

LP36 – DIFFRACTION PAR DES STRUCTURES PÉRIODIQUES

10 juin 2021

Deleuze Julie & Jocteur Tristan

Niveau : jsp

Bibliographie

- ✦ *Optique physique*, **Taillet**
- ✦ *Optique*, **Houard**
- ✦ *Physique des électrons dans les solides*, **Alloul**
- ✦ *Physique des solides*, **Ashcroft**

Table des matières

1 Réseaux plans unidimensionnels	2
1.1 Généralités	2
1.2 Diffraction	3
2 Spectromètre à réseau	5
2.1 Dispersion	5
2.2 Pouvoir de résolution	5
2.3 Limitations	6
3 Diffraction par une structure cristalline	7
3.1 Réseaux cristallins	7
3.2 Formulation de Bragg et de Von Laue	7
3.2.1 Méthode de Laue	9
3.2.2 Méthode du cristal tournant	10
3.2.3 Méthode des poudres (Debye-Scherrer)	10
3.3 Méthode de Debye-Scherrer	10

Remarques sur les leçons précédentes

- **2017** : Il faut traiter de diffraction par des structures périodiques et pas seulement d'interférences à N ondes.
- **2015** : Il est important de bien mettre en évidence les différentes longueurs caractéristiques en jeu.

Sur le portail des études ya une leçon de 2018 qui a eu une correction très flatteuse. Le plan est le même que celui des Cléments et de Corentin est se tient assez bien donc je propose on fonce

Introduction



Diffraction par un DVD



Montrer les irisations obtenues par réflexion d'une source de lumière blanche par un DVD

Les sillons gravés sur le DVD constituent une structure périodique. On voit apparaître dans la figure de diffraction les composantes spectrales de la source. Essayons de comprendre le lien entre la structure de l'objet diffractant et la figure de diffraction dans le cas d'un objet diffractant périodique.

1 Réseaux plans unidimensionnels

✍ Taillet

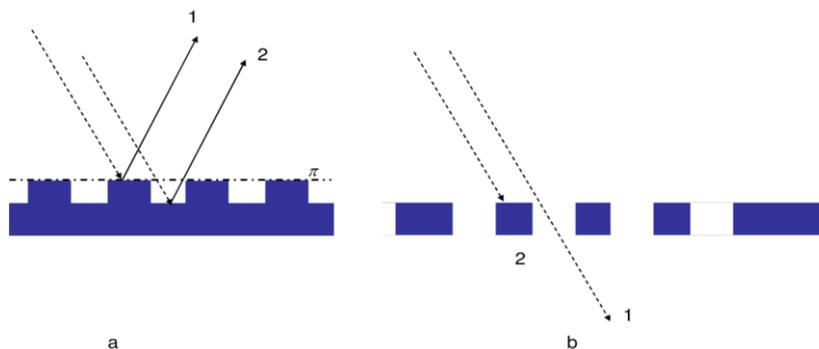
1.1 Généralités

Houard p 315

Un réseau plan unidimensionnel est un objet diffractant dont la transmittance t (rapport du champ en 0^+ sur le champ en 0^-) est une fonction périodique. Il est constitué de N traits semblables, parallèles, distants d'un pas d pelé pas du réseau et possède une longueur totale L très grande devant d .

ODG : Les réseaux usuels comportent 50 à 600 traits par mm sur une largeur de 5cm, les réseaux les plus performants comportent jusqu'à 5000 traits par mm sur 10 cm de large.

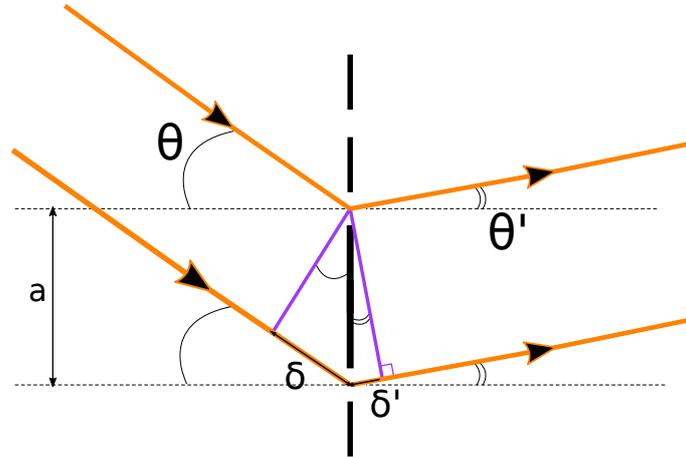
On distingue plusieurs types de réseaux : les réseaux par transmission ou réflexion ainsi que les réseaux de phase et/ou d'amplitude. Ici nous nous intéresserons aux réseaux d'amplitude par transmission.



Un réseau d'amplitude par transmission s'obtient en gravant des traits à l'aide d'une pointe de diamant sur une lame de verre recouverte d'un dépôt métallique opaque. On obtient ainsi une alternance de traits transparents de transmittance $t = 1$, et de trait opaques de transmittance $t = 0$. Les réseaux par réflexion sont gravés sur une surface métallique et induisent une variation périodique du coefficient de réflexion. Ils présentent deux avantages par rapport aux réseaux par transmission :

- Ils n'utilisent pas de support en verre et s'affranchissent donc de la dispersion liée à la variation d'indice de celui-ci,
- Ils sont utilisables dans l'UV et l'IR où le verre est absorbant.

1.2 Diffraction



Condition d'interférence constructive La différence de marche totale δ_{tot} entre les faisceaux incident et diffracté s'écrit :

$$\begin{aligned}\delta_{tot} &= \delta' - \delta \\ \delta_{tot} &= a (\sin \theta' - \sin \theta)\end{aligned}$$

D'où la condition d'interférences constructives, dite de Bragg :

$$a (\sin \theta' - \sin \theta) = p\lambda \quad , p \in Z$$

On peut réécrire avec les vecteurs d'onde : $\vec{a} \cdot (\vec{k}' - \vec{k}) = 2\pi p, \quad p \in Z$

L'animation au lien <http://www.geogebra.org/m/jGCbThDQ> ($e = \lambda = 500 \times 10^{-9}$ m / N entre 5 et 80 / $a = 210^{-6}$ m) permet de visualiser la condition sur les sinus : la droite horizontale rouge en pointillés donne la valeur de $\sin \theta$. À partir de cette référence on trace les droites horizontales distantes de $\pm \frac{p\lambda}{a}$. Leurs intersections avec le cercle trigonométrique déterminent les directions qui correspondent à la condition de Bragg et donc aux maxima d'intensité.

On observe aussi la limitation des ordres disponibles, qu'on peut retrouver à partir de la relation de Bragg : en incidence normale $\theta = 0$, on a $\sin \theta' = \frac{p\lambda}{a}$. Comme le sin est compris entre -1 et 1 , il faut $|p| < \frac{a}{\lambda}$.

OdG :

Avec $\lambda = 500 \times 10^{-9}$ m (en gros le spectre visible) et $n = 500$ traits /mm, on obtient $|p| < 4$

Intensité diffractée Maintenant, déterminons l'intensité diffractée. On rappelle le calcul l'amplitude $\underline{\Psi}$ de l'onde diffractée dans une direction angulaire θ' pour une onde incidente selon θ : Le principe de Huygens-Fresnel donne, dans l'approximation de Fraunhofer,

$$\underline{\psi}(u) = \underline{K} \int \underline{T}(x) e^{-2i\pi(\vec{k}' - \vec{k}) \cdot \vec{r}} dx = \underline{K} \int \underline{T}(x) e^{-2i\pi ux} dx, \quad \text{avec } u = \frac{1}{\lambda} (\sin \theta' - \sin \theta)$$

u est la fréquence spatiale. Dans le cas d'un réseau de pas a la transmittance $\underline{T}(x)$ s'écrit

$$\underline{T}(x) = \sum_{m=0}^{N-1} t(x - ma)$$

On a donc

$$\begin{aligned}\underline{\psi} &= K \sum_{m=0}^{N-1} \int \underline{t}(x - ma) e^{-2i\pi ux} dx \\ \underline{\psi} &= K \underbrace{\left(\sum_{m=0}^{N-1} e^{2i\pi uma} \right)}_{S(u)} \cdot \underbrace{\int \underline{t}(X) e^{-2i\pi uX} dX, X = x - ma}_{f(u)}\end{aligned}$$

Le terme $f(u)$ provient de la diffraction par une fente, c'est le facteur de forme. $S(u)$ traduit les interférences à N ondes, c'est le facteur de structure.

Remarques La transmittance est une convolution entre (presque) un peigne de Dirac et la transparence d'une fente. On retrouve donc que l'amplitude est le produit des transformées de Fourier des deux fonctions. Si $N \rightarrow +\infty$, alors on a un vrai peigne de Dirac, dont la TF est aussi un peigne de Dirac.

On reconnaît en $f(u)$ la \mathcal{TF} de \underline{t} en u . Pour calculer $S(u)$, on reconnaît la somme de termes d'une suite géométrique de raison $\langle 1$. Après calcul, sûrement à faire au tableau, il vient

$$I(\theta) = \underline{\psi}\underline{\psi}^* = I_0 |\mathcal{TF}[\underline{t}](u)|^2 \cdot \underbrace{\left(\frac{\sin N\pi ua}{\sin \pi ua} \right)^2}_{R(u)}$$

Étudions le facteur $R(u)$ qui rassemble les paramètres du réseau :

- $R(\theta)$ max pour $\sin \theta = \frac{\lambda p}{a}$
- $R(\theta) = 0$ pour $\sin \theta = \frac{\lambda p}{Na}$
- $R(\theta = 0) = N^2$

Avec le code `.py` et en jouant sur le slider pas du réseau et nombre total de traits éclairés bien insister sur la correspondance entre les paramètres du réseau et la figure de diffraction : plus il y a de traits par mm, plus les maxima d'intensité pour une longueur d'onde donnée sont écartés. Plus le nombre de traits éclairés augmente, plus les pics d'intensité sont fins : on aura donc intérêt à éclairer autant le réseau sur la plus grande zone possible, par exemple en élargissant le faisceau laser à l'aide d'un objectif de microscope ou d'une lentille cylindrique.

Pour avoir la vraie fonction $I(\theta)$, il faut aussi tenir compte de $|\mathcal{TF}[\underline{t}](u)|^2$. Pour des ouvertures de type fente de longueur e , un calcul effectué dans un précédent cours donne $|\mathcal{TF}[\underline{t}](u)|^2 = \text{sinc}^2 \frac{\pi e \sin \theta}{\lambda}$. On a alors l'expression totale de $I(\theta)$. On peut remarquer que pour $N = 2$ on retrouve l'intensité diffractée par des fentes d'Young.

Diffraction d'une lampe spectrale par un réseau de traits



Faire l'image d'une fente (assez fine mais pas trop pour avoir de la lumière) sur le mur ou sur un écran par une lentille convergente de focale adaptée : pas besoin d'une image de 3 m de haut, mais pas de 2 cm non plus. Placer un filtre interférentiel sur le faisceau de la lampe à Hg afin de ne sélectionner qu'une seule raie. Nous avons choisi la raie verte car c'est ce que nous préférons mais vous pouvez choisir le doublet jaune ou la raie bleu (mais moins lumineuse). Montrer la diffraction (en monochromatique grâce au filtre) et montrer les ordres 0, +1, -1 etc... Enlever le filtre et montrer que le phénomène est dispersif : les raies de la lampe à vapeur de mercure ne sont pas diffractées avec le même angle. Si vous voulez voir les deux raies de Hg dans l'UV, placer une feuille blanche sur l'écran/mur. Noter que le rouge est plus dispersé que le bleu, c'est le contraire du prisme.

| Une application à ce phénomène dispersif : le spectromètre à réseau



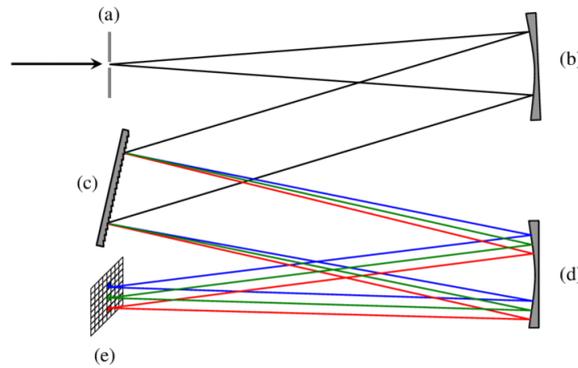
2 Spectromètre à réseau



Spectromètre didactique



2.1 Dispersion



On connaît un autre système dispersif : le prisme. Il existe quelques différences notables :

- Un prisme ne possède qu'une irisation et le réseau autant que d'ordres p permis.
- Un prisme dévie plus le bleu que le rouge car $n(\lambda_{\text{bleu}}) > n(\lambda_{\text{rouge}})$. Pour un réseau, à un ordre p donné, le rouge est plus dispersé que le bleu (à un ordre p donné, $\sin \theta' \propto \lambda$ et $\lambda_{\text{rouge}} > \lambda_{\text{bleu}}$).

Pour quantifier la dispersion d'un filtre, on définit le pouvoir de dispersion $D = \frac{d\theta'}{d\lambda}$. En différenciant la formule des réseaux à θ , m et d fixé on trouve $D = \frac{p}{a \cos \theta'}$ pour un ordre p donné.

Pour des angles θ'_p faibles, on a $D = \frac{p}{d} = C^{\text{st}}$, la déviation entre deux raies du spectre est alors proportionnelle à leur différence de longueur d'onde, on parle de spectre normal. Dans le cas général, on remarque que D augmente avec l'ordre p et diminue avec a .

2.2 Pouvoir de résolution

Expression du pouvoir de résolution à partir du critère de Rayleigh, animation de CDIS, calcul ODG pour un réseau et mq on peut séparer le doublet du Na grâce à ce réseau. Comparer au prisme

On suppose ici une fente source infiniment fine, ainsi seule la seule limite de résolution est due à la diffraction (et non pas à la largeur de la fente).

Le critère de Rayleigh stipule que l'on ne peut séparer deux tâches de diffractions (ici de signaux qui n'interfèrent pas) que si le maximum de l'un correspond, au plus proche, au minimum de l'autre (dessin rapide au tableau ou code .py). Déterminons donc le pouvoir de résolution $PR = \frac{\Delta\lambda}{\lambda}$ qui correspond, à λ fixé, au plus petit $\Delta\lambda$ tel que λ et $\lambda + \Delta\lambda$ soient séparés par le spectro.

Le maximum du pic principal d'ordre m est observé pour

$$\Delta\varphi = \frac{2\pi}{\lambda_0} nd (\sin \theta_m - \sin \theta_i) = 2\pi m$$

, soit

$$\sin \theta_m = \sin \theta_i + m \frac{\lambda}{d}.$$

Le premier minimum nul est observé pour

$$\Delta\varphi = \frac{2\pi}{\lambda_0} nd (\sin (\theta_m + \varepsilon) - \sin \theta_i) = 2\pi m \pm \frac{2\pi}{N}$$

soit

$$\sin (\theta_m + \varepsilon) = \sin \theta_i + m \frac{\lambda}{d} \pm \frac{\lambda}{dN} = \sin \theta_m \pm \frac{\lambda}{dN}.$$

le premier minimum nul vaut donc, en valeur absolue $\delta_1 (\sin \theta_m) = \frac{\lambda}{dN}$

Par ailleurs, d'après la relation fondamentale des réseaux, $\sin \theta_m(\lambda) = \sin \theta_i + m \frac{\lambda}{d}$ et $\sin \theta_m(\lambda + \delta\lambda) = \sin \theta_i + m \frac{\lambda + \delta\lambda}{d}$. L'écart, en variable $\sin \theta_m$, entre les maxima principaux d'ordre m pour les raies de longueurs d'onde λ et $\lambda + \delta\lambda$ vaut donc $\delta_2 (\sin \theta_m) = m \frac{\delta\lambda}{d}$. Avec $\delta\lambda$ et m positifs, les raies de longueurs d'onde λ et $\lambda + \delta\lambda$ seront donc séparées à l'ordre m si et seulement si

$$\begin{aligned} \delta_2 (\sin \theta_m) > \delta_1 (\sin \theta_m) &\Leftrightarrow m \frac{\delta\lambda}{d} > \frac{\lambda}{dN} \\ &\Leftrightarrow \frac{\delta\lambda}{\lambda} > \frac{\delta\lambda_{\min}}{\lambda} = \frac{1}{mN} \end{aligned}$$

Le pouvoir de résolution intrinsèque du réseau est alors défini par : $R = \frac{\lambda}{\delta\lambda_{\min}} = m$. R augmente avec l'ordre m du spectre et le nombre N de traits utiles du réseau.

Le doublet jaune d'une lampe à vapeur de sodium est constitué de deux raies très proches de longueurs d'onde respectives $\lambda_1 = 589,0$ nm et $\lambda_2 = \lambda_1 + \delta\lambda_1 = 589,6$ nm, soit $\delta\lambda_1 = 0,6$ nm. Pour séparer le doublet au 3^e ordre ($m = 3$), le nombre de traits N du réseau doit être supérieur à $N_{\min} = \frac{\lambda_1}{m\delta\lambda_1} = \frac{589}{3 \times 0,6} \approx 330$ ($R_{\min} = 3N_{\min} \geq 1000$).

En remplaçant m à l'aide de la formule fondamentale des réseaux, on obtient :

$$R = Nd \frac{(\sin \theta - \sin \theta_i)}{\lambda} = L \frac{(\sin \theta - \sin \theta_i)}{\lambda}$$

A longueur d'onde et angles d'incidence et de diffraction donnés, le pouvoir de résolution ne dépend que de la largeur L du réseau couverte par le faisceau incident, d'où l'intérêt de construire des réseaux très larges.

Résolution du doublet du sodium



Avec un gonio ? En même temps pour une leçon c'est pas très démonstratif.

2.3 Limitations

☛ Pérez p. 362 Cependant, avec une résolution aussi bonne, on se doute bien que cette résolution n'est que théorique. En effet, ce calcul est mené pour une fente infiniment fine donc ne laissant passer aucune lumière. Un système réel possède des fente de largeur finie et le pouvoir de résolution diminue. Le pouvoir de résolution réel reste tout de même supérieur à celui d'un prisme.

Il existe encore d'autres limites à la résolution d'un réseau :

- En pratique, si on monte trop haut dans les ordres d'interférences, on peut observer un recouvrement des spectres des ordres p et $p + 1$. Cela se traduit par $\sin \theta'_{p+1}$ bleu $<$ $\sin \theta'_p$ rouge. En pratique, cela arrive dès l'ordre 3 voire 2.

- Comme on le voit sur le code .py,, la majorité de la luminosité est contenue dans l'ordre 0 qui, par définition, ne présente pas de décomposition du spectre. On manque de luminosité dans les modes d'intérêt ($p \neq 0$). Pour pallier à ça on utilise des réseaux en réflexion blazés, qui sont une suite de "marches" d'angle ajustable qui définit l'angle de luminosité maximale. On l'a vu, le pouvoir de résolution est meilleur pour les grands ordres. On peut donc diriger toute la lumière dans un ordre supérieur pour faciliter la mesure.

On a utilisé les caractéristiques du réseau pour faire des mesures spectroscopiques mais on peut aussi utiliser la figure de diffraction d'une source connue pour sonder la matière

3 Diffraction par une structure cristalline

↪ Alloul p.42

3.1 Réseaux cristallins

Rappelons tout d'abord ce qu'est un cristal. Un cristal est un ensemble de motifs disposés sur les noeuds d'un réseau appelé réseau cristallin ou réseau de Bravais. Les noeuds d'un même réseau sont reliés entre eux par des vecteurs du type :

$$\vec{R} = n_1 \vec{a}_1 + n_2 \vec{a}_2 + n_3 \vec{a}_3 \quad (1)$$

Les trois vecteurs de base définissent alors complètement le réseau de Bravais. A partir de là on peut définir la position de n'importe quel atome i du motif répété :

$$\vec{r} = \vec{R}_{\{n_1, n_2, n_3\}} + \vec{\delta}_i \quad (2)$$

avec $\vec{\delta}_i$ l'ensemble des vecteurs définissant le motif à partir d'un noeud. En définissant

On avait alors défini en correspondance du réseau cristallin, le réseau réciproque i.e. l'ensemble des vecteurs \vec{G} tels que :

$$\exp(i\vec{G} \cdot \vec{R}) = 1 \quad (3)$$

et on avait alors défini une base de ce réseau réciproque :

$$\vec{G} = h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3 \quad (4)$$

les vecteurs de base du réseau réciproque étant reliés aux vecteurs de base du réseau cristallin par :

$$\vec{a}_i \cdot \vec{b}_j = 2\pi \delta_{ij} \quad (5)$$

Enfin on avait vu que l'on pouvait organiser les motifs du réseau sous forme de plans parallèles équidistants appelés plans réticulaires. Chaque plan étant indicé par un triplet d'indices de Miller (h,k,l) et orientés par le vecteur normal $\vec{R}_{\{h,k,l\}}$ associé¹.

3.2 Formulation de Bragg et de Von Laue

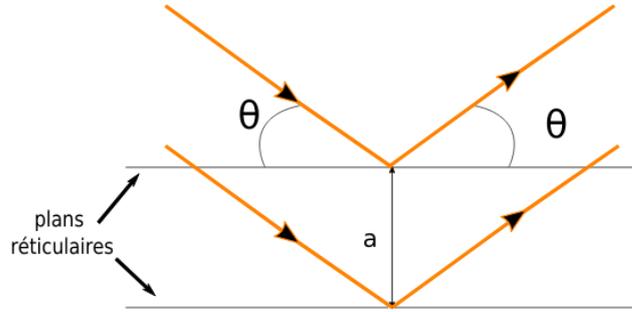
En ordre de grandeur, la distance inter-atomique dans un cristal est de 1\AA , il faut donc choisir une onde incidente qui vérifie $\lambda < 1\text{\AA}$, donc des rayons X! On peut aussi utiliser la dualité onde-particule en envoyant un faisceau d'électrons ou de neutrons accélérés afin d'obtenir une longueur d'onde de De Broglie équivalente.

1. La formule de la distance interréticulaire à partir du vecteur du réseau réciproque associé n'est pas triviale, ça dépend du tenseur métrique

Le premier modèle de diffraction par la matière a été proposé par Bragg. Celui-ci supposait que l'onde incidente se réfléchissait sur les plans réticulaires. En notant a la distance interréticulaire, on peut calculer la différence de marche entre deux réflexions sur deux plans réticulaires successifs et on a alors :

$$\delta = 2a \sin \theta \quad (6)$$

On retrouve alors ici la formule des réseaux avec $\theta_m = -\theta_i$ ce qui est logique puisque l'on passe d'un réseau de transmission à un réseau de réflexion.



Les interférences constructives ont lieu dans les directions :

$$\sin \theta_n = n \frac{2a}{\lambda} \quad (7)$$

Ce modèle (et les expériences qui en découlent) de 1913 lui valu un Prix Nobel en 1915.

En fait il y a un autre moyen de retrouver cette condition en réutilisant les résultats précédents de la diffraction sur une structure périodique. Si on note t_{motif} la transmittance associée à un motif on peut écrire par convolution la transmittance totale du cristal :

$$\underline{t}(\vec{r}) = t_{motif} \otimes \left(\sum_{n_1, n_2, n_3} \delta(\vec{r} - \vec{R}) \right) \quad (8)$$

l'amplitude de l'onde diffractée est alors de la forme :

$$A = A_0 \int \underline{t}(\vec{r}) e^{-2i\pi(\vec{k}' - \vec{k}) \cdot \vec{r}} d\vec{r} \quad (9)$$

or la transformée de Fourier d'un produit de convolution étant le produit des transformées de Fourier on a une amplitude diffractée de la forme :

$$A = A_0 TF(t_{motif}) \sum_{(n_1, n_2, n_3)} e^{-i\Delta\vec{k} \cdot \vec{R}} \quad (10)$$

De la même manière que précédemment on aura donc interférences constructives et donc une intensité maximale lorsque :

$$\exp(\Delta\vec{k} \cdot \vec{R}) = 1 \quad (11)$$

il faut donc que $\Delta\vec{k}$ appartienne au réseau réciproque! On peut montrer que cette condition est tout à fait équivalente à la condition de Bragg. En effet en notant que l'on a² :

$$\frac{2\pi}{d} = \|\vec{G}\| \quad (12)$$

alors il vient :

$$\vec{k} + \vec{G} = \vec{k}' \quad (13)$$

$$k^2 + G^2 + 2\vec{k} \cdot \vec{G} = k'^2 \quad (14)$$

2. Je ne suis pas sûr de la généralité de cette formule

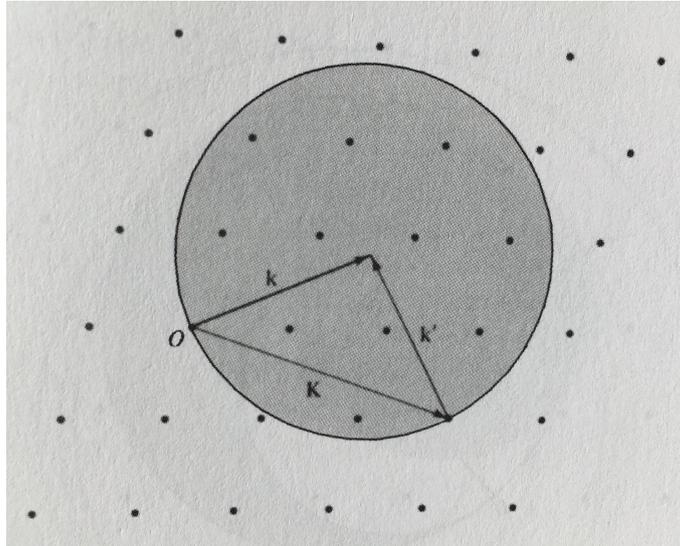
en supposant la collision élastique :

$$2\vec{k} \cdot \vec{G} = -G^2 \quad (15)$$

soit finalement en réutilisant les notations précédentes :

$$2d \sin \theta = \lambda \quad (16)$$

On retrouve donc bien la condition de Bragg! La condition de Von Laue est cependant moins intuitive mais on peut l'illustrer graphiquement grâce à la sphère d'Ewald :

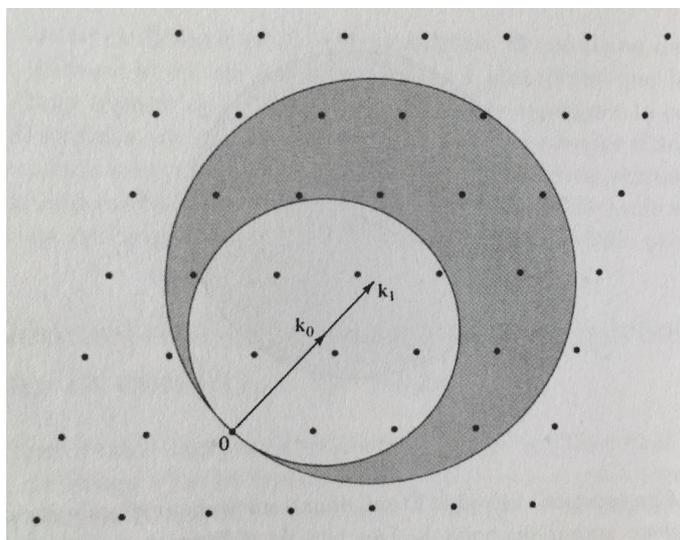


Les points blancs représentent les noeuds du cristal réciproque. On trace le vecteur \vec{k} parallèlement au faisceau incident de rayons X et on place son extrémité en un point du réseau réciproque. On trace alors une sphère de norme k (car collision élastique). On obtiendra un rayon diffracté si ce cercle touche un autre point du réseau réciproque et le rayon diffracté est ainsi parallèle au \vec{k}' déterminé. On voit alors que pour une incidence quelconque il y a peu de chance de satisfaire la condition... Il existe plusieurs méthodes pour pallier à ce problème :

➤ Ashcroft p119

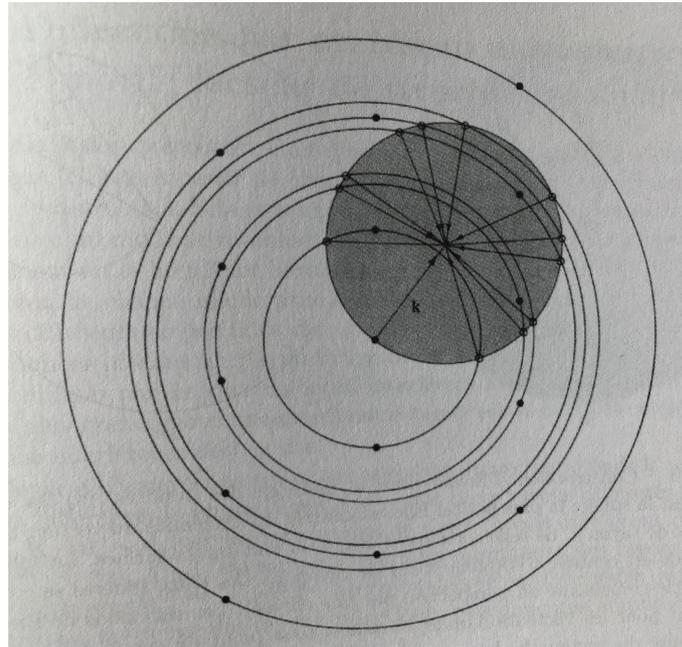
3.2.1 Méthode de Laue

On envoie un faisceau incident dans une direction fixée, le cristal est d'orientation fixé, mais le faisceau est polychromatique. L'idée est alors de scanner en faisant varier $\Delta\lambda$: on resserre l'étalement jusqu'à ne plus avoir que quelques pics.



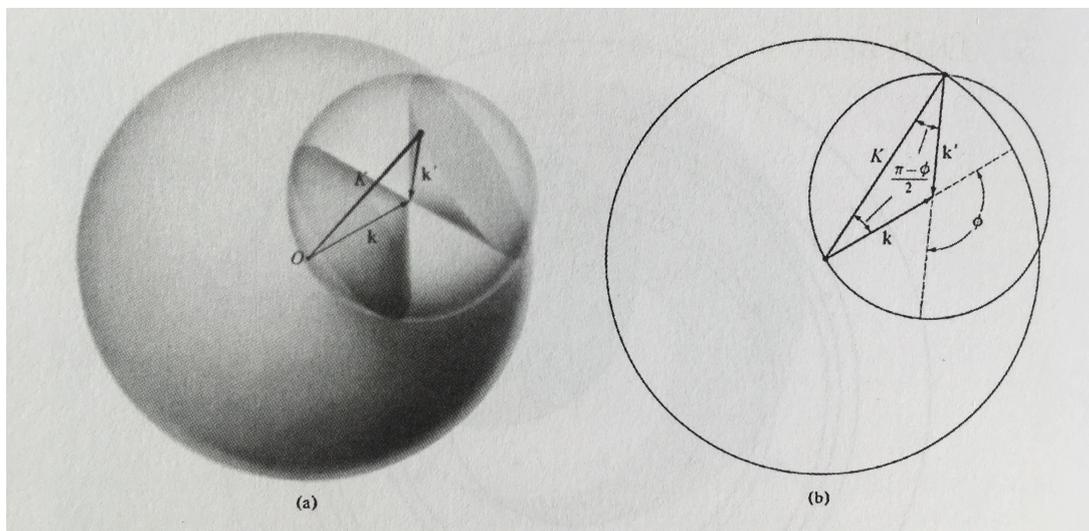
3.2.2 Méthode du cristal tournant

Cette fois on fait tourner le cristal autour d'un axe fixe. Le réseau réciproque tourne alors de la même quantité et autour du même axe mais le cercle d'Ewald lui est immobile.



3.2.3 Méthode des poudres (Debye-Scherrer)

On met le cristal sous forme de poudre, on a ainsi statistiquement toutes les orientations du cristal représentées : c'est comme le cristal tournant mais avec un axe de rotation aléatoire. On a donc plus l'intersection de deux cercles mais de deux sphères. On obtient alors un cône de faisceaux diffractés.



Chaque vecteur du réseau réciproque de norme plus petite que $2k$ engendre un cône de rayonnement diffracté d'angle ϕ dirigé vers l'avant avec :

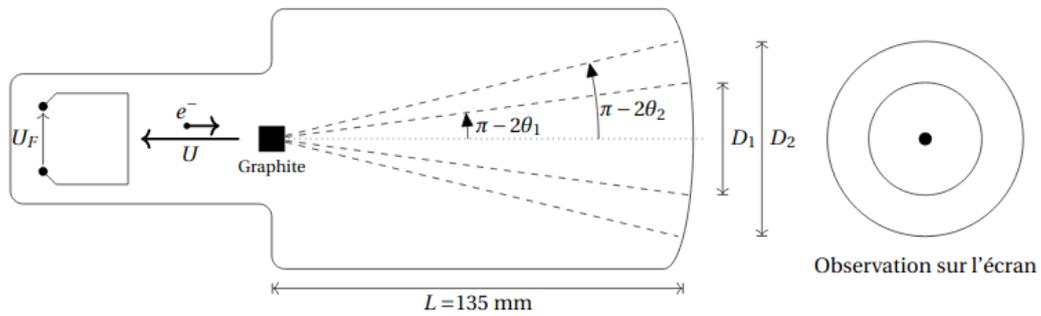
$$G = 2k \sin \frac{\phi}{2} \tag{17}$$

En reprenant l'angle défini avec la condition de Bragg, on obtient un cône d'ouverture 4θ .

3.3 Méthode de Debye-Scherrer

➤ Ashcroft p. 118

On va alors déterminer les paramètres de maille du graphène. On note que la distance entre deux plans de graphène est trop grande pour engendrer de la diffraction avec les électrons utilisés.



Diffraction des électrons par le graphène



On utilise la manip toute prête dans la collection. Pas de rayons X (dangereux!) mais un faisceau d'électrons. On a $\lambda = \frac{h}{\sqrt{2em_eU}}$. On alimente la manip (attention au branchement éclaté au sol) et on mesure l'angle de diffraction.