}{C} H_x = 0 \\ (e) : \frac{\partial E_x}{\partial z} - \frac{i\mu\omega}{C} H_y = 0 \\ (f) : \frac{\partial E_x}{\partial y} + \frac{i\mu\omega}{C} H_z = 0 \end{cases}$$

Combinées entre elles, elles conduisent à l'équation d'Helmoltz (déjà énoncée sous sa forme générale) et qui se simplifie suivant les relations ci-dessus à l'expression :

$$\left(\frac{\partial^2 E_x}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 E_x}{\partial z^2} \right) - d \frac{d(\ln(\mu))}{dz} \frac{\partial E_x}{\partial z} + n^2 k_0^2 E_x = 0$$

Pour montrer que ce problème est unidimensionnel (*selon* z), Abelès propose comme solution de cette équation, un champ séparable en deux fonctions des directions y et z :

$$E_x(y, z) = Y(y)U(z)$$

L'expression devient une égalité aux membres séparables :

$$\frac{1}{Y} \frac{\partial^2 Y}{\partial y^2} = \frac{-1}{U} \frac{\partial^2 U}{\partial z^2} - n^2 k_0^2 + \frac{d(\ln(\mu))}{dz} \frac{1}{U} \frac{\partial U}{\partial z}$$

Cette relation impose que ses deux membres soient égaux à une constante, et Abelès pose :

$$\begin{cases} \frac{1}{Y} \frac{\partial^2 Y}{\partial y^2} = -K^2 \\ \frac{\partial^2 U}{\partial z^2} - \frac{d(\ln(\mu))}{dz} \frac{\partial U}{\partial z} + n^2 k_0^2 U = K^2 U \end{cases}$$

nous verrons que : $K^2 = k_0^2 S^2$

où K est une constante puisque $s = n(z)\cos(\alpha(z)) = n_l \cos(\alpha_l)$ est un invariant issu de la conservation de la composante tangentielle E_x au passage des différents dioptries de la multicouche (voir relations précédentes).

La première équation différentielle à des solutions du type $Y = cst e^{i(\omega t - k_z S_y)}$. Un raisonnement analogue pour H_y et H_z conduit pour la polarisation "s" aux solutions :

$$S : \begin{cases} E_x(y, z) = U(z) e^{i(\omega t - k_0 S_y)} \\ H_y(y, z) = V(z) e^{i(\omega t - k_0 S_y)} \\ H_z(y, z) = W(z) e^{i(\omega t - k_0 S_y)} \end{cases} \quad \text{avec selon a), e) et f):} \quad \begin{cases} i k_0 \epsilon U = -i k_0 S W - \frac{\partial V}{\partial z} \\ i k_0 \mu V = \frac{-\partial U}{\partial z} \\ i k_0 \mu W = -i k_0 S U \end{cases}$$

Ces conditions se simplifient à deux équations différentielles du premier ordre après élimination de W . On obtient :

$$s : \begin{cases} \frac{\partial U}{\partial z} = -i k_0 \mu V \\ \frac{\partial V}{\partial z} = -i k_0 \left(\epsilon - \frac{S^2}{\mu} \right) U \end{cases} \quad \text{qui conduit à :} \quad \begin{cases} \frac{\partial^2 U}{\partial z^2} - \frac{d(\ln(\mu))}{dz} \frac{\partial U}{\partial z} + k_0^2 (\epsilon \mu - S^2) U = 0 \\ \frac{\partial^2 V}{\partial z^2} - \frac{d\left(\ln\left(\epsilon - \frac{S^2}{\mu}\right)\right)}{dz} \frac{\partial V}{\partial z} + k_0^2 (\epsilon \mu - S^2) V = 0 \end{cases}$$

Notons que pour une onde polarisée "p" telle que $H_y = H_z = 0$, on obtient des relations analogues en utilisant directement les substitutions vues précédemment sur cette équation.

Pour ces deux polarisations nous obtenons des équations différentielles linéaires du second

ordre de type $\frac{\partial^2 y}{\partial z^2} + a(z) \frac{\partial y}{\partial z} + b(z)y = 0$. On en déduit que chaque solution U et V se décompose en combinaison linéaire de deux solutions particulières (U_1, U_2 ou V_1, V_2) satisfaisant le système d'équations linéaires du premier ordre introduit ci-dessus. On en déduit les systèmes suivants :

$$\begin{cases} V_1 U_2^z - U_1^z V_2 = 0 \\ U_1 V_2^z - V_1^z U_2 = 0 \end{cases} \quad \text{soit :} \quad \frac{\partial(Det)}{\partial z} = 0 \quad \text{où} \quad Det = \begin{vmatrix} U_1 & V_1 \\ U_2 & V_2 \end{vmatrix} = (U_1 V_2 - U_2 V_1)$$

où l'exposant z fait référence à la différentiation selon z .

Cette égalité implique que le déterminant (Det) de deux solutions quelconques soit indépendant de z . Utilisons ce résultat en sélectionnant les deux solutions particulières suivantes :

$$\begin{cases} U_1 = u_1(z) \\ V_1 = v_1(z) \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} U_2 = u_2(z) \\ V_2 = v_2(z) \end{cases} \quad \text{telles que} \quad \begin{cases} u_1(0) = v_2(0) = 0 \\ v_1(0) = u_2(0) = 0 \end{cases}$$

Ainsi les solutions générales sont du type :

$$\begin{cases} U(z) = u_2(z)U(0) + u_1(z)V(0) \\ V(z) = v_2(z)U(0) + v_1(z)V(0) \end{cases}$$

soit en notation matricielle :

$$\begin{bmatrix} U(z) \\ V(z) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} u_2 & u_1 \\ v_2 & v_1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} U(0) \\ V(0) \end{bmatrix} \quad \text{avec} \quad N(z) = \begin{bmatrix} u_2 & u_1 \\ v_2 & v_1 \end{bmatrix}$$

On obtient la valeur de l'invariant traduisant la conservation de l'énergie au dioptre $z = 0$:

$$\text{Det}(N(z)) = \text{Det}(N(0)) = u_2 v_1 - u_1 v_2 = 1$$

Par réciprocity, on en déduit la relation :

$$\begin{bmatrix} U(0) \\ V(0) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} v_1(z) & -u_1(z) \\ -v_2(z) & u_2(z) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} U(z) \\ V(z) \end{bmatrix} = M(z) \begin{bmatrix} U(z) \\ V(z) \end{bmatrix} \quad \text{avec} \quad \text{Det}(M(z)) = 1$$

Rappelons que la connaissance de U et V revient respectivement à celle des champs E_x et H_y (pour la polarisation "s"). Ainsi la détermination de la **matrice caractéristique** $M(z)$ **du matériau stratifié** permet de déterminer les composantes électriques et magnétiques de l'onde sinusoïdale dans les différentes strates (profondeur z) quand cette onde est connue dans le milieu incident. La matrice carrée $M(z)$ est unimodulaire et ses éléments M_{ij} dépendent uniquement de l'indice $n(z)$ et donc de la structure du film en profondeur.

b) Application aux films multicouches. Formalismes Dynamiques Discrets

Un système pouvant être décrit comme formé par l'empilement de couches homogènes d'indices optiques différents est dit **multicouche**. C'est un matériau stratifié particulier dont l'indice optique présente des discontinuités marquées selon l'axe z . Une telle multicouche est représentée sur la figure suivante. Chacune des N couches est numérotée (indice l) depuis le milieu d'incidence du faisceau correspondant à l'indice $l = 0$ jusqu'au substrat d'indice $l = N + 1$. Toutes ces strates d'épaisseurs respectives d_l sont homogènes et caractérisées indifféremment par leur indice optique n_l ou leur densité de longueur de diffusion $(\rho b)_l$.

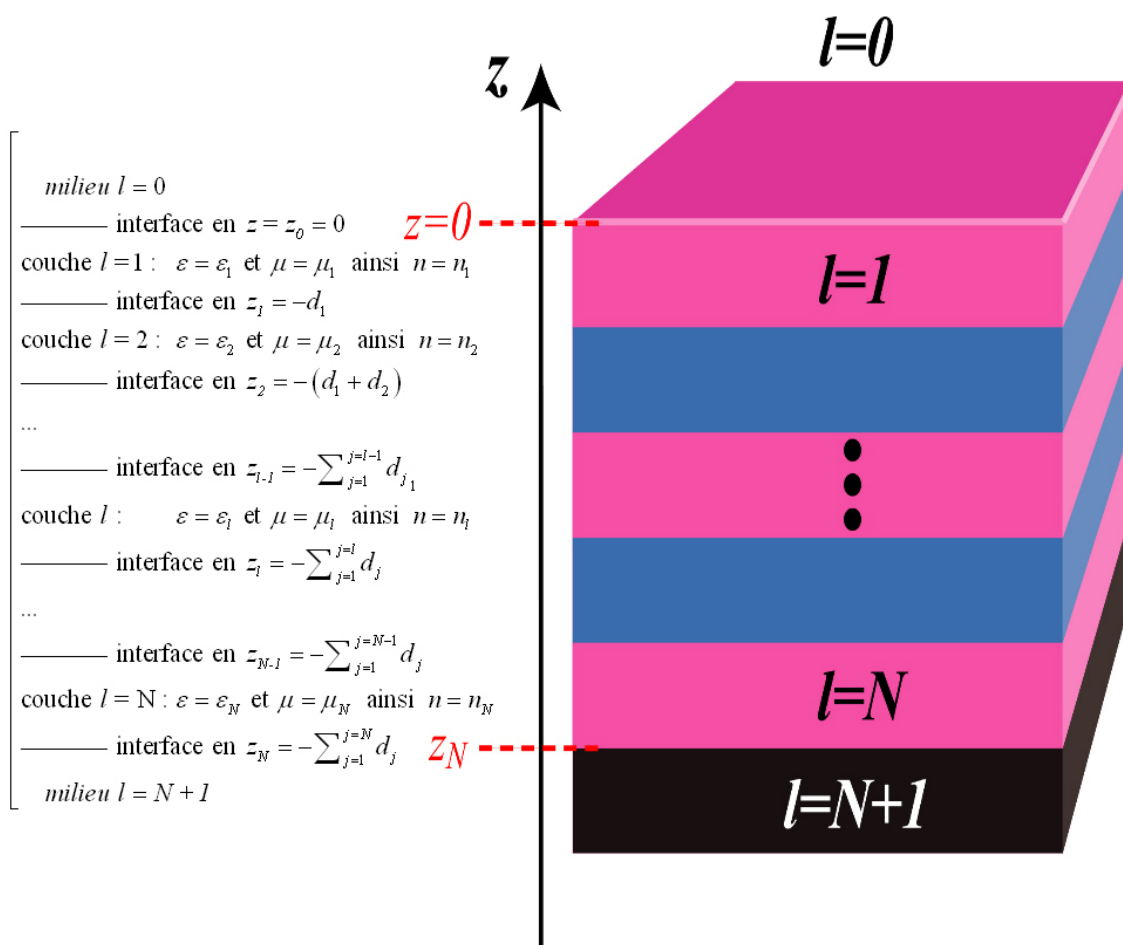


Figure 10 : Représentation schématique d'une multicouche

Pour calculer la réflectivité R et la transmittivité T de cette multicouche, nous allons premièrement poursuivre le formalisme matriciel optique d'Abelès. Nous détaillerons ensuite l'utilisation de l'algorithme récursif de Parratt [15 [Surface Studies of Solids by Total Reflection of X-Rays]] introduit pour la réflectivité des rayons-X mais issu du formalisme optique proposé par Airy pour une monocouche. Notons que Lord Rayleigh traitait de ce problème dès 1912 dans le cadre de la propagation des ondes acoustiques [16 [Proc. Roy. Soc.]].

Ces deux méthodes de calcul sont dynamiques et prennent en compte la réfraction et les réflexions multiples. Elles conservent l'énergie et peuvent être considérées comme exactes sur toute la gamme angulaire lorsque chaque interface de l'empilement multicouche satisfait les conditions de Fresnel énoncées précédemment pour un dioptre plan dit "idéal". Ces deux calculs conduisent aux mêmes résultats pour des diélectriques parfaits ($\mu = 0$).

c) Passage des films stratifiés aux multicouches avec le formalisme d'Abelès

Pour la propagation d'une onde sinusoïdale dans un milieu stratifié, la relation matricielle tient compte de la conservation des composantes tangentielles à l'axe de stratification (z) qui sont notées E_x et H_y . Comme nous l'avons vu, cette expression permet de lier les composantes de ces champs, à une profondeur donnée ($U(z)$ et $V(z)$), à leur valeur dans le milieu d'incidence qui sont accessibles ($U(0)$ et $V(0)$). Pour cela on doit déterminer la matrice $M(z)$ qui caractérise la multicouche étudiée.

Dans le cas d'un simple dioptre, cette matrice permet de lier les valeurs des champs dans le milieu d'incidence $I(U_I(z > 0)$ et $V_I(z > 0)$) à celles dans le matériau T ($U_T(z < 0)$ et $V_T(z < 0)$) par la relation :

$$\begin{bmatrix} U_I(0) \\ V_I(0) \end{bmatrix} = M(z) \begin{bmatrix} U_T(z) \\ V_T(z) \end{bmatrix}$$

On généralise cette relation pour une **multicouche** quelconque caractérisée par la matrice $M(z)$ et on lie les champs dans la couche N ($U_N(z)$ et $V_N(z)$ pour $z_{N-1} > z > z_N$) à ceux de l'onde incidente ($U_0(0)$ et $V_0(0)$ pour $z \geq z_0$) par la relation:

$$\begin{bmatrix} U_0(0) \\ V_0(0) \end{bmatrix} = M(z) \begin{bmatrix} U(z) \\ V(z) \end{bmatrix}$$

$$\text{avec } M(z) = [M_1(z_1)] [M_2(z_2 - z_1)] \dots [M_N(z - z_{N-1})] = \prod_{l=1}^{l=N} M_l$$

$$\text{et } M_l = M_l(z_l - z_{l-1}) = \begin{bmatrix} v_{1,l}(z) & -u_{1,l}(z) \\ -v_{2,l}(z) & u_{2,l}(z) \end{bmatrix}$$

et où la matrice M_l correspond à la couche $z_{l-1} \leq z \leq z_l$ d'épaisseur $d_l = |z_l - z_{l-1}|$.

Examinons pour un tronçon l de cette multicouche la matrice M_l qui le caractérise. Partons du système qui devient :

$$\begin{cases} \frac{\partial U}{\partial z} = -i k_0 \mu_l V \\ \frac{\partial V}{\partial z} = -i k_0 \left(\epsilon_l - \frac{S^2}{\mu_l} \right) U \end{cases} \quad \text{et qui conduit à : } \begin{cases} \frac{\partial^2 U}{\partial z^2} + k_0^2 (\epsilon_l \mu_l - S^2) U = 0 \\ \frac{\partial^2 V}{\partial z^2} + k_0^2 (\epsilon_l \mu_l - S^2) V = 0 \end{cases}$$

Abelès indique que les solutions satisfaisant ces systèmes sont du type :

$$\begin{cases} U(z) = A \cos(k_0(z - z_{l-1}) \sqrt{\epsilon_l \mu_l} \sin(\alpha_l)) + B \sin(k_0(z - z_{l-1}) \sqrt{\epsilon_l \mu_l} \sin(\alpha_l)) \\ V(z) = \frac{1}{i} \sqrt{\frac{\epsilon_l}{\mu_l}} \sin(\alpha_l) [B \cos(k_0(z - z_{l-1}) \sqrt{\epsilon_l \mu_l} \sin(\alpha_l)) - A \sin(k_0(z - z_{l-1}) \sqrt{\epsilon_l \mu_l} \sin(\alpha_l))] \end{cases}$$

où A et B sont des constantes. On en déduit les solutions particulières introduites avant et qui nous conduisent aux éléments de la matrice $M_{l,ij}$ caractérisant la couche l :

$$M_l = \begin{bmatrix} M_{l,11} & M_{l,12} \\ M_{l,21} & M_{l,22} \end{bmatrix} \quad \text{en posant : } \begin{cases} P_l = \sqrt{\frac{\epsilon_l}{\mu_l}} \sin(\alpha_l) \\ k_l = k_0 \sqrt{\epsilon_l \mu_l} \sin(\alpha_l) = n_0 k_{z,l} \end{cases}$$

$$\text{où } \begin{cases} M_{l,11} = v_{1,l} = \cos(k_0(z - z_{l-1})\sqrt{\epsilon_l \mu_l} \sin(\alpha_l)) \\ M_{l,12} = -u_{1,l} = i\sqrt{\frac{\mu_l}{\epsilon_l}} \frac{1}{\sin(\alpha_l)} \sin(k_0(z - z_{l-1})\sqrt{\epsilon_l \mu_l} \sin(\alpha_l)) \\ M_{l,21} = -v_2 = i\sqrt{\frac{\epsilon_l}{\mu_l}} \sin(\alpha_l) \sin(k_0(z - z_{l-1})\sqrt{\epsilon_l \mu_l} \sin(\alpha_l)) \\ M_{l,22} = u_2 = v_{1,l} \end{cases}$$

$$\text{soit } \begin{cases} M_{l,11} = v_{1,l} = \cos(k_l(z - z_{l-1})) \\ M_{l,12} = -u_{1,l} = \frac{i}{P_l} \sin(k_l(z - z_{l-1})) \\ M_{l,21} = -v_2 = i P_l \sin(k_l(z - z_{l-1})) \\ M_{l,22} = u_2 = M_{l,11} \end{cases}$$

et où P_l est appelé "**admittance caractéristique**" de la couche l par analogie avec l'électronique [14 [Light reflection from films of continuously varying refractive index]]. On passe aux résultats d'une polarisation " P " en appliquant les substitutions ($S \rightarrow P$).

Expérimentalement, les grandeurs accessibles se trouvent dans les milieux homogènes considérés comme semi-infinis indexés 0 (au dessus du film) et $N + 1$ (au dessous du film) où s'effectue la mesure. Les grandeurs $U(z=0)$ et $V(z=0)$ correspondent aux champs dans le premier milieu qui peuvent s'obtenir par décomposition de ceux-ci en la somme de deux contributions correspondantes à une onde incidente (d'amplitude de champ électrique E_0^-) et à une onde réfléchie par la multicouche (d'amplitude de champ électrique E_0^+). Ce qui se traduit par les égalités :

$$\begin{cases} U_0(0) = E_0^- + E_0^+ \\ V_0(0) = P_0(E_0^- - E_0^+) \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} U_{N+1}(z) = E_{N+1}^- \\ V_{N+1}(z) = P_{N+1} E_{N+1}^- \end{cases} \quad \text{liés par} \quad \begin{bmatrix} U_0(0) \\ V_0(0) \end{bmatrix} = M \begin{bmatrix} U_{N+1}(z_{N+1}) \\ V_{N+1}(z_{N+1}) \end{bmatrix}$$

$$\text{soit } \begin{cases} U_0(0) = E_0^- + E_0^+ = (M_{11} + P_{N+1} M_{12}) E_{N+1}^- \\ V_0(0) = P_0(E_0^- - E_0^+) = (M_{21} + P_{N+1} M_{22}) E_{N+1}^- \end{cases}$$

Cette description du phénomène permet de revenir aux coefficients de réflexion \tilde{r}_{01} et de transmission \tilde{t}_{NN+1} des milieux extrêmes :

$$\begin{cases} \tilde{r}_{01} = |\tilde{r}_{01}| e^{i\varphi_{01}} = \left(\frac{E_0^+}{E_0^-} \right) = \frac{P_0(M_{11} + P_{N+1} M_{12}) - (M_{21} + P_{N+1} M_{22})}{P_0(M_{11} + P_{N+1} M_{12}) + (M_{21} + P_{N+1} M_{22})} \\ \tilde{t}_{NN+1} = |\tilde{t}_{NN+1}| e^{i\varphi_{NN+1}} = \left(\frac{E_{N+1}^+}{E_0^-} \right) = \frac{2 P_0}{P_0(M_{11} + P_{N+1} M_{12}) + (M_{21} + P_{N+1} M_{22})} \end{cases}$$

On en déduit la réflectivité R et transmission T de la multicouche (dans le milieu $I = 0$) :

$$\begin{cases} R(Q_z) = \tilde{r}_{01} * \text{Conj}(\tilde{r}_{01}) \\ T(Q_z) = \frac{P_{N+1}}{P_0} \tilde{t}_{01} * \text{Conj}(\tilde{t}_{01}) \end{cases} \quad \text{où} \quad \frac{P_{N+1}}{P_0} = \sqrt{\frac{\epsilon_{N+1} \mu_0}{\mu_{N+1} \epsilon_0}} \frac{\sin(\alpha_{N+1})}{\sin(\alpha_0)}$$

i Cas d'une couche homogène de diélectrique parfait

Supposons que la couche décrite par la figure précédente est non magnétique ($\mu_l = 0$) et purement diélectrique. On obtient alors :

$$\begin{cases} M_{1,11} = v_{1,1} = \cos(k_1 d_1) \\ M_{1,12} = -u_{1,1} = \frac{-i}{P_1} \sin(k_1 d_1) \\ M_{1,21} = -v_2 = -i P_1 \sin(k_1 d_1) \\ M_{1,22} = u_2 = M_{1,11} \end{cases} \quad \text{où} \quad \begin{cases} P_1 = n_1 \sin(\alpha_I) = \frac{k_1}{k_0} = \frac{n_1}{n_0} = \frac{n_0}{k_0} k_{z,1} \\ k_1 = k_0 n_1 \sin(\alpha_I) = n_0 k_{z,1} \end{cases}$$

Ces éléments sont introduits dans les équations donnant les coefficients en amplitude de réflexion et transmission de chaque interface. On obtient l'expression des coefficients de réflectivité et de transmission du film (notés avec une tilde). Elles se simplifient en introduisant les coefficients de Fresnel des interfaces. Pour le dioptre séparant le milieu I et T , ces coefficients deviennent :

$$r_{IP} = r_{\perp} = \frac{n_I \sin(\alpha_I) - n_T \sin(\alpha_T)}{n_I \sin(\alpha_I) + n_T \sin(\alpha_T)} = \frac{P_I - P_T}{P_I + P_T}$$

$$\text{et } t_{\perp} = \frac{2n_I \sin(\alpha_I)}{n_I \sin(\alpha_I) + n_T \sin(\alpha_T)} = \frac{2P_I}{P_I + P_T}$$

$$\text{soit : } \tilde{r}_{01} = \frac{r_{01} + r_{12} e^{-i2k_{z,1}d_1}}{1 + r_{01}r_{12} e^{-i2k_{z,1}d_1}} \quad \text{et} \quad \tilde{t}_{01} = \frac{t_{01} + t_{12} e^{-i2k_{z,1}d_1}}{1 + r_{01}r_{12} e^{-i2k_{z,1}d_1}}$$

En introduisant r_{12}, r_{23} et t_{12}, t_{23} dans les expressions de \tilde{r}_{01} et \tilde{t}_{01} on retrouve les expressions de la réflectivité R et Transmission T déjà vues :

d) Algorithme récurent de Parratt

Pour cette méthode itérative, la réflectivité se calcul d'interface en interface en respectant les équations de continuité des champs électromagnétiques et en tenant compte des interférences entre les ondes réfléchies et réfractées aux différentes interfaces. Le coefficient de réflectivité de l'interface la plus profonde correspond au coefficient de Fresnel local puisque aucune onde ne revient du substrat :

$$\tilde{r}_{NN+1} = r_{NN+1} = \frac{k_{z,N} - k_{z,N+1}}{k_{z,N} + k_{z,N+1}} = \frac{Q_N - Q_{N+1}}{Q_N + Q_{N+1}} \quad \text{où} \quad Q_l = Q_{z,l} = 2k_{z,l}$$

Nous partons de ce coefficient de réflectivité ($N/N + 1$) au substrat et remontons jusqu'à la réflectivité dans le milieu 0 où s'opère la mesure, en suivant la méthode récurrente déjà introduite pour le calcul d'une couche unique. Nous obtenons ainsi une expression analogue qui est pour la $l^{\text{ème}}$ interface (située entre les couches $l - 1$ et l) :

$$\tilde{r}_{l-1l} = \frac{r_{l-1l} + \tilde{r}_{ll+1} e^{-iQ_l d_l}}{1 + r_{l-1l} \tilde{r}_{ll+1} e^{-iQ_l d_l}}$$

Elle tient compte des interférences entre ondes réfléchies aux interfaces sous-jacentes et permet d'obtenir le coefficient de réflexion de l'interface ($l - 2$ et $l - 1$):

$$\tilde{r}_{l-2l-1} = \frac{r_{l-2l-1} + \tilde{r}_{l-1l} e^{-iQ_{l-1} d_{l-1}}}{1 + r_{l-2l-1} \tilde{r}_{l-1l} e^{-iQ_{l-1} d_{l-1}}}$$

Ici on décrémente l (de N à 0) jusqu'à la première interface (entre le milieu d'incidence 0 et la couche 1). La réflectivité et la transmission de la multicouche sont :

$$\begin{cases} R(Q_z) = \tilde{r}_{01} * \text{Conj}(\tilde{r}_{01}) \\ T(Q_z) = 1 - R(Q_z) \end{cases}$$

e) Expressions des vecteurs de diffusion pour leur calcul

La programmation des deux formalismes présentés (matriciel ou itératif) passe toujours par le calcul des vecteurs d'onde dans les différentes couches. Ces quantités pouvant être complexes, nous allons commencer par les définir et souligner une source d'erreur courante pour leur programmation. Revenons tout d'abord sur les relations de continuité des champs électromagnétiques aux interfaces qui lient les expressions des vecteurs d'onde du rayonnement se propageant de part et d'autre d'un dioptré. Ainsi le **vecteur de diffusion dans la couche d'indice $l + 1$** s'obtient à partir de sa valeur dans le milieu précédent d'indice l par la relation déjà vue :

$$(k_{z,T})^2 = (k_{z,l})^2 - (k_{z,IT}^{(c)})^2$$

Exprimons le module de ce vecteur autrement pour son calcul :

$$k_{z,l+1} = \sqrt{(k_{z,l})^2 - (k_{z,ll+1}^{(c)})^2} = \sqrt{(k_{z,0})^2 - \sum_{i=1}^{i=l+1} (k_{z,i-1i}^{(c)})^2}$$

où l'angle critique attaché au dioptré entre les couches l et $l + 1$ est repéré par la valeur du module du vecteur d'onde correspondant : $k_{z,ll+1}^{(c)}$. Pour calculer cette quantité complexe on utilise les relations la reliant aux indices ou densités de longueur de diffusion. Développons la somme en fonction des densités de longueur de diffusion :

$$\sum_{i=1}^{i=l+1} (k_{z,i-1i}^{(c)})^2 = \sum_{i=1}^{i=l+1} (4\pi((\rho b)_i - (\rho b)_{i-1})) = 4\pi((\rho b)_{l+1} - (\rho b)_0) = (k_{z,0l+1}^{(c)})^2$$

En fonction des indices optiques on obtient :

$$\sum_{i=1}^{i=l+1} (k_{z,i-1i}^{(c)})^2 = \sum_{i=1}^{i=l+1} ((n_{i-1}^2 - n_i^2) k_{z,0}^2) = (n_0^2 - n_{l+1}^2) k_{z,0}^2 = (k_{z,0l+1}^{(c)})^2$$

Dans :

$$k_{z,l+1} = \sqrt{k_{z,0}^2 - (k_{z,0,l+1}^{(c)})^2} \quad \text{avec} \quad (k_{z,i-1}^{(c)})^2 = 4\pi((\rho b)_i - (\rho b)_{i-1})$$

ou encore :

$$k_{z,l+1} = k_0 \sqrt{\left((n_{l+1}^2 - n_0^2) + 1 - \cos^2(\alpha_0) \right)} \quad \text{où} \quad n_{l+1} = n_{0T} = \frac{k_{l+1}}{k_0} = \sqrt{1 - \frac{4\pi}{k_0^2} (\rho b)_{l+1}}$$

Pour ces expressions : $k_0 = \frac{2\pi}{\lambda_0}$, $k_{z,0} = k_0 \sin(\alpha_0)$ et $\alpha_0 = \alpha_{l,0}$ est l'angle d'incidence du faisceau dans le milieu $l = 0$ (*vide*) sur la surface.

Rappelons que la 2^{ème} loi de Descartes impose la conservation de la composante transverse des vecteurs d'onde soit :

$$k_{y,l+1} = k_{y,0} = k_0 \cos(\alpha_0) = k_{l+1} \frac{n_0}{n_{l+1}} \cos(\alpha_0) = k_{l+1} \cos(\alpha_{l+1}) = \frac{k_{z,l+1}}{\tan(\alpha_{l+1})}$$

Attention

La programmation de ces relations n'est pas aussi simple qu'il semble.

Pour un matériau sans absorption et à des angles inférieurs à son angle critique, la quantité sous la racine de l'expression du vecteur d'onde devient négative. Le vecteur d'onde dans le matériau est alors un imaginaire pur dont le signe doit être négatif en accord avec les conventions adoptées pour la dépendance temporelle et spatiale des champs électriques. Un logiciel tel que MATLAB [17 [Matlab]] prendra systématiquement cet imaginaire comme positif. Pour éviter cela il faut spécifier dans le calcul qu'on utilise son conjugué complexe. Dans le cas où de l'absorption existe, le vecteur de diffusion comporte toujours une partie imaginaire qui fixe son signe sans ambiguïté. Les effets de ces erreurs sont rarement spectaculaires dans les calculs des réflectivités car ils n'affectent que la partie imaginaire des coefficients de réflexion. Ils sont plus importants sous l'angle critique et lorsqu'on calcule des interférences entre ondes réfléchies.

C'est l'une des raisons pour lesquelles nous avons tracé systématiquement les phases des coefficients de réflectivité complexes (r) dans la suite.

2. Utilisation des approximations de Born simplificatrices. Formalisme cinématique continu

Jens Als-Nielsen a popularisé l'utilisation des **approximations de Born** pour le calcul de la réflectivité spéculaire des rayons-X. Son objectif était de déterminer la distribution électronique moyenne $(\rho b)_{(z)}$ normale à la surface d'une solution de cristal liquide nématique [18 [Smectic-A Order at the Surface of a Nematic Liquid Crystal: Synchrotron X-Ray Diffraction], 19 [Physica B]]. L'expression reliant le profil de potentiel en profondeur à la réflectivité mesurée est :

$$R(Q_z) \approx R_{Fresnel}(Q_z) \left| \frac{1}{(\rho b)_{Volume}} \int_{-\infty}^{+\infty} dz \frac{d\langle(\rho b)(z)\rangle}{dz} e^{iQ_z z} \right|^2 = R_{Fresnel}(Q_z) |S(Q_z)|^2$$

où $S(Q_z)$ est le facteur de structure local de l'interface et $R_{Fresnel}(Q_z)$ correspond à l'expression théorique de la réflectivité de Fresnel attendue pour une interface libre idéale (*abrupte, plane et d'extension latérale infinie*).

2.1. Approximations de Born

L'utilisation des approximations de Born en diffusion est courante et justifiée lorsque le rayonnement interagit peu avec la matière [18 [Smectic-A Order at the Surface of a Nematic Liquid Crystal: Synchrotron X-Ray Diffraction], 19 [Physica B]]. Elles sont particulièrement appréciées quand elles permettent de simplifier le formalisme au point de rendre l'écriture d'expressions analytiques envisageable pour R et T . Principalement elles reviennent à négliger :

- les réflexions multiples
- la réfraction dans les matériaux
- les variations de phase dues aux modifications de la vitesse de propagation au passage d'un milieu à l'autre.

La seconde et la troisième de ces simplifications peuvent être appelées "**approximations cinématiques**", puisque la conservation n'est plus vérifiée que pour le vecteur de vitesse le long de la trajectoire de la particule. Au contraire, les modèles précédents ("dynamiques") respectent les lois de la conservation mécanique.

Pour les films multicouche, l'intégrale de l'expression précédente devient une somme discrète. Quand l'origine des cotes ($z = 0$) est prise à la surface libre du film, on obtient :

$$R(Q_z) = r * Conj(r) \quad \text{où} \quad r(Q_z) \approx 4\pi \sum_{l=0}^{(N-1) \text{ interfaces}} \frac{((\rho b)_{l+1} - (\rho b)_l)}{Q_z^2} e^{iQ_z z_l}$$

En appliquant les approximations de Born, nous avons retracé les réflectivités de l'échantillon présenté précédemment suivant la théorie dynamique. On voit sur la figure que ces approximations ne sont pas valides dans la région qui s'étend des très petits angles jusqu'à plusieurs fois l'angle critique du film (soit des petits vecteurs de diffusion Q avec $Q = Q_z$ dans les conditions spéculaires). Cette limitation rend l'utilisation des approximations de Born délicates quand l'intensité réfléchie chute rapidement avec Q_z .

Remarque

Ces approximations sont donc peu utilisées pour les neutrons puisque la gamme du vecteur de diffusion analysée va rarement au delà de $Q_z \sim 0,3 \text{ \AA}^{-1}$.

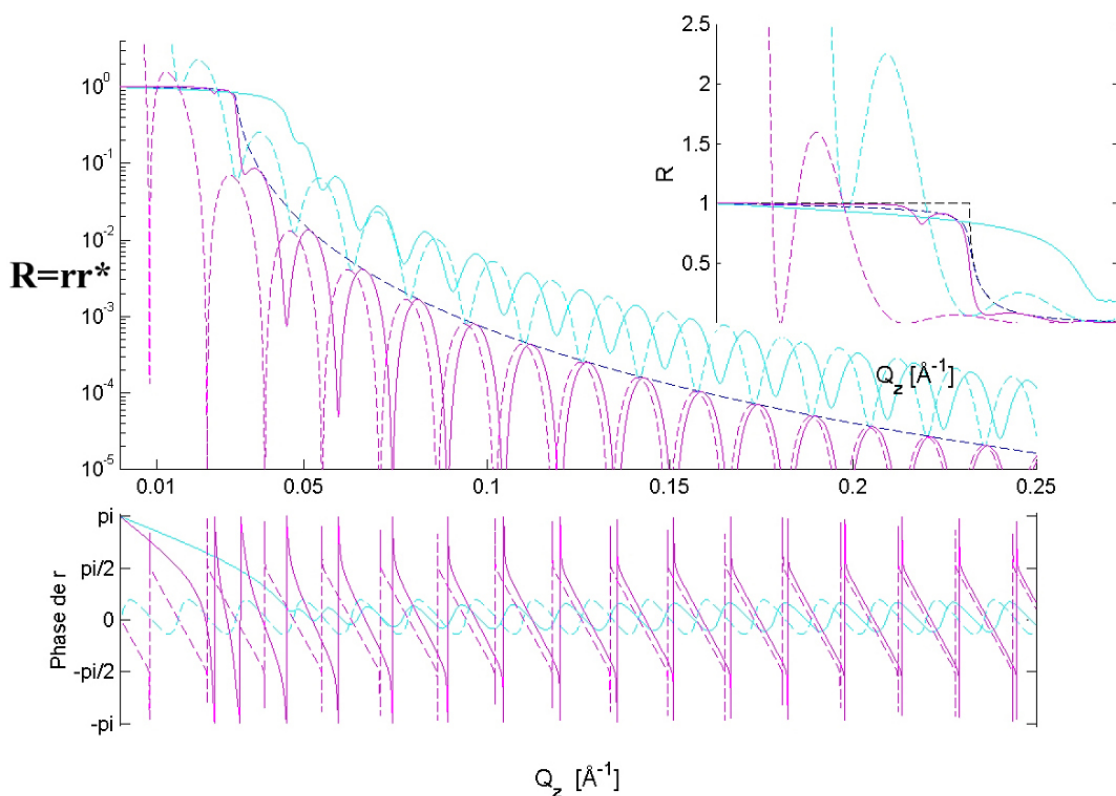


Figure 11 : Comparaison des réflectivités tracées avec une théorie cinématique basée sur l'utilisation des approximations de Born (pointillés) et avec une théorie dynamique (traits pleins)

Complément

Les calculs dynamiques sont présentés sur une figure précédente. Les courbes correspondant au substrat nu sans film dessus sont calculées suivant la théorie dynamique et tracées en pointillés noirs (avec et sans absorption)

3. Calcul des indices de réfraction d'un matériau pour les rayons-X et pour les neutrons

Nous allons voir comment calculer l'**indice de réfraction d'un matériau pour les rayons-X et pour les neutrons**, ceci à partir de sa composition isotopique et en utilisant les données tabulées dans la littérature.

Il est pratique de décomposer l'indice de réfraction (n) d'un matériau en une composante réelle ($1 - \delta$) et une composante imaginaire ($-i\beta$) :

$$n = 1 - \delta - i\beta \quad , \quad \text{avec} \quad \begin{cases} \Re(n) = 1 - \delta \\ \Im(n) = -\beta \end{cases}$$

Les composantes δ et β caractérisent respectivement la **diffusion** et l'**absorption** d'un matériau à l'échelle macroscopique, c'est-à-dire lorsque les composantes du vecteur de diffusion Q sont grandes par rapport aux dimensions des mailles atomiques projetées dans l'espace réciproque. Ces valeurs dépendent de la nature et de la longueur d'onde du rayonnement utilisé. Elles s'obtiennent à partir de constantes accessibles dans la littérature ou sur internet. On peut par exemple utiliser la **densité de longueur de diffusion** (ρb) et le **coefficient linéaire d'absorption** (μ) du matériau avec les expressions :

$$\begin{cases} \delta = \frac{(\rho b) \lambda_0^2}{2\pi} \\ \beta = \frac{\mu \lambda_0}{4\pi} \end{cases}$$

L'expression de δ n'est valide que lorsque (ρb) est faible. C'est le cas généralement pour les neutrons et les rayons-X puisque les matériaux ont une densité de longueur de diffusion (ρb) de l'ordre de 10^{-6} à $10^{-5} [\text{\AA}^{-2}]$, mais ce n'est pas le cas pour la lumière visible par exemple. Ainsi, le lien entre δ, β et respectivement (ρb) et μ n'est pas aussi simple que l'indique cette relation (François de Bergevin en discute dans la référence [3 [X-ray and Neutron Reflectivity : Principles and Applications]]). Nous verrons qu'il est possible de lever cette approximation tout en conservant l'utilisation des valeurs calculées ou tabulées habituellement pour (ρb) et (μ) . Ces deux constantes caractérisant un matériau sont particulièrement appréciées pour les raisons suivantes :

- La **densité de longueur de diffusion** (ρb) est indépendante de la longueur d'onde dans la gamme des énergies que nous considérons habituellement pour les rayons-X au laboratoire ou les faisceaux Neutrons (sauf dans le cas de l'utilisation de techniques très spécifiques bien au delà du cadre de ce cours). Lorsque les relations liant δ à (ρb) et β à μ ci-dessus sont valides et quand l'absorption du matériau est faible, la loi de Snell-Descartes relie δ_T à l'**angle critique du matériau** T par la relation simple :

$$\alpha_{0T}^{(c)} \approx \sqrt{2\delta_T}$$

- Le **coefficient linéaire d'absorption** μ a ici le même sens que celui utilisé dans la loi de Beer-Lambert pour la lumière visible. La transmission au travers d'une épaisseur x d'un matériau correspond au rapport du flux transmis par rapport au flux incident.

$$T = \frac{J_T}{J_I} = e^{-\mu x}$$

Soit :

Ainsi l'inverse de μ correspond à l'épaisseur traversée donnant une réduction de l'intensité du faisceau d'un facteur $\exp(1) \approx 2,72$, soit $\Delta J/J_I = (J_I - J_T)/J_I = 63,2$. Cette grandeur ($1/\mu$) s'appelle le **parcours libre moyen sans absorption** (en mètres).

Les valeurs de (ρb) et de μ d'un matériau sont différentes pour la lumière, les rayons-X et pour les neutrons. On peut par contre comparer ces grandeurs entre elles $(\rho b)_{\text{Neutrons}}$ ou $(\rho b)_{\text{RX}}$ ce qui permet entre autre de savoir si il vaut mieux utiliser le rayonnement X ou neutron pour étudier un échantillon donné. On recherche généralement le plus grand contraste entre couches successives (différence des (ρb)) ce qui se traduit par des franges d'interférences plus marquées dans le signal de R analysé. Des considérations expérimentales sont aussi à prendre en compte quant au choix de la technique et seront abordées dans un autre chapitre. Nous allons maintenant présenter leur calcul.

3.1. Photons X

La réduction de vitesse de propagation que subit une onde lumineuse arrivant du vide dans la matière peut s'expliquer avec des arguments simples: le champ électrique périodique de l'onde incidente exerce une force sur les électrons du milieu. Cette force entraîne l'oscillation des

électrons à la même fréquence que l'onde incidente ce qui se traduit par l'émission d'une onde électromagnétique de même fréquence. Le champ total résultant est la superposition cohérente des champs de l'onde incidente et de l'onde émise par le milieu. L'interférence de ces ondes conduit à une propagation plus lente dans le milieu matériel que dans le vide. Le même raisonnement s'applique à la propagation des rayons-X dans la matière.

Les rayons-X interagissent avec les électrons de l'atome. L'indice de réfraction aux rayons-X d'un matériau s'obtient à partir du **modèle phénoménologique classique de l'électron élastiquement lié**. L'équation fondamentale de la dynamique appliquée à l'électron tient compte d'une force de Lorentz due au champ électromagnétique local induit par l'onde incidente, d'une force de rappel électron-noyau (de constante de rappel $m_e \omega_{l,m}^2$) et d'un freinage de type visqueux de ses déplacements (de constante de friction ζ_i). La pulsation de l'électron m de l'atome l est notée $\omega_{l,m}$ ($\sim 10^{15}$ [rad/s]) et est infiniment plus faible que celle de l'onde électromagnétique incidente ω ($\sim 10^{19}$ [rad/s]). On suppose donc que l'électron va vibrer sous l'influence du champ incident à la pulsation forcée ω . Ce modèle conduit à l'expression suivante pour l'indice de réfraction [22 [Neutron and Synchrotron Radiation For Condensed Matter Studies]] :

Fondamental

$$n_l^2 = 1 + \frac{N_l^{atomes} e^2}{\epsilon_0 m_e} \sum_m^{electrons} \left(\frac{f_{l,m}}{\omega_{l,m}^2 - \omega^2 - i \omega \zeta_{l,m}} \right)$$

où m_e est la masse d'un électron ($9,109 \cdot 10^{-31}$ kg) et e est sa charge ($1,602 \cdot 10^{-19}$ C).

Le **facteur dediffusion complexe** $f_{l,m}$ peut se décomposer en la somme de trois termes pour l'atome l : Z_l , f_l , m' et $i f_l''$ qui sont accessibles dans la littérature pour chaque atome ou ion [23 [Relativistic Calculation of Anomalous Scattering Factors for X Rays], 24 [Determination of the Dispersive Correction $f'(E)$ to the Atomic Form Factor from X-ray Reflection]]. Ce sont respectivement le nombre total d'électrons, la partie réelle et la partie imaginaire du facteur de diffusion anormale. Seul le second et troisième terme dépendent de la longueur d'onde des rayons-X utilisés. En pratique, le nombre d'atomes par unité de volume s'obtient à partir de la densité massique ρ_l en atomes l et à partir de la masse atomique A_l , avec l'expression : $N_l^{atomes} = N_a \rho_l / A_l$, où N_a est la constante d'Avogadro égale à $6,022 \cdot 10^{23}$.

Pour un matériau uniquement constitué de l'élément chimique l on obtient pour les rayons-X :

$$\begin{cases} (\rho b)_l^{RX} = r_0 (\rho b)_l^{electron} = r_0 N_l^{atomes} (Z_l + f'_l) \\ (\mu)_l^{RX} = 2 \lambda_0 r_0 N_l^{atomes} (f''_l) \end{cases}$$

où $r_0 = e^2 / (4\pi\epsilon_0 m_e c^2) = 2,814 \cdot 10^{-15}$ m et correspond au **rayon classique de l'électron**. Cette constante quantifie la force de l'interaction d'un électron avec un photon X.

Remarque

Dans ces expressions, f'_l apparaît comme une correction au nombre total d'électrons Z_l de l'atome l dans l'expression de la densité électronique du matériau et f''_l introduit la présence de seuils d'absorption à des longueurs d'ondes particulières.

Ces deux corrections dépendent fortement de la longueur d'onde et peuvent être très importantes.

3.2. Neutrons et pseudo-potentiel de Fermi

Les neutrons interagissent principalement avec le noyau de l'atome. Dans le cadre de la théorie quantique, l'étude de la diffusion d'un neutron par un atome fixe passe par la recherche de la fonction d'onde Ψ solution de l'équation de Schrödinger. De manière analogue au traitement de la diffusion scalaire selon le formalisme optique présenté, la fonction d'onde Ψ est exprimée à partir de l'interférence d'une onde incidente (Ψ_I) et d'une onde diffusée (Ψ_{Dif}). On pose alors les conditions suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} H \Psi = E \Psi \\ \text{De solution: } \Psi = \Psi_I + \Psi_{Dif} \end{array} \right. \quad \text{avec} \quad \left\{ \begin{array}{l} H_0 \Psi_I = E \Psi_I \\ \Psi_{Dif} = G V \Psi \end{array} \right.$$

où les fonctions d'onde se notent Ψ_I pour l'onde plane incidente, Ψ_{Dif} pour l'onde diffusée supposée sphérique et Ψ pour la solution recherchée. H_0 est l'Hamiltonien du système en l'absence d'interactions avec le neutron, E est l'énergie du système qui est conservée au cours de la diffusion et G est a fonction de Green dite retardée pour l'onde sphérique. La solution doit satisfaire l'équation de Lippmann-Schwinger qui passe par la détermination de l'opérateur de transition T (équation 2.1.5 de la référence [25 [Neutron Scattering lengths and cross sections]]) :

$$\Psi = (1 + G T) \Psi_I$$

Fermi en 1936 proposa l'expression suivante pour l'opérateur de transition :

$$T(r) = \frac{2\pi\hbar^2}{m_N} a_{\text{noyau}} \delta(r)$$

où a est une longueur de diffusion égale au premier terme du développement de l'amplitude de diffusion $f = -a + ik_0 a^2 + O(k_0^2)$ et dont il est la limite basse énergies (équation 2.3.38 de la référence [25 [Neutron Scattering lengths and cross sections]]), les différents termes de f sont définis après l'équation 2.2.27). Ce résultat a été étendu au cas des atomes liés, en supposant qu'à l'instant de la collision, les interactions interatomiques étaient négligeables. Cette hypothèse dite "Impulse approximation" est depuis justifiée puisque les forces interatomiques sont typiquement de l'ordre de 1eV sur une distance de 1Å, alors que le potentiel d'interaction neutron-noyau est estimé à près de 40.10⁶ eV sur un rayon de quelques fm. Le pseudo-potentiel de Fermi permet de quantifier l'interaction neutron-noyau lié et a pour expression :

$$V^{\text{Fermi}}(r) = T(r) = \frac{2\pi\hbar^2}{m_N} b_{\text{noyau}} \delta(r)$$

Dans cette expression on a substitué à la constante a de l'opérateur la constante b_{noyau} appelée **longueur de diffusion liée**. Ces constantes sont liées par la relation :

$$b_{\text{noyau}} = \left(\frac{A_{\text{noyau}} I(m_N + 1)}{A_{\text{noyau}} I m_N} \right) a, \quad \text{où } A_{\text{noyau}} \text{ est la masse atomique du noyau.}$$

Cette substitution (de a par b) correspond au passage du référentiel attaché au centre de masse à celui attaché au laboratoire. Le mot lié ne se réfère pas à la liaison chimique et ces quantités sont toutes deux applicables aux gaz monoatomiques par exemple. L'expression de V est un pseudo-potentiel central de type cœur dur décrivant une interaction de très faible extension spatiale ($r = |\vec{r} - \vec{r}_{\text{noyau}}| = 10^{-5} \text{ \AA}$) avec le neutron situé à la position \vec{r} . L'interaction

est centrée sur la position du noyau \vec{r}_{noyau} telle un dirac $\delta(r)$ et est répulsive ($V^{Fermi} > 0$) pour les valeurs positives de b_{noyau} . Cette grandeur phénoménologique se détermine expérimentalement et évalue, en quelques sortes, la force de l'interaction neutron-matière.

Pour les neutrons, nous avons introduit dans le cadre de la théorie élémentaire de la diffusion l'indice de réfraction du matériau par l'expression :

$$n_i = \frac{n_i}{n_0} = \frac{k_i}{k_0} = \sqrt{1 - \frac{V_i}{E_0}} = \sqrt{1 - \frac{4\pi}{k_0^2}(\rho b)_i} = \sqrt{1 - \frac{\lambda_0^2}{\pi}(\rho b)_i}$$

Un formalisme plus rigoureux que nous n'explicitons pas ici en raison de sa complexité introduit des corrections au champ local [25 [Neutron Scattering lengths and cross sections]]. Il est souvent possible de séparer en deux contributions l'indice optique tout en gardant une excellente précision. De même, la longueur de diffusion du noyau lié se sépare aussi en une partie réelle et une partie imaginaire conduisant à l'expression :

$$b = \Re(b) - i \Im(b)$$

Remarque

Pour expliciter l'origine de ces deux contributions, nous devons rappeler que les neutrons sont sensibles au magnétisme et ont un spin $s = 1/2$ pouvant interagir avec les spins nucléaires I des atomes rencontrés. La longueur de diffusion liée devient donc dépendante de I et son expression la plus générale (*invariante par rotation*) est :

$$b = b^{Coh} + \frac{2b^{Inc}}{\sqrt{I(I+1)}} \vec{s} \cdot \vec{I}$$

Lorsque les noyaux ou les neutrons ne sont pas polarisés, la moyenne au cours du temps et sur toutes les orientations possibles des vecteurs spin annule le second terme de cette somme. On obtient donc la longueur de diffusion Cohérente : $\langle b \rangle = b^{Coh}$. Par contre l'expression du carré des fluctuations de b conserve pour cette moyenne une partie dépendante des spins et s'exprime comme : $\langle |\Delta b|^2 \rangle = \langle |b|^2 \rangle - |\langle b \rangle|^2$, où $\langle |b|^2 \rangle = (b^{Inc})^2$. Les **sections efficaces de diffusion** dites **cohérente et incohérente** s'obtiennent à partir de ces grandeurs. Leur somme correspond à la section efficace totale de diffusion :

$$\sigma^{Dif} = \sigma^{Coh} + \sigma^{Inc}, \text{ avec : } \begin{cases} \sigma^{Coh} = 4\pi (b^{Coh})^2 \\ \sigma^{Inc} = 4\pi ((b^{Inc})^2 - |b^{Coh}|^2) \end{cases}$$

Rappel

Un matériau constitué d'un élément chimique seul est généralement un mélange d'isotopes dont le spin est différent. Au désordre d'orientation des vecteurs spins s'ajoute alors un désordre isotopique. Une approche grossière de cette dépendance des sections efficaces en fonction des spins est de considérer qu'un neutron va sonder un matériau avec un potentiel d'interaction uniforme comme si ce milieu était constitué par un seul diffuseur effectif caractérisé par b^{Coh} et qu'il existe des fluctuations aléatoires (temps et espace) de cette interaction donnant lieu à une **diffusion isotrope dite incohérente** et caractérisée par b^{Incoh} .

Selon la théorie élémentaire de la diffusion, la section efficace d'absorption σ^{Ab} vaut simplement μ/ρ . En réalité l'onde cohérente est aussi atténuée par la diffusion ce qui est pris en compte dans la théorie de la dispersion dite rigoureuse. On trouve dans la référence [25 [Neutron Scattering lengths and cross sections]] les sections efficaces d'absorption pour différents éléments calculées pour une longueur d'onde de $1,798 \text{ \AA}$. Le lien entre σ^{Ab} et λ et b est :

$$\sigma^{Ab} = 2\lambda \langle \Im(b) \rangle$$

où la moyenne statistique s'effectue sur les spins des neutrons et des noyaux.

Exemple

Pour illustrer cette discussion, considérons le cas de **l'Hydrogène**, ${}_1H$ de spin $1/2$.

$$\begin{cases} b_H^{Coh} = -3,810^{-15} m \\ b_H^{Inc} = 25,3 10^{-15} m \end{cases}, \text{ soit } \begin{cases} \sigma_H^{Coh} = 1,8 bn \\ \sigma_H^{Inc} = 80 bn \end{cases}, \text{ ainsi } \sigma^{Dif} = 81,8 bn$$

Pour son isotope de masse double, le **Deutérium**, ${}_2D$ de spin 1, les valeurs obtenues sont très différentes :

$$\begin{cases} b_D^{Coh} = 6,6710^{-15} m \\ b_D^{Inc} = 4,0410^{-15} m \end{cases}, \text{ soit } \begin{cases} \sigma_D^{Coh} = 5,6 bn \\ \sigma_D^{Inc} = 2,03 bn \end{cases}, \text{ ainsi } \sigma^{Dif} = 7,67 bn$$

Ainsi la diffusion de H est pratiquement huit fois plus forte que celle de D mais est au contraire principalement incohérente. L'isotope D conduira donc pour une même structure moléculaire à un rapport signal cohérent sur bruit (incohérent) beaucoup plus avantageux que H et à une amplitude d'interaction cohérente beaucoup plus importante. Au sens défini ici, c'est elle qui permet d'atteindre l'information structurale. En réflectivité de neutrons la contribution incohérente est souvent assimilée à une source supplémentaire de bruit de fond.

On peut tenir compte de la perte d'intensité due à la diffusion incohérente d'un matériau en supposant que celle-ci se somme à l'intensité absorbée (*neutrons capturés dans l'échantillon*). Pour cela, on substitue à la section efficace d'absorption sa somme avec la section efficace de diffusion incohérente qui se trouve aussi dans la littérature. Pour le calcul on utilisera :

$$\begin{cases} (\rho b)_l^{Neutrons} = N_l^{isotope} b_l^{Coh} \\ (\mu)_l^{Neutrons} = N_l^{isotope} \sigma_l^{Ab} \end{cases}$$

Ces termes se trouvent dans la littérature pour chaque isotope et pour la valeur moyenne obtenue à partir des abondances isotopiques naturelles des isotopes d'un élément. Cette moyenne inclue toutes celles qu'il convient d'effectuer pour des neutrons non polarisés dans le cadre de la diffusion élastique.

3.3. Utilisation des tableaux pour le calcul des indices

Quelques valeurs sont données dans les tableaux suivants pour des éléments chimiques courants. De même les angles critiques et vecteurs de diffusion correspondants apparaissent dans le dernier tableau.

Méthode

Pour un composé chimique de masse moléculaire M_Σ et de densité volumique ρ_Σ , il faut considéré tous les éléments qui le constituent, c'est-à-dire tous les différents isotopes.

Les grandeurs macroscopiques, (ρb) et μ , s'obtiennent par sommations sur ces isotopes pondérées par leurs fractions volumiques Φ_l respectives. On peut aussi pondérer par les fractions en nombre des différents diffuseurs (ex : pour l'oxyde de silicium SiO_2 : $\Phi_{Si}^N = 1/2$, $\Phi_O^N = 2/3$ puisque $N_{Si} = 1$ et $N_O = 2$). On retient dans le cas général :

$$\left\{ \begin{array}{l} (\rho b)_\Sigma^{RX} = r_0 (\rho_\Sigma^{\text{electron}}) = r_0 (Na \rho_\Sigma) \sum_l^{\text{atomes}} \frac{\phi_l}{A_l} (Z_l + f'_l) \\ (\mu)_\Sigma^{RX} = 2 \lambda_0 r_0 (Na \rho_\Sigma) \sum_l^{\text{atomes}} \frac{\phi_l}{A_l} (f''_l) \end{array} \right.$$

et

$$\left\{ \begin{array}{l} (\rho b)_\Sigma^{\text{Neutrons}} = Na \left(\frac{\rho_\Sigma}{M_\Sigma} \right) \sum_l^{\text{isotopes}} N_l b_l^{\text{Coh}} \\ (\mu)_\Sigma^{\text{Neutrons}} = Na \left(\frac{\rho_\Sigma}{M_\Sigma} \right) \sum_l^{\text{isotopes}} N_l b_l^{\text{Abso}} \end{array} \right.$$

Remarque

Notons que $b_H^{\text{Coh}} < 0$ ce qui permet par mélanges ou substitution entre isotopes H et D, d'obtenir toute une gamme de densités de longueur de diffusion neutroniques $(\rho b)^{\text{Neutrons}}$ y compris la valeur nulle.

On appelle cette opération la variation de contraste par substitution isotopique et elle est très utilisée par exemple en mélangeant de l'eau légère (H_2O) et de l'eau lourde (D_2O). Avec les rayons-X il est possible de choisir un rayonnement dont l'énergie correspond à un seuil d'absorption électronique intense d'un élément de l'échantillon et de créer aussi une variation de contraste par diffusion dite anormale. L'origine physique de ces deux phénomènes est très différente.

Pour $\lambda_0 = 1,798 \text{ [\AA]}$		Rayons-X, (diffusion)	Rayons-X, (absorption)	Neutrons, Diffusion Cohérente.	Neutrons, Diffusion Incohérente.	Neutrons, Diffusion totale.	Neutrons, Absorption.
Eléments chimiques et composition isotopique (Spms).	A [g/mol]	$\sum_j^{\text{atomes}} Z_j$ en électrons et f'	f'' et μ/ρ en cm^2/g	(b_{Coh}) en \AA et σ_{Coh} en bn	(b_{Inc}) en \AA et σ_{Inc} en bn	σ_{Dif} en bn	σ_{Abs} en bn
Hydrogène = 99,985% ^1H (½) + 0,015% ^2D (1) + (12,32 a) ^3T (½)	1,008	1 et ?	?	-3,739 10^{-5} et 1,7568	25,27 10^{-5} et 80,26	82,02	0,3326
100% ^1H (½)	1	1 et ?	?	-3,7406 10^{-5} et 1,7583	25,27 10^{-5} et 80,27	82,03	0,3326
100% ^2D (1)	2	1 et ?	?	6,671 10^{-5} et 5,592	4,04 10^{-5} et 2,05	7,64	0,0005
100% ^3T (½)	3	1 et ?	?	4,792 10^{-5} et 2,89	-1,04 10^{-5} et 0,14	3,03	0
Carbone = 98,9% ^{12}C (0) + 1,10% ^{13}C (½)	12,011	6 et 0,017	0,009 et 3,9	6,64 10^{-5} et 5,550	-0,52 10^{-5} (^{13}C) et 0,001	5,551	0,0035
Oxygène = 99,762% ^{16}O (0) + 0,038% ^{17}O (5/2) + 0,2% ^{18}O (0)	16,004	8 et 0,47	0,032 et 10,5	5,80 10^{-5} et 4,23	0,004 10^{-5} (^{17}O) et 0,000	4,232	0,00019
Silicium = 92,23% ^{28}Si (0) + 4,67% ^{29}Si (½) + 3,10% ^{30}Si (0)	28,09	14 et 0,244	0,330 et 61,5	4,149 10^{-5} et 2,16	0,09 10^{-5} (^{29}Si) et 0,004	2,167	0,171
Soufre = 95,02% ^{32}S (0) + 0,75% ^{33}S (3/2) + 4,21% ^{34}S (0) + 0,02% ^{36}S (0)	32,092	16 et 0,319	0,557 et 90,8	2,804 10^{-5} et 1,0186	1,5 10^{-5} (^{33}S) et 0,007	1,026	0,53
Fer = 5,8% ^{54}Fe (0) + 91,7% ^{56}Fe (0) + 2,2% ^{57}Fe (½) + 0,3% ^{58}Fe (0)	55,85	26 et -1,179	3,204 et 300,1	9,45 10^{-5} et 11,22	- et 0,3	1,0	2,56

Tableau I : Caractéristiques de la diffusion des neutrons et des rayons-x de quelques éléments chimiques. Pour chaque élément : A est sa masse atomique. $1 \text{ bn} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-4} \text{ \AA}^2$. Issues des tables de référence. Les ? marquent les valeurs qui n'ont pas été reportées.

Tableau I : Caractéristiques de la diffusion des neutrons et des rayons-x de quelques éléments chimiques. Pour chaque élément : A est sa masse atomique. $1 \text{ bn} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-4} \text{ \AA}^2$. Issues des tables de référence. Les ? marquent les valeurs qui n'ont pas été reportées

Pour $\lambda_{Cu-K\alpha}=1,54[\text{\AA}]$			Rayons-x			Neutrons	
	Masse	Densité	Electronique	Diffusion	Absorption	Diffusion	Absorption
	M g/mol	$\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ et $V_{Elem} \text{\AA}^3$	$\sum_j^{atomes} Z_j$ et $\rho^{elec} \text{\AA}^{-3}$	$(\rho b)^{elec} \text{\AA}^{-2}$ et δ_{rx}	$\mu^{rx} \text{\AA}^{-1}$, $(1/\mu_{rx})$ et β_{rx}	$(\rho b_{Coh}) \text{\AA}^{-2}$ et δ_n	$\mu^n \text{\AA}^{-1}$, $(1/\mu^n)$ et β_n
Silicium (Si)	28,1	2,32 et 20,1	14 et 0,7	$19,92 \cdot 10^{-6}$ et $7,55 \cdot 10^{-6}$	$1,425 \cdot 10^{-6}$, 70 μm et $0,175 \cdot 10^{-6}$	$2,14 \cdot 10^{-6}$ et $0,808 \cdot 10^{-6}$	$8,5 \cdot 10^{-11}$, 1,17 m et $1,05 \cdot 10^{-11}$
Oxyde de silicium (SiO ₂)	60,1	2,05 et 48,7	30 et 0,616	$18,06 \cdot 10^{-6}$ et $6,81 \cdot 10^{-6}$	$7,03 \cdot 10^{-7}$, 14,2 μm et $8,6 \cdot 10^{-8}$	$3,23 \cdot 10^{-6}$ et $1,228 \cdot 10^{-6}$	$3,5 \cdot 10^{-11}$, 2,84 [m] et $4,3 \cdot 10^{-12}$
Eau (H ₂ O)	18	1 et 30	10 et 0,335	$9,88 \cdot 10^{-6}$ et $3,73 \cdot 10^{-6}$	$9,3 \cdot 10^{-8}$, 1,08 mm et $1,34 \cdot 10^{-8}$	$-5,614 \cdot 10^{-7}$ et $2,119 \cdot 10^{-7}$	$4,4 \cdot 10^{-11}$, 2,26 [m] et $4,49 \cdot 10^{-11}$
Psh (Polymère Polystyrène hydrogéné) (C ₈ H ₈)	104,15	1,05 et 164,7	56 et 0,34	$9,96 \cdot 10^{-6}$ et $3,67 \cdot 10^{-6}$	$4,15 \cdot 10^{-8}$, 2,41 mm et $5,08 \cdot 10^{-9}$	$1,41 \cdot 10^{-6}$ et $5,32 \cdot 10^{-6}$	$1,6 \cdot 10^{-10}$, 0,61 m et $2,00 \cdot 10^{-11}$
Psd (Polymère Polystyrène déutéré) (C ₈ D ₈)	112,2	1,13 et 164,9	"	"	"	$6,46 \cdot 10^{-6}$ et $2,44 \cdot 10^{-6}$	$1,95 \cdot 10^{-12}$, 51,3 m et $2,4 \cdot 10^{-13}$
PBMAh (C ₈ H ₁₄ O ₂) Polymère	142,2	1,052 et 224,5	78 et 0,3475	$9,91 \cdot 10^{-6}$ et $3,74 \cdot 10^{-6}$	$5,7 \cdot 10^{-8}$, 1,75 mm et $6,99 \cdot 10^{-9}$	$0,55 \cdot 10^{-6}$ et $2,07 \cdot 10^{-7}$	$2,08 \cdot 10^{-10}$, 0,48 m et $2,55 \cdot 10^{-11}$
PBMAAd (C ₈ H ₁₄ O ₂) Polymère	156,3	1,154 et 224,9	"	"	"	$7,03 \cdot 10^{-6}$ et $2,65 \cdot 10^{-6}$	$1,6 \cdot 10^{-12}$, 63,1 m et $1,94 \cdot 10^{-13}$
Maghémite (γ -Fe ₂ O ₃)	159,7	5 et 53	76 et 1,43	$39,9 \cdot 10^{-6}$ et $1,5 \cdot 10^{-5}$	$1,06 \cdot 10^{-4}$, 0,94 [μm] et $1,3 \cdot 10^{-6}$	$6,84 \cdot 10^{-6}$ et $2,58 \cdot 10^{-6}$	$1,0 \cdot 10^{-9}$, 0,10 m et $1,18 \cdot 10^{-10}$

Tableau II. Caractéristiques liées à la diffusion des matériaux pour quelques exemples. Pour chaque matériau : M est sa masse molaire en g/mol, ρ est sa densité massique en g/cm³, V_{Elem} est le volume de l'élément unitaire constitutif \AA^3 , $\sum Z_i$ est le nombre d'électrons, ρ^{elec} est sa densité électronique en électrons/ \AA^3 , les (ρb) sont les densités de longueur de diffusion électroniques (rayons-x) ou cohérente (neutrons), les δ et β sont les décréments et les parties imaginaires des indices de réfraction et les μ sont les coefficients d'absorption linéaire électronique ou neutronique.

Tableau II. Caractéristiques liées à la diffusion des matériaux pour quelques exemples. Pour chaque matériau : M est sa masse molaire en g/mol, ρ est sa densité massique en g/cm³, V_{Elem} est le volume de l'élément unitaire constitutif \AA^3 , $\sum Z_i$ est le nombre d'électrons, ρ^{elec} est sa densité électronique en électrons/ \AA^3 , les (ρb) sont les densités de longueur de diffusion électroniques (rayons-x) ou cohérente (neutrons), les δ et β sont les décréments et les parties imaginaires des indices de réfraction et les μ sont les coefficients d'absorption linéaire électronique ou neutronique

L'angle critique et son vecteur de diffusion associé sont obtenus à partir de ces valeurs :

$Q_{0T}^{(c)}$ est indépendant de la longueur d'onde, pas $\alpha_{0T}^{(c)}$ calculé pour $\lambda_{Cu-K\alpha}=1,54 \text{ \AA}$.	Rayons-x		Neutrons	
	$Q_{0T}^{(c)}$, en $1/\text{\AA}$	$\alpha_{0T}^{(c)}$, degrés	$Q_{0T}^{(c)}$, $1/\text{\AA}$	$\alpha_{0T}^{(c)}$, degrés
Silicium (Si)	0,0316	0,222	0,0102	0,0715
Oxyde de silicium (SiO ₂)	0,0301	0,2116	0,0127	0,0895
Eau (H ₂ O)	0,0222	0,1564	0	0
Polymère PSh (C ₈ H ₈)	0,0220	0,154	0,00842	0,0591
Polymère PSd (C ₈ D ₈)	"	"	0,0180	0,126
Polymère PBMAh (C ₈ H ₁₄ O ₂)	0,0222	0,156	0,053	0,037
Polymère PBMAh (C ₈ D ₁₄ O ₂)	"	"	0,019	0,132
Maghémite (γ -Fe ₂ O ₃)	0,045	0,314	0,0185	0,13

Tableau III. Angles critiques $\alpha_{0T}^{(c)}$ dans le vide (0) des différents matériaux considérés pour une longueur d'onde $\lambda_0 \sim 1,54 \text{ \AA}$, et vecteurs de diffusion associés $Q_{0T}^{(c)}$.

Tableau III

III.Exercices

Ces exercices ont pour objectif de mettre en pratique quelques notions fondamentales abordées dans le cours.

1. Comparaison des indices de réfraction aux neutrons et rayons-X

Prenons comme exemple le silicium (*mélange isotopique*) très utilisé en microélectronique. Sa densité massique est $\rho_{Si} = 2,32 \text{ g/cm}^3$ et de masse atomique $A_{Si} = 28,1 \text{ g/mol}$. Celui-ci est étudié avec un rayonnement de neutrons ou de rayons-X de longueur d'onde égale : $\lambda_0 = 1,54 \text{ \AA}$ (correspondant pour les rayons-X aux raies d'émission K_α du Cuivre très utilisées au laboratoire).

Question

[Solution n°1 p 53]

En utilisant les caractéristiques des éléments chimiques données dans les tableaux du cours, calculer les indices de réfraction (partie réelle et imaginaire) aux rayons-X et aux neutrons.

2. Détermination de la densité électronique et de l'épaisseur d'une couche mince d'or par réflectivité spéculaire des rayons-X

Nous allons déterminer l'épaisseur d'une couche mince d'or déposée sur un substrat de verre (type SiO_2). La figure présente la courbe de réflectivité X mesurée en bleu et la courbe rouge est obtenue suivant un calcul dynamique de la réflectivité utilisant l'algorithme de Parratt introduit dans le cours. En ajustant les paramètres du modèle on obtient la courbe rouge conduisant à l'épaisseur, la rugosité et la densité électronique de la couche d'or ainsi que la densité électronique du substrat et sa rugosité (la prise en compte de la rugosité dans le calcul n'est pas présentée dans ce chapitre du cours).

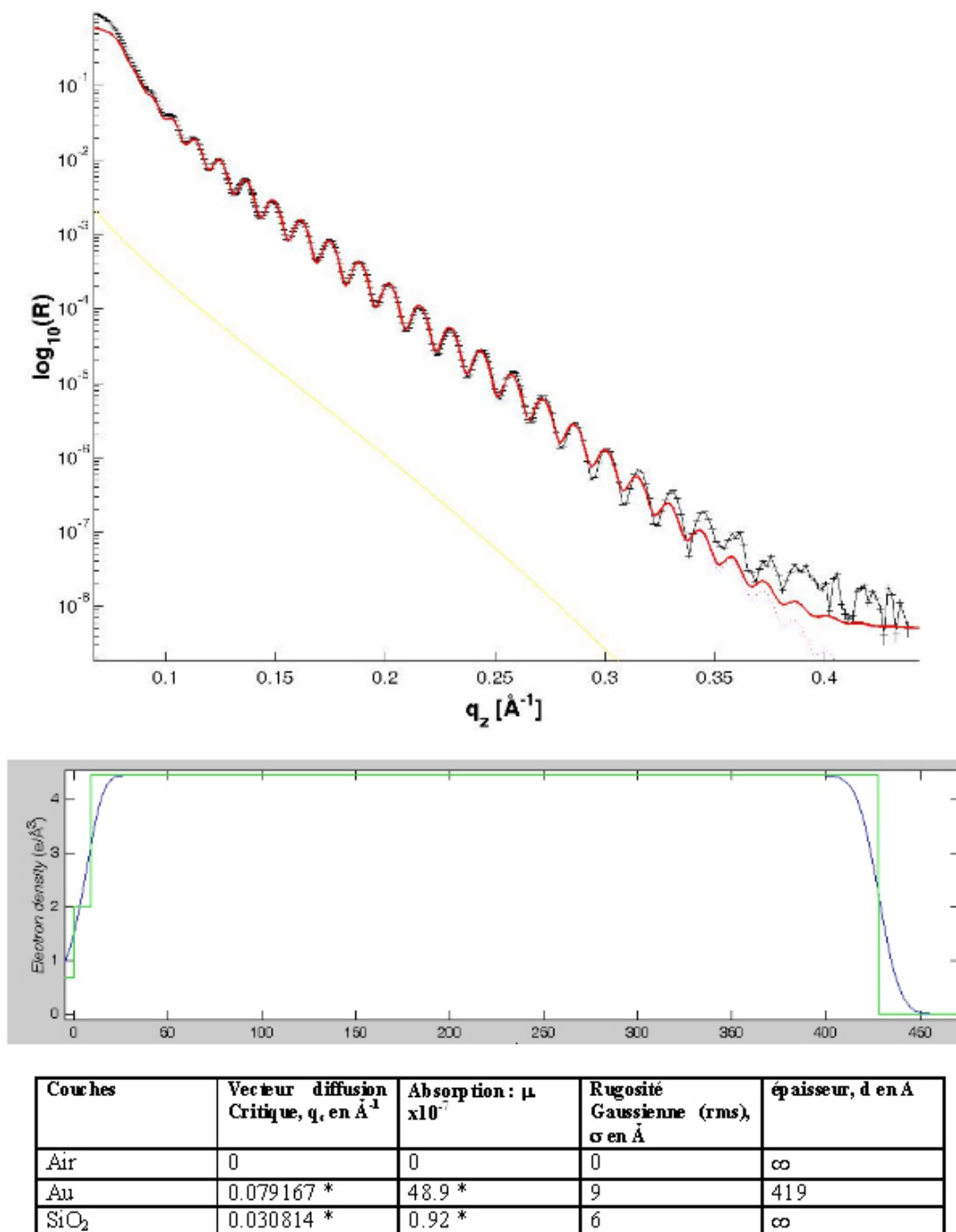


Figure 12

Les Paramètres d'ajustement du modèle qui sont fixés aux valeurs attendues sont marqués d'une étoile dans le tableau. Ils sont calculés pour une énergie de 8050,9122 eV (soit $\lambda_0 = 1,540\text{\AA}$), soit $Z_{Au}^{eff} = 74.9851$ électrons effectifs (l'or a 79 électrons mais la correction anormale f' à Z diminue la valeur effective du nombre d'électrons participant à l'interaction avec le rayonnement X).

Question 1**[Solution n°2 p 53]**

Calculer à partir des paramètres issus de l'analyse de la réflectivité, les propriétés suivantes de la couche d'or :

- L'angle critique en degrés à partir du vecteur de diffusion critique de la couche d'or.
- Sa densité de longueur de diffusion (en Å^{-2}) à partir de son angle critique.
- Sa densité électronique en électrons/ Å^3 .
- Sa densité atomique.

Question 2**[Solution n°3 p 54]**

A partir de la réflectivité mesurée, il est possible de remonter assez précisément à l'épaisseur de la couche dense d'or simplement à partir de la période des oscillations. Dans le cas présent, on compte 7 oscillations entre l'angle d'incidence 1,040 et 1,809. En déduire l'épaisseur de la couche d'or.

Solution des exercices

>Solution n°1 (exercice p. 50)

Pour les neutrons, les diffuseurs élémentaires sont les noyaux de l'atome dont la densité volumique vaut $N_{Si}^{atomes} = N_A \rho / A_l = 5.10^{22}$ diffuseurs/cm³. Pour les rayons-X, les diffuseurs sont les électrons dont la densité volumique est 14 fois plus élevée puisque $Z_{Si} = 14$. La "force de diffusion" des diffuseurs élémentaires est quantifiée en termes de longueur de diffusion effective. Celle de l'électron diffusant les rayons-X vaut : $r_0 \equiv b_e = 2,82.10^{-5} \text{ \AA}$ alors que celle du noyau de silicium diffusant les neutrons vaut ici : $b_{Si}^{Coh} = 4,15.10^{-5} \text{ \AA}$. Le produit des densités de diffuseurs par leur longueur de diffusion nous conduit aux densités de longueur de diffusion, elles valent ici respectivement $(\rho b)_{Si}^{RX} = 1,992.10^{-5} \text{ \AA}^{-2}$ et $(\rho b)_{Si}^{Neutrons} = 2,14.10^{-6} \text{ \AA}^{-2}$. Ainsi pour le Silicium, c'est donc la densité de diffuseurs qui est principalement à l'origine de l'écart entre ces deux valeurs. Par conséquent, l'angle critique aux rayons-X $\alpha_{0Si}^{(c,RX)}$ sera plus grand qu'aux neutrons $\alpha_{0Si}^{(c,Neutrons)}$ d'environ un facteur :

$$\rho_{Si} = 2,32 \text{ g/cm}^3$$

Si nous comparons les absorptions du silicium pour ces deux rayonnements, nous pouvons considérer que les rayons-X sont rapidement absorbés alors que les neutrons sont très

pénétrants, en effet : $\frac{1}{\mu_{Si}^{RX}} \approx 7 \text{ \mu m}$ et $\frac{1}{\mu_{Si}^{Neutrons}} \approx 1,17 \text{ m}$

Cette remarque vaut pour la majorité des éléments constituant les matériaux usuels, par contre il existe des isotopes particuliers très absorbants pour les neutrons (*Li*, ¹¹³*Cd*,...). A titre d'exemple, le ¹¹³*Cd* a une section efficace d'absorption de 20600 barns alors qu'elle n'est que de 0,34 pour ¹¹⁴*Cd*. L'isotope 113 est souvent utilisé comme absorbeur de neutrons.

>Solution n°2 (exercice p. 52)

Dans les conditions de mesure dites spéculaires, le vecteur de diffusion est lié à l'angle d'incidence du faisceau suivant la relation :

$$A_{Si} = 28,1 \text{ g/mol}$$

Il permet de calculer approximativement le paramètre δ_{Au} et d'en déduire la densité de longueur de diffusion de l'or :

$$\lambda_0 = 1,54 \text{ \AA}$$

on obtient $(\rho b)_{Au}^{RX} \approx 2\pi \frac{\delta}{\lambda_0^2} \approx 124,72 * 10^{-6} \text{ \AA}^{-2}$

La densité électronique de l'or est obtenue en divisant (ρb) par le rayon classique de l'électron $r_0 = 2,8179.10^{-5} \text{ \AA}$. On obtient : $(\rho)_{Au}^{électrons} = 4,426 \text{ électrons/\AA}^3$.

On peut aussi en déduire une :

- Densité atomique : $\rho_{Au}^{At} = 0.0590 \text{ Au/\AA}^3$.
- Densité massique : $\rho_{Au}^{Weight} = 19.3 \text{ g/cm}^3$.
- Densité volumique : $\rho_{Au}^{Vol} = 0.0980 \text{ mol/cm}^3$.

avec $M_{Au} = 196,967 \text{ g/mol}$. Toutes ces valeurs sont conformes à la structure de l'or dense attendu (ici l'orientation de la couche d'or est 111 et s'obtient en mesurant les pics de diffraction aux plus grands angles).

>Solution n°3 (exercice p. 52)

On en déduit la période de l'oscillation en degrés: $(1,809 - 1,040)/7 \sim 0,10971$. Elle correspond à une période en vecteur de diffusion égale à :

$$K_\alpha$$

La formule donnée dans le cours pour le calcul de la réflectivité d'une couche homogène sur un substrat permet de relier cette période dans l'espace réciproque à l'épaisseur de la couche dans l'espace réel suivant le calcul :

$$N_{Si}^{atomes} = Na \rho / A_l = 5,10^{22}$$

Bibliographie

[Compt. Rend. Ac. Sc.] A.HERPIN , *Compt. Rend. Ac. Sc.* 225 , - , - , 1947, 182.

[Determination of the Dispersive Correction $f'(E)$ to the Atomic Form Factor from X-ray Reflection] F.STANGLMEIER, B.LENGELER, W. WEBER, H.GOBEL AND M.SCHUSTER , *Determination of the Dispersive Correction $f'(E)$ to the Atomic Form Factor from X-ray Reflection* , Acta Cryst. 1992. A48, 626-639.

[Ellipsometry and polarized light] R.M.A.AZZAM AND N.M.BASHARA , *Ellipsometry and polarized light* , - , - , 1977. Conventions adoptées par les participants de la conférence internationale de 1968 sur l'ellipsométrie tenue à l'université de Nebraska. Elles sont liées notamment à une dépendance temporelle en $\exp(+i\omega t)$.

[Evanescent Waves in Optical Imaging] OLOF BRYNGDAHL , *Evanescent Waves in Optical Imaging* , Progress in optics XI, - , - , 1973, 169-221.

[Light reflection from films of continuously varying refractive index] R.JACOBSSON, *Light reflection from films of continuously varying refractive index*, Progress in Optics, Vol. 5, ed. E.Wolf, Amsterdam, North Holland Publishing Company and New York, J.Wiley and Sons, 1965, p. 247.

[Mécanique Quantique] A. MESSIAH , *Mécanique Quantique* , Dunod-Paris , - , 1958.

[Neutron and Synchrotron Radiation For Condensed Matter Studies] HERCULES , *Neutron and Synchrotron Radiation For Condensed Matter Studies* , Springer-Verlag—Les éditions de Physique , Vol.1, 1999.

[Neutron Optics, An introduction to the theory of Neutron Optical Phenomena and Their Applications] VARLEY F.SEARS , *Neutron Optics, An introduction to the theory of Neutron Optical Phenomena and Their Applications* , Oxford University Press , - , 1989.

[Neutron Scattering lengths and cross sections] VARLEY F.SEARS , *Neutron Scattering lengths and cross sections* , Neutron News , Vol. 3, No. 3, 1992.

[Phil. Mag. 2] G.B.AIRY , *Phil. Mag. 2* , 20, - , - , 1833.

[Physica B] JENS ALS-NIELSEN , *Physica B* , -, 126, 1984, 145-148.

[Principles of Optics] M.BORN AND E.WOLF , *Principles of Optics* , Pergamon , London , First Published 1959, 7th edition, 1999.

[Proc. Roy. Soc.] LORD RAYLEIGH , *Proc. Roy. Soc.* , 1912, 96A, 207.

[Quantum mechanics] C.COHEN-TANNOUJJI,B.DIU,F.LALOE , *Quantum mechanics* , - , - , 1977, Vol.1&2.

[Recherches sur la propagation des ondes électromagnétiques sinusoidales dans les milieux stratifiés. Applications aux couches minces] F.ABELÈS , *Recherches sur la propagation des ondes électromagnétiques sinusoidales dans les milieux stratifiés. Applications aux couches minces* , - , - , 1950, Annales de physique 5 , 596-640 , 706-782.

[Relativistic Calculation of Anomalous Scattering Factors for X Rays] DON T.CROMER AND D.LIBERMAN , *Relativistic Calculation of Anomalous Scattering Factors for X Rays* , The Journal of Chemical Physics , Vol.53, 5 , 1970.

[Smectic-A Order at the Surface of a Nematic Liquid Crystal: Synchrotron X-Ray Diffraction] JENS ALS-NIELSEN, F.CHRISTENSEN, AND P.S.PERSHAN , Smectic-A Order at the Surface of a Nematic Liquid Crystal: Synchrotron X-Ray Diffraction , Phys. Rev. Lett. 48, 1107, 1982.

[Surface Studies of Solids by Total Reflection of X-Rays] L.G.PARRATT , *Surface Studies of Solids by Total Reflection of X-Rays* , Phys. Rev. 95 359, 1954. S.H.

[The Feynman Lectures on Physics] FEYNMAN, *The Feynman Lectures on Physics*, Leighton and Sands, InterEditions, Paris, 1979.

[Theory of Neutron Scattering from Condensed Matter] STEPHEN W.LOVESEY, *Theory of Neutron Scattering from Condensed Matter* , Clarendon Press , Oxford Science Publications , 1984, Vol.1.

[Theory of Reflection of Electromagnetic and Particles Waves] J.LEKNER, *Theory of Reflection of Electromagnetic and Particles Waves*, Nijhoff, Dordrecht, 1987.

[X-ray and Neutron Reflectivity : Principles and Applications] J.DAILLANT AND A.GIBAUD (Eds.) , *TX-ray and Neutron Reflectivity : Principles and Applications* , Springer-Verlag , Berlin Heidelberg , 1999.

Webographie

[**Matlab**] Matlab. *The Math Works*, Inc.

Crédit des ressources

Figure 1 : Équations de continuité au dioptre plan p. 7

<http://creativecommons.org/licenses/publicdomain/2.0/fr/>

Figure 2 : Passage milieu I vers un matériau plus réfringent (milieu T) de la lumière visible p. 9

<http://creativecommons.org/licenses/publicdomain/2.0/fr/>

Figure 3 : Illustration de la phase d'une onde progressive représentée par un nombre complexe p. 10

<http://creativecommons.org/licenses/publicdomain/2.0/fr/>

Figure 4 : p. 11

<http://creativecommons.org/licenses/publicdomain/2.0/fr/>

Figure 5 : Représentation du trièdre direct (k, E, B) pour l'onde TE (transverse électrique, polarisée "s") p. 12

<http://creativecommons.org/licenses/publicdomain/2.0/fr/>

Figure 6 : Représentation des réflectivités ($R=rr^*$) sur une échelle logarithmique et linéaire (en insert). La phase de r est représentée dessous p. 24

<http://creativecommons.org/licenses/publicdomain/2.0/fr/>

Figure 7 : Représentation du carré du module des coefficients de transmission ($|t|^2=tt^*$) p. 25

<http://creativecommons.org/licenses/publicdomain/2.0/fr/>

Figure 8). p. 26

<http://creativecommons.org/licenses/publicdomain/2.0/fr/>

Figure 10 : Représentation schématique d'une multicouche p. 33

<http://creativecommons.org/licenses/publicdomain/2.0/fr/>

Figure 11 : Comparaison des réflectivités tracées avec une théorie cinématique basée sur l'utilisation des approximations de Born (pointillés) et avec une théorie dynamique (traits pleins) p. 40

<http://creativecommons.org/licenses/publicdomain/2.0/fr/>

Tableau I : Caractéristiques de la diffusion des neutrons et des rayons-x de quelques éléments chimiques. Pour chaque élément : A est sa masse atomique. $1 \text{ bn} = 100 \text{ fm}^2 = 10^{-4} \text{ \AA}^2$. Issues des tables de référence. Les ? marquent les valeurs qui n'ont pas été reportées p. 47

<http://creativecommons.org/licenses/publicdomain/2.0/fr/>

Tableau II. Caractéristiques liées à la diffusion des matériaux pour quelques exemples. Pour chaque matériau : M est sa masse molaire en g/mol, ρ est sa densité massique en g/cm³, V_{Elem} est le volume de l'élément unitaire constitutif Å³, $\sum Z_i$ est le nombre d'électrons, ρ_{elec} est sa densité électronique en électrons/Å³, les (ρ_b) sont les densités de longueur de diffusion électroniques (rayons-x) ou cohérente (neutrons), les δ et β sont les décréments et les parties imaginaires des indices de réfraction et les μ sont les coefficients d'absorption linéaire électronique ou neutronique p. 48

<http://creativecommons.org/licenses/publicdomain/2.0/fr/>

Tableau III p. 49

<http://creativecommons.org/licenses/publicdomain/2.0/fr/>

Figure 12 p. 51

<http://creativecommons.org/licenses/publicdomain/2.0/fr/>